

セシウム混在場での  
22×22 応答行列による自然放射線弁別法

湊 進

放射線地学研究所



# セシウム混在場での 22 × 22 応答行列による自然放射線弁別法

放射線地学研究所 湊 進

## 1. はじめに

2011年3月11日の原発事故以来、線量計のみでは関東・東北地方の自然放射線を研究することができなくなった。短寿命核種が消滅した現在においてもなお、セシウムからの放射線を分離できないからである。分離するにはスペクトルを測らねばならない。今回の事故は自然放射能を主な研究課題とするものにとっては迷惑この上ないできごとであった。

応答行列法を用いた NaI(Tl) による人工放射線の弁別法についてはこれまでに幾つか報告してきた<sup>1-3)</sup>。しかしこれらの方法は地中に存在する K-40 が放出する 1.464 MeV 線よりかなり低いエネルギーの人工成分を対象とするものであった。今回の長寿命フールアウト核種である Cs-134 は 1.365 MeV の線を放出する(付録参照)。これは K-40 のピークの近傍であり、22 × 22 応答行列の粗いエネルギー・ビン分けでは弁別しにくい。

この報告では Cs-134 の 1.365 MeV 線束を K-40 のビン近傍に振り分ける作業をして、K-40 のビンに重畳している Cs-134 寄与分を取り除く方法を述べる。

## 2. セシウム混在場での測定例

図1に地上1mでの波高分布の測定例を示す。これを従来の方法でアンフォールドしたスペクトルを図2に示す。K-40のビンにはCs-134の1.365 MeV線寄与分が重なっている。そのため従来の方法でK-40のビンから地中のカリウム濃度を計算すると、実際の濃度より高めに評価されるにちがいない(図2の薄緑部分)。後の解析と比較するためにK-40のピーク周辺の形を記憶しておかれない。

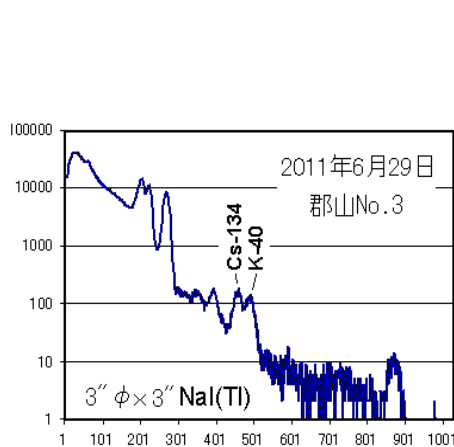


図1 波高分布

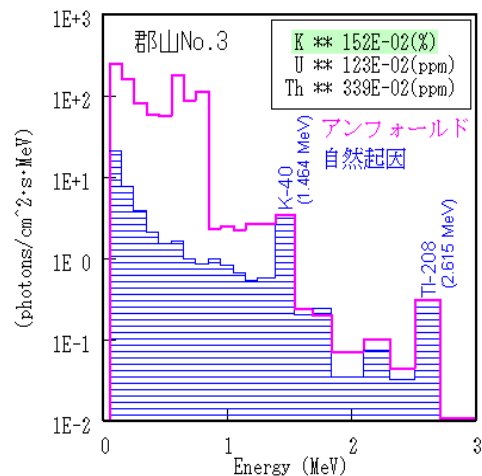


図2 波高分布 (図1) をそのまま解析

### 3. Cs-134 (1.363 MeV) 線束のビンへの振り分け

自然環境 線解析用の 22 × 22 応答行列<sup>1-3)</sup>は K-40 からの 1.464 MeV 線、Bi-214 (U-系列)からの 1.765 および 2.205 MeV、Tl-208(Th-系列)からの 2.615 MeV 線がそれぞれ一つのエネルギー・ビンに収まるようにビン巾を決めた<sup>1)</sup>。図 3 がそれである。

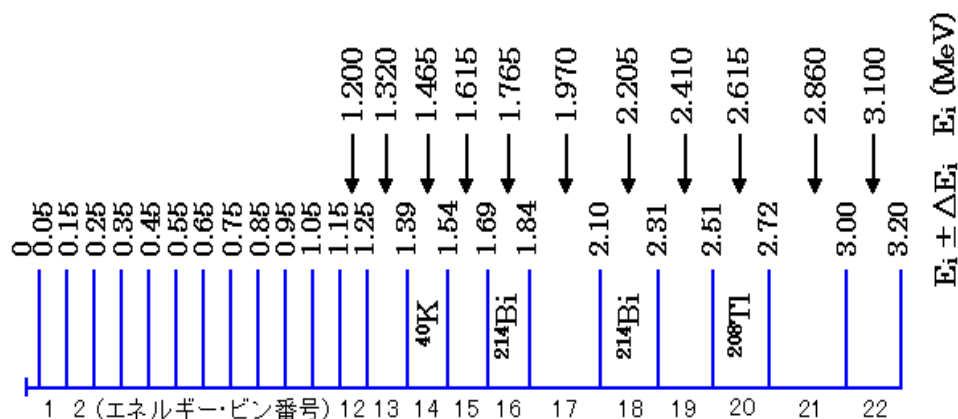


図3 エネルギー・ビン

各ビンの中央値以外の単色光子は二つのビンにまたがる。それぞれへの分配量は数の保存、およびエネルギーの保存の要請により決まる。図 4 でこの様子を説明しよう。

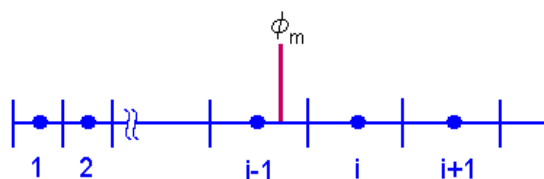


図4 エネルギー・ビンへの振り分け

光子束を  $\phi_m$  で記述し、ビン番号を  $i$ 、ビン中央値を  $E_i$ 、単色光子のエネルギーを  $m$  で表すと

$$\begin{aligned} \phi_{i-1} + \phi_i &= \phi_m && \text{(数の保存)} \\ E_{i-1}\phi_{i-1} + E_i\phi_i &= E_m\phi_m && \text{(エネルギーの保存)} \end{aligned}$$

より、

$$\begin{aligned} \phi_{i-1} &= \frac{E_i - E_m}{E_i - E_{i-1}} \phi_m \\ \phi_i &= \frac{E_m - E_{i-1}}{E_i - E_{i-1}} \phi_m \end{aligned}$$

を得る。この振り分けを Cs-134 の 1.365 MeV について実施してみよう。図 3 を見るとこれはビン番号 13 に納まっていることが分かる。従ってビン 13 とビン 14 に振り分けられる。上式を使うと単位の単色光子に対しては図 5 の配分になる。

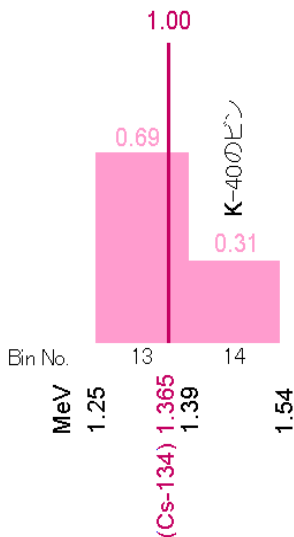


図5 1.365 MeV 単色光子

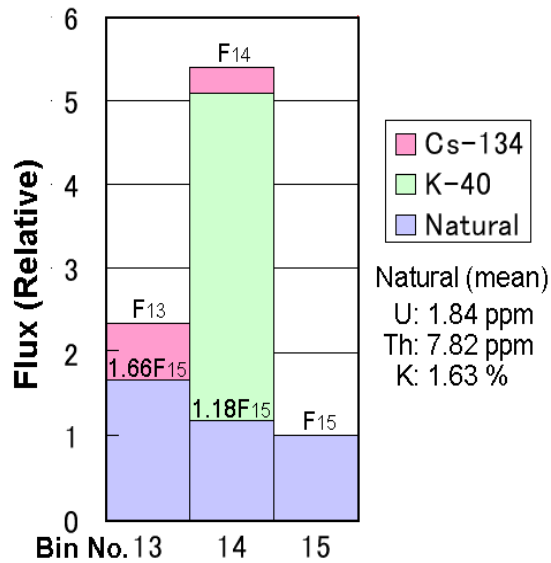


図6 線束の内訳

すなわち単位的光子に対して第 13 ビンには 0.69、14 ビンには 0.31 が配分される。

図 6 は、地上 1m での自然環境 線スペクトルに図 5 のスペクトルが重畳したものである。このうち自然成分の相対値は、日本におけるウラン、トリウム、カリウム濃度の平均値<sup>4)</sup>を使ってモンテカルロ計算された(1,000,000 ヒストリー)<sup>3)</sup>。アンフォールドしたスペクトルの第 15 ビンの線束  $F_{15}$  でこれを規格化したものを解析に用いる。同図ビン番号 14 の薄緑分は K-40 線の一次成分である。

これで全ての準備が整った。次節で第 14 ビンから Cs-134 の 1.365 MeV 寄与分を除いて K-40 濃度を評価する方法を述べる。

#### 4. K-40 評価法

ビン番号 13 および 14 の全線束を  $F_{13}$  および  $F_{14}$  で表す。また Cs-134 の 1.365 MeV の線束を  $G_4$ 、K-40 からの一次線束を  $G_K$  とおく。図 6 より次式が導かれる。

$$F_{13} = 0.69G_4 + 1.66F_{15}$$

$$F_{14} = 0.31G_4 + G_K + 1.18F_{15}$$

故にビン番号 14 の全線束  $F_K$  は

$$F_K = G_K + 1.18F_{15} = F_{14} - \frac{0.31}{0.69}(F_{13} - 1.66F_{15})$$

となる。このようにして K-40 のビンに混入している Cs-134 の成分を除いて、K-40 の

みによる全線束を計算する。

あとは従来どおりウラン、トリウムおよびカリウムのピンの線束から 3×3 行列によりそれぞれの濃度を求めることができる<sup>1,3)</sup>。図 7 がその結果である。図 2 の K-40 のピンとカリウム濃度を比較して欲しい。効果は歴然としている。

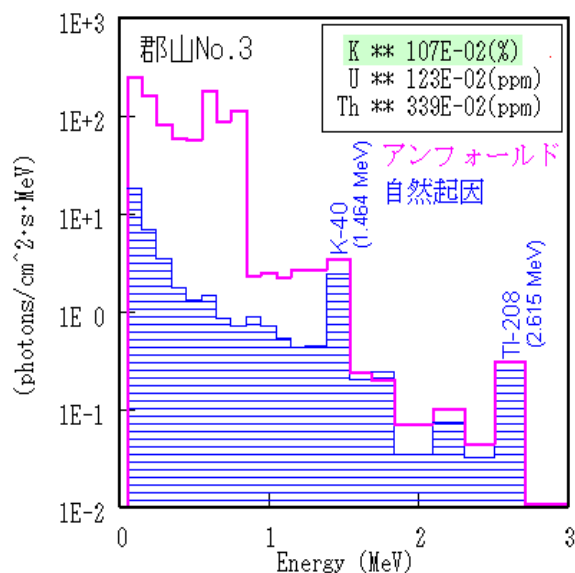


図7 Cs-134寄与を補正した結果

## 5. 検討

ここで述べた方法の精度を調べるには in-situ Ge(Li)測定との比較が望ましい。しかし残念ながら筆者の手元にあるのは NaI(Tl) 検出器のデータのみである。そこで NaI(Tl)の波高分布データから、できる限りの吟味をしてみよう。

まず、補正が理に叶った結果をもたらしているのか調べてみる。地中の K-40 濃度に比べて妨害因子である Cs-134 の蓄積量が多いほど、補正アリナシの効果が大いはずである。

Cs-134 の地表面における蓄積量の評価方法についてはすでに報告した<sup>5,6)</sup>。図 8 に、これまで集まったセシウム混在場でのスペクトルを解析した結果を示す。Cs-134 蓄積量範囲 1 ~ 110 kBq/m<sup>2</sup> のデータを使用した。図中 K<sub>w</sub> はここで述べた補正を施したものであり、K<sub>w0</sub> は補正なしの場合である。きれいな直線関係になっていることから、補正の効果がでていることがうかがえる。

次に K 濃度ではなく線量率データで検討してみる。使用データの線量率範囲は 20 ~ 1200 nGy/h である。筆者は文献 5) で 22×22 応答行列により得た地中のトリウム濃度と自然起因の地表線量率の間にかかなりの相関があることを述べた(図 9 の左側の図)。

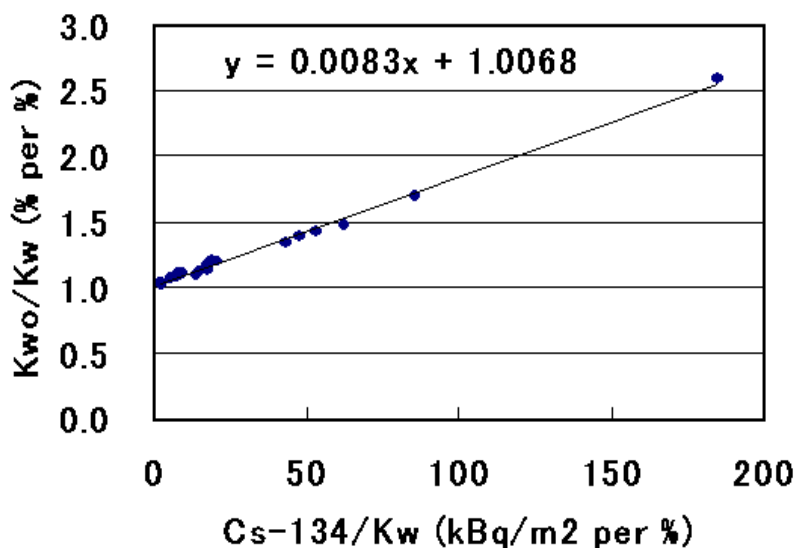


図8. Cs-134の影響

ただし、これには変動係数で 16%程度の誤差を伴う。それを承知の上で、今回の補正を施したカリウム濃度にウランとトリウム濃度を含めた自然起因の地表線量率換算係数<sup>1-3)</sup>を用いて比較する。図9がその結果である。

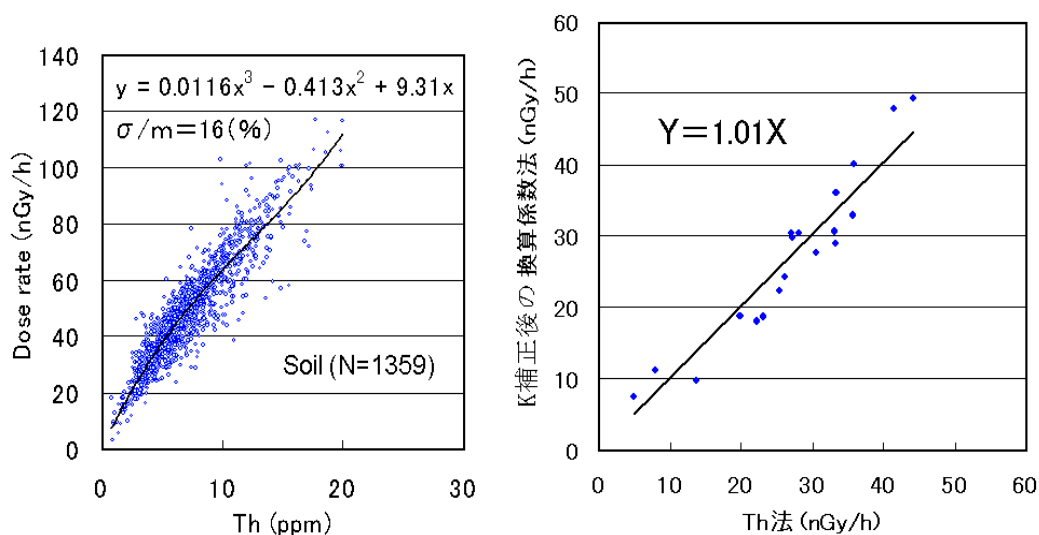


図9 トリウム法と換算係数法

両者の相関係数は 0.95 である。また、回帰係数も良好である。少なくとも線量率評価に関しては本報告の補正法には問題ないと言えよう。

## 6. サム効果について

Cs-134 は付録表 A-1 にあるように  $0.605+0.796 = 1.401$  MeV のサムピークを伴うはずである。今回の解析ではサム効果を考慮に入れていない。図 9 によれば、ここで用いたデータの範囲、20 ~ 1200 nGy/h、では線量率に関する限りサム効果を無視してよいと判断される。Cs-134 は 1.365 MeV 以上の線を放出しないため、Th 法には影響がないからである。

ただし、より高線量率ではサムピークの影響が出る。生田ら<sup>7)</sup>の Ge 半導体検出器による in-situ 測定は線量率 10700 nGy/h で明瞭なサムピークを示している。2011 年 11 月 18 日における飯舘村長泥でのデータである。この場合のサムピークの計数率は K-40 ピークの計数率の 35%程度である。従って数千 nGy/h(数  $\mu$  Gy/h) 以上の場ではさらに系統的な研究が必要である。

## 謝辞

島根県原子力安全対策課原子力環境センターの生田美抄夫氏には福島県内における Ge 半導体検出器による in-situ 測定の生データを見せていただいた。このデータから Cs-134 のサム効果について多くの知見を得た。深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) 湊 進(1978)環境線解析用 3" x 3" NaI(Tl)シンチレータのレスポンス行列、*名古屋工業技術試験所報告*, **27**: 384-397.
- 2) 湊 進(1998)応答行列法による環境ガンマ線波高分布の解析, *JCAC*, No.32: 2-13.
- 3) Minato,S. (2001) Diagonal elements fitting technique to improve response matrixes for environmental gamma ray spectrum unfolding, *Radioisotopes*, **50**: 463-471.
- 4) Minato,S. (2005) Uranium, Thorium and Potassium concentrations in Japanese soils, *Radioisotopes*, **54**: 543-548.
- 5) Minato,S. (2012) Application of a 60x60 response matrix for a NaI(Tl) scintillator to fallout from the Fukushima reactor accident, *Radiation Emergency Medicine*, **1**: 108-112.
- 6) 湊 進(2012)NaI(Tl)スペクトロメータによる環境セシウム放射能評価法の高精度化、*放地研特別寄稿シリーズ* SCS-0086、放射線地学研究所
- 7) 生田美抄夫、松島純也、北脇悠平、河原央明、田中孝典、木村和郎 (2012) 福島第一原子力発電所事故に伴う Cs-134 及び Cs-137 の沈着量推定(Ge 半導体検出器を用いた走行サーベイと in-situ 測定)、第 26 回保健環境科学研究所研究発表会 (H24.1.27、島根県民会館)、島根県保健環境科学研究所

付録

表A-1 セシウム核データ

文部科学省 放射能測定法シリーズ29  
(平成16年)より

核種名	半減期 (years)	エネルギー (MeV)	放出比 (%)
Cs-137	30.04	0.6617	85.10
Cs-134	2.07	0.4754	1.49
		0.5632	8.35
		0.5693	15.38
		0.6047	97.62
		0.7959	85.53
		0.8020	8.69
		1.0386	0.99
		1.1680	1.79
		1.3652	3.01