

ラドン検出器の開発における 静電捕集効果の評価

奈良女子大学 理学部 数物科学科

19310618

水上 寧音

担当教員：下村 真弥

2023 年 3 月

目次

第 1 章	研究背景	1
1.1	ラドンの性質	1
1.2	原子核崩壊	3
1.3	検出原理	6
1.4	先行研究	7
1.5	研究動機	7
第 2 章	検出器の構成	8
2.1	検出部	9
2.2	アナログ部	11
2.3	データ収集・制御部	16
第 3 章	方法	17
3.1	線源	17
3.2	測定手順	18
3.3	崩壊元素の同定	19
第 4 章	評価	21
4.1	検出割合	21
4.2	半減期の精度	24
第 5 章	まとめ	25
5.1	考察	25
5.2	今後の課題と展望	26
	参考文献	28

目次

1.1	ウラン系列 [2]	1
1.2	トリウム系列 [2]	2
1.3	アクチニウム系列 [2]	2
1.4	核種放射線の透過 [5]	3
1.5	減衰曲線	4
1.6	静電捕集法	6
2.1	検出器の全体概要	8
2.2	Si PIN フォトダイオード	9
2.3	Si PIN フォトダイオードの仕様	9
2.4	α 線が PD に入射する様子	10
2.5	電源基板	11
2.6	静電捕集電場の調整	11
2.7	Front End 基板：表	12
2.8	Front End 基板：裏	12
2.9	整形基板	13
2.10	サンプル&ホールドのタイミング (WID) の調整の様子	14
2.11	電圧値に対する ADC 値	15
2.12	Raspberry pi	16
3.1	Th 系列の崩壊	17
3.2	モナズ石	17
3.3	線源あり (1 日測定)	18
3.4	線源なし (2 日測定)	18
3.5	エネルギー文献値と ADC 値の関係	19
3.6	$^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$ から算出した半減期	20
3.7	$^{212}\text{Po} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ から算出した半減期	20
4.1	flowchart	22
4.2	静電捕集電圧に対する捕集割合	24

5.1	ヒストグラム	29
5.2	時間変化に対する測定値の fitting	29
5.3	ヒストグラム	29
5.4	時間変化に対する測定値の fitting	29
5.5	ヒストグラム	30
5.6	時間変化に対する測定値の fitting	30
5.7	ヒストグラム	30
5.8	時間変化に対する測定値の fitting	30
5.9	ヒストグラム	30
5.10	時間変化に対する測定値の fitting	30

表目次

3.1	捕集電圧に対する検出割合 1	19
4.1	捕集電圧に対する検出割合 1	23
4.2	捕集電圧に対する検出割合 2	23
4.3	捕集電圧に対する半減期	24
5.1	^{216}Po の捕集に必要な静電捕集電圧	25
5.2	^{212}Bi の捕集に必要な静電捕集電圧	25

第 1 章

研究背景

1.1 ラドンの性質

ラドン (Rn) は、原子番号 86、無色無臭、気体の希ガス放射性元素で質量数 195~228 までの同位体が存在する。天然では、3つの系列 (ウラン, トリウム, アクチニウム) の連続崩壊中で生成され、原子番号 84 の *Po* に α 壊変する。各崩壊については、図 1.1, 1.2, 1.3 に示す。ウラン系列から発生する ^{222}Rn がもっとも安定で、その他、トリウム系列から発生する ^{220}Rn 、アクチニウム系列から発生する ^{219}Rn が存在する。

我々の自然放射線被ばく量のおおよそ半分がラドンなどによる被ばくであり、非常に身近な放射性物質である。一方で、ラドンにはトレーサ利用や地震予知の可能性を探る材料、癌治療の一つになるのではと期待もある。

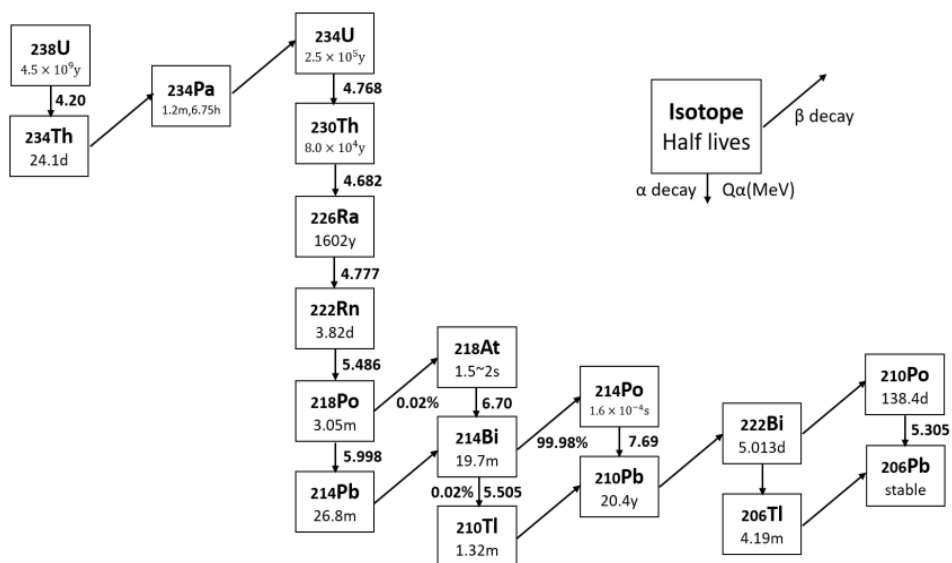


図 1.1 ウラン系列 [2]

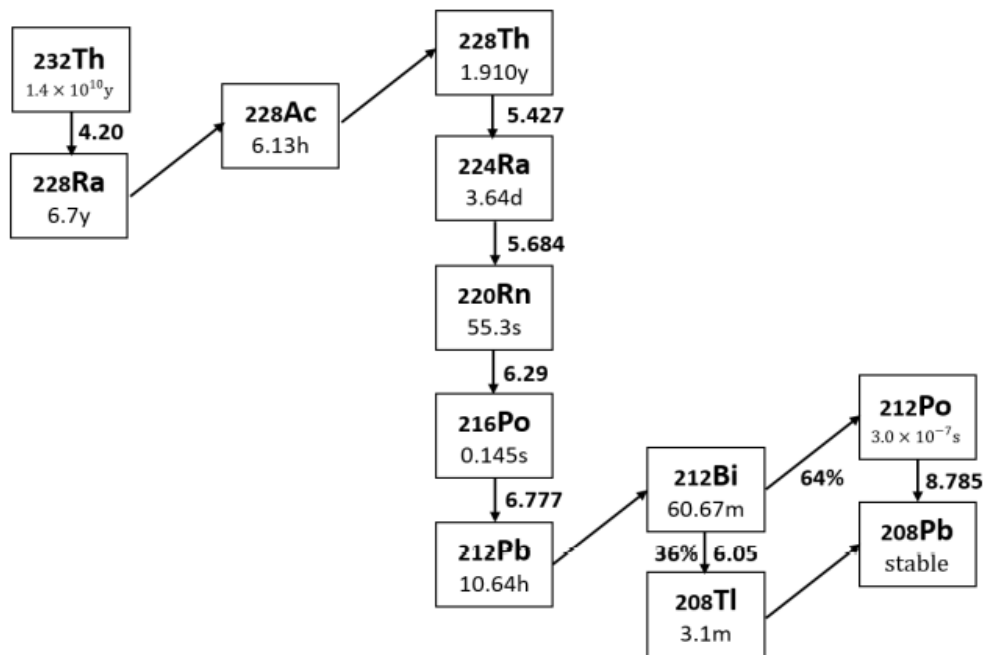


図 1.2 トリウム系列 [2]

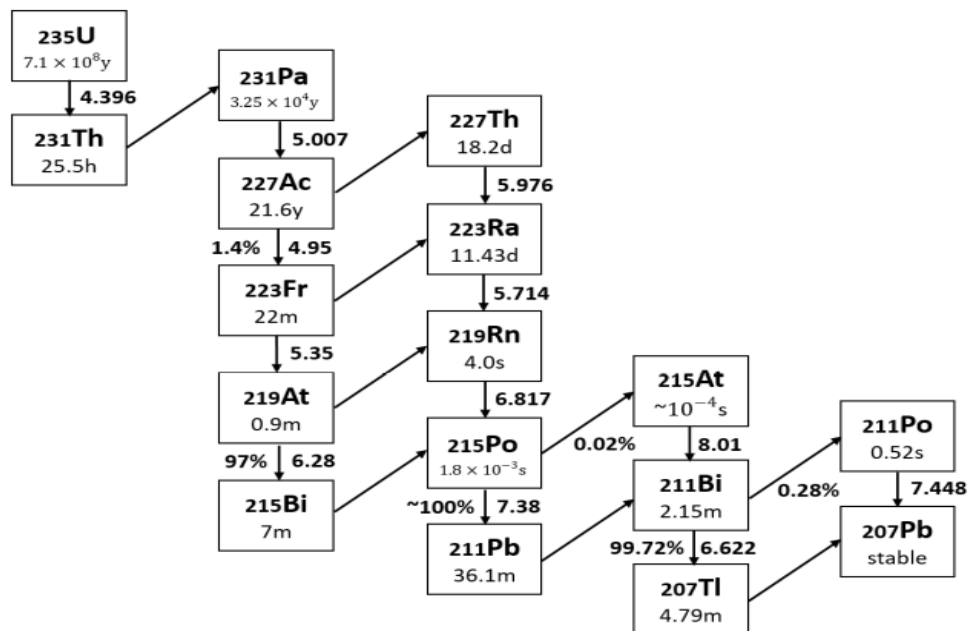


図 1.3 アクチニウム系列 [2]

1.2 原子核崩壊

1.2.1 α 崩壊

α 粒子とは、放射性同位元素の原子核から出てくるヘリウム原子核 ${}^4\text{He}$ であり、この流れを α 線という。陽子 2 個と中性子 2 個から構成され、+2 の電荷をもつため、荷電粒子線ともいい、電離作用が強く、物質中での飛程が短いことから図 1.4 で示すように紙一枚で遮蔽できる。

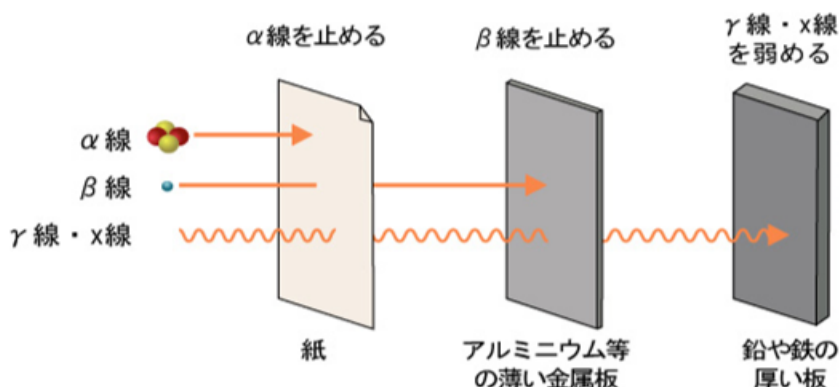


図 1.4 核種放射線の透過 [5]

また、 α 粒子を放出し、崩壊することを α 崩壊という。主に原子番号 86 以上の元素で見られ、核種 ${}^A_Z\text{X}$ が α 崩壊する反応は、次式で与えられる。



X を親核種、Y を娘核種という。質量の関係は、(左辺の質量) > (右辺の質量) で、その差は、右辺の二つの核種の運動エネルギーとなる。しかし、娘核種 Y の質量は He 原子核に比べ非常に大きいため、このエネルギーはほとんど He 原子核がもつ。エネルギーは崩壊により異なり、単一か 2 種、まれにそれ以上の一定のエネルギーをもっている。

1.2.2 半減期

原子核の崩壊は互いに独立的で確率的に起こり、微小時間 dt に崩壊する確率を崩壊定数という。時刻 t において存在する原子数を N 、崩壊定数 λ とし、壊変率は放射性核種の全原子数に比例することから、

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N(t) \quad (1.2)$$

となり、両辺を積分すると

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.3)$$

となる。このとき、 N_0 は、放射性核種の最初に存在していた原子数である。最初の原子数が $\frac{1}{2}$ に減衰するのに要する時間を半減期といい、半減期 T において、(1.2) 式を用いると、

$$\begin{aligned}\frac{1}{2}N_0 &= N_0 e^{-\lambda T} \\ \frac{1}{2} &= e^{-\lambda T} \\ T &= \frac{\log 2}{\lambda} = \frac{0.693}{\lambda}\end{aligned}\tag{1.4}$$

(2.2) 式と (2.3) 式より、 $N(t)$ は、以下のように与えられる。

$$N(t) = N_0 \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{t}{T}}\tag{1.5}$$

これは、時刻 t における半減期と原子数の関係を表し、図 1.5 の崩壊曲線と呼ばれるグラフが得られる。放射性原子核の個数は半減期にともなって指数関数的に減少する。

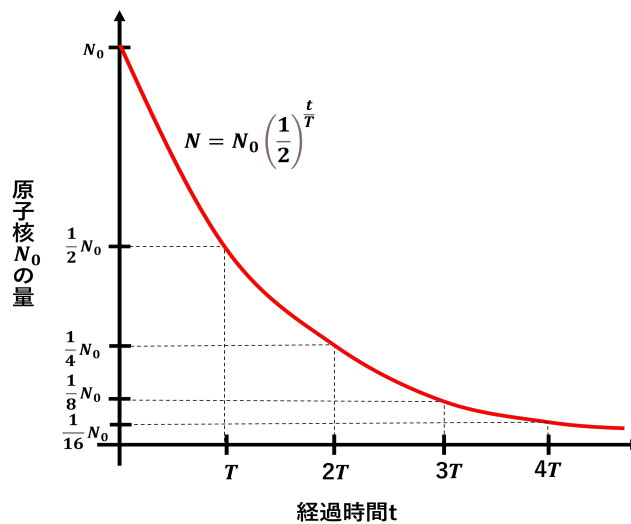


図 1.5 減衰曲線

1.2.3 逐次壊変と放射平衡

前節では、単一の放射性物質の崩壊について述べたが、ここでは、同系列での連続的な崩壊、逐次壊変について述べる。放射性核種 N_1 が娘核種 N_2 に、さらに、娘核種 N_2 が孫核種 N_3 に壊変していくことを逐次壊変という。時刻 t における各放射性物質の原子数を $N_1(t)$ 、 $N_2(t)$ 、 $N_3(t)$ 、崩壊定数を λ_1 、 λ_2 、 λ_3 とすると、(2.1) 式より以下の関係が成り立つ。

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1(t) \quad (1.6)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t) \quad (1.7)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = -\lambda_3 N_3(t) + \lambda_2 N_2(t) \quad (1.8)$$

ここで、時刻 $t = 0$ における核種の個数は、親核種のみ一定量存在するので、 $N_1(0) = N_0$ 、 $N_2 = 0$ 、 $N_3 = 0$ となる。このとき、 $N_1(t)$ は、(2.1) 式のように、また、 $N_2(t)$ 、 $N_3(t)$ は、一般項 $N_n(t) = Ae - Bt$ (A : 定数) から求められる。

$$N_1(t) = N_0 e^{-\lambda_1 t} \quad (1.9)$$

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (1.10)$$

$$N_3(t) = \lambda_1 \lambda_2 N_0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \quad (1.11)$$

逐次壊変において、親核種 N_1 の半減期が娘核種 N_2 、孫核種 N_3 の半減期より長い場合 ($\lambda_1 < \lambda_2, \lambda_3$) を放射平衡という。このとき、時間 t が充分大きくなると、 $e^{-\lambda_2 t}, e^{-\lambda_3 t} \ll e^{-\lambda_1 t}$ となるので、 $N_1(t)$ 、 $N_2(t)$ 、 $N_3(t)$ は、

$$N_1(t) = N_0 e^{-\lambda_1 t} \quad (1.12)$$

$$N_2(t) \simeq \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} \quad (1.13)$$

$$N_3(t) \simeq \frac{\lambda_1 \lambda_2 N_0}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} e^{-\lambda_1 t} \quad (1.14)$$

より、

$$\frac{N_2(t)}{N_1(t)} \simeq \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \sim \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \quad (1.15)$$

$$\frac{N_3(t)}{N_1(t)} \simeq \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} \sim \frac{\lambda_1}{\lambda_3} \quad (1.16)$$

となる。したがって、親各種と娘各種、孫核種の比は一定かつ崩壊定数 λ の逆比となる。

1.3 検出原理

1.3.1 静電捕集法

ラドンの収集方法として『静電捕集法』を用いた。静電捕集法とは、ステンレス缶内の検出部に静電場をかけることで、大気中での飛程が数 cm 程度の α 線を効率よく捕集する方法である。その様子を図 1.6 に示す。ラドンは α 線を放射しポロニウムへ崩壊する際、 $^{216}\text{Po}^+$ の陽イオンとなる。フォトダイオードの表面に負の電圧 ($-100\sim 1000[\text{V}]$) を、容器の内面をグラウンドに (0V) をとり、缶の縁からフォトダイオードの表面に向かって一様な静電場を作ることで、 $^{216}\text{Po}^+$ が引き寄せられ、吸着する。その後、表面付近に集められたポロニウムイオンが再び α 崩壊するので、この α 線のエネルギーを測定する。さらに同じ崩壊系列中で、 α 崩壊が存在するため同様に測定を行う。このようにラドンの娘各種の α 崩壊で生じる α 線のエネルギー値を観測することで、間接的にラドンの測定を行う。各崩壊によって α 線のエネルギー値が異なるため、デジタル信号である ADC 値として識別する。本研究では、検出部かける静電場の違いにより、収集効率がどの程度変化するか調べる。

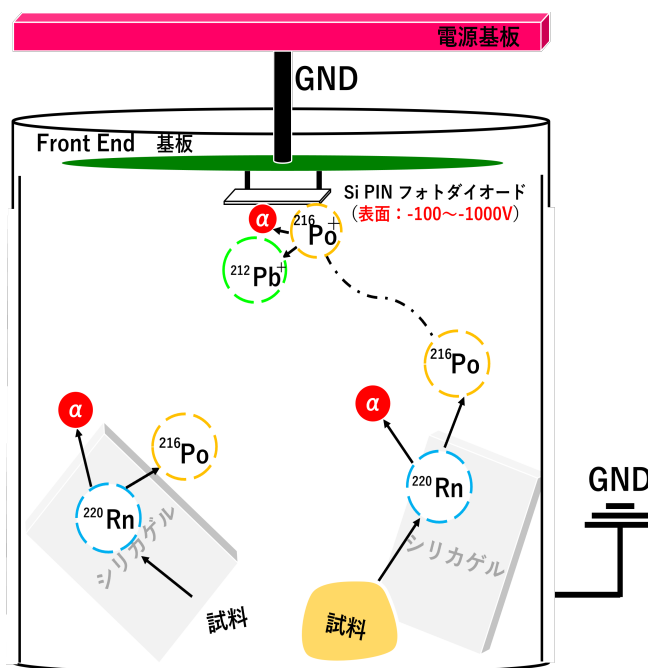


図 1.6 静電捕集法

1.4 先行研究

ラドンは、以前からカミオカンデ検出器の主要なバックグラウンドの1つとして注目され、それを探るために検出器の開発が行われていた。これらを参考に、本実験で使用したラドン検出器の開発が行われてきた。「身近な放射性物質ラドンを通し、原子核崩壊や半減期を学ぶための物理教材として使用してもらいたい」といった思いから、筑波大学の三明康郎特命教授を中心に、本学や他大学でも「静電捕集法」を用いたラドン検出器に関する研究が行われた。波高分析システムの向上、シングルボード(マイクロ)コンピュータの搭載、検出部にあたるステンレス缶の改良が進んだ。これにより、年々安価かつ小型であることに加え、感電のリスクが少ない低電圧な構成となった。

1.5 研究動機

現在、ラドン検出器にかかる静電捕集電圧は、-100Vである。低電圧であっても、半減期の見積もりに必要なラドンの娘各種の崩壊で発生する α 線の測定が可能になった。しかしながら、-1000Vのような高電圧と比較すると、測定精度は落ちている。そこで、本実験では、安全に使用でき、かつ、測定に十分なイベント数を確保するための電圧を探る。検出部にかかる電圧を変化させ、ラドンの娘各種による α 線の吸着割合についてシミュレーションを用いながら算出することで、最終的には単位時間当たりのラドンの濃度の見積もりを試る。また、低電圧基板の改良に向けた向上を図るため、静電捕集電圧の測定結果から、電圧がもたらす性能低下の要因を探る。

第 2 章

検出器の構成

検出器の構成概要を図 2.1 に示す。ラドンの線源を封入し、ラドンの娘核、Po や Bi 等が崩壊したときに生じる α 線を PD で検出する検出部、検出された電荷を電圧に変換し、波形信号を整形・増幅を経て閾値を超えた信号のみ保存を促すアナログ部、データの収集と検出器の測定制御を行うデータ制御・収集部の 3 部構成となっている。以下、この 3 部について順に述べる。

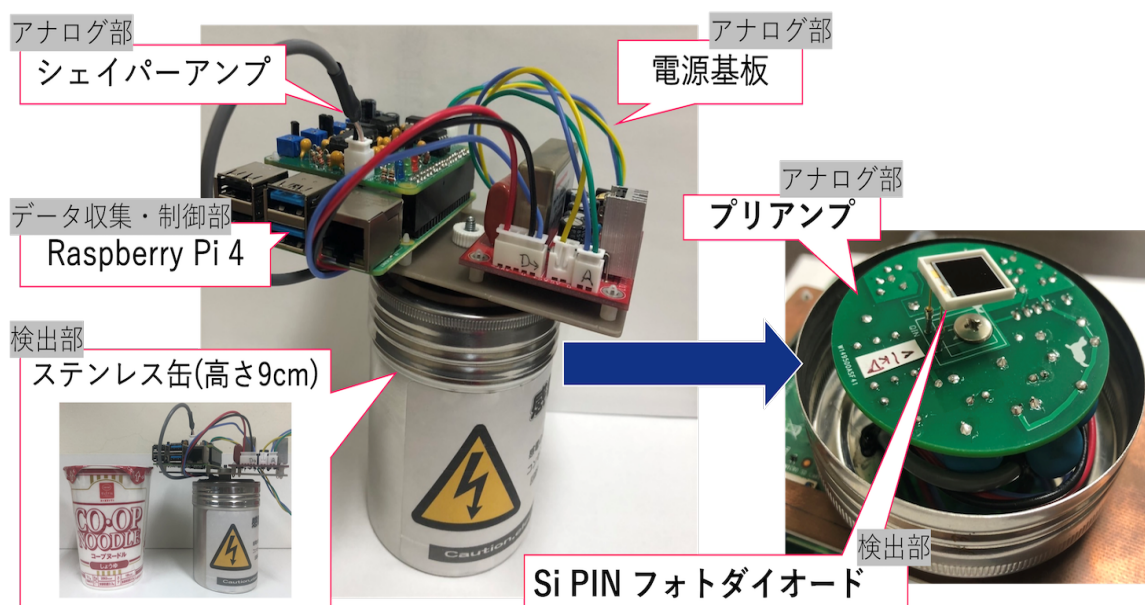


図 2.1 検出器の全体概要

2.1 検出部

2.1.1 ステンレス缶

フォトダイオードは、放射線だけでなく、光も検出する。そのため、検出部に光が入らないよう、本研究では、直径約 7cm、高さ約 9.5cm で円柱状の密閉されたステンレス缶を用いた。また、ステンレス缶上部の蓋に穴をあけ、金属製のネジを通し、蓋の外部分に電源基板を、内部分には PD を取り付けたフロントエンド基板をつけた。ステンレス缶の縁の接地だけでなく、各基板の接地をとる役割をも担う。

2.1.2 Si PIN フォトダイオード

今回実験では、ラドンの娘核が α 崩壊した際に発生する α 線のエネルギーをフォトダイオードによって検出することで、ラドンを間接的に検出する。

使用したのは、Si PIN フォトダイオード、Hamamatsu S3590-09 で、図 2.2 に外観、表 2.3 に PD の仕様を示す。

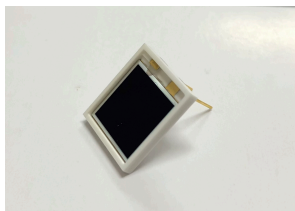


図 2.2 Si PIN フォトダイオード

図 2.3 Si PIN フォトダイオードの仕様

型名	S3590-09
受光面サイズ [mm]	10×10
空乏層厚 [mm]	0.3
最大逆電圧 [V]	100
許容損失 [mW]	100
動作温度 [$^{\circ}C$]	-20~+60
最大感度波長 [nm]	960
感度波長範囲 [nm]	340~ 1100
最大暗電流 [nA]	6
遮断周波数 [MHz]	40
端子間容量 [pF]	40

PIN フォトダイオードとは、受光面側の P 層と基板側の N 層の間に真性半導体の I 層を挟み込んだ 3 層構造の半導体素子である。p 型半導体では正孔がキャリアに、n 型半導体では電子がキャリアになっている。また、I 型半導体は空乏層になっており、この層に光や放射線が入射すると、電子-正孔対が生成され、それぞれ正孔は P 層へ、電子は N 層へ流れる。このとき、フォトダイオードが外部電源に接続されていれば、それぞれ反対の極へ移動するため、電流とし回路に流れるため電気信号として検出される。この様子を、図 2.4 に示す。空乏層が広い PIN 型のフォトダイオードは、高感度で高速な応答特性をもち、エネルギー分解能が高いことから、X 線や放射線の検

出に適している。本研究では、Rn の娘各種が PIN フォトダイオード付近で α 崩壊する際に放出する α 線を検出し、間接的に Rn を測定する。

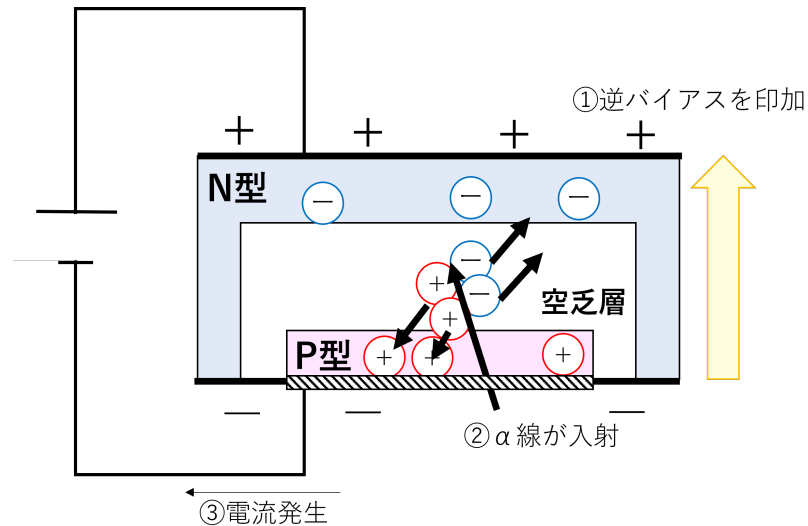


図 2.4 α 線が PD に入射する様子

また、 α 線の入射によって得られる電気信号について考える。シリコンでは、1 個の電子-正孔対を作るには、3.6eV のエネルギーが必要とされる。ここで、フォトダイオードに 6 MeV の α 線が入射した際に生成される電子-正孔対は、以下のように表せられる。

$$\frac{6.0 \times 10^6 [eV]}{3.6 [eV]} = 1.7 \times 10^6 [\text{個}] \quad (2.1)$$

ここで、素電荷 $1.6 \times 10^{-19} [C]$ から、電気量は、

$$1.7 \times 10^6 [\text{個}] \times 1.6 \times 10^{-19} [C] = 2.7 \times 10^{-13} [C] \quad (2.2)$$

より、 $t = 1 [\mu s]$ 時に流れる電流は、 $I = dQ/dt$ より、

$$\frac{2.7 \times 10^{-13} [C]}{1.0 \times 10^{-6} [\mu s]} = 2.7 \times 10^{-7} [C/\mu s] \quad (2.3)$$

となる。このように、1 つの α 線の入射によって得られる電気信号は、とても微量なため、増幅しないとみられない。

2.2 アナログ部

アナログ部は、各基板に電源供給を行う電源基板、PDに入射した微量な電荷を電圧値に変換するフロントエンド基板、変換された値を波形整形・増幅を行う整形基板の3つから構成されている。

2.2.1 電源基板

電源基板は、プリアンプ基板、整形アンプ基板、raspberry pi に電源を供給する役割を担う。図 2.5 に使用した基板を示す。コンセントから電源を取り、電圧を昇圧または降圧し、各基板の必要とする電源を供給している。Front End 基板には、ラドンガスを効率的に捕集するため、-100～1000V の静電捕集電場をかける。捕集にかける電圧の調整の様子を図 2.6、浜松ホトニクスのもジュール型高圧電源と HV ジャンパー（右上の青い素子）、電圧モニターとしてテスターを用いて、捕集にかける電圧の調整の様子を図 2.6 に示す。HV ジャンパーは取り外し可能で、外すことにより高電圧部分のスイッチを切ることができる。

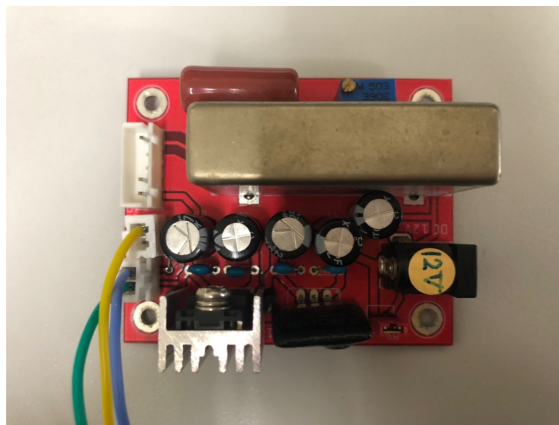


図 2.5 電源基板

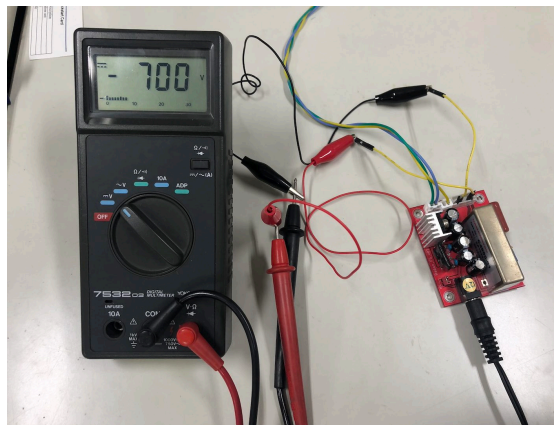


図 2.6 静電捕集電場の調整

2.2.2 Front End 基板

Front End 基板は、si PIN フォトダイオードからラドンの信号を検出するという重要な役割を果たしている。図 2.7,2.8 に使用した Front End 基板を示す。ステンレス缶の蓋の裏に接地となるよう取り付けられた。主に高電圧分割回路とチャージセンシティブアンプ回路が組み込まれており、si PIN フォトダイオードに α 線が入射し流れた微小な電流を、チャージセンシティブアンプ回路で電圧信号に変換する。そのようにして変換された電圧信号は、整形アンプへ流れていくように配線されている。また、電源基板から供給された電圧の安定化を図るため、シャントレギュレータ回路を組み込んでいる。

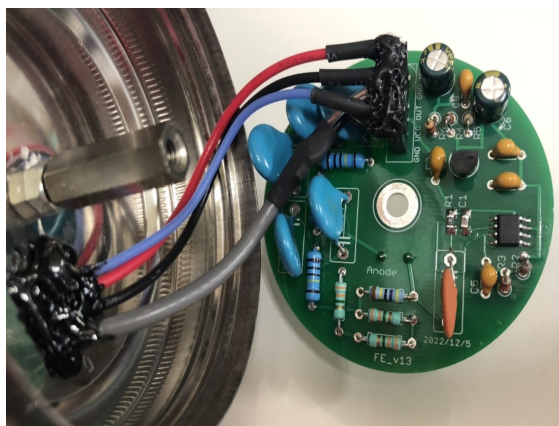


図 2.7 Front End 基板：表



図 2.8 Front End 基板：裏

回路の概要

- 高電圧分割回路
1章で述べた静電捕集法に必要な静電場 (-100 -1000V) を作ると同時に、高電圧を抵抗分割し PIN フォトダイオードに逆バイアス (<-100V) をかける回路である。1つの高電圧回路から、必要な電圧を分割させることで、同じ電源からの供給することができる。
- シャントレギュレータ回路
電源基板から入力電圧から一定の電圧を引き、安定した出力電圧を維持するための回路で抵抗と Zener ダイオードから構成される。並列に接続された Zener ダイオードは、逆方向に使用されると定電圧特性を示し、これによって出力電圧を一定に保つことができる。
- チャージセンシティブアンプ回路
微小な α 線の電荷を電圧信号に変換し、増幅するための回路で高い感度と低いノイズを持つため、素粒子物理学の実験、放射線検出器、X線検出器など、多くの分野で使用されている。

2.2.3 整形基板

Front End 基板で電圧信号に変換された電流は非常に微弱であるため、整形基板を用い、その信号を増幅・波形整形を行う。そして、閾値を超えたアナログ信号の電圧のみ、デジタル信号に変換し測定時間と共に Raspberry pi のファイルへ書き込みを促す。図 2.9 に基板と機能の一部を示す。

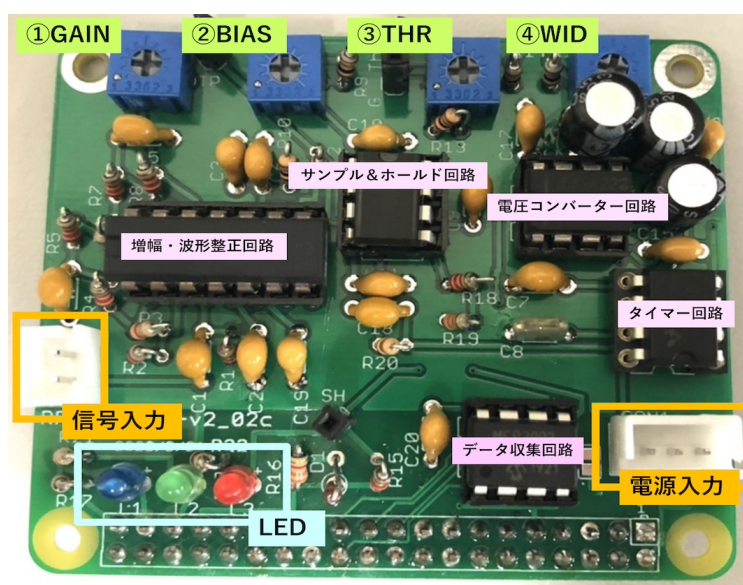


図 2.9 整形基板

LED は、それぞれ測定状況を示す役割がある。青色は測定中であることを、緑色は入ってきた信号がファイルに書き込まれたことを、赤色は si PIN フォトダイオードに α 線が入射し電流が流れたことを示す。基板上部の 4 つの半固定抵抗は、各パラメータを適宜調整できる。

基板の調整

調整には、Digilent 社の Analog Discovery2 と WaveForms と呼ばれるソフトウェアを使用した。図 2.10 に各パラメータの調整を行った際の WaveForms の画面を示す。上の黄色い波形は、 α 線の信号を想定して疑似的に作成した。 α 線の電圧信号のピーク値で、青色の波形にあたるサンプル&ホールド回路のスイッチ制御用矩形波が立ち下がるように調整を行った。

- GAIN：増幅率
- BIAS：オフセット
- THR：閾値
- WID：サンプル&ホールドのタイミング

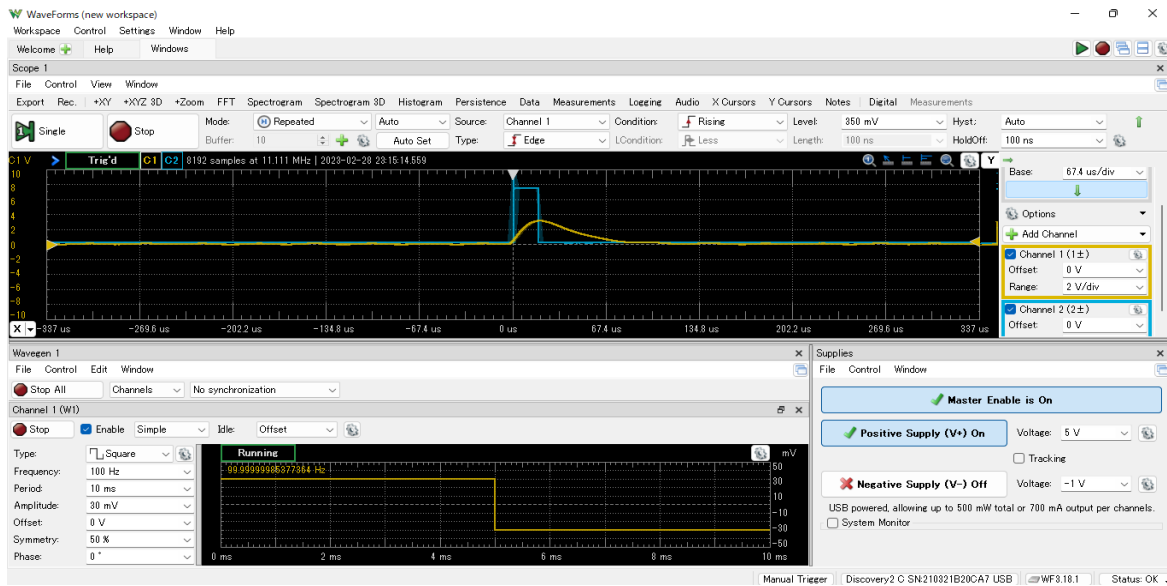


図 2.10 サンプル&ホールドのタイミング (WID) の調整の様子

回路の概要

- 波形増幅・整形

整形・増幅回路は、電圧信号の増幅・整形を行っている。時定数 τ の微分・積分回路を組み合わせた回路を通すことにより、図 2.10 の左下の矩形波だった電圧信号は、上の黄色い波形のような近似ガウス波形の信号になる。

微分回路 (CR 回路)：高周波信号を通し、低周波信号を減衰させるハイパスフィルタ

積分回路 (RC 回路)：低周波信号を通し、高周波信号を減衰させるローパスフィルタ

- サンプル&ホールド

近似ガウス型の波高値を ADC 値に呼び出すため、数 \sim 10ms の間電圧を一定に維持するための回路になっている。

整形アンプの線形性

α 線のエネルギー信号から変換された電圧値と整形アンプから出力された ADC 値には、比例関係がある。しかし、使用する整形アンプによって比例の関係は異なる。そのため、前節で用いた Analog Discovery2 と WaveForms を使って、本研究で使用した基板の動作テストを行った。整形アンプ基板に 0~90 mV の電圧信号を入力し、入力電圧に対する出力値の関係から図 2.11 の結果が得られた。

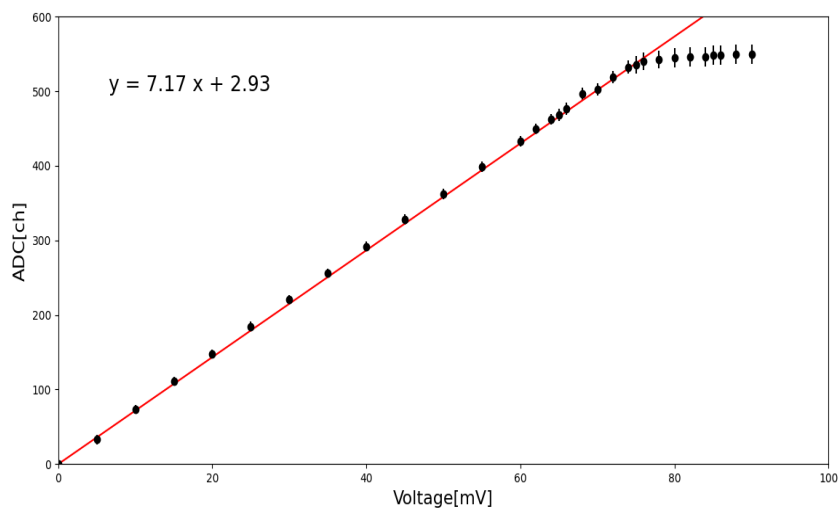


図 2.11 電圧値に対する ADC 値

近似線は、線形性が確認できた 75mV 未満範囲でフィットをした。75mV 未満では、線形性が確認できたため、電圧信号から ADC 値に正常に変換されている。また、75mV 以上では、線形性が崩れていたことから、正常に変換できていないと考える。これらの結果から、出力結果 540ch 以下では、電圧値から ADC 値へと正常に変換されたと考えて良いことがわかる。

2.3 データ収集・制御部

2.3.1 Raspberrypi

整形基板で増幅したアナログ信号をデジタル信号に変換し保存するため、図 2.12 に示したラズベリーパイ 4 を使用した。ラズベリーパイ財団によって開発され、ARM プロセッサが搭載されたシングルボードコンピュータである。これにより、AP 化無線 RAN で使用可能となった。

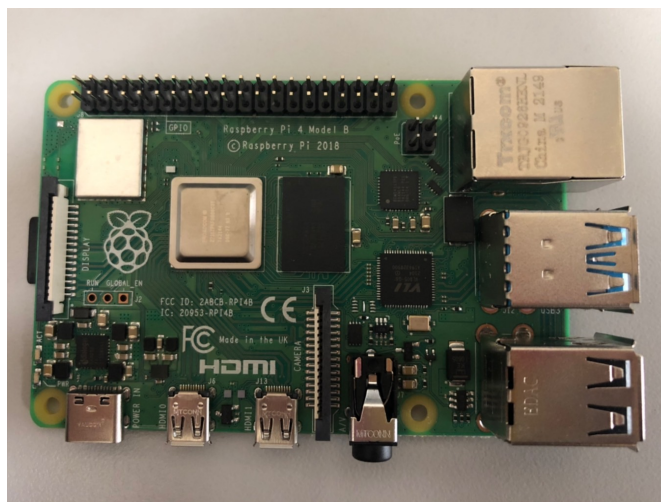


図 2.12 Raspberry pi

2.3.2 ウェブサーバシステム

測定の制御や取得データの確認等などは、筑波大学の三明康郎特命教授が作成したウェブサーバを活用した。このウェブサーバは、タブレット端末等でラズベリーパイの無線 RAN に接続しているとき、ラズベリーパイ上で動くようになっている。測定したデータをサーバ上で確認ことができ、さらに、ADC 分布、ピーク解析、時間条件を定めての解析、半減期の算出など多彩な機能が備わっている。解析時の各パラメータ調整やデータのダウンロードをはじめ、ラズベリーパイのシャットダウンなども可能で、非常に便利なシステムが構築されている。

第3章

方法

3.1 線源

本研究を行うにあたり、ラドンの線源としてモナズ石を用いた。モナズ石とは、花崗岩ペグマタイト中に産出される鉱石で、セリウム・ランタン・トリウムを含むリン酸塩鉱物である。放射性物質であるトリウムを含むため、トリウム系列の崩壊 (図 3.1) が期待できる。図 3.2 に実際に使用したモナズ石を示す。左の縦 9.00mm 横 18.5mm 重さ 2.85g と右の縦 11.2mm 横 16.55mm 重さ 2.29g の2つを使用した。どちらも、ブラジルのノボリゾンテ地区で採掘されたものである。

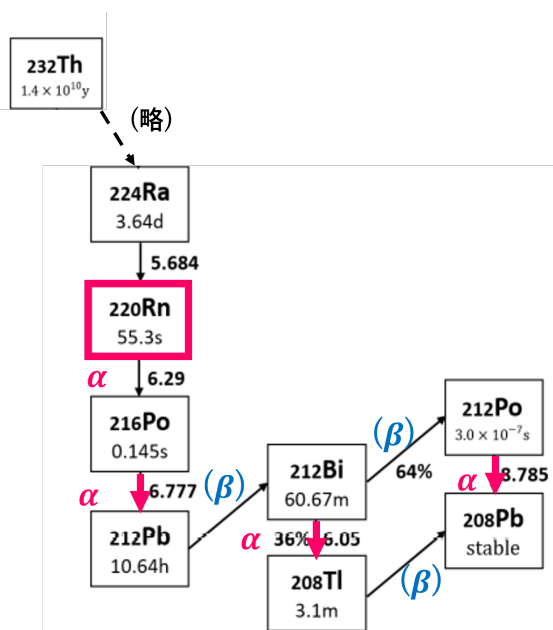


図 3.1 Th 系列の崩壊



図 3.2 モナズ石

3.2 測定手順

静電捕集にかかる電圧を調整したのち、ステンレス缶に線源を入れ1日測定を行った。その後、線源を抜き、さらに2日測定を行い、崩壊元素の同定を行った。線源を入れ、1日測定した測定データを図 3.3 に、その後、線源を抜き2日測定したデータを図 3.4 に示す。

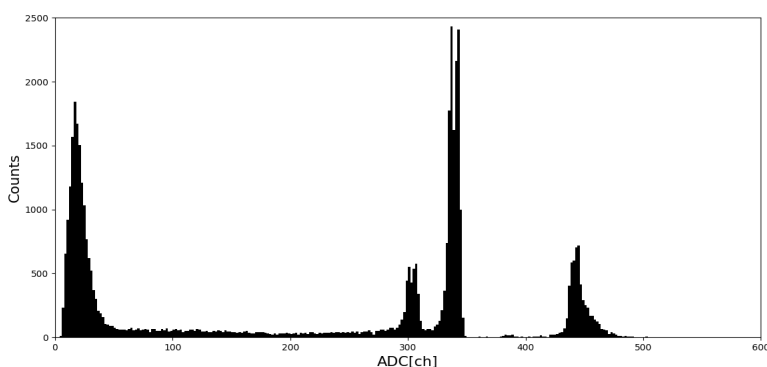


図 3.3 線源あり (1日測定)

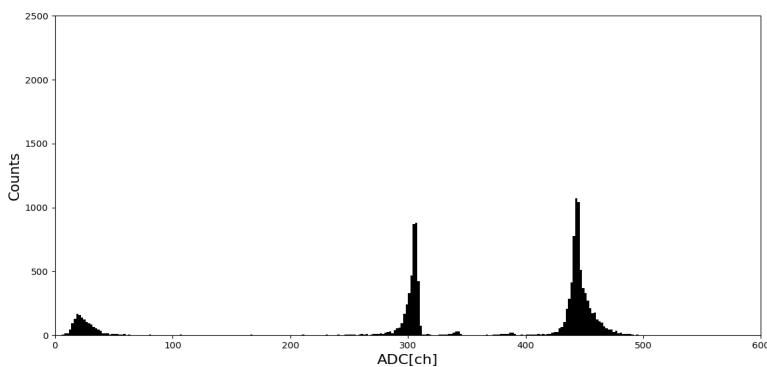


図 3.4 線源なし (2日測定)

線源ありの測定では、左に1つのピーク、右に3つのピークが検出された。また、線源なしの測定では、右3つのピークのうち、真ん中のピークが消えた。20ch付近にある左のピークは、線源を抜くとイベント数の減少が見られたため、線源から発生しており、崩壊時に、発生するエネルギーの低い β 崩壊や γ 崩壊による可能性が高い。右3つのピークは、用いた放射線源にはTh系列のラドンを含むため、 ^{220}Rn の娘核、 ^{216}Po 、 ^{212}Bi 、 ^{212}Po の α 崩壊によると考えられる。

3.3 崩壊元素の同定

前節で予想した崩壊元素 ^{216}Po 、 ^{212}Bi 、 ^{212}Po は適切であるか、ADC 値とエネルギー値の関係と半減期から判断を行った。

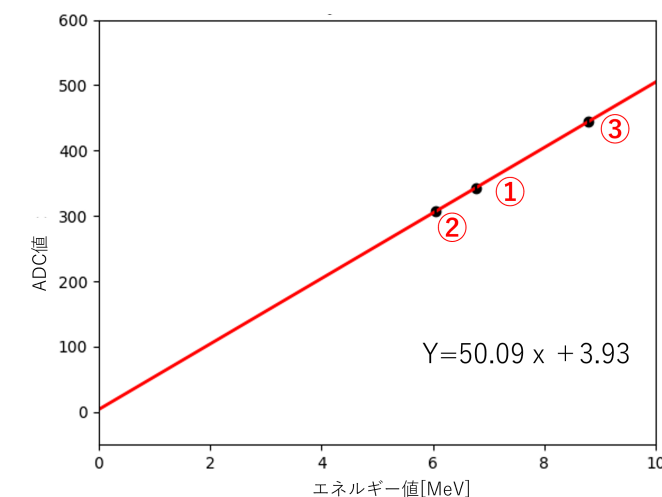
3.3.1 ADC 値とエネルギー値の関係

2.2.3 の結果より、540ch 以下で線形性が保たれることから、予測した α 線のエネルギーが正しければ、電圧値を経て変換された ADC 値との間には線形性を確認できると考える。そこで、予測した α 線のエネルギー文献値と、各ピークの ADC 値の整形性の有無について確かめた。図 3.5 に示す。

表 3.1 捕集電圧に対する検出割合 1

	^{220}Rn の娘核	α 線のエネルギー文献 [MeV]
1	^{216}Po	6.78
2	^{212}Bi	6.05
3	^{212}Po	8.79

図 3.5 エネルギー文献値と ADC 値の関係



一次関数 (エネルギー値: x 、ADC 値: y) でフィッティングを行い以下の近似線が得られた。

$$y = 50.09x + 3.93 \quad (3.1)$$

線形性を確認できたことから、それぞれトリウム系列の核種である ^{212}Bi 、 ^{216}Po 、 ^{212}Po に該当するものと考えられる。

3.3.2 半減期

線源を取り除いた後ステンレス缶内に残る物質は、図 3.1 のラドンの娘核種のうち、半減期の長い ^{212}Pb 以降の物質となる。3.1 のうち 2 の ^{212}Bi の α 崩壊による約 270ch \sim 300ch 付近のピークと 3 の ^{212}Po の α 崩壊による 400ch \sim 450ch 付近のピークについて、解析を行い、それぞれ ^{212}Pb の半減期 10.64h の値を得られるか確認した。時間経過に対し検出された α 線のイベント数の関係から最小値二乗法によってフィッティングすることで半減期を求めることができる。具体的には、(1.9) 式の減衰関数を用いてフィッティングから崩壊定数を求めた後、(1.4) 式から半減期を算出した。図 3.6 及び図 3.7 に、一例を示す。

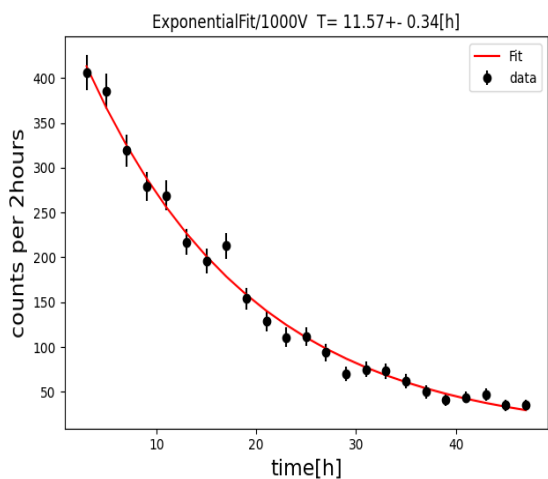


図 3.6 $^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$ から算出した半減期

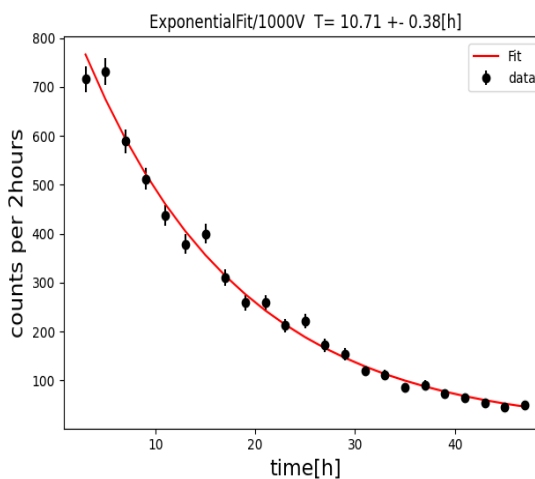


図 3.7 $^{212}\text{Po} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ から算出した半減期

それぞれのピークから算出し、以下の半減期を得ることができた。

$^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$ から算出した半減期：11.57 \pm 0.34[h]

$^{212}\text{Po} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ から算出した半減期：10.71 \pm 0.38[h]

$^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$ のピークから算出した半減期は、誤差範囲内に文献値 10.64h は収まらなかったものの、近い値となった。また、 $^{212}\text{Po} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ のピークから算出した半減期は、誤差範囲以内に文献値 10.64h が収まった。これらの結果から、図 3.4 で得られた右 2 つのピークの予測は正しいことが証明された。

ADC 値とエネルギー値の関係と半減期の結果から、放射線源モナズ石から検出される 3 つのピークは、 ^{220}Rn の娘核、 ^{216}Po 、 ^{212}Bi 、 ^{212}Po である。次章では、静電捕集電圧の変化に対し、同定した 3 つの崩壊元素に変化解析結果を示す。

第4章

評価

静電捕集電場の変化に対する検出器の性能評価について、第3章で示した測定手法で実験を行ったのち、 α 線の検出割合と半減期の精度から行った。

4.1 検出割合

測定で得られた値と検出割合を考慮した崩壊シミュレーションの比較を行い性能評価を行った。以下、解析で用いたシミュレーションと測定結果について順に示す。

4.1.1 シミュレーション

このシミュレーションでは、モナズ石から発生するラドンの放射性崩壊によって生成される娘核種のうち、 α 壊変する娘核種についてシミュレーションを行っている。具体的には、測定で得られた α 線を放出する物質、 ^{216}Po 、 ^{212}Bi 、 ^{212}Pb の3つについてである。

最初に、初期値として3つの娘核種の物質量をそれぞれ0に設定する。次に、各娘核種の崩壊定数(λ_1 、 λ_2 、 λ_3)を計算を行った。これらの値は、各娘核種が半減期の間どのくらい崩壊するかを示している。そして、シミュレーションの単位時間を設定し、時間 $t=0$ から単位時間当たりの崩壊について考える。 ^{216}Po から ^{212}Pb への崩壊と、 ^{212}Bi から ^{208}Tl または ^{212}Po から ^{208}Pb への崩壊の2つのプロセスが起こる可能性がある。ただし、 ^{212}Po の半減期が短いことから、 $^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ の1つの崩壊と見なす。これらのプロセスは、それぞれ検出率 ^{216}Po と ^{212}Bi の捕集割合のパラメータをきめることで制御される。さらに、各同位体の数が時間とともにどのように変化するかを計算する。これは、時間 t での各同位体の崩壊率に基づいて、前のステップでの同位体数と供給される同位体数に応じて行われる。最後に、更新された同位体数を新しい初期値とし、測定時間3日間に達するまで同様繰り返す。

図4.1に、解析に用いた崩壊シミュレーションのフローチャートを示す。

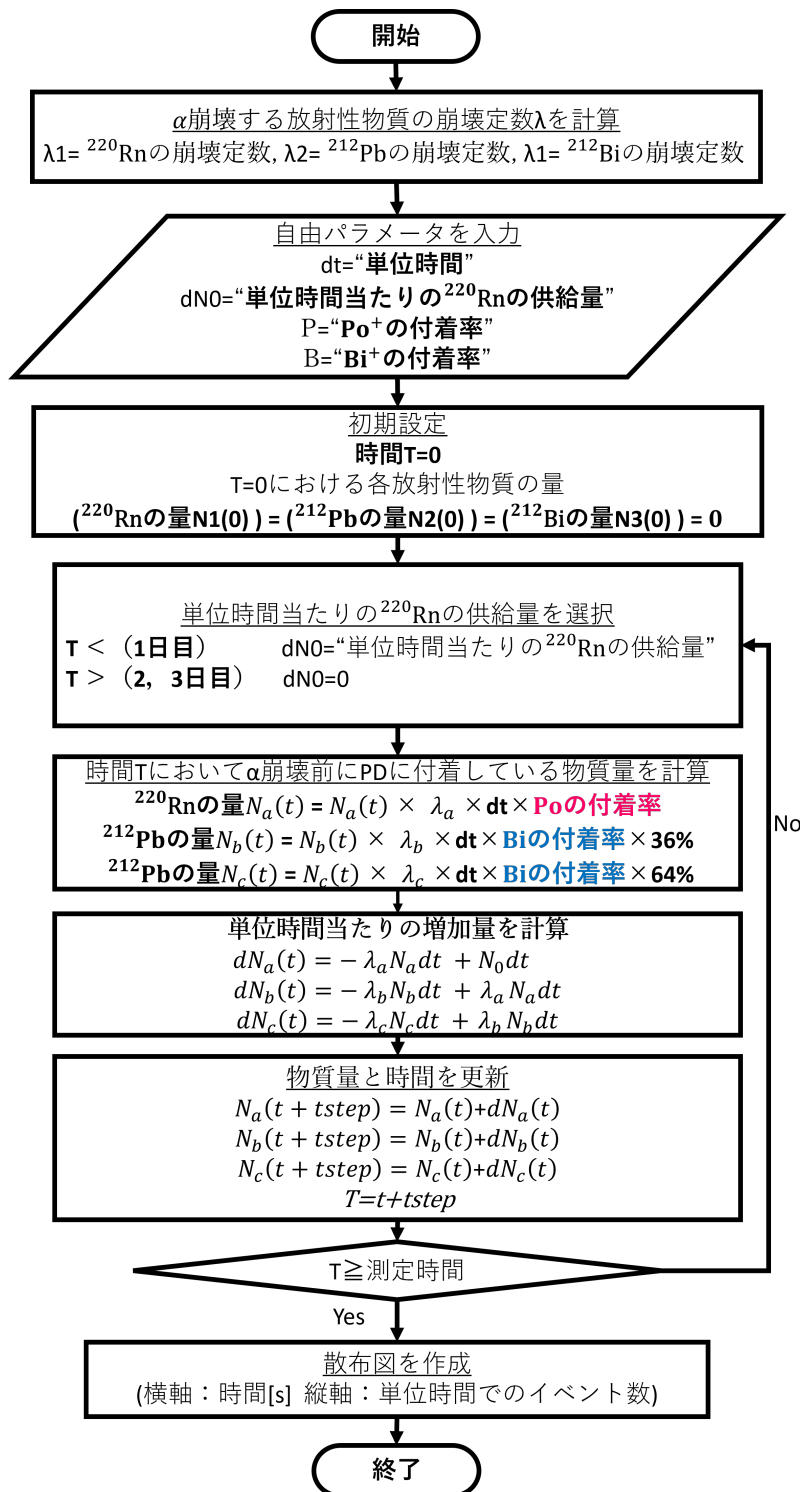


図 4.1 flowchart

4.1.2 比較1

-150V と-250V の電圧をかけ測定を行い、前節で述べた崩壊シミュレーションを用いて検出割合を算出した。-250V の ^{212}Bi の検出割合を 100 % とすると、その他の検出割合は、表 4.1 と定めることができた。

表 4.1 捕集電圧に対する検出割合 1

静電捕集電圧 [V]	検出割合 p[%]	検出割合 b[%]
-250	27.0	100
-150	10.5	75.0

^{216}Po だけでなく、半減期 10.6h の ^{212}Pb の α 崩壊で生成する ^{212}Bi の検出割合についても電圧の依存性がみられた。-250V の ^{212}Bi は、ほぼ 100 % であることを示唆しているがそれを確かめるため、さらに電圧を上げて測定を行った。

4.1.3 比較2

4.1.2 と同様、-100V から-1000V の電圧をかけてさらに測定を行い、検出割合を算出した。表 4.2 その結果を示す。

表 4.2 捕集電圧に対する検出割合 2

静電捕集電圧 [V]	検出割合 p[%]	検出割合 b[%]
-1000	57.0±5.4	100.0±4.2
-700	10.5±3.4	99.6±6.4
-500	27.0±4.1	97.2±3.4
-300	10.5±3.4	101.1±6.4
-100	27.0±2.1	78.0±5.6

また、上記の結果から図 4.2 に静電捕集電圧に対するそれぞれの検出割合の関係よりフィッティングを行い近似線を求めた。フィッティングには、静電捕集電圧 0V で検出割合 0 % であること、一定の割合で収束するという仮定のもと、以下の関数を用いた。

$$y = A(1 - e^{-Bx}) \quad (4.1)$$

ただし、A,B は定数とする。

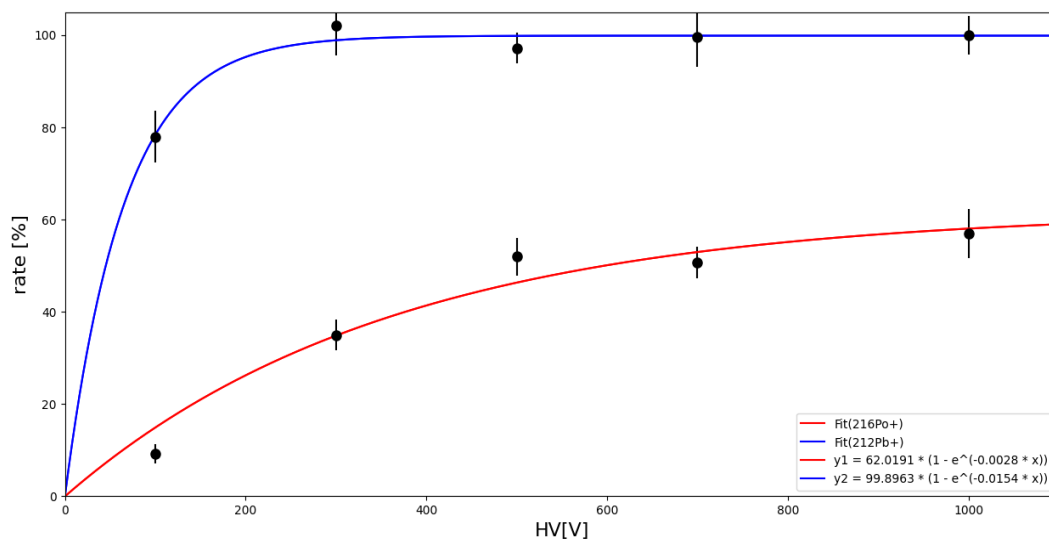


図 4.2 静電捕集電圧に対する捕集割合

^{216}Po の静電捕集電圧に対する検出割合より

$$y = 62.02 (1 - e^{-0.0028x}) \quad (4.2)$$

^{212}Bi の静電捕集電圧に対する検出割合より

$$y = 99.90 (1 - e^{-0.0154x}) \quad (4.3)$$

4.2 半減期の精度

3.3.2 より、線源を抜いて測定を行った際に得られるピーク 2 つから、それぞれ ^{212}Pb の半減期 10.64h の値を得られることが分かっている。本節では、-100V~-1000V の捕集電圧で測定を行った際に得られたそれぞれのピークについて、半減期を算出し精度の高い捕集電圧の関係を調べた。表 4.3 に結果を示す。

表 4.3 捕集電圧に対する半減期

静電捕集電圧 [V]	^{212}Bi から算出した半減期 [h]	^{212}Po から算出した半減期 [h]
-1000	11.57±0.34	10.71±0.38
-700	11.01±0.31	10.76±0.24
-500	11.01±0.34	10.85±0.21
-300	11.62±0.36	10.67±0.27
-100	11.60±0.45	10.98±0.32

第5章

まとめ

静電捕集電圧の変化に対するラドン検出器の性能評価について、連鎖崩壊のシミュレーションによる捕集効率と半減期の測定精度の観点から評価を行った。そして、最適な捕集電圧は、研究結果と教育現場で安全に使用することを考慮すると、必要な静電捕集電圧は、-300V と考える。

5.1 考察

この節では、最適な捕集電圧を決めるにあたり踏まえた、研究結果の考察を記す。

5.1.1 捕集効率

(4.2) 式、(4.3) 式から、捕集割合に対する必要な静電捕集電圧を以下のように求めることができた。

捕集割合 [%]	静電捕集電圧 [V]
50 %以上	-611V 以下
40 %以上	-370V 以下
30 %以上	-230V 以下

表 5.1 ^{216}Po の捕集に必要な静電捕集電圧

捕集割合 [%]	静電捕集電圧 [V]
100 %	-280V 以下
95 %以上	-180V 以下
90 %以上	-140V 以下

表 5.2 ^{212}Bi の捕集に必要な静電捕集電圧

^{216}Po は、半減期 0.145s であることから、100 %捕集することは困難なものの、電圧をかけることで捕集割合が増加する。また、 ^{212}Bi は、半減期の長い ^{212}Pb を経て崩壊することから、-280V 以下でほぼ 100 %となるという結果が得られた。しかしながら、-100V 付近では低電圧では、100 %捕集できておらず、半減期の長さによらず電圧の依存性が見られた。

5.1.2 半減期の測定精度

誤差範囲以内で文献値に収まった静電捕集電圧は、 ^{212}Pb の崩壊で発生する α 線のピークから算出した半減期のうち、-300V 以下である。これは、前節の表 5.2 のうち-300 V 以下では 100 % と捕集できていることに関係していると考ええる。 ^{212}Po の崩壊で発生する α 線のピークから算出した半減期は、誤差範囲内に 1 つもおさまらなかった。その要因は、 ^{212}Bi の α 線のイベント数が分岐によって少ないことに加え、以下の 3 点によりイベント数の混じりがあるからと考える。

- ウラン系列の放射性物質

図 2.11 と図 3.4 の 389ch 付近にわずかながらピークがみられる。(3.1) 式より、ADC 値からエネルギー値へ変換すると 7.69MeV となる。これは、ウラン系列の $^{214}\text{Po} \rightarrow ^{210}\text{Pb}$ の α 崩壊で発生するエネルギーと完全に一致することから、モナズ石にはわずかにウラン系列も含んでいる。よって、ウラン系列の崩壊において、ラドンの他の娘核種でも α 線が観測されているが、トリウム系列としてカウントしている。

- 電氣的ノイズ

図 2.11 と図 3.4 の 0 300ch のうち、ピーク以外の箇所で、わずかながらイベントが見られ、これを、電氣的ノイズだと考える。ウラン系列の放射性物質と同様、300ch 付近のピークと判別がつかず、トリウム系列としてカウントしている。

5.2 今後の課題と展望

本研究では、ラドン検出器の実用化に向け、性能評価を行った。-100V の捕集電圧の場合、 ^{212}Bi は、半減期 10.64h の ^{212}Pb を経て崩壊しているにもかかわらず、100 % 捕集できていなかった。今後、ステンレス缶内の電場中でのイオンの動きについてシミュレーションを行うことで、何故このような結果が得られたのか探りたい。実験の精度については、測定回数を増やしたりステンレス缶内のモナズ石とシリカゲルの位置の固定、線源のある際に生じるノイズについて厳密に考慮していかなければならない。また、現在は、静電捕集電圧と逆バイアスを独立させ実験を行ったり、ステンレス缶の大きさを変えることで、捕集にかかる電場を変化させて実験を行い、捕集効率と電圧依存性の関係を明らかにしたい。そして、安価な材料かつ最適な捕集電圧が出力可能な電源基板の作成も行っていきたい。

謝辞

本研究に取り組むにあたり、多くの方々にお力添えしていただいたことをこの場をお借りし感謝申し上げます。

指導教官である下村真弥助教には、海外赴任の中、頻繁に研究報告の時間を設けていただき、ご指導・ご助言下さりました。宮林謙吉教授、蜂谷崇助教には、基本的な講義から研究に関することまで幅広く、ご指導頂きました。実験器具の取り扱い、データの解析など、初歩的な内容も含め、丁寧に教えて下さり、めげることなく研究に取り組むことができました。先輩方や同期にも、様々なことでお世話になり、感謝申し上げます。

そして、筑波大学の三明康郎特任教授には、全面的にご協力いただきました。お忙しい中毎週お時間を割いていただき、多くのご指導・ご助言下さり感謝の気持ちでいっぱいです。新井田貴文助教にも、解析方法や結果に対する議論を行う際など、ご指導下さりました。また、筑波大学高エネルギー実験グループの江角晋一教授を始め、一色さんや佐藤さん、川口さんにもご協力頂き、御礼申し上げます。

この1年を通し、研究の醍醐味を教えていただき、非常に充実した1年になりました。至らぬ点ばかりでしたが、多くの方々に助けて頂き、終えることができました。本当にありがとうございました。

参考文献

- [1] 中島朋, ”ラドン検出器を用いた放射線教育—教材開発と実践—” 筑波大学理工学群物理学類卒業論文 (2012)
- [2] 港 陽子, 鈴木 彩香, ” 小型ラドン検出器の開発”, 奈良女子大学 理学部 数物科学科 卒業論文 (2018)
- [3] 青山 美嶺, 西川 愛, ” 小型ラドン検出器の性能評価及び改良”, 奈良女子大学 理学部 数物科学科 卒業論文 (2019)
- [4] 鈴木 芹奈, ” 低コスト・小型ラドン検出器の製作及び性能評価”, 横浜国立大学 理工学部 数物・電子情報系学科 卒業論文 (2021)
- [5] 環境省ホームページより. 第1章放射線の基礎. <https://www.env.go.jp/chemi/rhm/h29kisoshiryo/h29kiso-01-03-08.html>
- [6] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, 原子力百科事典 ATOMICA. <https://atomica.jaea.go.jp/index.html>
- [7] 浜松ホトニクス公式ホームページより. フォトダイオード. <https://www.hamamatsu.com/jp/ja/product/optical-sensors/x-ray-sensor/x-ray-si-photodiodes.html>
- [8] 日本アイソトープ協会, 「改訂4版 ラジオアイソトープ 密封線源とその取扱」, 丸善株式会社, 1977年
- [9] 小川岩雄, 「放射線 (改訂版) 基礎原子力講座2」, コロナ社, 1964年

付録 A

静電捕集電圧を変化させ測定を行った結果を以下に示す。

- -1000V

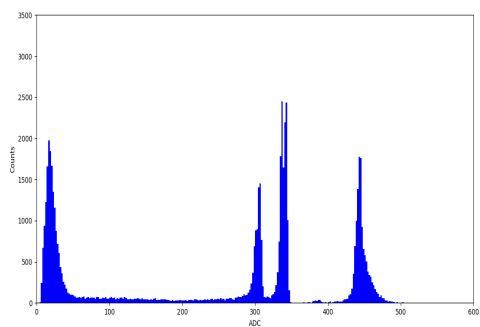


図 5.1 ヒストグラム

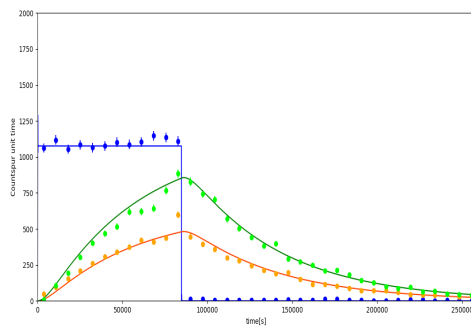


図 5.2 時間変化に対する測定値の fitting

- -700V

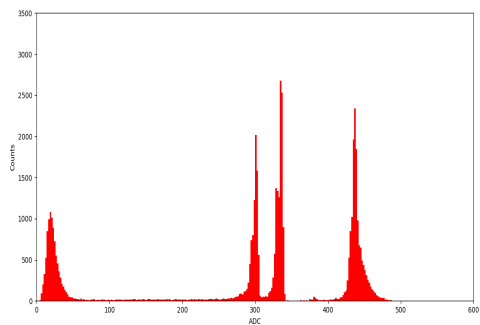


図 5.3 ヒストグラム

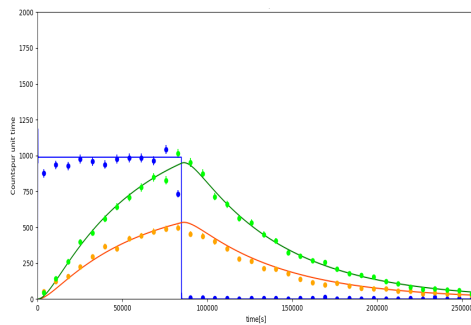


図 5.4 時間変化に対する測定値の fitting

● -500V

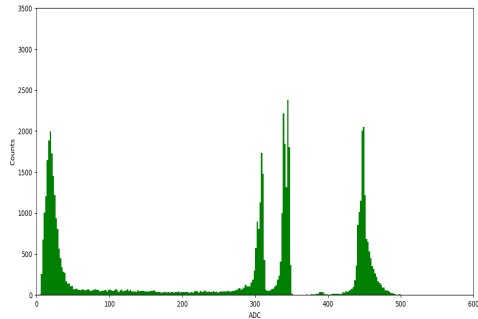


図 5.5 ヒストグラム

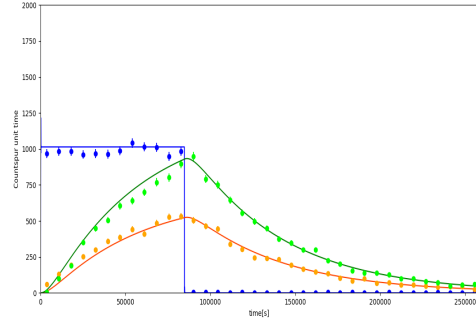


図 5.6 時間変化に対する測定値の fitting

● -300V

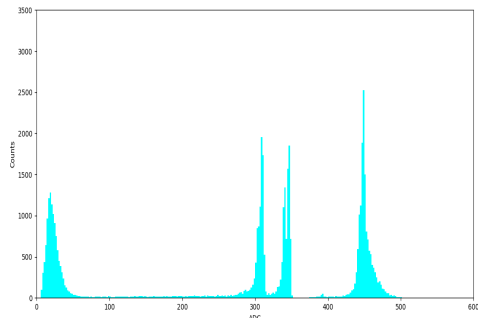


図 5.7 ヒストグラム

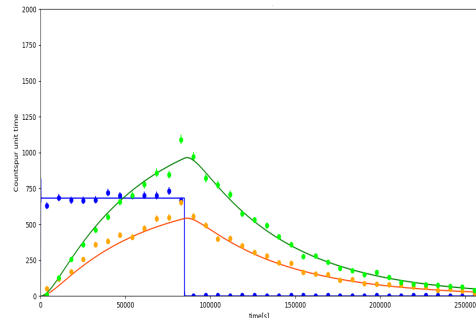


図 5.8 時間変化に対する測定値の fitting

● -100V

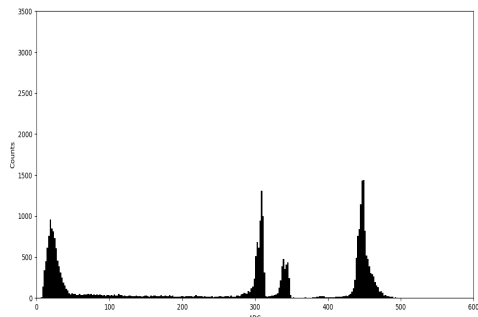


図 5.9 ヒストグラム

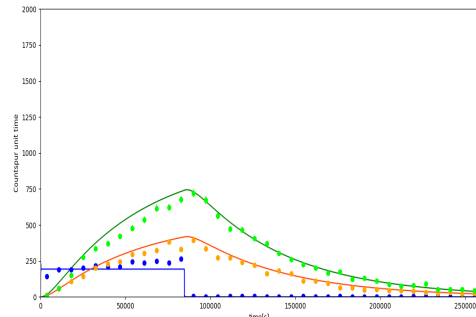


図 5.10 時間変化に対する測定値の fitting

付録 B

本研究で検出割合を算出するために作成したプログラムソースを以下に示す。このソースは Python 言語を使用している。

```
#-----シミュレーション-----
N1=0
N2=0
N3=0

lambda1 = math.log(2) / (55.445)      #220Rn
lambda2 = math.log(2) / (10.64*60*60) #212Pb
lambda3 = math.log(2) / (60.87*60)   #212Bi

dt=96
list_dN1 = []
list_dN2 = []
list_dN3 = []
list_dN4 = []
list_t1 = []

for t in range(0,240+tmax,dt):
    list_t1.append( t+(dt/2))

    if t<=monazite time:
        dN0=2000 #供給量(Ra)
    else :
        dN0=0

    p=0.55      #Po+の付着率
    B=0.763    #Bi+の付着率

    list_dN1.append( p*lambda1*N1*dt )      #216Po→212Pb
    list_dN2.append( lambda3*N3*dt*0.36 *B ) #212Bi→208Tl
    list_dN3.append( lambda3*N3*dt*0.64 *B ) #212Bi→212Po→208Pb
    list_dN4.append( p*lambda1*N1*dt+ lambda3*N3*dt*0.36 *B )

    dN1 = 0
    dN1 = -lambda1*N1*dt+dN0
    dN2 = 0
    dN2 = lambda1*N1*dt-lambda2*N2*dt
    dN3 = 0
    dN3 = lambda2*N2*dt-lambda3*N3*dt

    N1 += dN1
    N2 += dN2
    N3 += dN3
```