

β , γ , X 線同時解析による 迅速多核種分析技術

大島 真澄*¹ 後藤 淳*² 早川 岳人*³ 浅井 雅人*⁴
Oshima Masumi Goto Jun Hayakawa Takehito Asai Masato

金 政浩*⁵ 篠原 宏文*⁶
Kin Tadahiro Shinohara Hirofumi

1. はじめに

筆者らは放射線を利用して核物理、核化学、環境放射能測定の研究を実施している。放射線利用の1つとして、測定試料の α 線、 β 線、 γ 線、X線スペクトルを解析して、その核種量、元素量、放射能量を定量することができる。その解析法には依然として高度化が可能と考える。一般に分析機器により得られる生データはスペクトルや画像データがあるが、今回、広範囲のスペクトルデータに有効なスペクトル解析法を開発したので、本誌の貴重な紙面を借りてご紹介したい。

放射線測定器には、対象とする放射線のその種類によって、様々な検出器があり、検出効率とエネルギー分解能等は大きく異なる。筆者らは、 β 線、X線検出器として液体シンチレーションカウンタ（以下、LSCと略す）、 γ 線検出器としてゲルマニウム半導体検出器（以下、Ge検出器と略す）とNaIシンチレーション検出器（以下、NaI検出器と略す）を取り上げた。

LSCは液体測定試料を液体シンチレータに溶解し、試料から放出された β 線、X線等を測定できる。液中で光に変換されるため、低エネルギーの放射線を高効率で検出できるメリットがある一方、エネルギー分解能は半導体検出器等と比べて劣るため核種弁別能は低い。また、 β 線は連続エネルギースペクトルを持つため、核種定量には、化学分離を併用する必要があった。一方、 γ 線検出器では、高分解能のGe検出器を用いたピーク解析法が主流である。しかしながら、スペクトル中のピーク成分が全ス

クトル中に占める割合は小さく、統計による誤差は大きい。

筆者らは、以上の理由から、またAIの顔認証技術から着想して、スペクトル全体をフィットして定量するスペクトル定量法（Spectral Determination Method, 以下SDM法と呼ぶ）を考案した。このSDM法の定式化とコード開発を行い、まずGe検出器及びNaI検出器により得られる γ 線スペクトル解析において実証した¹⁾。その後、(国研)日本原子力研究開発機構（以下、JAEAと略す）が公募する「英知を結集した原子力科学技術研究開発」事業（以下、英知事業と略す）において、 β 線、 γ 線、X線の同時分析に発展させ、核種分析能を大幅に改善することに成功した。

以下、SDM法の原理、 γ 線検出器及びLSCへの適用例、Ge検出器・LSCの統合スペクトルデータの解析例を紹介し、最後に放射線スペクトルとそれ以外へのSDM法の発展性について言及する。

2. SDM法の原理

放射性核種の崩壊は他の核種の存在に影響を受けないという第1原理に基づけば、複数核種を含む試料を測定して得られる測定スペクトルは、各核種のスペクトルの線形重ね合わせで表すことができる。よって、

- ①測定スペクトルは、有限個数の単核種スペクトルから構成される。
- ②個別核種の基準スペクトルは実測、又は計算で得ることができる。

③バックグラウンドが変動しなければ、1核種のスペクトルとして扱える。

を仮定すると、測定スペクトル (η_i) は、個別核種の基準スペクトル (ξ_{ij}) の線形和で表すことができる (スペクトルのチャンネル数を i , サイズを $Maxch$ とし、核種番号を j , 核種数を n とする)。

$$\eta_i = \sum_{j=1}^n \alpha_j \xi_{ij} \quad (1)$$

$i = 1 \text{ to } Maxch$

式 (1) から分かるように、 α_j は測定スペクトル中に含まれる各核種成分の強度を表す量である。実際の測定において、 η_i , ξ_{ij} を使って、 χ^2 を

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{Maxch} \left(\eta_i - \sum_{j=1}^n \alpha_j \xi_{ij} \right)^2 / \sigma_i^2 \quad (2)$$

と定義することで、 χ^2 を最小にする係数 α_j , つまり最適値を求めることができると考えた (σ_i は統計的不確かさである)。スペクトルデータはエネルギー順に並べられたカウント値の連続体であるが、各エネルギーごとに独立した連立方程式と捉え、未知係数 α_j を求める問題に帰着させた。これには、よく確立された線形最小二乗法理論²⁾ を適用することができ、更に統計誤差とフィッティング誤差を含む誤差評価法と α_j から放射能値を導出する方法を加えた SDM コードを開発した¹⁾。

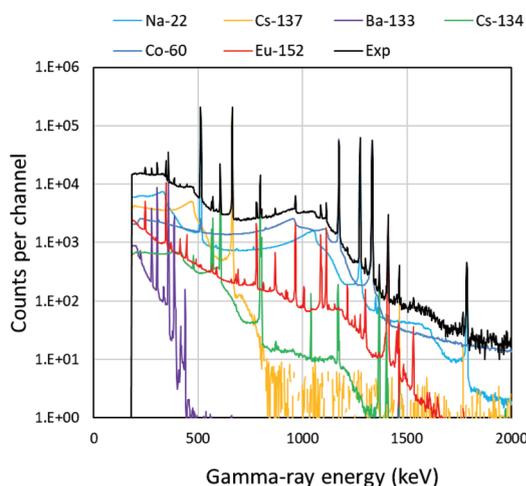


図1 実測 Ge スペクトルのSDM-G法による解析結果

3. Ge 検出器及び NaI 検出器への適用例

SDM 法を実証するために、筆者らはまず Ge 検出器と NaI 検出器を用いて得られた γ 線スペクトル解析に適用した。²²Na, ⁶⁰Co, ¹³³Ba, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁵²Eu の6核種を対象とし、 10^4 Bq の ²²Na, ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs のうち1核種を主成分とし、それ以外の核種が1~1/1000の強度であると想定して、各々の実測核種スペクトルを合成したスペクトルを SDM 法で解析した。その結果の1例を図1と図2に示す。黒線 (Exp) は合成したスペクトルであるが、SDM 法で得た α_j を用いてフィットしたスペクトルと重なる。図には、分解した各核種成分を色分けして示した。これより、Ge 及び NaI 検出器共に SDM 法でよく分離されて定量が可能となった。定量誤差は主成分に対する5核種の強度が1/100の場合でも、最大20%であり、従来のピーク解析法に勝る結果が得られた¹⁾。

4. Ge 検出器・LSC の統合スペクトルデータの解析例

以上の γ 線の結果をもとに、JAEA 公募の英知事業に採択され、福島第一原子力発電所 (1F) 事故の廃炉措置におけるデブリ・廃棄物の主要40種の放射性核種分析に適用した。対象とした中重核種は、 β 線、 γ 線、X線を放出する核種が含まれる。分類すると、 β 線のみを放出する核種は16種、X線のみを放出する核種は3種、 γ 線のみを放出する核種は6種、 β , γ 線両方を放出する核種は15種であり、

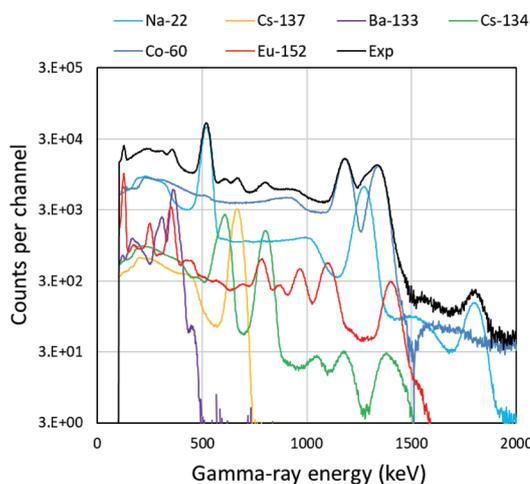


図2 実測 NaI スペクトルのSDM-G法による解析結果

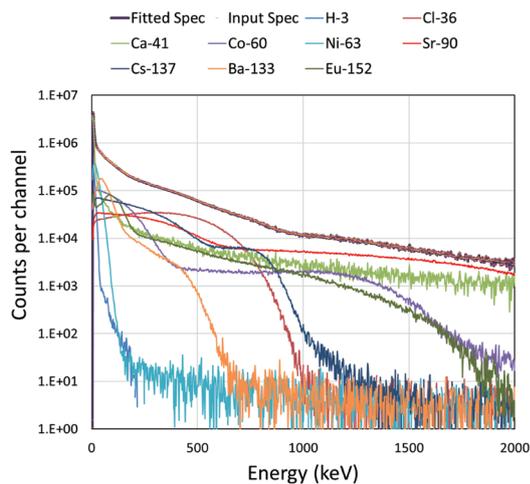


図3 実測 LSC スペクトルの SDM-B 法による解析結果

各放射線のエネルギー・強度はすべて異なる。

従来法では化学分離によって、測定対象核種の峻別分離を行った後に、各放射線測定による定量を行ってきた。しかしながら、峻別分離は核種ごとに平均3回程程度の化学分離操作を行う必要があり、作業者の手間と放射線被ばくを軽減し、また化学収率誤差を低減、定量時間を短縮できる技術が望まれていた。

そのために筆者らは、まずβ線、X線検出用にLSC装置を導入し、SDM法の適用性を調べた。LSCとして、Perkin Elmer社製Tri-Carb 3110TR型LSC装置を用いた。10種の標準線源を購入して、β線、X線スペクトルを測定した。LSCにおいては、放射線エネルギーの溶媒から溶質への移行、またシンチレーション光の損失によって出力が減衰するクエンチング現象があり、その補正が必要である。筆者らが考案したスペクトルゲイン変換による補正法でその効率誤差を評価したところ、約10%であることが分かった³⁾。

図3は実測し、クエンチング補正した9核種の標準スペクトルを表す(図3中に核種を記す)。各々は 10^4 Bq及び 10^4 秒測定に規格化されている。これらをすべて足し合わせ、統計変動を加えて実測定スペクトルを模擬した混合スペクトル(Input spectrum)を生成した。そのSDM解析を行った結果を図3中Fitted spectrumで表す。オレンジ色のInput spectrumが黒色のFitted spectrumと重なっており、よく再現されていることが分かる。 ^{137}Cs の強度を固定し、他8核種の強度をその1, 1/10, 1/100

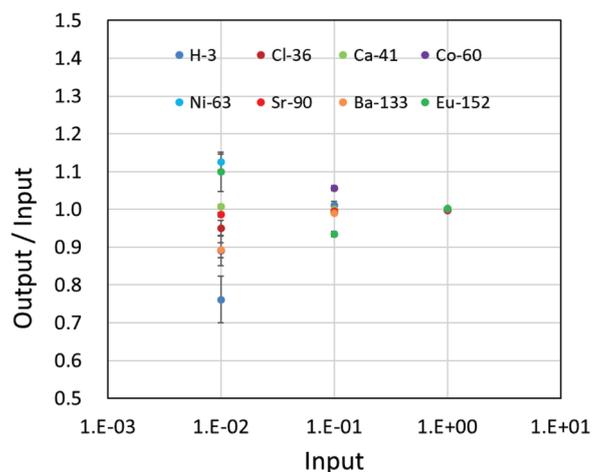


図4 LSC スペクトルの定量精度

とした場合の定量精度を図4に示す。前述のγ線スペクトルの場合と同様に、主成分 ^{137}Cs に対して他の8核種の強度が1/100の場合でも、それらの定量誤差は最大24%となり、高精度が実証された。

ここでセンサーフュージョン概念を導入する。SDM法ではスペクトルの全データをエネルギーごとに独立であると思わせるので、複数のスペクトルを連結した統合スペクトルも、単独スペクトルと同様に扱うことができる。核種により放出する放射線の種類は異なり、また各々核種固有の特徴を有することから、LSCとGe検出器のスペクトルを結合した統合スペクトルを扱うことで、個々の核種の認識能が高まり、定量感度と精度を改善することが期待される。

LSC測定スペクトルは前述のものを用いた。γ線スペクトルはAMETEK社製GMX40型相当の4台のPop Top型Ge検出器からなる多重γ線検出装置を整備して、標準線源7種の標準スペクトルを測定した。英知事業対象核種40種のうち、入手が困難な核種については、欧州原子核研究機構(CERN)が開発したモンテカルロ放射線シミュレーションコードGeant4⁴⁾を用いた高精度のシミュレーション計算を導入し、スペクトルを得た。LSCスペクトルについて、新たにコンボリューション法を開発した³⁾。LSC, γ線両スペクトルについて、実測とシミュレーションを組み合わせ、全核種のデータベースを整備した。これらを核種ごとに結合した統合スペクトルを図5に示す。

この統合スペクトルデータを用いた解析例を紹介

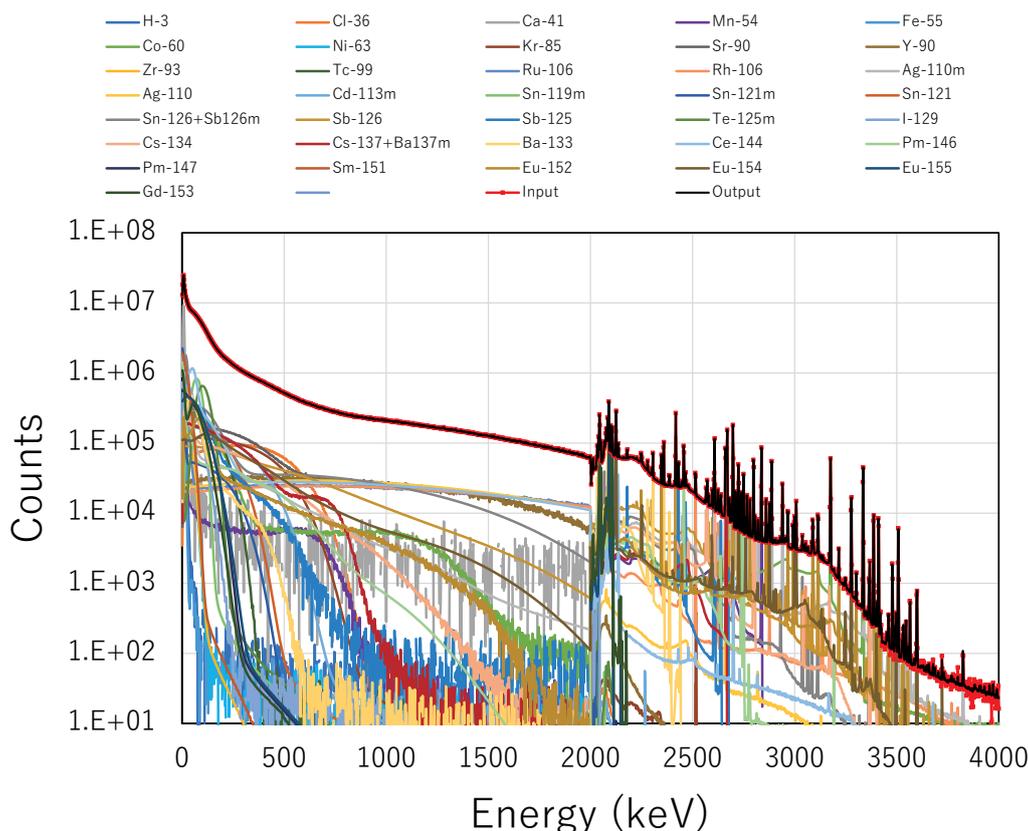


図5 実測及びシミュレーションで得られた40核種の基準スペクトル

左半分はLSC、右半分はGe検出器のγ線スペクトルを表す。統合化のため、後者のエネルギー値は2000 keVを加えている

する。前述1Fの廃炉措置における主要40核種を取り上げ、それらの放射能強度がすべて同一の場合（各核種の濃度は全強度の2.5%に相当）の定量精度を評価した。40核種の統合スペクトルを足し合わせ、 10^5 秒測定したと想定した場合の模擬スペクトル（図5中Inputで示す）をSDM解析した結果（図5中Outputで示す）、図6に示す定量精度が得られ、37核種が20%以下の不確かさで同時に定量可能であることが分かった。 ^{63}Ni , ^{93}Zr , ^{151}Sm の3核種の誤差がこれより大きいのは、これらの核種が共に低エネルギーのβ線放射核種であり、LSCスペクトルの形状が似ていて、お互いの干渉が大きいためである。γ線を放出する核種は定量精度が高く、1/1000強度であっても不確かさは20%以下である。この精度を代表的なピーク解析法（TPA法）と比較したところ、それを上回る精度であることが分かった。

1Fの炉内インベントリ計算⁵⁾においては、40種の中重領域核種の強度は8桁の強度差がある。SDM解析を用いても、主要核種に対して1/100～1/1000以下の弱い核種については、主要成分の統

計変動が定量精度に影響する。また、前記のように干渉が大きい核種が存在する。これらの核種を定量する場合には、粗化学分離を行って、妨害核種を除くことが有効である。詳細³⁾はここでは省略するが、1回の化学分離後に行ったSDM解析により、平均4核種の同時定量が可能となることが分かり、全40核種の定量には10回の化学分離操作で可能であることが分かった。従来法では1核種の定量に平均3回の化学操作が必要であるので、化学分離操作を約1/12に簡略化できることになる。また、数十日かかる定量時間を5日程度まで短縮できる³⁾。これにより、英知事業は無事目的を達成し、令和5年3月に終了した。今後JAEA等が1F廃炉措置において実用化することを期待したい。

5. まとめと将来展望

SDM法の特徴をまとめると以下になる。AIを用いた機械学習のような高度な判定・推定アルゴリズムを必要としない。使うのは、言わば古典的・直接

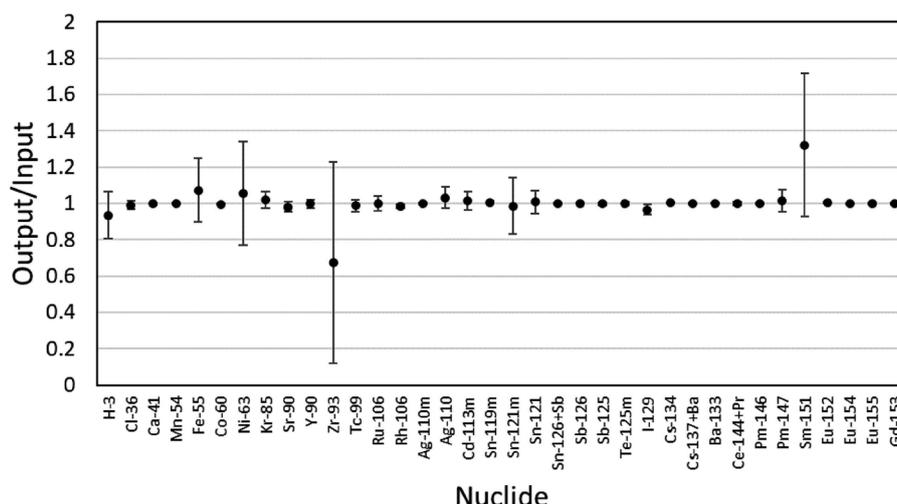


図6 40核種の強度が同一の場合の定量精度
各核種の濃度は全強度の2.5%に相当する

的な線形最小二乗法アルゴリズムであり、それだけに精度・確度が高いと言える。膨大なデータに基づく学習は不要で、各構成要素の基準スペクトルのみが必要である。スペクトル全体を用いるために、検出器のエネルギー分解能に大きく依存しない。また、複数のスペクトルを連結した統合スペクトルにも適用でき、定量の対象を拡大し、高精度化できる。

以上のことから、SDM法を適用できる分野は、まずデブリ・廃棄物分析、環境放射能分析等がある。放射性核種分析としては、中性子・荷電粒子放射線分析^{6,7)} また中性子即発γ線分析^{6,8)} 等があり、これらの迅速、非破壊、多元素同時分析法を高度化することで、環境科学、分析化学、宇宙科学、核物理、核化学等の分野に貢献できる。また、放射性核種分析以外の元素・質量スペクトルを扱う蛍光X線分析やICP分析にも適用でき、考古学、新機能性材料開発、食品の安全性、リサイクル等より広い分野へ適用が期待される。

SDM解析のアルゴリズムは既に公開¹⁾しているため、もし、不明な点等あれば、筆者にお問合わせください(oshima.masumi@gmail.com)。

参考文献

- 1) Oshima, M., et al., *J. Nucl. Sci. Tech.*, **59**, 472-483 (2022)
- 2) Bevington, P.R., et al., *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (2003)
- 3) β, γ, X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発(委託研究);令和4年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事報告書 JAEA-Review 2023 in press.
- 4) Geant 4; [cited 2023 September 6]. Available from <http://geant4.cern.ch/>
- 5) 西原健司, 他, *JAEA-Data/Code 2012-018* (2012)
- 6) Oshima, M., et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **278**, 257-262 (2008)
- 7) Oshima, M., et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **308**, 711-719 (2016)
- 8) 大島真澄, 他, 応用物理学会誌「応用物理」, **80**(11), 948-954 (2011)

(*¹(株)NAT, *²新潟大学, *³量子科学技術研究開発機構, *⁴日本原子力研究開発機構, *⁵九州大学, *⁶日本分析センター)