



# 時間間隔解析技術を用いた長半減期放射性物質の定量

植頭 康裕 橋本 哲夫\*

東海事業所 放射線安全部  
\*新潟大学 理学部

Determination of Long Lived Nuclides Using Time Interval Analysis

Yasuhiro UEZU Tetuo HASHIMOTO\*

Radiation Protection Division, Tokai Works  
\* Faculty of Science, Niigata University

ラドンの壊変生成物のような天然に存在する短半減期核種とプルトニウムのような人工長半減期核種を化学分析を実施せずに迅速かつ正確に定量する方法のひとつとして時間間隔解析法がある。この時間間隔解析法は、短半減期核種と長半減期核種において、一定時間内の連続パルスの存在確率が異なっていることを利用したものである。

これまで、時間間隔解析法の原理、測定システム、ラドンの減算結果について報告してきたが、今回は上記に加え、確率論を加えた検出下限値の考え方について考察した。その結果、試料量 $6 \times 10^6 \text{ cm}^3$ 、測定時間60分の条件のもと、およそ $10^{-9} \sim 10^{-7} \text{ Bq/cm}^3$ と見積もることができた。

*One method of rapidly and accurately distinguishing artificial long-lived nuclides such as plutonium from natural short-lived nuclides such as progenies of radon without chemical separation is time interval analysis (TIA) based on difference existences of time intervals of radiation pulses between short and long-lived nuclides. The probability of extraction of short-lived nuclides is higher than long-lived nuclides within a given fixed time.*

*Lower limit of detection applied to a probability theory was examined in this report adding to the principle of TIA theory, measuring system and results of trial tests of subtraction of natural radionuclides such as Rn. The lower limit of detection was evaluated as  $10^9 \sim 10^7 \text{ Bq/cm}^3$ .*

## キーワード

時間間隔解析，長半減期核種，迅速定量，天然放射性物質，大気浮遊塵，プルトニウム，ラドン，検出下限値，確率分布

*Time Interval Analysis, Long-Lived Nuclides, Rapid Determination, Natural Radiation Material, Dust, Plutonium, Radon, Lower Limit Of Detection, Probability Distribution*

## 1. はじめに

線を放出するプルトニウム（以下Puと略す）やウラン（以下Uと略す）は、内部被ばく時の線

量寄与が大きい<sup>1)</sup>ことから、線を放出する放射性物質に比べて、管理基準は非常に低い。このため、ラドン（以下Rnと略す）等天然の放射性物質による妨害が大きく、迅速かつ正確に定量することが難しかった。これまではこれらを解決する意味で、試料に含まれるRn等の放射線の影響が弱まるまで数時間以上放置した後に測定する方法や放射線のエネルギーの違いを利用する方法、あるいは化学的に分析する方法などが用いられてきた。



植頭 康裕

環境監視課放出管理チーム所属  
副主任研究員  
施設周辺環境モニタリング及び環境試料中の放射性物質の分析・測定法の開発業務に従事  
博士（理学）



橋本 哲夫

新潟大学理学部教授  
環境監視課客員研究員  
環境放射線及び放射能の分析・測定方法と動態に関する研究に従事

しかし、いずれも天然の放射性物質の妨害を除去することが難しい、あるいは時間がかかるなど正確性や迅速性に欠けていた。このため、事故時などにPuやUの量を迅速かつ正確に測定することは困難であった。

そこで、PuやU等線を放出する長半減期核種を迅速かつ正確に定量するために、検出器に入射した放射線由来のパルスの時間間隔分布とエネルギー分布の情報を組み合わせ、<sup>222</sup>Rnの壊変生成物由来のパルスを電子回路上で減算することにした。

本報では、時間間隔解析法の原理、測定システム及び模擬試験結果<sup>2)</sup>に加え、確率論を考慮した検出下限値の考え方について報告する。

## 2. 概念

天然の放射性物質であるRn及びその壊変生成物等は、短半減期放射性物質であるため、放射線のパルスが一定の時間間隔内に連続して検出器に入射する確率が高く(以下「相関事象」という)、Puのような長半減期放射性物質は、測定時間内にランダムに入射する。

時間間隔解析法は、おおむねマイクロ秒からミリ秒オーダの半減期を有する核種の減算に適用でき、ウラン系列においては、<sup>214</sup>Bi-<sup>214</sup>Po のパルス対を除去できるものであり、トリウム系列においては、<sup>220</sup>Rn-<sup>216</sup>Po 及び<sup>212</sup>Bi-<sup>212</sup>Po のパルス対が本法により除去できる。図1に時間間隔解析法による天然放射性壊変系列中の着目核種を示す。

これらパルスの時間間隔の計測には、任意の測定時間内のすべてのパルス対の時間間隔を解析す

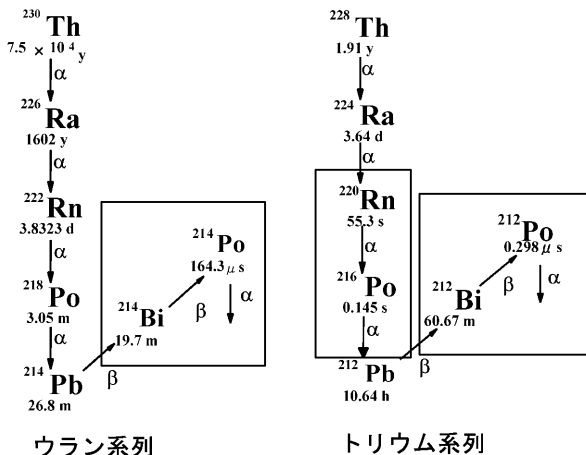


図1 天然放射性壊変系列における時間間隔解析法に適用可能な核種

る多重時間間隔解析(Multiple time interval analysis, 以下MTA法<sup>7)-9)</sup>を用いる。この手法は、主に短時間内で消滅する核種の炉内反応解析<sup>10)</sup>に用いられていたものである。この時間間隔解析の最終的な確率式は以下のとおりである。

検出器に入射したパルスは図2に示すように確率論的に次の4通りに区別される。(1)は、相関事象でスタートし相関事象で終わるもの(2)は相関事象でスタートし相関事象がfixed time内に入射し、ランダム事象で終わるもの(3)は、相関事象でスタートし、ランダム事象で終わるもの(4)は、ランダム事象でスタートし、ランダム事象で終わるものを示す。なお、相関事象とは、抽出目的の短寿命連続壊変事象(<sup>220</sup>Rn-<sup>216</sup>Po; 半減期145ミリ秒等)を示し、ランダム事象は、これによらないパルスを示す。

これら4つのパターンを確率論的に示すと、以下の4つの式となる。

$$\begin{aligned}
 P_1(t)dt &= \lambda_1 \cdot Pb(t) \cdot \exp(-\lambda_1 t) \cdot dt \\
 P_2(t)dt &= \lambda_1 \cdot Pb(t) \cdot \{1 - \exp(-\lambda_1 t)\} \cdot Cdt \\
 P_3(t)dt &= \lambda_1 \cdot Pb(t) \cdot \exp(-\lambda_1 t) \cdot Cdt \\
 P_4(t)dt &= (1 - \lambda_1) Pb(t) Cdt
 \end{aligned}$$

ここで、 $P(t)dt$ は、 $t = 0$ で任意のパルスによってスタートし、 $t$ 時間後に $dt$ 時間内の事象で終了する確率、 $Pb(t)$ は、 $t = 0$ で任意のパルスによってスタートし、 $t$ 時間に $N$ 個のランダムパルスが入る確率、 $Cdt$ 及び $\lambda_1 dt$ は $t$ 時間後微小時間 $dt$ 内にランダム事象及び相関事象が発生する確率であり、 $\lambda_1$ は、事象が相関事象により引き起こされる確率である。また、全計数を $M$ と定義する。

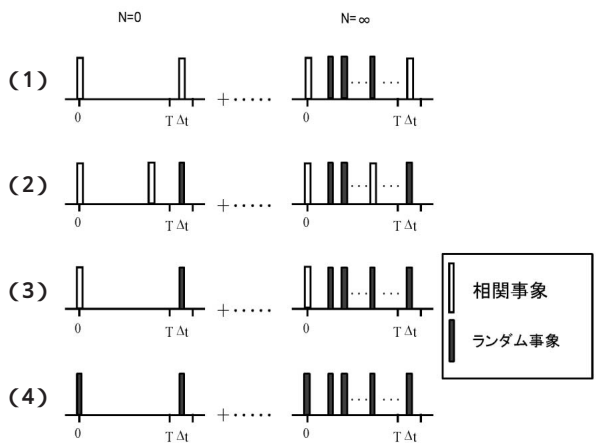


図2 時間間隔パルスの組み合わせ

全体のバルス対の発生確率P(t)は、以下のようになる。

$$P(t) = P_1(t) + P_2(t)dt + P_3(t) + P_4(t)dt$$

よって、上記式を解くと、以下の式が導かれる。

$$= \frac{(C \cdot t)^N}{N!} \exp(-C \cdot t) \{ t \cdot \exp(-t) \cdot C \} dt \quad \dots(1)$$

マクローリン展開から

$$\frac{(C \cdot t)^N}{N!} = \exp(C \cdot t) \quad \dots(2)$$

(2)式を(1)へ代入し、(3)式を得る。

$$MP(t) = M \{ t \cdot \exp(-t) \cdot C \} dt \quad \dots(3)$$

上式では第一項は相関事象の発生確率を示し、第二項は、ランダム事象の発生する確率を示している。このことは、Rnの壊変生成物のような短半減期核種が第一項に表現でき、Puのような長半減期核種は第二項に表現できるものである。

また、本法における検出下限値については、試料量  $6 \times 10^6 \text{cm}^3$ 、試料測定時間1時間、バックグラウンド測定時間1時間、バックグラウンド1cpm、計数効率30%の条件で、約  $6 \times 10^{-9} \text{Bq/cm}^3$  と評価できた。このレベルは<sup>239</sup>Puの周辺監視区域外の空気濃度限度である  $8 \times 10^{-9} \text{Bq/cm}^3$  を定量できる性能を有する。また、<sup>239</sup>Puの放射線業務従事者の呼吸する空気中の濃度限度 ( $7 \times 10^{-7} \text{Bq/cm}^3$ ) を評価するためには、試料量  $2 \times 10^6 \text{cm}^3$  (毎分100Lのサンプラで20分)、試料測定時間10分間、バックグラウンド測定時間10分間、バックグラウンド1cpm、計数効率30%の条件で定量できる性能を有する。

さらに確率論を加えた定量下限値の算出については、(1)式の長半減期成分とその誤差が全計数より少なければ時間間隔解析が可能である。

$$MCdt+n (MCdt) M \{ t \cdot \exp(-T_{1/2}) + C \} dt \quad \dots(4)$$

さらに計数率を以下のように定義する。

$$C = M(1 - \alpha) / T_m \quad \dots(5)$$

ここでCは計数率、Mは全計数、Tmは測定時間である。

さらに全計数を天然放射性核種 (Mn) と人工放射性核種 (Ma) に分け(4)式を展開すると

(6)式が導かれる。

$$C = \{ Mn(1 - \alpha) / T_m \} + \{ Ma / T_m \} \quad \dots(6)$$

となり(2)式に(4)式を代入し、さらに全計数のうちの人工放射性核種の割合をRとしてαとの関係を求めると図3が得られる。ここで、測定採取可能なウラン系列の放射性核種は<sup>222</sup>Rnから<sup>210</sup>Pbまで5壊変、トリウム系列の放射性核種は<sup>220</sup>Rnから<sup>208</sup>Pbまで5壊変であり、全体では10壊変であり、このうち時間間隔解析で抽出できるミリ秒からマイクロ秒オーダの短半減期放射性核種は<sup>220</sup>Rn - <sup>216</sup>Po、<sup>212</sup>Bi - <sup>212</sup>Po及び<sup>214</sup>Bi - <sup>214</sup>Poの3ペアであり、この割合は3 / 10 = 0.3となる。個々の放射性核種は計数効率が30%であり、壊変ペアの計数率は0.3 × 0.3 = 0.09となる。

よって、時間間隔解析法で抽出できる短半減期核種の割合(α)は0.3 × 0.09 = 0.027となる。図3においてαが0.027の理論値Rを見ると0.2となる。このことから人工放射性核種が全体の2割存在していても減算は可能であることが分かる。

日本における<sup>222</sup>Rn濃度範囲は $10^{-6} \sim 10^{-4} \text{Bq/cm}^3$  であり<sup>11)</sup>、空気中の<sup>239+240</sup>Pu濃度は検出下限値 ( $1.5 \times 10^{-13} \text{Bq/cm}^3$ ) 未満であることが報告されている<sup>12)</sup>。これらから平常時における見かけのR値は $10^{-7}$ であり、先に求めた理論値の200万分の1であった。このことは、平常時のPu濃度 ( $1.5 \times 10^{-13} \text{Bq/cm}^3$ ) の200万倍の  $3 \times 10^{-7} \text{Bq/cm}^3$  でも減算ができることを示している。本法の3を用いた検出下限値が約  $6 \times 10^{-9} \text{Bq/cm}^3$  と見積もられること

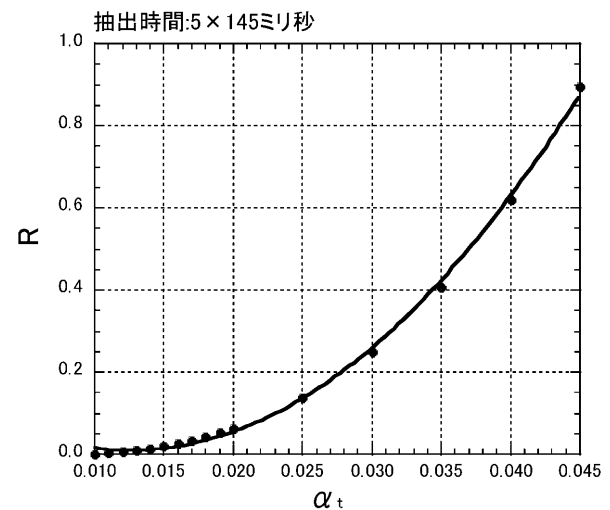


図3 時間間隔解析における抽出割合αと全計数に対する人工放射性核種の割合Rとの関係

から、確率論を導入した環境中のPuを時間間隔解析法により定量できる範囲はおよそ $10^{-9} \sim 10^{-7}$  Bq/cm<sup>3</sup>と見積もることができた。これ以上のPu濃度の場合には、Rnによる影響はおよそ10万分の1程度であり、時間間隔解析を用いるまでもなく直接線を計測することで定量は可能である。

### 3. 実験

時間間隔解析では、検出器に入射した放射線パルスのエネルギー情報と時間間隔情報を入手し、統計処理を実施した後にエネルギースペクトル上から相関性を有する天然放射性物質を除去する。図4に本システムの概念を示す。

検出器は、Rnの壊変生成物である<sup>212</sup>Biや<sup>214</sup>Biのような線放出核種からの壊変により生成される線放出核種を測定する必要があるために、線及び高エネルギーの線計測に高い感度と分解能を有する空乏層2000 $\mu$ m厚のORTEC BA 030 450 2000を用いて、線及び線を検出する。それら放射線パルスは、アンプで増幅された後にADCにおいてデジタル変換されるが、その際に、波高弁別器とタイマーに同時に送信される。これらの情報を多重情報入力器（マルチパラメータコレクタ）に入力させ、測定終了後に統計処理し、天然放射性物質からの放射線を除去する。

これらの機器を用いてサイクル機構内で空気中のダストに付着したRn壊変生成物を採取したダストろ紙にPuを添着し、前述の検出器で測定後に時間間隔解析により、Rnの壊変生成物を減算することができるのかを試みた。採取の条件は、東京ダイレック社のダストサンプラ<sub>csp</sub> 50を用いて、毎分100リットルでおよそ2時間空気中のダストを採取した。ダストを捕集するろ紙は、表面が平

滑であり、Pu等がろ紙の繊維内部に入り込まないミリポア製4フッ化エチレン系のメンブランフィルタFSLW04700を用いた。ダスト採取直後に試料表面に10数cpmのPu粒子を添着させ、飛散防止のためマイラ膜により表面を覆った。20分間の測定後に時間間隔解析による天然放射性物質の減算を試みた。

また、天然放射性核種の減算における適正な時間間隔を求めるために、時間間隔解析法で抽出及び減算の可能な核種の中で最も半減期の長い核種に注目した。このことは、最も長い半減期を有する核種を減算することで天然に存在する短半減期核種を最も効率良く減算するためである。本実験においては<sup>216</sup>Poの半減期（145ミリ秒）、<sup>216</sup>Poの標準寿命（145ミリ秒の1.4倍）及び<sup>216</sup>Poの半減期の5倍である725ミリ秒の時間間隔内に入射したパルス対をエネルギースペクトル上から減算することとした。

### 4. 結果と考察

図5に既存法であるシリコン半導体検出器を用いた線スペクトロメトリによるPu粒子を添加したダストろ紙のエネルギースペクトルを示す。

ここでは横軸がエネルギーであり、縦軸がエネルギーに対するカウント数を示す。低エネルギー側からRn壊変生成物由来の線、Puを含む線及びRn壊変生成物由来の線が認められる。

そこで、<sup>216</sup>Poの半減期（145ミリ秒）の時間間隔内に入射したパルス対を時間間隔解析によりエネルギースペクトル上から減算した結果を図6に示す。さらに<sup>216</sup>Poの標準寿命（145ミリ秒の1.4倍）の時間間隔内に入射したパルス対の減算結果を図7に、さらに長いフィックスタイムである<sup>216</sup>Poの

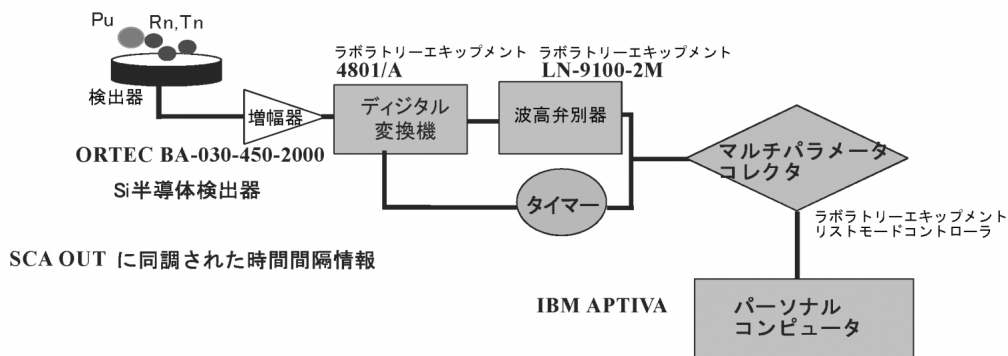


図4 時間間隔解析装置システム構成

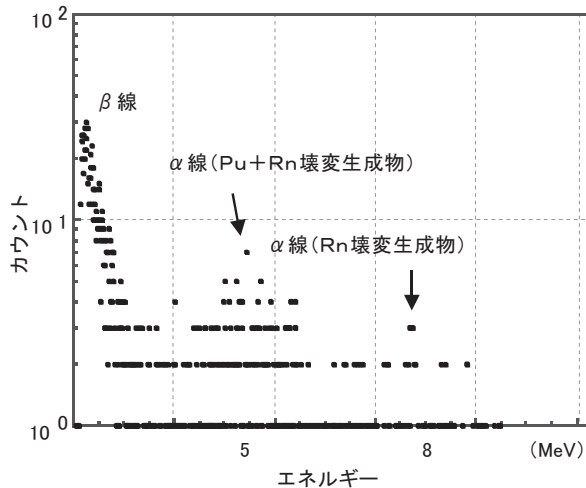


図5 ラドン壊変生成物とプルトニウムエネルギースペクトル

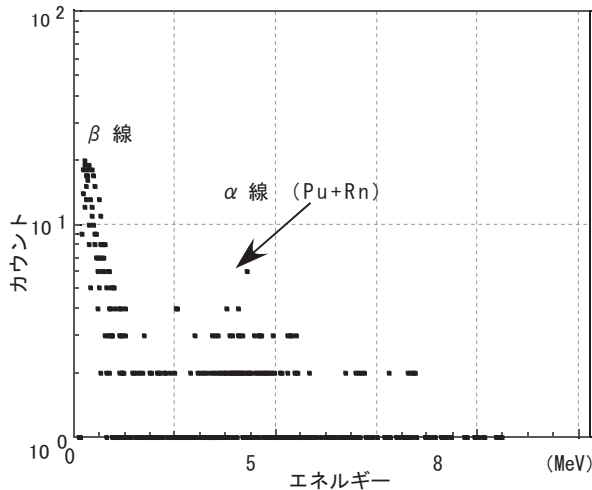


図6 時間間隔145ミリ秒以内に入射した放射線パルスを減算後のエネルギースペクトル

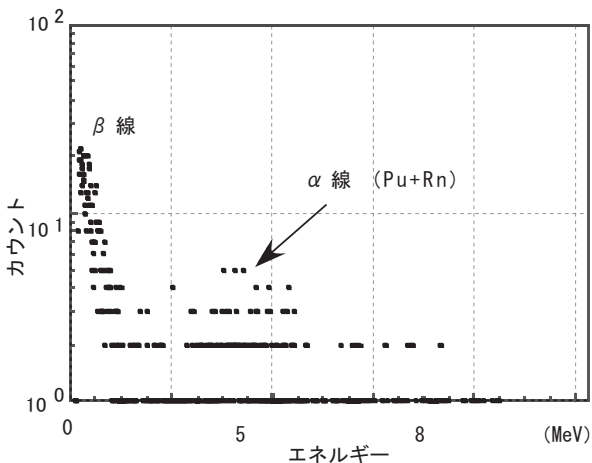


図7 時間間隔145ミリ秒×1 A以内に入射した放射線パルスを減算後のエネルギースペクトル

半減期の5倍である725ミリ秒の時間間隔内に入射したパルス対の減算結果を図8に示す。

ここでは、時間間隔を長くすることによって、高エネルギー側に存在していたRnの壊変生成物を減算できたことが認められ、さらにPuを含む線領域においてもRnの壊変生成物を減算することができた。その結果、 $^{216}\text{Po}$ の半減期の5倍の時間間隔に入射したパルス対を減算することで、本条件におけるRn等の天然放射性核種を減算し、添加したPu相当のピークを再現することができた。また、これ以上時間間隔を延長するとPuのピークが減ることが確認できたため、この時間間隔を本条件における最適時間間隔とした。

さらに、Rnの濃度の高い地点においてダストを

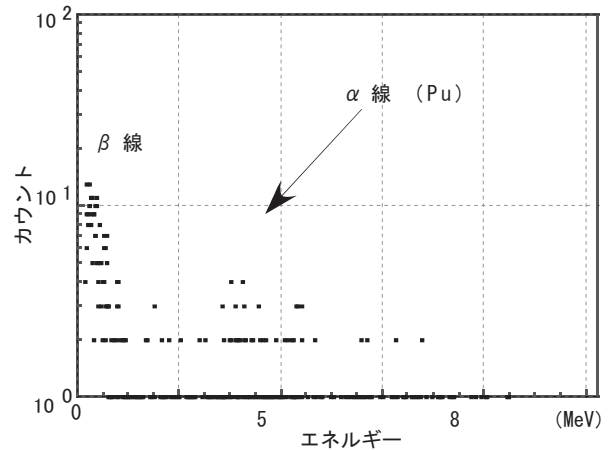


図8 時間間隔145ミリ秒×5以内に入射した放射線パルスを減算後のエネルギースペクトル

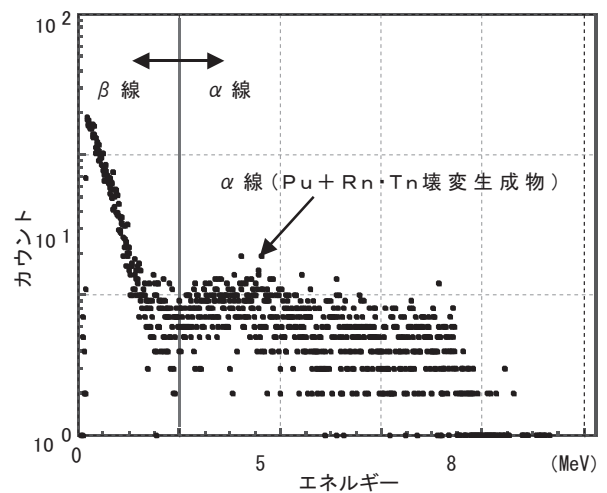


図9 ラドン・トリオン壊変生成物の濃度が高い場合のプルトニウムを含む試料のエネルギースペクトル

採取し、時間間隔解析を行った結果を図9及び図10に示す。図9は図5同様に既存の方法で求めたエネルギースペクトルであり、低エネルギー側からRn壊変生成物由来の線とPuを含む線及びRn壊変生成物由来の線が明確に区別できず連続したスペクトルとなっている。

そこで、図6同様に $^{216}\text{Po}$ の半減期(145ミリ秒)の5倍の時間間隔内に入射したパルス対をエネルギースペクトル上から減算した結果が図10である。

図10は図9で認められたRnによる連続的な影響が除かれており、Puのピークが認められる。このようなRn濃度が高い条件の下においても、時間間隔解析を実施し、エネルギースペクトルからRn壊変生成物由来のピークを減算することによって、Puのピークが浮かび上がってくることを確認できた。

ただし、試料の飛散防止のため、試料表面にマイラによるコーティングを行っているため、低エネルギーへのシフトとエネルギー分解能の劣化が生じている。

今後は、マイラを用いない手法の検討、検出器の除染技術の確立、真空度に応じたエネルギー分解能等の検討、電子回路の高速化等を図り、再処理施設等への本システム導入へ向けた実用化研究を実施する。

## 5. おわりに

線スペクトロメトリのような既存の方法では

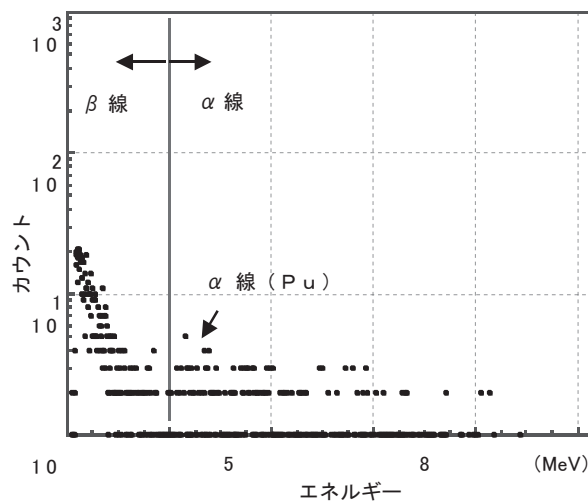


図10 時間間隔によるラドン・トリウム壊変生成物減算後のエネルギースペクトル

Rnの壊変生成物のエネルギースペクトルに隠れてしまうような、極微量のPuを時間間隔解析法によりRnと区別することに成功した。本実験条件におけるRn壊変生成物の減算の最適時間間隔は $^{216}\text{Po}$ の半減期(145ミリ秒)の5倍が適当であった。

本法の検出の範囲は、試料量 $6 \times 10^6 \text{cm}^3$ の条件のもと、およそ $10^{-9} \sim 10^{-7} \text{Bq/cm}^3$ と見積もることができた。このことは、 $^{239}\text{Pu}$ の周辺監視区域の空気濃度限度が $8 \times 10^{-9} \text{Bq/cm}^3$ であり、この濃度と同程度から100分の1程度の濃度を定量することが可能である。この濃度を越えるPu濃度の場合には、Rnによる影響はおよそ10万分の1程度であり、時間間隔解析を用いるまでもなく直接線を計測することで定量は可能であり、周辺監視区域における $^{239}\text{Pu}$ の空気濃度限度を十分定量できる性能を有していることを確認した。現状では、バックグラウンドの計数率は、Rn等天然放射性物質を含む一般的な条件で計算されており、今後、時間間隔解析によりバックグラウンドを低下させることによってさらに低い濃度の $^{239}\text{Pu}$ を定量できる。

従来、天然放射性物質の変動により、放射線モニター等に影響が生じていたが、本法が開発されたことによってこれらを解決できる見通しがついた。また、本システムをサーベイメータ等へ導入することによって、Rn壊変生成物に反応しないサーベイメータを開発することが可能となる。

## 参考文献

- 1) 松岡理：プルトニウムの安全性評価，日刊工業新聞社
- 2) 植頭康裕，橋本哲夫：“時間間隔解析技術を用いた次世代放射線モニタリングシステム”，サイクル機構技報，17，109 - 114，2002
- 3) 橋本哲夫，久保田知明：“時間間隔解析法を用いた玉川温泉水中のトリウム系列核種の絶対測定”，RADIOISOTOPES，38，415 - 420，1989
- 4) T. Hashimoto and Y Sakai: “Selective determination of extremely low-levels of thorium series in environmental samples by a new delayed coincidence method”, J. Radioanal. Nucl. Chem. 138, 195-206, 1990
- 5) T. Hashimoto, Y Uezu, et al.: J. Radioanal. Nucl. Chem. “Detection sensitivity of time interval analysis for the determination of  $\alpha$ -radionuclides with millisecond order lives”, 173, 87-97, 1993
- 6) T. Hashimoto, F. Ishizuka, et al.: “Determination of natural  $\alpha$ -radionuclides related to millisecond order lives in environmental samples using time interval

- analysis (TIA) method”, J. Radioanal. Nucl. Chem., 197, 99 114, 1995
- 7) T. Hashimoto, K. Sato et al.: “ Simultaneous determination of environmental  $\beta$ -radionuclides using liquid scintillation counting combined with time interval analysis (TIA) and pulse shape discrimination (PSD) ”, J. Radioanal. Nucl. Chem., 222, 109 116, 1997
- 8) T. Hashimoto, Y. Yoneyama et al.: “ Pulse time interval analysis (TIA) combined with liquid scintillation counting for the determination of environmental nu-  
clides: Preparation and utilization of  $^{225}\text{Ra}$  ”, J. Radioanal. Nucl. Chem., 239, 619 629, 1999
- 9) T. Hashimoto, Y. Komatsu, et al.: “ Determination of radionuclides in small pieces of archaeological sample and its application to TL-dating ”, Radiat. Meas., 33, 95 101, 2001
- 10) Glenn F. Knoll: Radiation Detection and Measurement, John Wiley and Sons, Inc. New York, 2000
- 11) 半谷高久：続日本環境図譜産業編，共立出版，1982
- 12) 茨城県東海地区環境放射線監視委員会：環境放射線監視季報第126報（平成15年度第3四半期），2004