

大気汚染監視のためのポータブルPIXE分析装置の基礎開発

松山成男、石井慶造、伊豆川大士、山崎浩道、Ts. Amartaivan、堀田和茂

二ッ川章二^{*1}、世良耕一郎^{*2}

東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻
980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 01

^{*1} 日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村字留ヶ森 348-58

^{*2} 岩手医大サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村字留ヶ森 348-58

1. 緒言

エアロゾル中の元素濃度はその発生源に関する情報を多く含むため、その元素濃度を分析することにより汚染発生源を特定できる可能性がある。我々は、これまでにステップサンプラー(グリーンブルー社製)を用いて1地点での時間分解能の高いサンプリングを行い、分析した元素濃度と、そのサンプリング地点での風向等のデータと合わせて解析した。その結果、エアロゾル中の各元素の濃度は人間活動や風向に強く依存しており、汚染源の特定の可能性があった²⁾。しかしながら、1地点のみでのサンプリングデータは、種々の発生源や、大気中での輸送の影響を受けており、それだけで、発生原因地点の特定は不可能である。そこで、大気エアロゾルの多地点同時収集・時系列収集・気象データとの同時収集を行い、それをPIXE法で分析し、それらのデータ解析することにより発生原因・地点・時刻の特定を行うことが可能になると考えられる。そこで、小型・軽量・省電力で長期にわたる連続収集が可能なミニステップサンプラーの開発を行い、それを用いた多地点同時サンプリングにより汚染源を特定することを試みた。しかしながら本手法では、サンプリングが終了してから分析を行なうために、汚染発生をリアルタイムで知ることは難しい。そこで、サンプリングと同時に元素の分析も行うことをめざし、 α 線源、ポータブルX線源をX線励起源としたポータブル元素分析装置を開発を行った。

2. ポータブル元素分析装置

前節の通り、ミニステップサンプラーを用いた多地点同時サンプリングと、PIXE分析による元素濃度の分析を組み合わせることにより、汚染源の特定が可能となったが、PIXE法による分析は、サンプリング終了後に行うために、リアルタイム性に欠ける。そこで、元素分析の際のX線の励起源として α 線源、X線源を用いたポータブル元素分析装置の開発を行い、これとミニステップサンプラーと組み合わせることにより、サンプリングしながらの元素分析を行うシステムの基礎開発を行った。X線の励起源としては、 ^{241}Am α 線源と、市販されているX線発生装置(COOL-X, AMPTEC)を選択した。検出器には持ち運びが便利で使用時に冷却剤を必要とせず、1~15keVのX線に対し高い検出効率を持つ、Si-PIN フォトダイオード検出器を選定した。

2.1 ポータブルPIXE分析装置の開発

^{241}Am 線源は半減期が長く、交換が不要である。また、崩壊に伴い α 線その他、 γ 線やNpのL-X線などが発生し、これらも α 線同様、様々な元素を励起することが可能であるため大変有効である。線源は試料に一樣に α 線を照射するため、検出器の周りを囲むようなリング状とし、線源から発生するX線の検出を低減するため、線源の面と検出器の面を平行にすることを考えた。また、線源からのバックグラウンドを低減するため、PbとAlを用いた二重構造の遮蔽を考え、シミュレーション

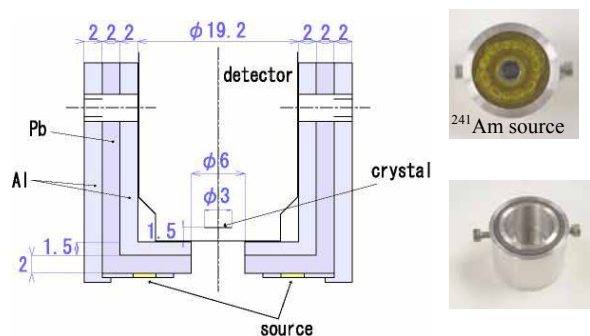


図1. 線源ホルダー

による最適設計を行なった。図1に作成した線源ホルダーとリング状線源を示す。 ^{241}Am リング状線源は49kBq(13 μ Ci)であり、厚さ7.5 μ mのカプトン膜により密封している。

次にAl、Ti、Cu、Ag、Auの5つの試料についてX線スペクトルの測定を行なった。Al、Ti、Cuに関してはK-X線、Ag、Auに関してはL-X線の測定を行なうため、K-X線、L-X線の両者についての検討が可能である。 α 線のエネルギー損失を最小にするために、He雰囲気中で測定を行った。図2にTi箔(0.45mg)からのスペクトルを示す。二時間の測定で十分な統計のデータを得ることができた。

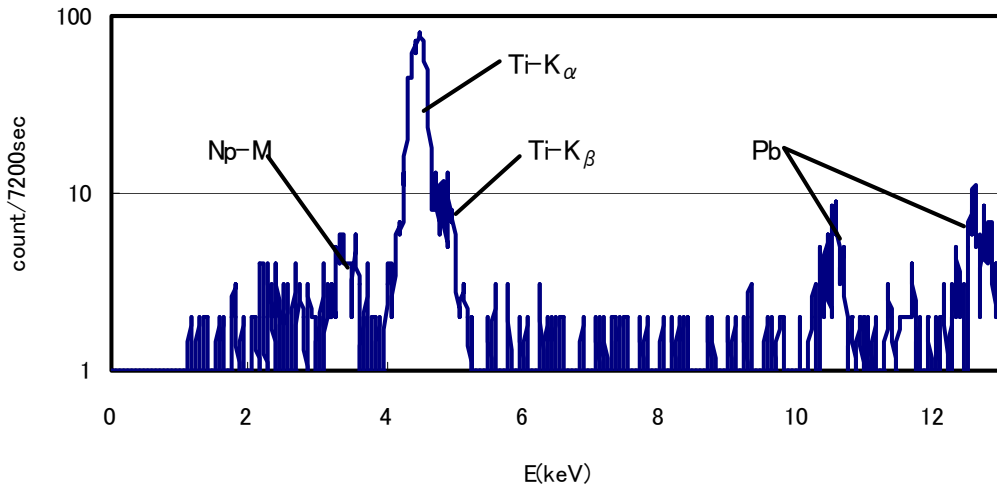


図 2. Ti のスペクトル (2 時間)

これらの試料について、線源と試料の距離を変化させ X 線収量を測定し、シミュレーションと比較を行った。図 3 に Ti についての結果を示す。

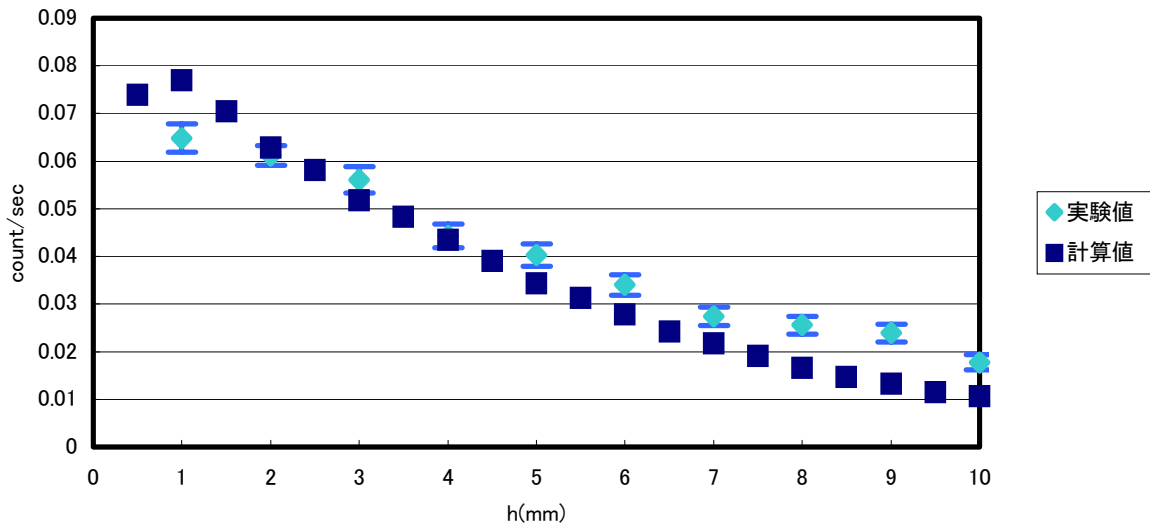


図 3. カウント数と線源と試料間距離の関係(Ti)

シミュレーション結果は試料—線源間距離が近い場合に高くなっているものの、実験値をよく表している。Ti の場合、線源と試料間距離が近い場合に X 線による励起が主であるが、5mm 程度の離れた頃から α 線の励起による効果が加わるために実験値はカーブが膨らんだような形になっているが、シミュレーションではこれを十分には再現できていない。

ほかの元素については、Al を除いて±15~20%以内で一致していた。これは、検出器の検出効率がスペック値よりも低いことに起因することがわかった。

次に、計算値を基に各元素の1時間における検出限界を求めた。その結果を図4に示す。

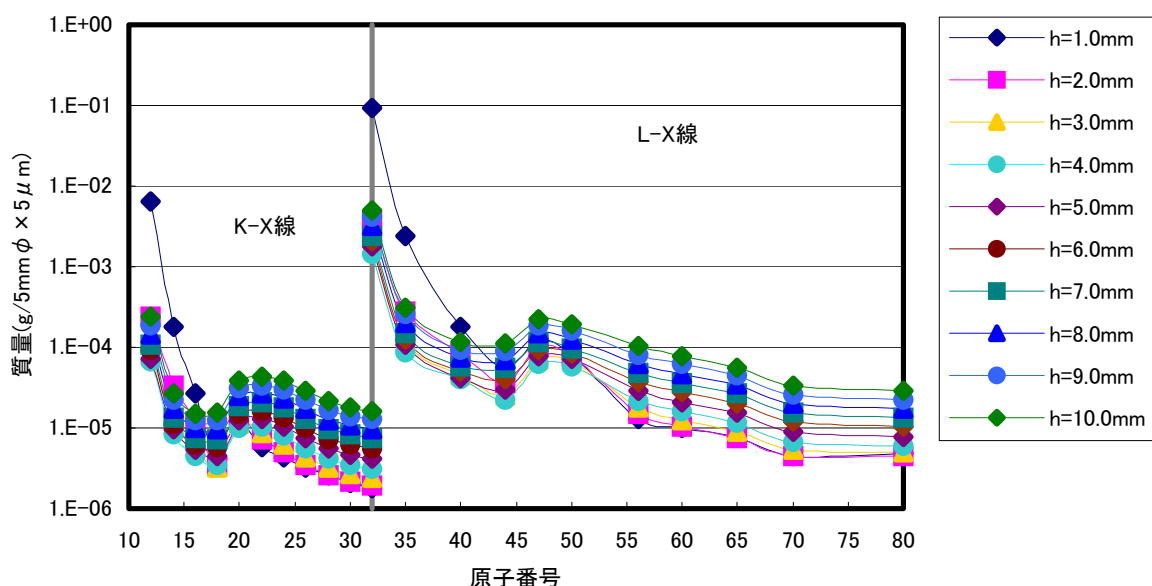


図4. 1時間の測定における各元素の検出限界

図4より、1時間の測定で、Mg~Hgについて数 μg ~数100 μg までの検出が可能である。線源の強度が現在49KBqしか得られておらず、密封線源の限度である3.7MBqの線源強度を実現することができれば、1桁以上高い検出感度を実現することができる。また線源の密封に用いたカプトン膜中での α 線のエネルギーロスにより、一番効率が良いと考えられる $h=2\sim3\text{mm}$ 付近ではほとんど α 線を照射できていない。このため、 α 線の照射効果が一番期待できる、低エネルギーの特性X線を発生する元素の検出感度が低くなっていると考えられる。したがって、今後、線源の形状や密封法を検討することにより、 α 線の照射を十分に活かすことができれば、同一の線源強度であってもさらに感度が向上することが考えられる。

しかしながら、現状では本装置をミニステップサンプラーと組み合わせるには、検出感度が十分でない。また、線源取り扱い上も制約を受ける。

2.2 ポータブルXRF分析装置の開発

本研究ではこれまで、 ^{241}Am 線源を用いたポータブルPIXEの開発し、性能評価を行なった。その

結果、1時間の測定でMg～Hgについて数 μg ～数100 μg までの検出が可能であることがわかった。

ここで、エアロゾルなど微量元素の分析にはさらに高い感度が必要であると考えられるが、さらに高い感度のポータブルPIXEを実現するには線源強度をさらに強くしなければならない。また、線源に ^{241}Am 線源を使用したことによりX線によるXRFの有用性も確認できた。そこで、さらに高感度なポータブル分析装置として、Amptec社製のポータブルX線源(COOL-X)を使用したポータブルXRFの検討を行なった。

COOL-XはX線を発生させるために放射性同位体やX線管を使用せず、焦電結晶(Pyroelectric Crystal)を用いた新しい小型のX線発生装置である。このためCOOL-Xは放射性の線源とは違い、その使用には制限を受けず、どこにでも持ち運びが可能である。また、線源強度は2mCiと作製の α 線源の約1500倍と非常に強力な線源である。検出器にはportable PIXEと同様にSi-PINフォトダイオード検出器を使用した。

図5に実験装置を示す。 α 線と異なり、大気中での吸収を受けないことより、測定はすべて大気中で行なった。線源からのX線はほぼ 2π 方向に放出されるので、バックグラウンドを低減するために、直径2mmの銅製のコリメータを使用した。測定した試料は先に使用したAl、Ti、Ag、Auフォイルである。ある。線源および検出器は、立体角を考慮し試料面に対し約 45° に配置した。

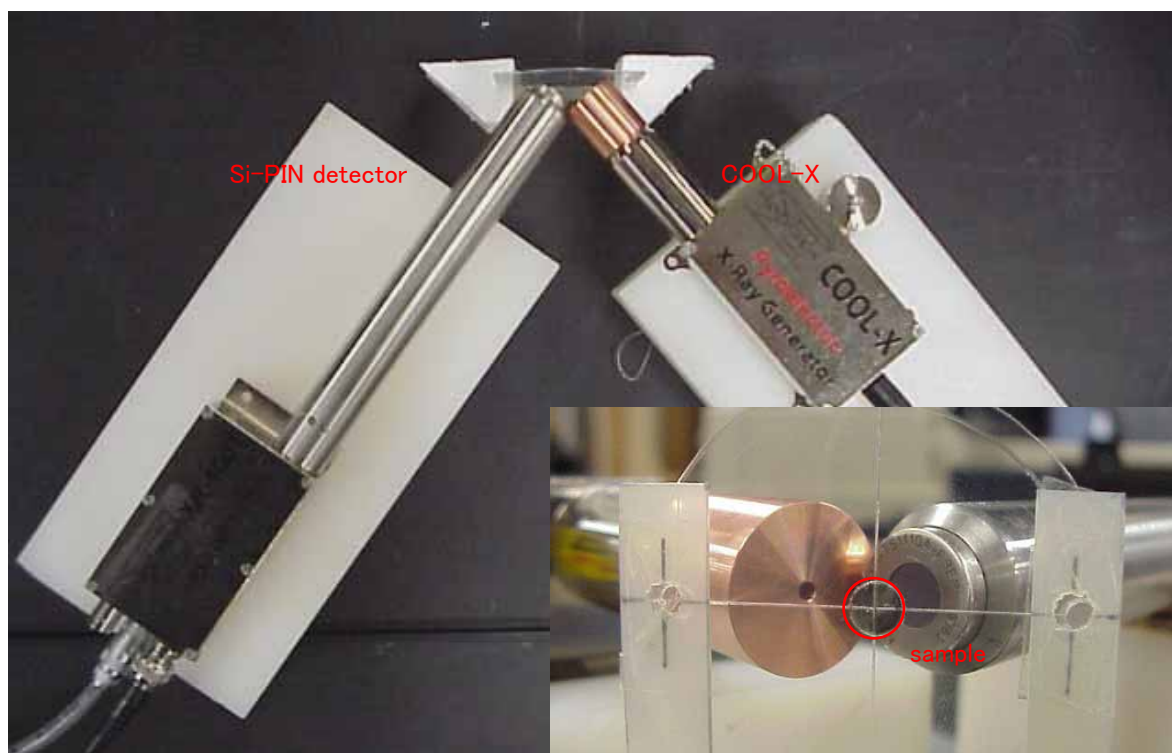


図5 実験装置

本装置を用いて、Al、Ti、Ag、Auの測定を行なった。図6にTiのスペクトルを示す。10分の測定でポータブルPIXE分析装置と同等の計数を得ることができた。Alに関しては、若干カウントが少なかったが、各元素とも十分のスペクトルを得ることができた。

今回測定したAl、Ti、Ag、Auの計数をもとに、各元素の検出限界を求めた。図7に一時間の測定を行った際の検出限界を示す。ここで、8keV以上の特性X線を発生する元素(青く塗りつぶされた領域)に関しては制動放射X線による励起になり、その計算は難しい。そこで、今回は8keV未満の特性X線を発生する元素のみ検出感度の検討を行なった。

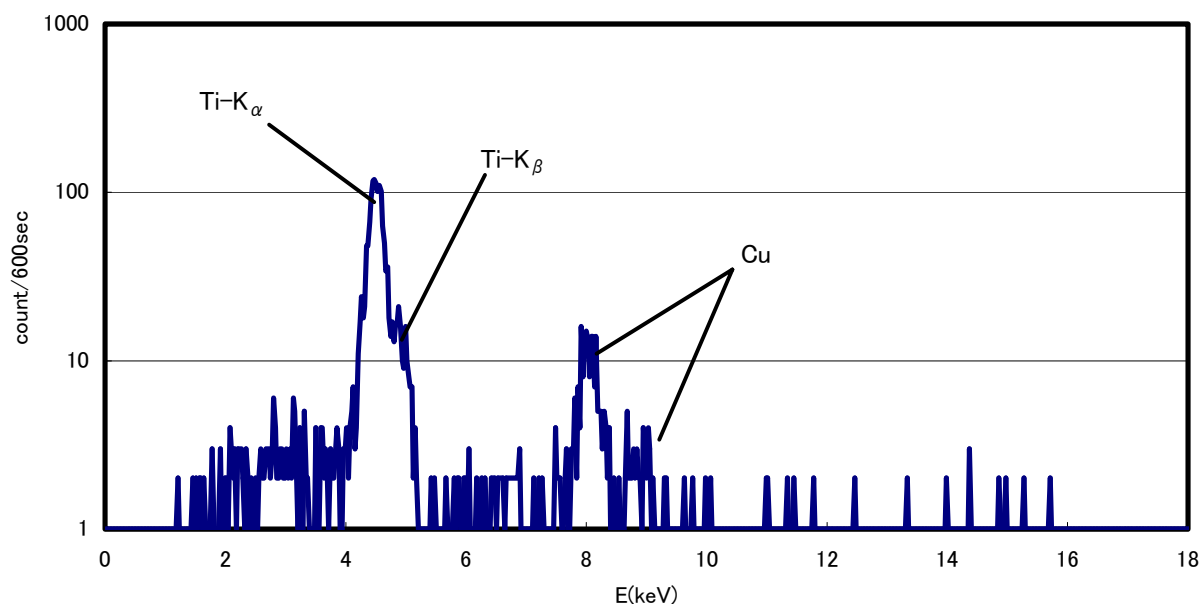


図6 Tiのスペクトル(10分)

この結果、S~Co、Zr~Tbについて、1時間の測定で $1\mu\text{g}$ ~数 $10\mu\text{g}$ までの検出が可能であることがわかった。また、Ca~Co、Ag~TbにおいてはポータブルPIXEより約1桁高い感度を有していることがわかった。しかし、ポータブルXRFでは 8keV 以上の特性X線を発生する元素に対しては検出感度が低いという欠点がある。実際に、Auについて実験値を使用したものを表示したが、他の元素に対して1桁以上感度が低いことがわかる。したがって、特定の元素についてはポータブルXRF大変有効であるといえるが、広い範囲の元素の測定にはポータブルPIXEの方が有効である。

この検出限界はミニステップサンプラーと組み合わせ、微量元素の測定は困難であるが、主要元素の測定は可能であると考えられる。

今後、開発したポータブル分析装置の特調査を進めると共に、ミニステップサンプラーと組み合わせたシステムを構築し、実証試験を進めていく。

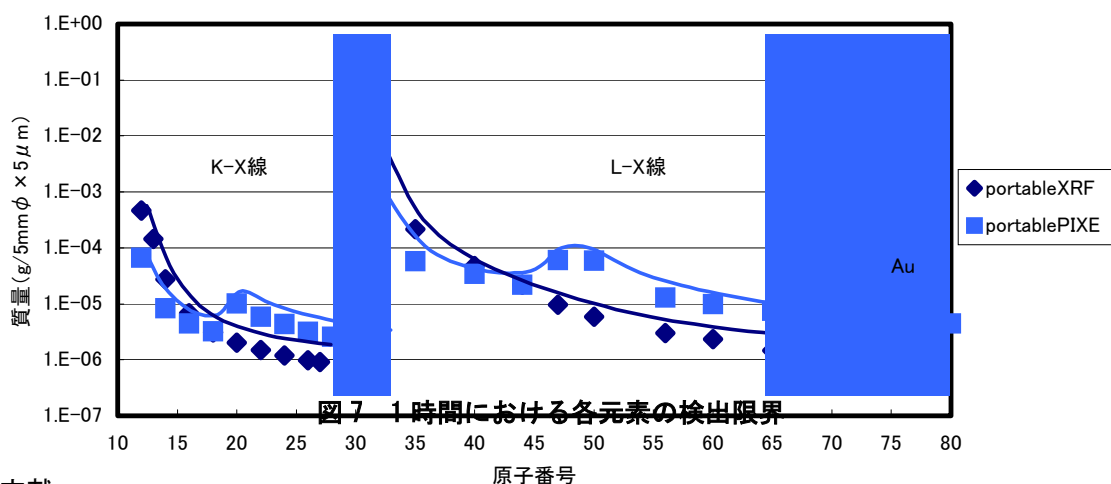


図7 1時間における各元素の検出限界

参考文献

- 1)花石竜治、早狩進、青森県環境保健センター報告 10,45,1999

- 2)S.Matsuyama et.al., International Journal of PIXE, Vol.9, Nos. 1 & 2 (1999) 51
- 3)S.Matsuyama et.al., International Journal of PIXE, Vol.13 Nos.1&2(2003) 65