

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7665216号
(P7665216)

(45)発行日 令和7年4月21日(2025. 4. 21)

(24)登録日 令和7年4月11日(2025. 4. 11)

(51)Int. Cl.	F I
G 0 1 T 1/167 (2006. 01)	G 0 1 T 1/167 C
G 0 1 T 1/20 (2006. 01)	G 0 1 T 1/20 J
G 0 1 T 1/208 (2006. 01)	G 0 1 T 1/208

請求項の数 10 (全 16 頁)

(21)出願番号 特願2022-555593(P2022-555593)	(73)特許権者 505374783
(86)(22)出願日 令和3年10月8日(2021. 10. 8)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
(86)国際出願番号 PCT/JP2021/037367	茨城県那珂郡東海村大字舟石川7 6 5 番地
(87)国際公開番号 W02022/075455	1
(87)国際公開日 令和4年4月14日(2022. 4. 14)	(74)代理人 100097113
審査請求日 令和6年8月1日(2024. 8. 1)	弁理士 堀 城之
(31)優先権主張番号 特願2020-171244(P2020-171244)	(74)代理人 100162363
(32)優先日 令和2年10月9日(2020. 10. 9)	弁理士 前島 幸彦
(33)優先権主張国・地域又は機関 日本国(JP)	(74)代理人 100194283
	弁理士 村上 大勇
	(72)発明者 冠城 雅晃
	茨城県那珂郡東海村大字白方2 番地4 国
	立研究開発法人日本原子力研究開発機構原
	子力科学研究所内
	最終頁に続く

(54)【発明の名称】放射線分析方法、放射線分析装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】

複数の放射性の核種が混在する試料から発せられる放射線のエネルギースペクトルを測定し、前記試料に含まれる前記核種を認識する放射線分析方法であって、
前記放射線を検出する放射線検出器において、同一測定対象に対する検出強度が異なるような複数の条件が、設定条件として定められ、
前記試料を前記放射線検出器で測定したエネルギースペクトルである実測スペクトルを得る試料測定工程と、
前記実測スペクトル中における、前記核種のうちで前記放射線における寄与が最も大きな前記核種である背景核種に起因する成分である背景核種起因成分を、前記設定条件毎に前記放射線検出器で測定して得られた結果より推定する背景核種起因成分推定工程と、
前記実測スペクトルから前記背景核種起因成分を差し引いた補正後スペクトルを算出する補正後スペクトル算出工程と、
を具備し、
前記補正後スペクトルによって前記試料の分析を行うことを特徴とする放射線分析方法。

【請求項 2】

前記背景核種で構成された参照用線源から発せられた放射線を前記設定条件毎に前記放射線検出器で測定して得られたエネルギースペクトルである参照スペクトルを得る参照用線源測定工程を具備し、

前記背景核種起因成分推定工程において、前記参照スペクトルと前記実測スペクトルとを比較することによって、前記背景核種起因成分を推定することを特徴とする請求項 1 に記載の放射線分析方法。

【請求項 3】

前記参照用線源測定工程における前記放射線検出器と前記参照用線源との間の距離の設定が、前記設定条件に含まれることを特徴とする請求項 2 に記載の放射線分析方法。

【請求項 4】

前記放射線検出器には、前記放射線検出器に入射する前記放射線を互いに異なる度合いで吸収して制限する複数の遮蔽体が切り替えて設けられ、当該遮蔽体の選択が前記設定条件に含まれることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 までのいずれか 1 項に記載の放射線分析方法。

10

【請求項 5】

前記放射線検出器は、前記放射線を吸収して光を発するシンチレータと、当該光を検出する光検出器と、を具備し、

異なる大きさの前記シンチレータのうちのいずれかが切り替えて用いられ、

前記シンチレータの大きさの選択が前記設定条件に含まれることを特徴とする請求項 1 から請求項 4 までのいずれか 1 項に記載の放射線分析方法。

【請求項 6】

前記光検出器は光電子増倍管であることを特徴とする請求項 5 に記載の放射線分析方法。

20

【請求項 7】

前記光電子増倍管は陰極、陽極、及び陰極と陽極との間の複数のダイノードを有し、

前記光電子増倍管において、

前記光を検出した際における前記陽極と前記陽極に隣接する前記ダイノードである最終段ダイノードの間に流れる電流の増加に伴う前記陽極と前記最終段ダイノードとの間に印加される電圧の変動を抑制する電圧変化抑制手段が設けられたことを特徴とする請求項 6 に記載の放射線分析方法。

【請求項 8】

前記電圧変化抑制手段は、

前記最終段ダイノードと前記最終段ダイノードに隣接する前記ダイノードとの間に流れる電流の増加に伴う前記最終段ダイノードと前記最終段ダイノードに隣接する前記ダイノードとの間に印加される電圧の変動を抑制することを特徴とする請求項 7 に記載の放射線分析方法。

30

【請求項 9】

前記背景核種は ^{137}Cs 又は ^{60}Co であることを特徴とする請求項 1 から請求項 8 までのいずれか 1 項に記載の放射線分析方法。

【請求項 10】

請求項 1 から請求項 9 までのいずれか 1 項に記載の放射線分析方法を実行する放射線分析装置であって、

前記背景核種起因成分推定工程を実行して前記背景核種起因成分を算出し、前記補正後スペクトル算出工程を実行して前記補正後スペクトルを算出する算出部を具備することを特徴とする放射線分析装置。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、放射線（ γ 線、X線等）のスペクトルを測定することによって試料に含まれる放射線源の分析を行う放射線分析方法、放射線分析装置、これに用いられる放射線検出器に関する。

【背景技術】

【0002】

50

放射性核種の存在を検出するためには、この核種が壊変する際に発する放射線（ γ 線等）を検出する手法が有効であり、このためには、放射線のエネルギースペクトルを測定できる放射線検出器が用いられる。この場合において、一般的に放射線としては γ 線が用いられ、異なる核種の発する γ 線のエネルギーは一般的には異なるため、試料（放射線環境）から検出された γ 線のエネルギースペクトル（スペクトル）から、この試料中に存在する核種を同定することができる。こうした技術は、例えば特許文献1等に記載されている。

【0003】

このように γ 線のスペクトルを測定できる放射線検出器としては、例えば、Ge, CdTe等の半導体素子や、シンチレータを用いた検出器が知られている。後者においては、シンチレータが γ 線光子を吸収して可視光光子を発し、この可視光光子が光電子増倍管によって検出される。シンチレータと光電子増倍管を組み合わせた検出器について、原理的には、 γ 線光子が1個検出される度に、これに対応した持続時間の短いパルス出力が得られ、このパルスの電荷量（あるいは波形積分値）検出された γ 線のエネルギーに対応する。このため、検出されたパルスの電荷量（あるいは波形積分値）のヒストグラムが検出されたエネルギースペクトルに対応する。試料に複数種類の核種が混在した場合でも、各々が発する γ 線のエネルギーに対応するピークがこのスペクトル中で分離して認識できれば、各核種の存在を認識することができる。

【0004】

ただし、このように得られたスペクトルにおける分解能（エネルギー分解能）は、放射線検出器の種類によって定まり、実際には近接したエネルギーの γ 線を発する2種類以上の核種が混在した場合には、これらの核種を個別に認識することは困難となる。このため、例えばシンチレータを用いる場合には、目的に応じたエネルギー分解能が得られるようなシンチレータ材料が選択される。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特表2016-513256号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

例えば、原子炉に関連した試料（測定環境）の測定においては、多数の放射性核種が存在するが、その中でも、例えば ^{137}Cs の存在比率が高いために ^{137}Cs が発した γ 線が特に多く検出され、高線量となる。こうした環境下で、 ^{137}Cs 以外の放射性核種の存在を認識するためには、 ^{137}Cs が発する γ 線の影響が強く表れた γ 線スペクトル中で、 ^{137}Cs 以外の放射性核種の発する γ 線のピークを認識する必要がある。

【0007】

更に、 ^{137}Cs は662keVのエネルギーの単色 γ 線を発するが、実際に放射線検出器がこの単色 γ 線を検出する際には、この単色 γ 線が放射線検出器で吸収される過程で発生する様々な成分も662keVのエネルギーの単色 γ 線以外に検出される。試料における ^{137}Cs の存在比率が高い場合には、このような成分も増大し、他の核種の発した γ 線の認識の障害となる。例えば、シンチレータ中において662keVのエネルギーの単色 γ 線のコンプトン散乱によってよりも低エネルギー側に連続的なスペクトルをもつ γ 線（X線）が発生し、この成分も同時に放射線検出器で検出される。

【0008】

また、前記の通り、検出された γ 線光子1個に対応した放射線検出器の出力となったパルスの電荷量（あるいは波形積分値）がこの γ 線光子のエネルギーに対応するが、このような認識が可能となる前提条件として、個々の γ 線光子が放射線検出器で分離して検出されることがある。これに対して、2つ以上の γ 線光子が重畳して検出された結果として単一のパルスとして検出される場合がある。例えば、 γ 線の線量が高いために一つの γ 線光

子に対応したパルスの持続期間中に他の γ 線光子が検出された場合には、これらの 2 つの γ 線光子に対応したパルスが重畳することによって、どちらの γ 線光子のエネルギーとも異なる電荷量（あるいは波形積分値）をもつ単一のパルスが認識される場合（パイルアップ）がある。また、 γ 線を発する核種において壊変が短い時定数で 2 段階で行われ、各段階で γ 線が発せられる場合においても同様の現象が生ずる（サム効果）。こうした場合には、 γ 線スペクトル中でこれらのパルスに対応した偽のピークやバックグラウンド成分が発生する。

【0009】

このように特定の放射性核種（ ^{137}Cs ）の存在比率が特に高い場合においては、上記のようなこの核種が発する単色 γ 線に起因してこの単色 γ 線のエネルギー以外のエネルギーで検出される成分が、他の放射性核種が発する γ 線の検出に悪影響を及ぼす。この悪影響は、例えば ^{137}Cs の存在比率が高い場合には 662 keV から離れたエネルギーの γ 線を発する放射性核種の認識にも及ぶ。こうした状況は、1 種類のみ放射性核種の存在比率が高い場合だけでなく多数種類の放射性核種の存在比率が高い場合においても同様であるため、高線量下において γ 線スペクトルの解析によって核種の分析を行う場合全般において、同様に発生する。

10

【0010】

このため、高線量下においても放射線検出器で得られたエネルギースペクトルの解析によって試料の分析を高精度で行うことができることが望まれた。

【0011】

本発明は、かかる問題点を鑑みてなされたものであり、上記問題点を解決する発明を提供することを目的とする。

20

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明は、上記課題を解決すべく、以下に掲げる構成とした。

本発明の放射線分析方法は、複数の放射性の核種が混在する試料から発せられる放射線のエネルギースペクトルを測定し、前記試料に含まれる前記核種を認識する放射線分析方法であって、前記放射線を検出する放射線検出器において、同一測定対象に対する検出強度が異なるような複数の条件が、設定条件として定められ、前記試料を前記放射線検出器で測定したエネルギースペクトルである実測スペクトルを得る試料測定工程と、前記実測スペクトル中における、前記核種のうちで前記放射線における寄与が最も大きな前記核種である背景核種に起因する成分である背景核種起因成分を、前記設定条件毎に前記放射線検出器で測定して得られた結果より推定する背景核種起因成分推定工程と、前記実測スペクトルから前記背景核種起因成分を差し引いた補正後スペクトルを算出する補正後スペクトル算出工程と、を具備し、前記補正後スペクトルによって前記試料の分析を行うことを特徴とする。

30

本発明の放射線分析方法は、前記背景核種で構成された参照用線源から発せられた放射線を前記設定条件毎に前記放射線検出器で測定して得られたエネルギースペクトルである参照スペクトルを得る参照用線源測定工程を具備し、前記背景核種起因成分推定工程において、前記参照スペクトルと前記実測スペクトルとを比較することによって、前記背景核種起因成分を推定することを特徴とする。

40

本発明の放射線分析方法は、前記参照用線源測定工程における前記放射線検出器と前記参照用線源との間の距離の設定が、前記設定条件に含まれることを特徴とする。

本発明の放射線分析方法において、前記放射線検出器には、前記放射線検出器に入射する前記放射線を互いに異なる度合いで吸収して制限する複数の遮蔽体が切り替えて設けられ、当該遮蔽体の選択が前記設定条件に含まれることを特徴とする。

本発明の放射線分析方法において、前記放射線検出器は、前記放射線を吸収して光を発するシンチレータと、当該光を検出する光検出器と、を具備し、異なる大きさの前記シンチレータのうちのいずれかが切り替えて用いられ、前記シンチレータの大きさの選択が前記設定条件に含まれることを特徴とする。

50

本発明の放射線分析方法において、前記光検出器は光電子増倍管であることを特徴とする。

本発明の放射線分析方法において、前記光電子増倍管は陰極、陽極、及び陰極と陽極との間の複数のダイノードを有し、前記光電子増倍管において、前記光を検出した際における前記陽極と前記陽極に隣接する前記ダイノードである最終段ダイノードの間に流れる電流の増加に伴う前記陽極と前記最終段ダイノードとの間に印加される電圧の変動を抑制する電圧変化抑制手段が設けられたことを特徴とする。

本発明の放射線分析方法において、前記電圧変化抑制手段は、前記最終段ダイノードと前記最終段ダイノードに隣接する前記ダイノードとの間に流れる電流の増加に伴う前記最終段ダイノードと前記最終段ダイノードに隣接する前記ダイノードとの間に印加される電圧の変動を抑制することを特徴とする。

10

本発明の放射線分析方法において、前記背景核種は ^{137}Cs 又は ^{60}Co であることを特徴とする。

本発明の放射線分析装置は、前記放射線分析方法を実行する放射線分析装置であって、前記背景核種起因成分推定工程を実行して前記背景核種起因成分を算出し、前記補正後スペクトル算出工程を実行して前記補正後スペクトルを算出する算出部を具備することを特徴とする。

【発明の効果】

【0013】

本発明は以上のように構成されているので、高線量下においても放射線検出器で得られたエネルギースペクトルの解析によって試料の分析を高精度で行うことができる。

20

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】高線量の試料から得られる実測スペクトルの例である。

【図2】 ^{137}Cs で構成された参照用線源から得られる参照スペクトルの例である。

【図3】本発明の第3の実施の形態に係る反射型の分光分析装置の構成を示す図である。

【図4】本発明の実施の形態に係る放射線分析方法を実行する装置構成である

【図5】本発明の実施の形態に係る放射線分析方法を示すフローチャートである。

【図6】本発明の実施の形態に係る放射線分析方法における背景核種起因成分推定工程の例を示すフローチャートである。

30

【図7】実施例に係る放射線分析方法において得られた実測スペクトルである。

【図8】実施例に係る放射線分析方法において得られた参照スペクトルである。

【図9a】実施例に係る放射線分析方法において得られた実測スペクトルにおける ^{60}Co のピーク近傍の形状である。

【図9b】実施例に係る放射線分析方法において得られた実測スペクトルにおける ^{60}Co のピーク近傍の形状に対応した補正後スペクトルである。

【図10】光電子増倍管の構成を簡略化して示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0015】

以下、本発明の実施の形態に係る放射線分析方法について説明する。この放射線分析方法においては、放射線検出器によって得られた放射線（ γ 線）のスペクトルから、この放射線を発した核種が認識される。この際、放射線の線量が高く、検出すべき対象となる核種が発した放射線がこのスペクトル中で認識しにくい場合においても、その認識を高精度で行うことができる。

40

【0016】

ここでは、測定対象となる試料は、原子力施設あるいは放射線施設の環境の一部であるために放射線量が高く、検出される放射線（ γ 線）として、特に ^{137}Cs が発した γ 線の影響が最も強いものとする。また、ここで γ 線を検出するために用いられる放射線検出器は、シンチレータと光電子増倍管の組み合わせであり、 γ 線光子1個がシンチレータに入射した場合において、その吸収によってパルス状の可視光（パルス光）がシンチレー

50

タから発せられる。このパルス光が光電子増倍管で検出され、その電圧出力が前記のようにこのパルス光に対応したパルス状となり、理想的な場合にはそのパルス電荷量（あるいは波形積分値）はシンチレータで吸収された γ 線光子のエネルギーに対応する。使用されるシンチレータ、光電子増倍管は、対象となるエネルギー範囲の γ 線が高効率で計測されるように設定され、その詳細については後述する。

【0017】

ただし、特に高線量下においては、前記のように実際にはこのパルス電荷量（あるいは波形積分値）がシンチレータで吸収された γ 線光子のエネルギーに対応しない成分も多く発生する。図1は、原子力施設あるいは放射線施設の関連の高線量の環境下での測定結果のシミュレーション結果である。ここで認識される各ピークのエネルギー及びこのエネルギーの γ 線を発する核種が図中に示されており、ここでは ^{137}Cs （662 keV）、 ^{134}Cs （604 keV、796 keV）、 ^{40}K （1408 keV）の発する γ 線に対応するピークが見えている。これらの核種が発するこれらの γ 線は単色であるが、このスペクトルにおいては、これらの γ 線は、頂点がこのエネルギーに対応し、検出器のエネルギー分解能で定まる広がりをもつ分布として認識される。これらの中では、 ^{137}Cs （662 keV）のピークが最も顕著である。ただし、これらのピーク以外に、特に低エネルギー側の強度が高い連続成分が見られ、この連続成分には ^{137}Cs （662 keV）の γ 線のシンチレータ中における前記のようなコンプトン散乱に起因する成分が含まれる。また、高エネルギー側における1334 keV（662 keVの2倍）のピークは、前記のような ^{137}Cs （662 keV）のサム効果によるピークである。

【0018】

一方、図2は、参照用の試料として ^{137}Cs 線源を同様の検出器で測定した場合の実測のスペクトルである。ここで、横軸は検出器のチャンネルであり、 γ 線のエネルギーに対応し、縦軸はカウント数（検出された γ 線の数）である。この場合においても、 ^{137}Cs が発する662 keVの単色 γ 線が放射線検出器のエネルギー分解能によって定まる広がりをもって認識されるピーク（662 keVに対応）が見られ、かつ、前記のコンプトン散乱による効果を含む低エネルギー側の連続成分、前記のサム効果によるピークも見える。図1より、このサム効果によるピークは ^{40}K によるピークに近いが、 ^{40}K の検出精度に大きな影響を及ぼす。図2における662 keVのピークよりも低エネルギー側の成分（低エネルギー側妨害成分）は前記のコンプトン効果によって発生した成分等を含み、662 keVのピークよりも高エネルギー側の成分（高エネルギー側妨害成分）は前記のようなサム効果、パイルアップ等によって発生した成分を含む。低エネルギー側妨害成分、高エネルギー側妨害成分の大部分は ^{137}Cs の存在量が多い場合には特に顕著となり、かつ図1における ^{137}Cs 以外の核種のピークの認識に大きな影響を及ぼす。

【0019】

このため、図1のスペクトルから図2に示されたような ^{137}Cs に起因した成分を差し引けば、 ^{137}Cs 以外の核種による γ 線のピークが顕著になったスペクトルが得られることが期待される。仮に図2のスペクトルにおいて662 keVのピークのみが見えている場合には、こうした作業は容易であり、これによって図1のスペクトルから ^{137}Cs に起因する成分を除去することができる。しかしながら、図2のスペクトルにおいては、このピーク以外に前記のような妨害成分（低エネルギー側妨害成分、高エネルギー側妨害成分）が見られ、これらの妨害成分は、測定の諸条件、環境に応じて変動する。このため、実測の環境下で測定される結果（図1に対応）における実際の妨害成分は、一般的には参照用の試料に対して別の環境で測定された図2のスペクトル中における妨害成分とは一致しない。

【0020】

このうち、高エネルギー側妨害成分においては、前記のように ^{137}Cs が発した γ 線のパイルアップやサム効果によって発生する部分が含まれる。具体的には、この妨害成分は ^{137}Cs が発した γ 線の単位時間当たりのカウント数（検出総数）が多い場合に顕著となる。前記の通り、ここで用いられる放射線検出器としては、シンチレータと光電子増

倍管が用いられるが、ここで検出されるのは、シンチレータで γ 線が吸収される際に発せられたパルス光であり、この数はシンチレータの大きさに依存し、シンチレータが大きいくほど多くなる。このため、シンチレータが大きな場合には、スペクトルにおける測定対象となる核種のピークの強度が高くなる一方で、このような高エネルギー側の妨害成分も大きくなる。逆に、シンチレータが小さな場合には、スペクトルにおける測定対象となる核種のピークの強度が低くなるが、高エネルギー側妨害成分が小さくなりこれが無視できる程度とすることもできる。すなわち、シンチレータの大きさを変えることによって、特に高エネルギー側の妨害成分の影響を調整することができる。

【0021】

また、図2における低エネルギー側妨害成分は、 ^{137}Cs が発した γ 線によってコンプトン効果等によって発生したこれよりも低いエネルギーの γ 線 (X線) を含む。この成分は ^{137}Cs が発した γ 線や上記の高エネルギー側妨害成分と比べて吸収されやすい (物質における吸収係数が大きい) ため、遮蔽を用いることによって低減することができる。すなわち、遮蔽の厚さを変えることにより吸収の度合いを変えることによって、特に低エネルギー側妨害成分の影響を調整することができる。

【0022】

上記においては、図2における高エネルギー側妨害成分がシンチレータの大きさに、低エネルギー側妨害成分が遮蔽の厚さに、それぞれ依存するものと単純化したが、実際には、高エネルギー側妨害成分、低エネルギー側妨害成分は共にどちらの影響も受ける。このため、実測のスペクトル (図1に対応) における影響が支配的な核種 (背景核種) である ^{137}Cs で構成された参照用線源 (^{137}Cs 線源) を、シンチレータの大きさ、遮蔽の厚さをそれぞれ変化させて測定したスペクトルから、図1のスペクトルから差し引くべき成分 (背景核種起因成分) を再現することができる。この背景核種起因成分には、 ^{137}Cs 自身が発する 662 keV の γ 線だけでなく、前記のように測定に起因して発生するパイルアップやサム効果による成分やバックグラウンド成分が含まれる。

【0023】

また、前記のように、試料について得られたスペクトル (実測スペクトル) における高エネルギー側妨害成分、低エネルギー側妨害成分がいずれも ^{137}Cs に起因する場合、高エネルギー側妨害成分、低エネルギー側妨害成分の検出強度と、 ^{137}Cs の発した 662 keV の単色 γ 線の検出強度 (ピーク強度) に相関があることは明らかである。この場合、上記の参照用線源 (^{137}Cs 線源) を、その検出強度が異なるような各種の条件で試料と同一の放射線検出器で測定してこの条件毎の測定結果 (参照スペクトル) を得た場合、どの参照スペクトルにも、662 keV のピークと高エネルギー側妨害成分、低エネルギー側妨害成分が含まれる。この参照スペクトルのうち、 ^{137}Cs を最も強く反映する 662 keV のピークが試料のスペクトル (実測スペクトル) における 662 keV のピークと最も近い形状をもつものが、実測スペクトルにおける ^{137}Cs に起因する成分を最もよく反映していると推定することができる。すなわち、この参照スペクトルを背景核種起因成分とすることができる。このような、参照用スペクトルを得る際に検出強度が異なるような結果をもたらすようなパラメータとして、前記のようなシンチレータの大きさや遮蔽の厚さがあるが、最も単純な場合として、放射線検出器と参照用線源との間の距離をこのパラメータとすることもできる。

【0024】

図3は、上記の放射線分析方法を実現する測定系全体を模式的に示す。この構成においては、 γ 線を検出する放射線検出器10と、この放射線検出器10の測定結果 (γ 線のエネルギー・スペクトル: スペクトル) を認識し、これを用いて各種の演算処理を行うことにより前記の大量核種起因成分及び実測スペクトルからこの大量核種起因成分を差し引いたスペクトルを算出するコンピュータ (算出部) 20 が用いられる。放射線検出器10は、遮蔽体11、シンチレータ12、光電子増倍管 (光検出器) 13 を組み合わせたものが用いられ、遮蔽体11の厚さは複数のものが切り替えて使用され、シンチレータ12としては同一材料で異なる大きさ (光軸方向の厚さ、光軸方向と垂直な幅) のものが用いられる

。遮蔽体 11 は、例えば重金属（W 等）で構成され、その厚さの範囲は、測定されるスペクトル（ γ 線の検出強度）が有意に変化する程度の範囲とされ、試料 100 が発する放射線（ γ 線）の強度に応じて適宜設定される。シンチレータ 12、光電子増倍管 13 の詳細については後述する。前記のように光電子増倍管 13 からはパルス状の電圧出力が発せられるが、この処理のためには、信号処理部 30 においてこの信号が短い時間間隔（例えば 2 ns 以下）で A/D 変換されて、コンピュータ 20 においてデジタル信号として認識される。

【0025】

また、この放射線検出器 10 によって、試料 100 と参照用線源 200 が発した γ 線のスペクトルが、異なる大きさのシンチレータ 12、異なる厚さの遮蔽体 11 毎にそれぞれ得られ、コンピュータ 20 におけるハードディスクや不揮発性メモリ等に記憶され、演算に用いられる。ここで、参照用線源 200 は前記の背景核種で構成された線源であり、前記の場合には ^{137}Cs であるが、実際には試料 100 に応じて設定される。この背景核種は、図 1 に示されたような放射線検出器 10 によって測定された試料のスペクトルにおいて最も顕著なピークが見えた核種であり、例えば試料 100 が原子炉環境にある場合には、 ^{137}Cs の他に ^{60}Co とされる場合もある。

【0026】

図 4 は、上記の構成を用いて実行される放射線分析方法を示すフローチャートである。この放射線分析方法においては、まず、図 1 に示されたような試料 100 のスペクトル（実測スペクトル）が前記の放射線検出器 10 によって測定される（試料測定工程：S1）。前記のように、ここではシンチレータ 12 として異なる大きさのものが複数種類、遮蔽体 11 として異なる厚さのものが複数種類用いられ、各条件（設定条件）毎に実測スペクトルが得られ、コンピュータ 20 に記憶される。図 1 は、このような実測スペクトルの一つの例に対応する。

【0027】

次に、前記の参照用線源 200 に対して、前記同様の測定が行われ（参照用線源測定工程：S2）、各設定条件毎に得られたスペクトル（参照スペクトル）がコンピュータ 20 に記憶される。なお、参照用線源 200 として選択される核種（背景核種）は、試料測定工程で得られた実測スペクトルから、最も支配的である核種として選定することができる。背景核種が予め判明している場合には、参照用線源測定工程を試料測定工程の前に行ってもよい。また、この場合には、試料 100 が異なる場合でも共通の参照スペクトルを用いることができ、異なる試料 100 が用いられる度にこの工程を行う必要はない。図 2 は、このような参照スペクトルの一つの例となる。

【0028】

次に、参照用線源測定工程（S2）で得られた参照スペクトルから、前記のように図 1 で示されたような実測スペクトル中における背景核種（ ^{137}Cs ）に起因する成分である背景核種起因成分を推定する（背景核種起因成分推定工程：S3）。この背景核種起因成分には、前記のように単なる ^{137}Cs が発する 662 keV の単色 γ 線に対応するピークだけでなく、これ以外の前記の妨害成分も含まれる。このための推定方法としては、各種の方法が選択可能である。

【0029】

図 5 は、この方法の一例を示すフローチャートである。このための演算処理はコンピュータ 20 で行われる。ここでは、前記のような放射線検出器 10 の設定条件としてシンチレータ 12 の大きさ、遮蔽体 11 の厚さが定められ、設定条件毎の解析が行われる。このため、まず、ある一つの設定条件（シンチレータ 12 の大きさと遮蔽体 11 の厚さの組み合わせ）が設定される（S31）。実測スペクトル、参照スペクトルのうち、この条件のものが選択され、これらに対応可能となるように規格化が行われる。この規格化手法としては各種のものが用いられ、例えば ^{137}Cs に対応する 662 keV のピーク強度が両者で等しくなる（すなわち、このピークエネルギーにおいては差分が零となる）ように規格化が行われる（S32）。その後、規格化後のこれらの差分のスペクトル（差分スペク

10

20

30

40

50

トル)が算出され(S 3 3)、コンピュータ20に記憶される。この作業は、すべての条件について差分スペクトルが得られるまで行われる(S 3 4: Yes)。

【0030】

次に、どの設定条件(シンチレータ12の大きさ、遮蔽体11の厚さ)に対応した差分スペクトルが最も適切であるかが認識される(S 3 5)。この判断基準も適宜設定することができる。例えば、スペクトルにおけるサム効果の影響が大きな場合には、このサム効果に対応した成分が最も小さくなったものを選択する、認識する候補となる核種の γ 線エネルギーに対応するピークが最も高コントラストで得られる場合を選択する、等が考えられる。

【0031】

これによって、背景核種起因成分に対応した設定条件(シンチレータ12の大きさ、遮蔽体11の厚さ)が定まり、これに対応した参照スペクトルが認識される。ただし、この参照スペクトルは実測スペクトルと同様に実測の結果であるため、一般的には大きな統計誤差を有する。このため、この参照スペクトルから、尤もらしいと推定される背景核種起因成分を選定あるいは補間スペクトルを構築することが望ましい。このためには、例えばG. F. Knoll、「Radiation Detection and Measurement」、Willyのchapter 10 (Radiation Spectroscopy with Scintillators)に記載されたようなピーク近傍のモデル化を用いて、実測の結果と参照スペクトルをそれぞれフィッティングした結果を比較して尤もらしい参照スペクトルあるいは補間スペクトルを背景核種起因成分とすることができる。この場合、例えば662 keVのピークをガウス分布で近似して、更にこれにエネルギーに対する線形成分を加えたスペクトルをこの参照スペクトルに対して最小二乗法でフィッティングした結果を利用できる。このモデル化は、参照スペクトルの形状によって適宜設定することができる。なお、このようにフィッティングによって得られた結果を前記の差分スペクトルの算出(S 3 3)の段階で行ってもよい。

【0032】

また、背景核種起因成分推定工程(S 3)において、参照用線源測定工程(S 2)で各設定条件毎に得られた参照スペクトルを用いず、試料測定工程(S 1)で各設定条件毎に得られた実測スペクトルのみを用いて背景核種起因成分を推定することもできる。これは、特に設定条件(使用されたシンチレータ12、遮蔽体11の種類の数)が多い場合に有効である。この場合においては、設定条件毎の実測スペクトルの差分、例えば異なる2種類の大きさのシンチレータ12に対応する実測スペクトルの差分を複数算出することによって、ある一つの大きさのシンチレータ12の場合における背景核種起因成分を推定することができる。こうした推定は、特に参照スペクトルが前記のようなモデルで高精度で近似される場合において有効である。これは、実測によって前記の参照スペクトルを得る代わりに、異なる設定条件の実測スペクトルの差分を多く得ることによって、参照スペクトルを推定することと等価である。この場合には、参照用線源測定工程(S 2)は不要となるため、測定に要する時間を短くすることができる。

【0033】

次に、図4に示されるように、実測スペクトルと背景核種起因成分Bとの差分となる補正後スペクトルが算出される(補正後スペクトル算出工程:S 4)。図6は、図1の結果を実測スペクトルとした場合における、このような背景核種起因成分Bと補正後スペクトルSPを示す。この補正後スペクトルにおいては、 ^{137}Cs に起因する成分が低減されるため、他の核種(図6においては ^{134}Cs や ^{40}K)の発する γ 線のピークが明瞭となる。このため、補正後スペクトルを解析することによって、これらの他の核種の組成分析等を行うことができる(補正後スペクトル解析工程:S 5)。

【0034】

なお、上記の例では、放射線検出器10における設定条件としてシンチレータ12の大きさと遮蔽体11の厚さが指定された。ここで、遮蔽体11は低エネルギー側をカットするためのフィルターとして機能するため、その厚さがスペクトルの形状に与える。さらに

10

20

30

40

50

、遮蔽体 11 の材質は、特性 X 線発生に影響するため。遮蔽体厚ならびに遮蔽体材質を変えた多層構造の遮蔽体 11 を構築することもできる。ただし、低エネルギー光子を測定対象外とする場合、遮蔽体 11 の構造は変えずに一定とし（あるいは遮蔽体 11 を用いずに）、シンチレータ 12 の大きさのみを変えて上記の測定を行ってもよい。また、上記においては遮蔽体 11 より放射線の吸収の度合いを変えるために遮蔽体 11 の厚さが複数設定されたが、吸収の度合いを変えるために遮蔽体 11 の材質が複数設定されていてもよい。また、上記の放射線検出器 10 は、検出した γ 線光子毎にそのエネルギーを認識する。こうした用途においては、前記のようなシンチレータ 12 と光電子増倍管 13 の組み合わせは特に好ましい。ただし、光電子増倍管 13 と同様に検出した γ 線光子毎にそのエネルギーを認識することができる光検出器を代わりに用いてもよい。

10

【0035】

また、補正後スペクトル解析工程（S5）において、核種の組成分析の代わりに他の分析を行ってもよい。この場合においても、上記の補正後スペクトルを用いることによって大量に存在する ^{137}Cs の影響を低減することができる。また、上記の例では背景核種が ^{137}Cs とされたが、場合に応じて他の核種、例えば ^{60}Co を背景核種とした場合においても、同様である。また、上記の例では、 γ 線が検出されそのエネルギースペクトルが得られたが、他の放射線、例えば中性子のエネルギースペクトルを用いて試料の解析が行われ、この中で特定の核種の影響が大きな場合には、同様の手法を適用することができる。

【0036】

図5のフローチャートにおいては、設定条件としてシンチレータ12の大きさと遮蔽体11の厚さが定められた。一方、前記のように、参照用線源測定工程（S2）において、放射線検出器10における参照用線源（ ^{137}Cs ）の測定強度が異なるような複数の条件下で得られた測定結果を参照スペクトルとして用いることができる。この場合の図4のフローチャートに沿った実際の手順について説明する。

20

【0037】

この場合、試料測定工程（S1）においては、放射線検出器10側の設定（シンチレータ12の大きさ、遮蔽体11の厚さ）を一定として測定を行った結果を実測スペクトルとすることができる。

【0038】

次に、参照用線源測定工程（S2）において、参照用線源200（背景核種 ^{137}Cs ）を、放射線検出器10における測定強度が異なるような複数の条件（設定条件）で測定して参照スペクトルを得る。前記のように、参照用線源200と放射線検出器10との間の距離を、この場合における設定条件とすることができる。すなわち、参照用線源測定工程（S2）において、参照用線源200と放射線検出器10の間の距離を変えて複数回の測定を行うことによって、対応する複数の参照スペクトルが得られる。

30

【0039】

次に、背景核種起因成分推定工程（S3）においては、実測スペクトル中における662 keVのピーク周囲の形状と各参照スペクトルにおける662 keVのピーク周囲の形状を比較し、この形状が最も実測スペクトルに近い（差分が小さい）参照スペクトルを、背景核種起因成分であると推定することができる。その後は、前記の例と同様に、実測スペクトルとこの背景核種起因成分との差分から補正後スペクトルを得る補正後スペクトル算出工程（S4）、補正後スペクトル解析工程（S5）が行われる。

40

【0040】

この場合における実際に得られた結果について説明する。前記の例では、 ^{137}Cs の存在下における ^{40}K を測定する場合について示されたが、ここでは、 ^{137}Cs （背景核種）の存在下における ^{60}Co を測定した場合について示す。図7は、この場合において得られた実測スペクトル（図4：S1）である。横軸はチャンネル（ γ 線のエネルギーに対応）であり、認識されるピークのエネルギーが図中に記載されている。背景核種が ^{137}Cs であるため、662 keVのピークについては、前記の場合と同様である。また

50

、 ^{60}Co は1333 keVのピークをもつが、このピークは ^{137}Cs のサムピーク(1334 keV)と実質的に重複する。

【0041】

次に、前記のように距離を変えて背景核種(^{137}Cs)に対して測定を行って得られた参照スペクトル(図4:S2)を図8に示す。ここで、距離(設定条件)は7通りに設定され、前記の通り、 ^{137}Cs に起因する成分(662 keVのピーク、これに関連するサムピーク、その他低エネルギー側妨害成分、高エネルギー側妨害成分)が見える。この各参照スペクトルと実測スペクトル(図7)における662 keVのピーク付近の形状を比較したところ、図8における上から2番目の参照スペクトルと実測スペクトルと間の差分が最も小さかった。このため、この参照スペクトルを背景核種起因成分と推定した(図4:S3)。

10

【0042】

図9aは、図7における1333 keV付近の形状を拡大して示す図であり、図9bは、これと同一範囲における上記の背景核種起因成分を用いて算出した補正後スペクトル(図4:S4)である。この補正後スペクトルにおいては、 ^{60}Co のピーク(1333 keV、1173 keV)が明確になっている。すなわち、上記の放射線分析方法によって、測定対象とした ^{60}Co のピークが鮮明に得られている。

【0043】

次に、上記の放射線分析方法において特に好ましく用いられる放射線検出器10の構成について説明する。前記の通り、この放射線検出器10は、シンチレータ12と光電子増倍管13とが組み合わされて用いられる。

20

【0044】

まず、シンチレータ12を構成する材料について説明する。この材料としては、 γ 線を吸収させるために密度が大きく、パイルアップ等が発生しにくくするために発光の減衰時間が短く、自己放射能が小さく、かつ高いエネルギー分解能が得られるものが好ましい。こうした要件を満たす材料として、 CeBr_3 (発光波長370 nm、減衰時間19 ns、密度5.1 g/cm³)や、 Ce ドーブされた LaBr_3 (発光波長380 nm、減衰時間16 ns、密度5.3 g/cm³)がある。前記のようにシンチレータ12の大きさは複数種類が設定されるが、この大きさは、例えば立方体として1辺を4 mm~15 mmの範囲とすることができる。

30

【0045】

一方、図4における背景核種起因成分推定工程(S3)においては、参照スペクトルを用いる場合も、実測スペクトルのみを用いる場合においても、スペクトルを比較する(差分を計算する)作業が行われる。この場合においては、図1、2のスペクトルの横軸となるエネルギーのスケールが比較される各スペクトル間で統一されていることが要求される。一方で、これらのスペクトルは対応する設定条件が異なるため、 γ 線の強度の絶対値(単位時間当たりの検出総数)は異なる。このエネルギーは光電子増倍管13に入射したパルス光に対応して光電子増倍管13内で増倍されて出力された電流強度に対応する。一般的に、シンチレータ12から発せられるパルス光の強度(パルスの電荷量あるいは波形積分値)は吸収した γ 線のエネルギーに比例するのに対し、以下に説明するように、光電子増倍管13におけるパルス光の強度と出力される電流強度は、必ずしも良好な比例関係とはならず、この場合には、前記のようなスペクトルにおけるエネルギーのスケールの変動が発生するため、上記の解析を実質的に行うことができない。

40

【0046】

図10は、光電子増倍管13の構造及びその駆動回路を簡略化して示す図である。図7においては、構成が単純化して示されているため、各構成要素の形状や位置関係は実際のものとは正確には異なる。また、この例ではダイノードは3つのみ用いられているが、実際にはより多くのダイノードが設けられている。光電子増倍管13においては、矢印A1で示されたようにシンチレータ12からパルス光(可視光)が入射すると、真空中における陰極131側の光電面(図示せず)の光電変換によってその強度に比例した電子(光電

50

子)が発せられる。この電子は矢印 A 2 で示されるようにフォーカスグリッド 1 3 2 によってフォーカスされてダイノード 1 3 3 に入射し、より多くの電子が生じ、これがその後段のダイノード 1 3 4 に流れる。ダイノード 1 3 4、1 3 5 でも同様に電子の増倍が行われ、矢印 A 3、A 4、A 5 に示されるように逐次増倍された電子が最終的に陽極 1 3 6 に流れる。ここで、ダイノード間における増倍率はダイノード間の電位差に依存する。

【0047】

ただし、実際には、光電子増倍管 1 3 において直流電圧が印加されるのは陰極 1 3 1 と陽極 1 3 6 の間であり、各ダイノード間には、この直流電圧の一部が分割されて印加される。一方、図 7 における矢印 A 2 ~ A 5 で示された電子の流れ(電流)は、前記の増倍のために、後段側に向けて大きくなる。例えば特開平 7 - 1 4 2 0 2 4 号公報、特開平 1 0 - 2 0 8 6 8 8 号公報、特開 2 0 1 0 - 5 4 3 6 4 号公報には、こうした場合において、ダイノード間(あるいはダイノード - 陽極間)に流れる電流が後段側に向けて大きくなるのに従って、ダイノード間(あるいはダイノード - 陽極間)に印加される電圧(絶対値)が減少(変動)することが記載されている。

10

【0048】

前記のようにこの電圧は直流電源の電圧から分割されて生成されるため、後段側でこの電圧が減少した場合には、その前段側のダイノード間の電位差(絶対値)が上昇する。これによって前段側の増倍率が高くなり、光電子増倍管 1 3 における最終的な電子の増倍率においては前段側の増倍率の寄与が大きいために、これによって最終的な電子の増倍率は、このように電圧の変動がなかった場合と比べて上昇する。この場合、光電子増倍管 1 3 におけるパルス光の強度と出力される電流強度は、比例関係とはならず、比例関係の場合よりも出力される電流強度が大きくなる。

20

【0049】

特開平 7 - 1 4 2 0 2 4 号公報、特開平 1 0 - 2 0 8 6 8 8 号公報、特開 2 0 1 0 - 5 4 3 6 4 号公報には、このように光を検出した際における陽極 1 3 6 とこれ隣接するダイノード 1 3 5 (最終段ダイノード)の間に流れる電流の増加に伴う、これらの間に印加される電圧の低下を抑制する手段(電圧変化抑制手段)が設けられている。特開平 7 - 1 4 2 0 2 4 号公報に記載の技術においては後段側のダイノードに補助的な直流電源を接続することによって、特開平 1 0 - 2 0 8 6 8 8 号公報に記載の技術においてはコッククロフト・ウォルトン回路を用いることによって、特開 2 0 1 0 - 5 4 3 6 4 号公報に記載の技術においてはダイノード毎にトランジスタを接続した回路を用いることによって、このような電流の増加に伴う電圧の低下を抑制している。

30

【0050】

すなわち、このような電圧変化抑制手段が設けられた光電子増倍管 1 3 を用いることが特に好ましい。ただし、このような電圧変化抑制手段が用いられなくとも、上記のような出力における線形性が保たれていればよい。

【符号の説明】

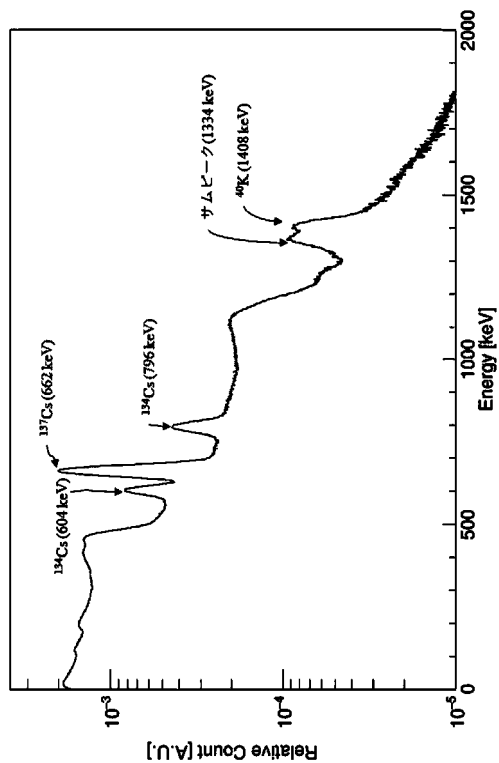
【0051】

- 1 0 放射線検出器
- 1 1 遮蔽体
- 1 2 シンチレータ
- 1 3 光電子増倍管
- 2 0 コンピュータ(算出部)
- 3 0 信号処理部
- 1 0 0 試料
- 1 3 1 陰極
- 1 3 2 フォーカスグリッド
- 1 3 3 ~ 1 3 5 ダイノード
- 1 3 6 陽極
- 2 0 0 参照用線源

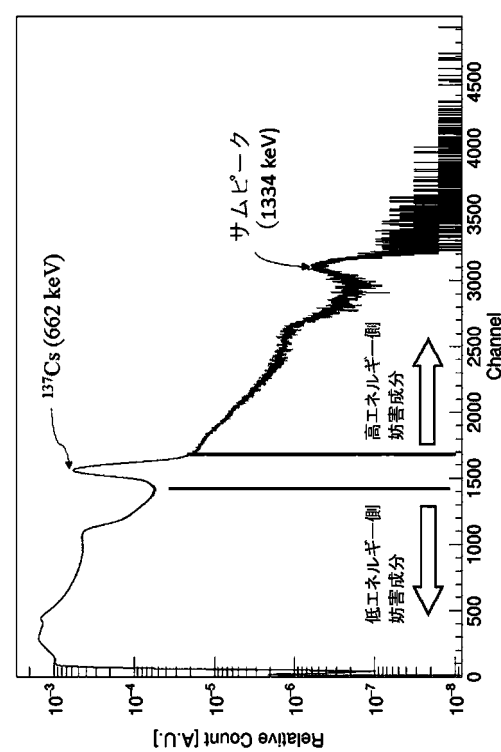
40

50

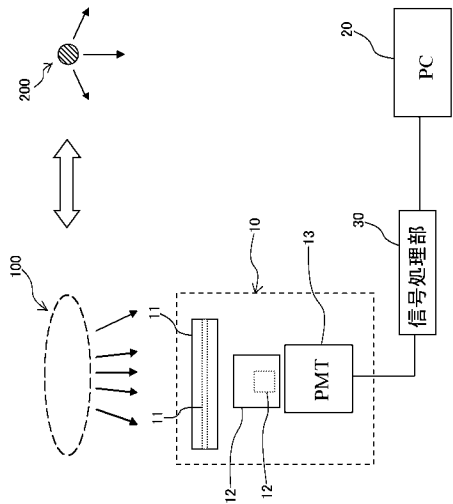
【図 1】



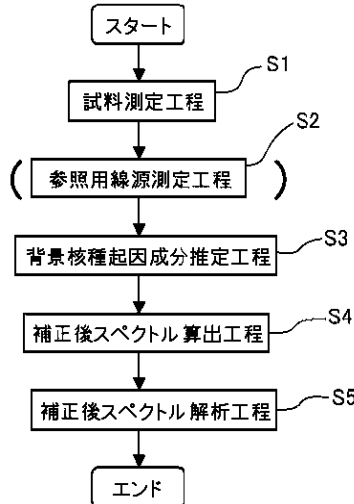
【図 2】



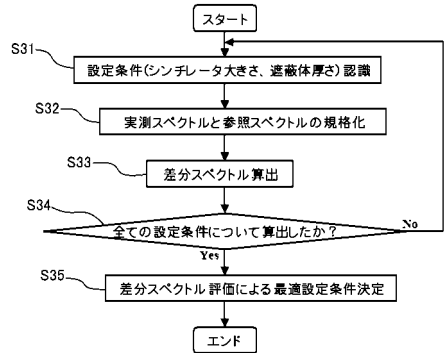
【図 3】



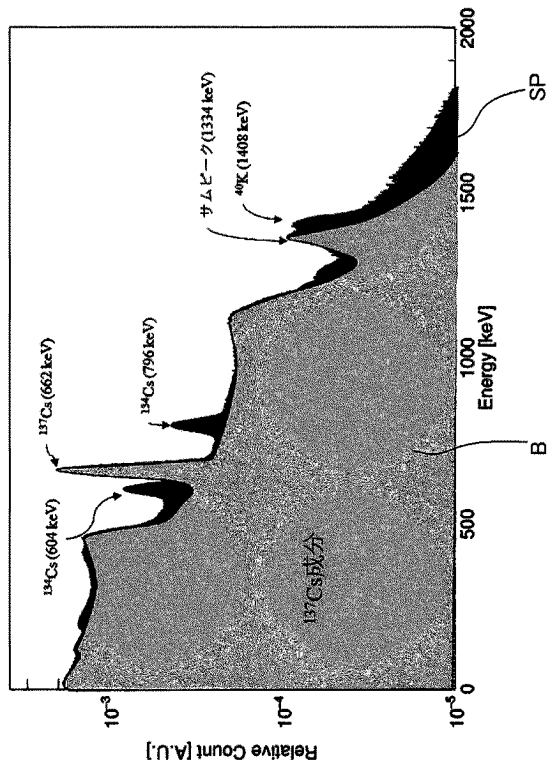
【図 4】



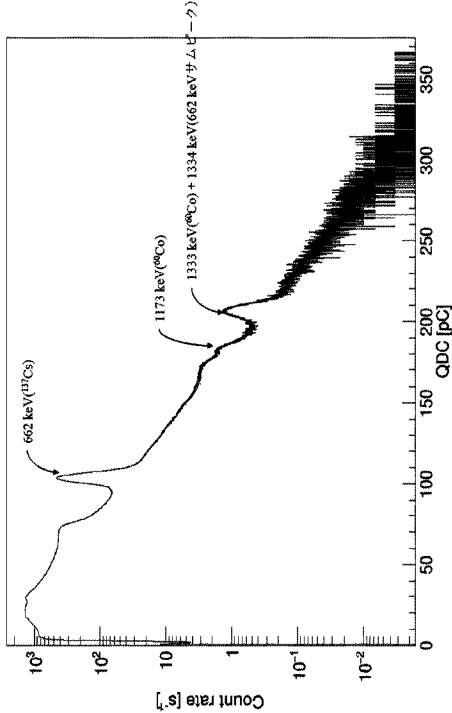
【図 5】



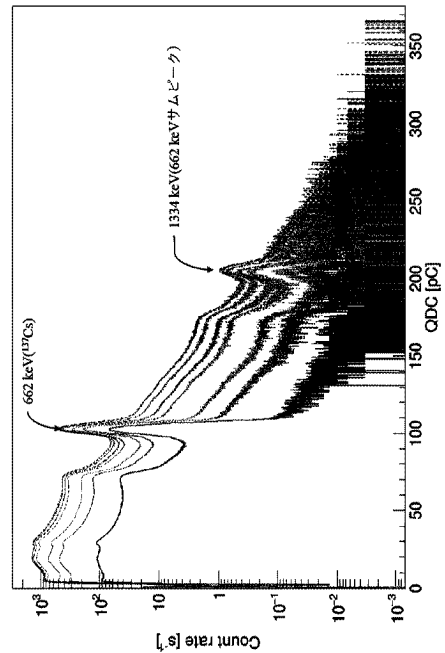
【図 6】



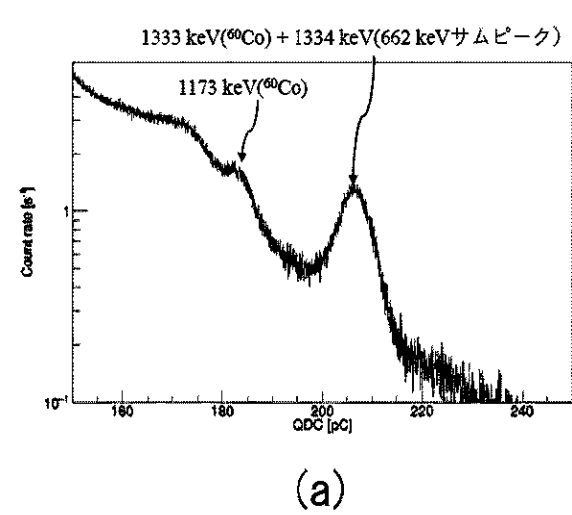
【図 7】



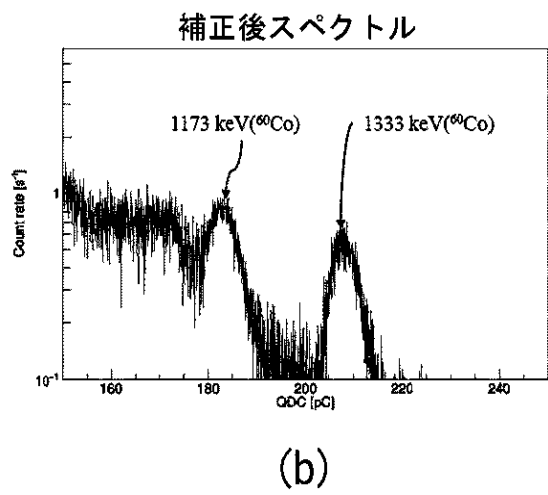
【図 8】



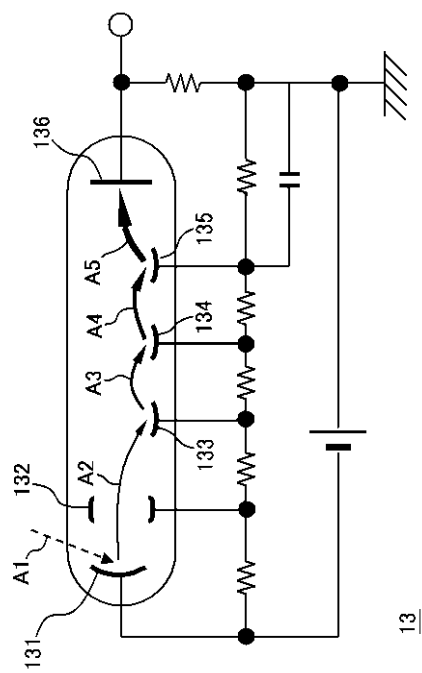
【図 9 a】



【図 9 b】



【図 1 0】



フロントページの続き

(72)発明者 島添 健次

東京都文京区本郷七丁目3番1号 国立大学法人東京大学内

審査官 右▲高▼ 孝幸

(56)参考文献 特開2015-141158(JP,A)

特許第6507439(JP,B2)

米国特許出願公開第2017/0234997(US,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G01T 1/167

G01T 1/20

G01T 1/208