

---

---

## 環境 $\gamma$ 線解析用 49x49 応答行列の紹介

湊 進

放射線地学研究所



# 環境γ線解析用 49x49 応答行列の紹介

放射線地学研究所 湊 進

## 1. はじめに

環境γ線用 3"φ x 3"NaI(Tl)シンチレータの応答行列を初めて製作して1)から早45年が経つ。この応答行列は線量率評価のみが目的であったため、試作版として30x30等間隔行列を製作したのであった。

その後、カリウム(K)、ウラン(U)、トリウム(Th)濃度も評価できるように改良を試みた。当時、市販のNaI(Tl)の分解能はCs-137からのγ線(0.662 MeV)に対して9~10%が普通であった。また、波高分析器も256チャンネル以下が主流であった。応答行列のエネルギー・ビン巾は半値幅でいどが良いとされており、分布のビン分けもチャンネル数が少ないほどビン巾を広くとる必要があった。そのため、改良版として22x22不等間隔行列を製作しK(K-40:1.464 MeV), U(Bi-214:1.765), Th(Tl-208:2.615)のピークがそれぞれ一つのビンに収まるように工夫したのであった2)。

その後の光電子増倍管の性能向上により、現在では分解能7%以下のものが常識となっている。チャンネル数も1024以上が普通に使われている。今の時代に合うよう応答行列の要素数を大幅に増やすことにした。

## 2. 設計

表1はK-40, U-, Th-系列の核データである。これを基に設計する。基本方針は

表1 自然放射性核種データ

| Parent Nuclide    | Gamma Energy (keV) | Source                               | Gamma emitted per parent disintegration |
|-------------------|--------------------|--------------------------------------|---|
| <sup>238</sup> U  | 186                | <sup>226</sup> Ra                    | 0.034                                   |
|                   | 242                | <sup>214</sup> Pb                    | 0.070                                   |
|                   | 295                | <sup>214</sup> Pb                    | 0.179                                   |
|                   | 352                | <sup>214</sup> Pb                    | 0.350                                   |
|                   | 609                | <sup>214</sup> Bi                    | 0.430                                   |
|                   | 768                | <sup>214</sup> Bi                    | 0.048                                   |
|                   | 1120               | <sup>214</sup> Bi                    | 0.145                                   |
|                   | 1765               | <sup>214</sup> Bi                    | 0.147                                   |
|                   | 2205               | <sup>214</sup> Bi                    | 0.047                                   |
| <sup>232</sup> Th | 240                | <sup>212</sup> Pb+ <sup>224</sup> Ra | 0.490                                   |
|                   | 338                | <sup>228</sup> Ac                    | 0.129                                   |
|                   | 463                | <sup>228</sup> Ac                    | 0.047                                   |
|                   | 727                | <sup>228</sup> Ac                    | 0.079                                   |
|                   | 911                | <sup>228</sup> Ac                    | 0.290                                   |
|                   | 966                | <sup>228</sup> Ac                    | 0.230                                   |
|                   | 1588               | <sup>228</sup> Ac                    | 0.046                                   |
|                   | 510                | <sup>208</sup> Tl                    | 0.096                                   |
|                   | 583                | <sup>208</sup> Tl                    | 0.300                                   |
|                   | 860                | <sup>208</sup> Tl                    | 0.047                                   |
| 2615              | <sup>208</sup> Tl  | 0.360                                |   |
| <sup>40</sup> K   | 1461               |                                      | 0.107                                   |

ビン巾を半値幅でいどにすることと、表 1 に示されている  $\gamma$  線それぞれをなるべく一つのビンに収めることである。このようにして振り分けた結果が表 2 である。K-40 のエネルギーについてはこれまで Beck et al.<sup>3)</sup> の値 1.464 MeV を使っていたが、今回からは 1.461 MeV を使うことにした<sup>4)</sup>。

| 表2 3"φ×3"NaI(Tl)のビン分け(0.6616MeV分解能を7%. Q=0.34とする) |          |                 |             |           |           |           |                                  |
|---|----------|-----------------|-------------|-----------|-----------|-----------|----------------------------------|
| Bin No.   | E<br>MeV | Resolution<br>% | FWHM<br>MeV | E1<br>MeV | E2<br>MeV | ΔE<br>MeV | Nuclides                         |
| 1   | 0.0625   | 15.614          | 0.010       | 0.050     | 0.075     | 0.0250    |                                  |
| 2   | 0.0875   | 13.926          | 0.012       | 0.075     | 0.100     | 0.0250    |                                  |
| 3   | 0.1125   | 12.785          | 0.014       | 0.100     | 0.125     | 0.0250    |                                  |
| 4   | 0.1375   | 11.942          | 0.016       | 0.125     | 0.150     | 0.0250    |                                  |
| 5   | 0.1625   | 11.283          | 0.018       | 0.150     | 0.175     | 0.0250    |                                  |
| 6   | 0.1875   | 10.747          | 0.020       | 0.175     | 0.200     | 0.0250    |                                  |
| 7   | 0.2140   | 10.274          | 0.022       | 0.200     | 0.228     | 0.0280    |                                  |
| 8   | 0.2400   | 9.882           | 0.024       | 0.228     | 0.252     | 0.0240    | Pb-212 & Ra-224                  |
| 9   | 0.2665   | 9.536           | 0.025       | 0.252     | 0.281     | 0.0290    |                                  |
| 10  | 0.2950   | 9.212           | 0.027       | 0.281     | 0.309     | 0.0280    | Pb-214                           |
| 11  | 0.3230   | 8.932           | 0.029       | 0.309     | 0.337     | 0.0280    | [Ac-228;0.338MeV]                |
| 12  | 0.3520   | 8.675           | 0.031       | 0.337     | 0.367     | 0.0300    | Pb-214                           |
| 13  | 0.3865   | 8.404           | 0.032       | 0.367     | 0.406     | 0.0390    |                                  |
| 14  | 0.4255   | 8.133           | 0.035       | 0.406     | 0.445     | 0.0390    |                                  |
| 15  | 0.4675   | 7.877           | 0.037       | 0.445     | 0.490     | 0.0450    | [Ac-228;0.463MeV]                |
| 16  | 0.5100   | 7.648           | 0.039       | 0.490     | 0.530     | 0.0400    | Tl-208 , [消滅光子, 0.511MeV]        |
| 17  | 0.5570   | 7.422           | 0.041       | 0.530     | 0.584     | 0.0540    |                                  |
| 18  | 0.6110   | 7.192           | 0.044       | 0.584     | 0.638     | 0.0540    | Tl-208;0.583MeV, Bi-214;0.609MeV |
| 19  | 0.6615   | 7.000           | 0.046       | 0.638     | 0.685     | 0.0470    | Cs-137                           |
| 20  | 0.7065   | 6.845           | 0.048       | 0.685     | 0.728     | 0.0430    | [Ac-228;0.727MeV]                |
| 21  | 0.7490   | 6.711           | 0.050       | 0.728     | 0.770     | 0.0420    | [Ac-228;0.727MeV]                |
| 22  | 0.7960   | 6.573           | 0.052       | 0.770     | 0.822     | 0.0520    | Cs-134                           |
| 23  | 0.8540   | 6.418           | 0.055       | 0.822     | 0.886     | 0.0640    | [Tl-208;0.86MeV]                 |
| 24  | 0.9110   | 6.279           | 0.057       | 0.886     | 0.936     | 0.0500    | Ac-228                           |
| 25  | 0.9660   | 6.155           | 0.059       | 0.936     | 0.996     | 0.0600    | Ac-228                           |
| 26  | 1.0190   | 6.044           | 0.062       | 0.996     | 1.042     | 0.0460    |                                  |
| 27  | 1.0645   | 5.955           | 0.063       | 1.042     | 1.087     | 0.0450    |                                  |
| 28  | 1.1200   | 5.853           | 0.066       | 1.087     | 1.153     | 0.0660    | Bi-214                           |
| 29  | 1.1867   | 5.739           | 0.068       | 1.153     | 1.220     | 0.0673    |                                  |
| 30  | 1.2539   | 5.632           | 0.071       | 1.220     | 1.288     | 0.0672    |                                  |
| 31  | 1.3211   | 5.533           | 0.073       | 1.288     | 1.355     | 0.0672    |                                  |
| 32  | 1.3884   | 5.441           | 0.076       | 1.355     | 1.422     | 0.0673    |                                  |
| 33  | 1.4610   | 5.347           | 0.078       | 1.422     | 1.500     | 0.0780    | K-40                             |
| 34  | 1.5370   | 5.256           | 0.081       | 1.500     | 1.574     | 0.0740    |                                  |
| 35  | 1.6105   | 5.173           | 0.083       | 1.574     | 1.647     | 0.0730    | [Ac-228;1.588MeV]                |
| 36  | 1.6840   | 5.095           | 0.086       | 1.647     | 1.721     | 0.0740    |                                  |
| 37  | 1.7650   | 5.014           | 0.089       | 1.721     | 1.809     | 0.0880    | Bi-214                           |
| 38  | 1.8520   | 4.933           | 0.091       | 1.809     | 1.895     | 0.0860    |                                  |
| 39  | 1.9385   | 4.857           | 0.094       | 1.895     | 1.982     | 0.0870    |                                  |
| 40  | 2.0245   | 4.786           | 0.097       | 1.982     | 2.067     | 0.0850    |                                  |
| 41  | 2.1105   | 4.719           | 0.100       | 2.067     | 2.154     | 0.0870    |                                  |
| 42  | 2.2050   | 4.649           | 0.103       | 2.154     | 2.256     | 0.1020    | Bi-214                           |
| 43  | 2.3060   | 4.579           | 0.106       | 2.256     | 2.356     | 0.1000    |                                  |
| 44  | 2.4070   | 4.512           | 0.109       | 2.356     | 2.458     | 0.1020    | [Bi-214;2.448MeV]                |
| 45  | 2.5080   | 4.450           | 0.112       | 2.458     | 2.558     | 0.1000    | [Bi-214;2.448MeV]                |
| 46  | 2.6150   | 4.387           | 0.115       | 2.558     | 2.672     | 0.1140    | Tl-208                           |
| 47  | 2.7290   | 4.324           | 0.118       | 2.672     | 2.786     | 0.1140    |                                  |
| 48  | 2.8930   | 4.239           | 0.123       | 2.786     | 3.000     | 0.2140    |                                  |
| 49  | 3.1000   | 4.140           | 0.128       | 3.000     | 3.200     | 0.2000    |                                  |

表中、FWHM が半値幅、E1, E2 はビン端のエネルギー、 $\Delta E$  がビン巾である。半値幅を W、分解能を r で記すと、それぞれの変数には次の関係がある<sup>5)</sup>。

$$r(E) = \frac{W(E)}{E} \times 100 \quad (1)$$

$$r(E) = r(E^*) \left( \frac{E^*}{E} \right)^Q \quad (2)$$

ここで  $E^*$  は標準エネルギー（例えば Cs-137 の 0.662MeV）である。(1),(2)式により求めた半値幅と、製作した行列のビン巾の関係を図 1 に示す。2.786 MeV 以上のビンは宇宙線寄与分を差し引くために設けてある。

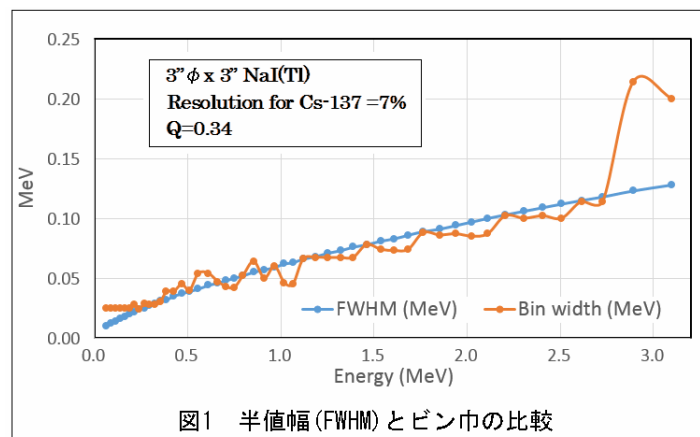


図1 半値幅 (FWHM) とビン巾の比較

### 3. 行列の計算

モンテカルロ計算プログラム SPHERIX<sup>6)</sup> を仕様変更して 2"φ x 2" および 3"φ x 3"

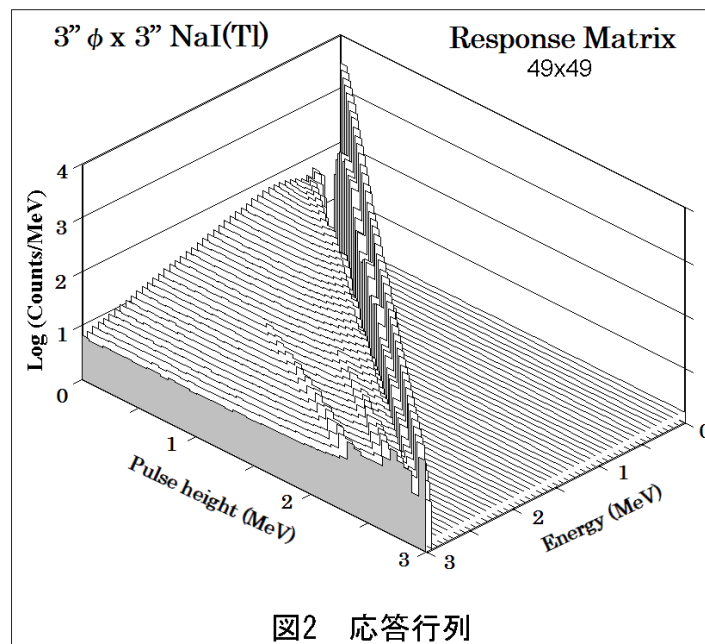


図2 応答行列

NaI(Tl)シンチレータ用の 49x49 行列を計算した。γ線が検出器に等方に入射する条件で 1 行あたり 100 万ヒストリーを追跡した。図 2 が計算結果である。

#### 4. アンフォールディング

図 3 に波高分布の 1 例を示す。これまでは K-40 と Tl-208 (2.615 MeV) でエネルギー校正をしていた。今回からはそのほかにモナザイトの砂浜やウラン鉱床、フォールアウト場を意識して、エネルギー校正用のピークを増やした。

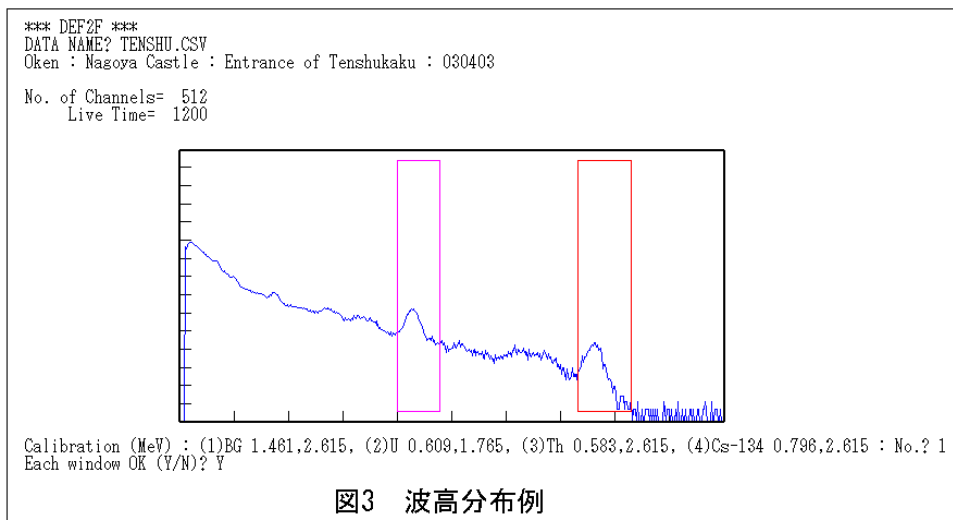


図3 波高分布例

この波高分布をアンフォールディングしたものが図 4 である。表 1 に示した核種の多く

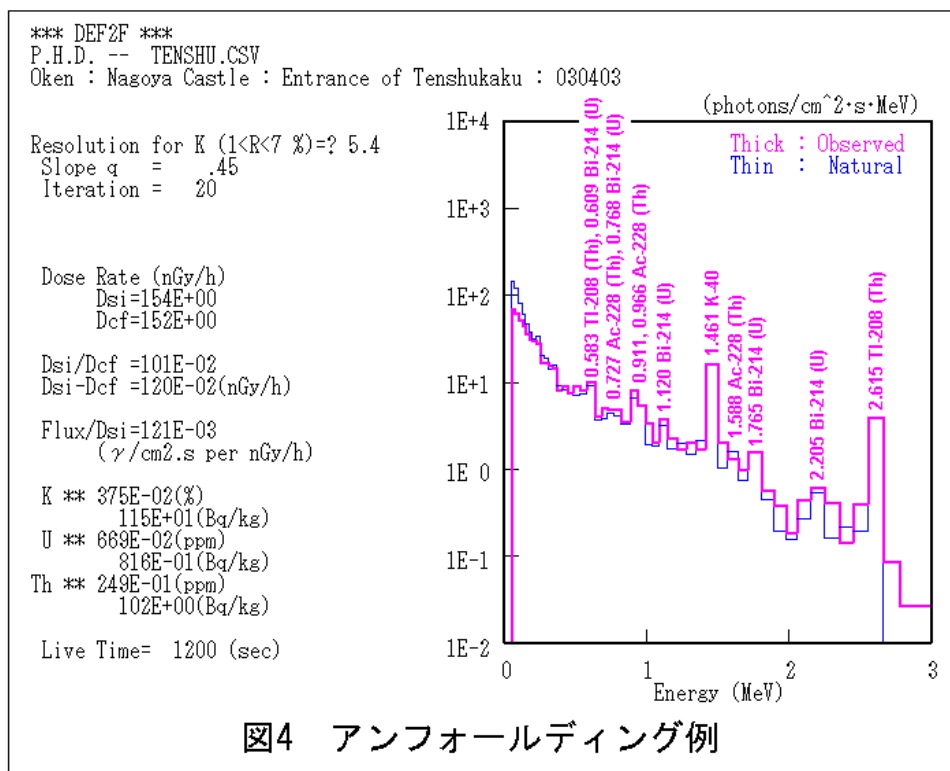


図4 アンフォールディング例

がスペクトルの一つのビンに収まっているのが分かる。

図の中で“Natural”と記してある青線は K-40 (1.461 MeV), Bi-214 (1.765 MeV) および Tl-208 (2.615 MeV) のピークで規格化したスペクトルである。

記号の意味は

$D_{si}$  : スペクトルのエネルギービンごとに定数を掛けて求めた線量率

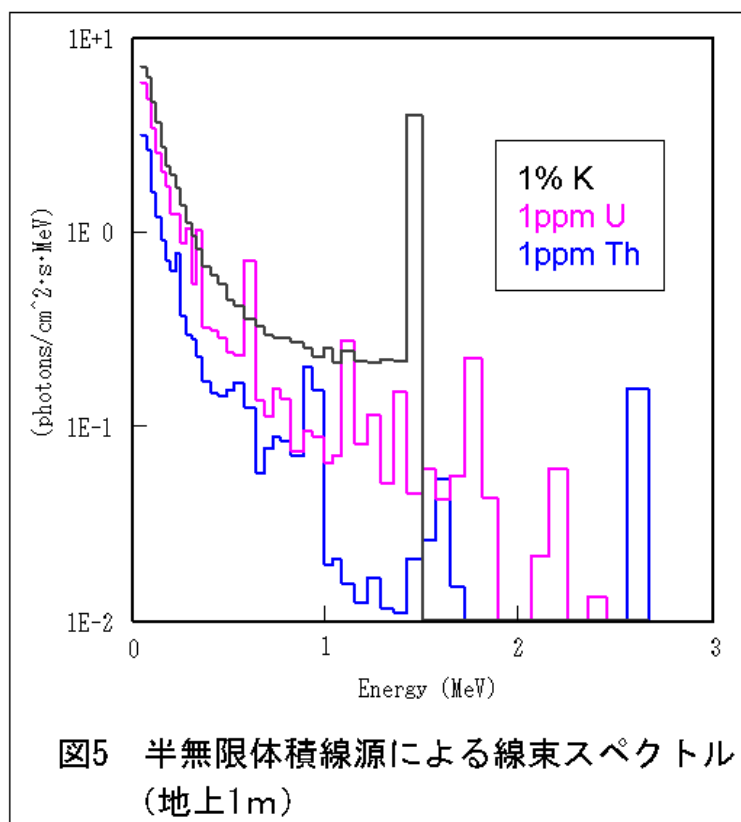
$D_{cf}$  : K (ビン番号 33), U (37), Th (46)から求めた濃度に以下の換算係数を掛けて算出した自然 $\gamma$ 線量率<sup>3)</sup>

$$D_{cf} (nGy/h) = 13.0K(\%) + 5.4U(ppm) + 2.7Th(ppm) \quad (3)$$

K : K濃度、 U : U濃度、 Th : Th濃度

である。従って  $D_{si} - D_{cf}$  は人工成分を表す。

図5に単位濃度あたりの基準線束スペクトルを示す。MONARIZA/G2コード<sup>7)</sup>で100万ヒストリーを追跡した結果である。これも表1と比べてみて欲しい。



ここまでの結果は 22x22 行列と同様に逐次近似回数 20 回で計算している。

新行列の最適逐次近似回数を決めるために二つの波高分布について調べたものが表3である。表を見ると逐次近似回数は 20 回で十分収束することが分かる。

分解能は検出器ごとに異なる。アンフォールディング・コードには試行錯誤法で迅速に

最適分解能を求める機能が内蔵されている<sup>5)</sup>。ソフトを販売する場合は自然 $\gamma$ 線の波高分布を発注者から送ってもらい、当所で最適分解能を決めてから出荷している。

| 表3 逐次近似回数テスト     |            |         |         |      |        |         |                  |            |         |         |      |        |         |
|------------------|------------|---------|---------|------|--------|---------|------------------|------------|---------|---------|------|--------|---------|
| 2" $\phi$ x 2"   |            |         |         |      |        |         | 3" $\phi$ x 3"   |            |         |         |      |        |         |
| gr2              |            |         |         |      |        |         | gr3              |            |         |         |      |        |         |
| Rk=5.1%          |            |         |         |      |        |         | Rk=4.5%          |            |         |         |      |        |         |
| No. of Iteration | Dsi(nGy/h) | Dsi/Dcf | Dsi-Dcf | K(%) | U(ppm) | Th(ppm) | No. of Iteration | Dsi(nGy/h) | Dsi/Dcf | Dsi-Dcf | K(%) | U(ppm) | Th(ppm) |
| 1                | 148        | 1.31    | 35.100  | 2.51 | 5.35   | 18.9    | 1                | 114        | 1.210   | 19.700  | 3.60 | 3.35   | 10.8    |
| 2                | 129        | 1.17    | 15.000  | 2.72 | 4.22   | 19.5    | 2                | 103        | 1.080   | 7.910   | 3.72 | 3.09   | 11.0    |
| 3                | 127        | 1.12    | 13.200  | 2.89 | 4.24   | 19.6    | 3                | 101        | 1.040   | 4.030   | 3.77 | 3.28   | 11.1    |
| 4                | 126        | 1.08    | 9.640   | 2.95 | 4.56   | 19.7    | 4                | 100        | 1.020   | 2.020   | 3.78 | 3.49   | 11.1    |
| 5                | 126        | 1.06    | 6.900   | 2.96 | 4.97   | 19.7    | 5                | 100        | 1.010   | 0.889   | 3.79 | 3.65   | 11.1    |
| 6                | 126        | 1.04    | 4.860   | 2.96 | 5.31   | 19.8    | 6                | 100        | 1.000   | 0.251   | 3.79 | 3.74   | 11.1    |
| 7                | 126        | 1.03    | 3.440   | 2.96 | 5.56   | 19.8    | 7                | 100        | 1.000   | -0.100  | 3.79 | 3.79   | 11.1    |
| 8                | 125        | 1.02    | 2.490   | 2.96 | 5.72   | 19.8    | 8                | 100        | 1.000   | -0.310  | 3.79 | 3.82   | 11.1    |
| 9                | 125        | 1.02    | 1.880   | 2.95 | 5.83   | 19.8    | 9                | 100        | 1.000   | -0.430  | 3.79 | 3.84   | 11.1    |
| 10               | 125        | 1.01    | 1.510   | 2.95 | 5.89   | 19.8    | 10               | 100        | 0.995   | -0.500  | 3.79 | 3.84   | 11.1    |
| 15               | 125        | 1.01    | 0.971   | 2.95 | 5.98   | 19.8    | 15               | 100        | 0.994   | -0.630  | 3.79 | 3.86   | 11.2    |
| 20               | 125        | 1.01    | 0.910   | 2.95 | 5.98   | 19.8    | 20               | 100        | 0.993   | -0.670  | 3.79 | 3.87   | 11.2    |
| 25               | 125        | 1.01    | 0.892   | 2.95 | 5.98   | 19.8    | 25               | 100        | 0.993   | -0.690  | 3.79 | 3.87   | 11.2    |
| 30               | 125        | 1.01    | 0.877   | 2.95 | 5.98   | 19.8    | 30               | 100        | 0.993   | -0.700  | 3.79 | 3.87   | 11.2    |

### 5. 自然 $\gamma$ 線に対する新旧コードの比較

図6は今回製作した49x49行列と従来の22x22行列でアンフォールドしたスペクトルの比較である。この過程で線量率、K, U, Th濃度が計算される。これも比較してみよう。

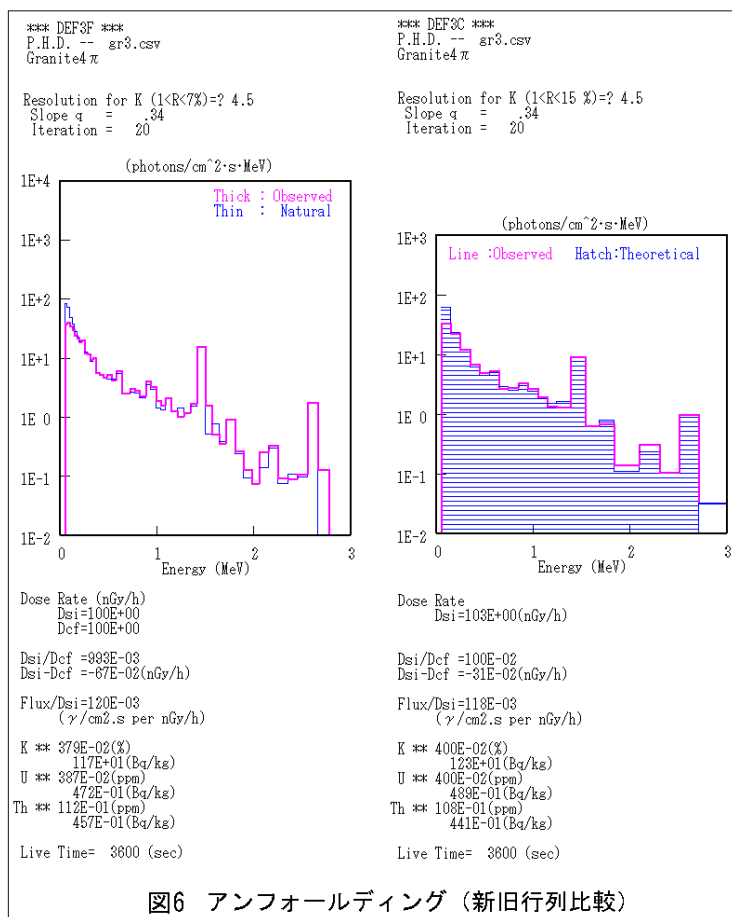
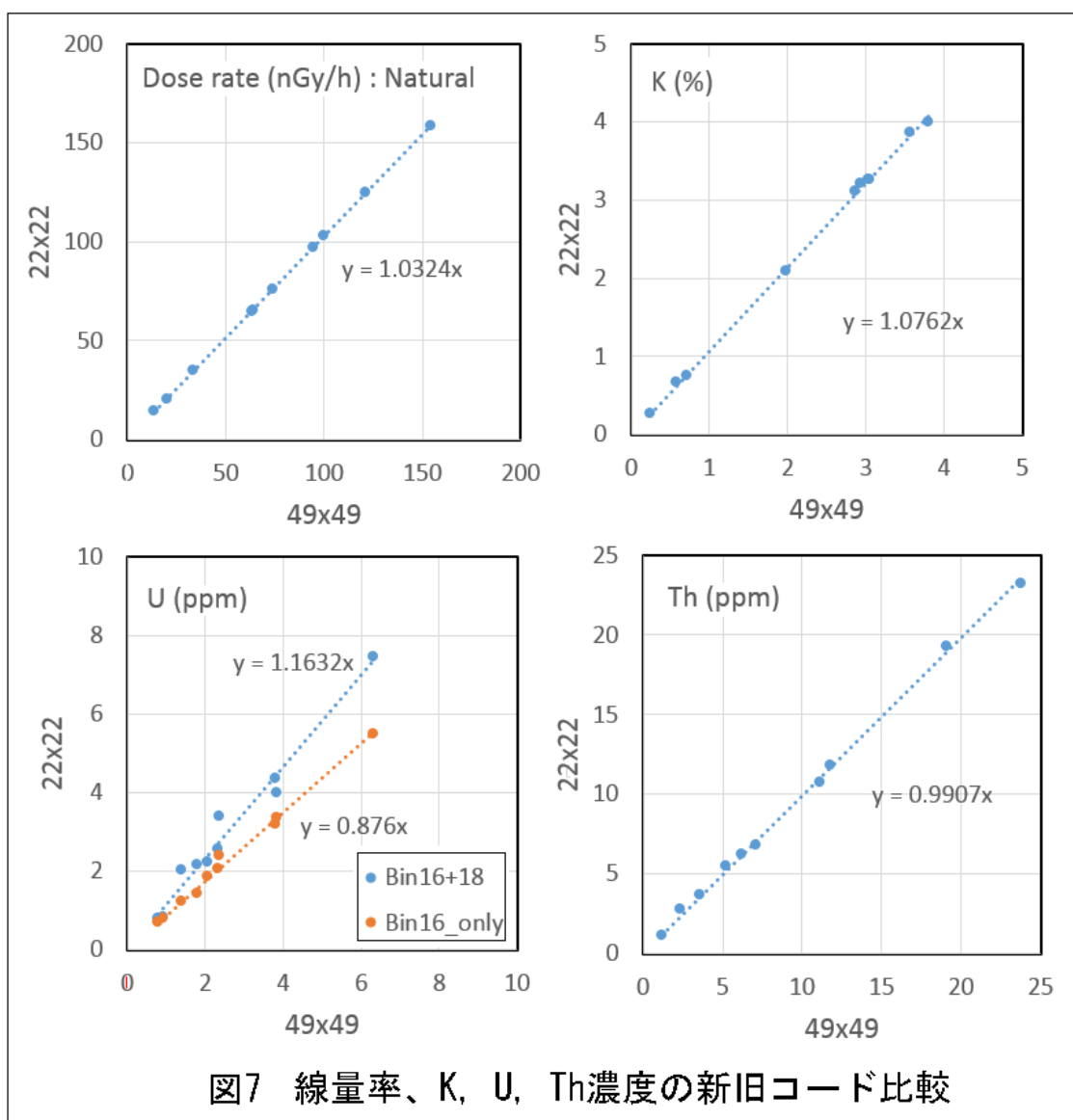


図6 アンフォールディング (新旧行列比較)

図7がそれである。U濃度以外は両者の一致は非常に良い。旧コード(22x22)ではU濃度の評価にはビン番号16(1.765 MeV)と18(2.205)を使う場合と16のみのものの二つの方法があった。図を見ると両者の平均くらいがちょうど良いようである。これについても少し検討してみる。理解しやすいように同じ波高分布に対して二つの方法でU濃度を評価した例を図8に示す。この場合も両者の差は大きい。

U濃度の評価誤差には二つの原因が考えられる。一つは単位濃度あたりのUによる基準線束スペクトルの計算誤差である。もう一つはU+Thスペクトルから差し引かなければならないThに関する基準線束スペクトルの計算誤差である。





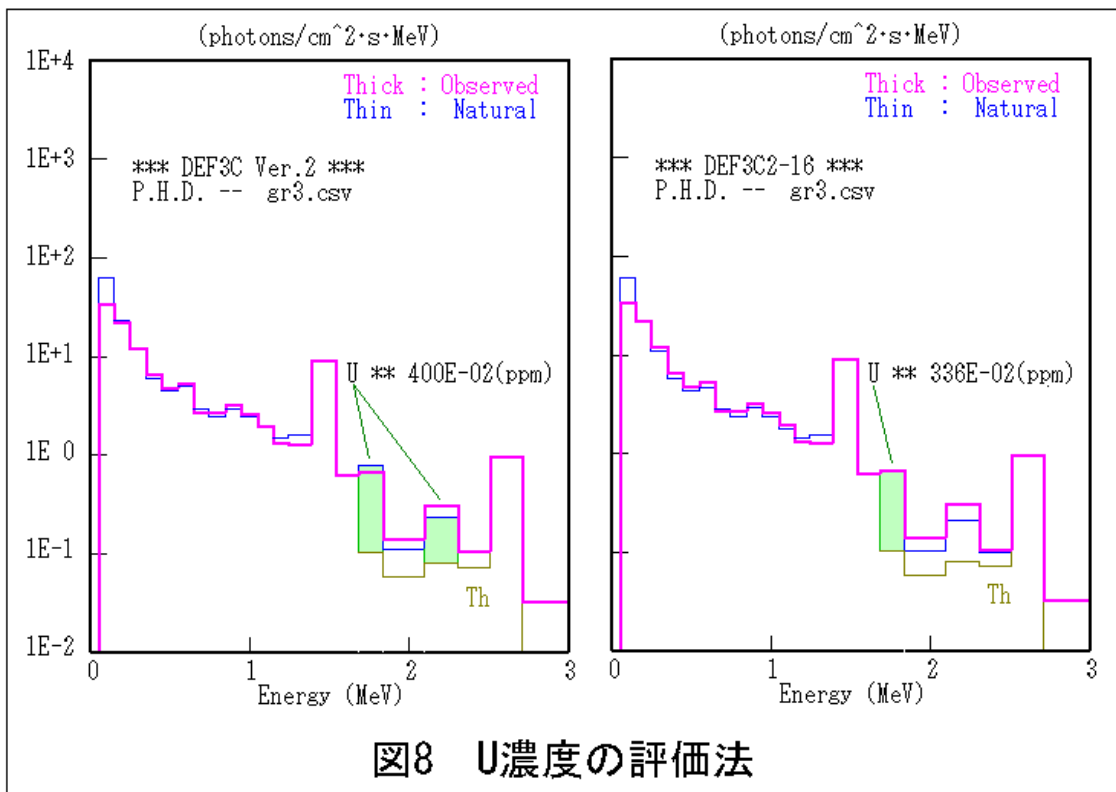


図8 U濃度の評価法

Uの精度評価にはThの影響をあまり受けない事例を調べればよい。ここではU鉱石（人形石）を照射する、検出器の下方を鉛で遮蔽して降水中のラドンを測る、あるいは上空のラドンを測る、などが実験可能である。表4がその結果である。DEF3C2がビン番号16と18を使った場合、DEF3C2-16が16のみを使った場合である。表4によれば両者の差はきわめて小さい。このことから、誤差の原因は基準Th線束スペクトルの精度に問題があると言えそうである。

| 表4 ウラン系列試料 |         |           |
|------------|---------|-----------|
|            | U (ppm) |           |
|            | DEF3C2  | DEF3C2-16 |
| Nigyoite   | 25.2    | 25.0      |
| Rain (Pb)  | 0.83    | 0.79      |
| Radon (Pb) | 0.69    | 0.67      |

(Pb) : 下方 2π 鉛遮蔽

## 6. 人工成分に対する新旧コードの比較

全体のスペクトルから K, U, Th 濃度で規格化した自然起因スペクトルを差し引いたものが人工成分である。この方法は K-40 以上のエネルギーの人工成分が混入している場合には誤差を伴う。

フォールアウト場を例にして説明する。図9に例を示す。この場合は Cs-134 (0.796 MeV)と Tl-208 (2.615 MeV)の光電ピークでエネルギー校正をする。

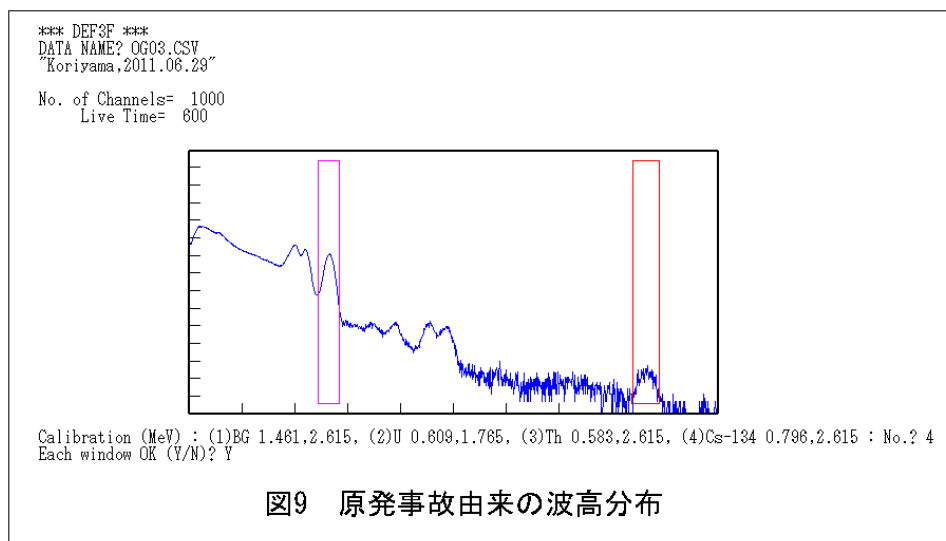
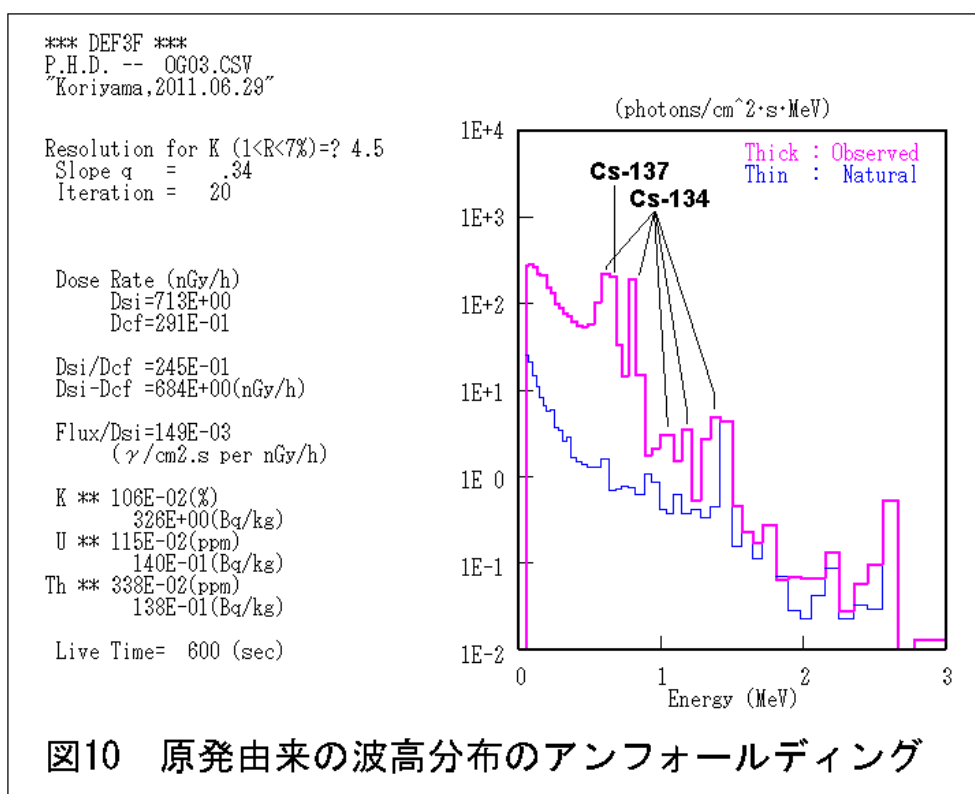


図10がそのアンフォールディング結果である。図中左の  $D_{si} - D_{cf}$  が人工成分を表す。



環境セシウム専用コードを使うと図 11 に示すようにセシウムに特化した解析もできる。ビン番号 14 (0.4255 MeV) と 23 (0.8540) を対数直線で結び、19 (0.6615) の青四角部分から Cs-137 の一次線を、22 (0.7960) 青四角部分から Cs-134 の一次線を評価する。直線より下の部分は Cs-(134+137)の散乱線と見做す。

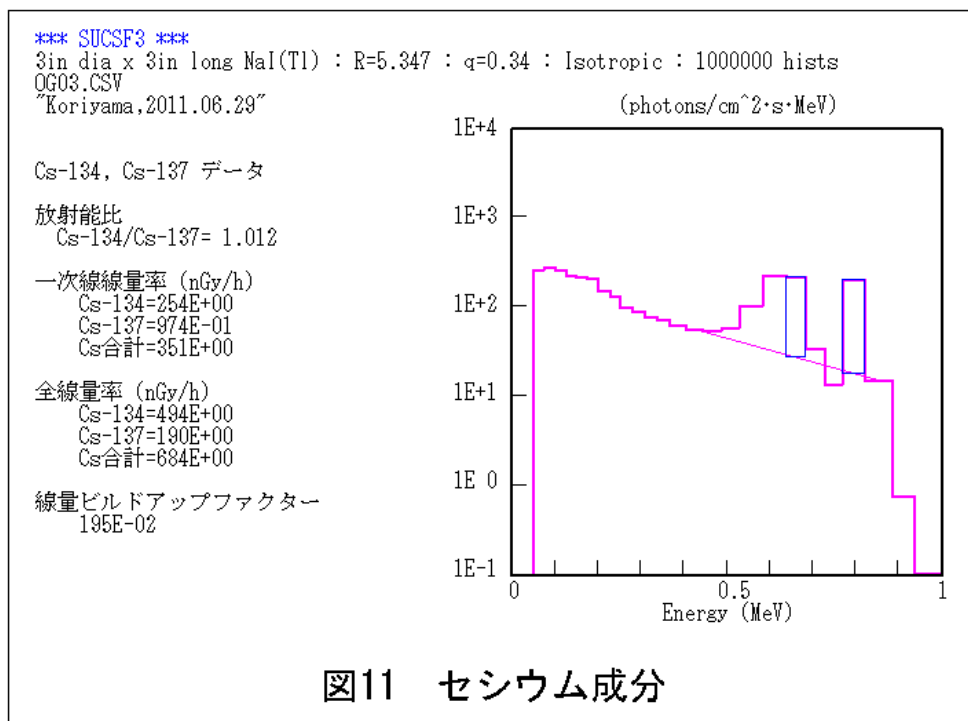
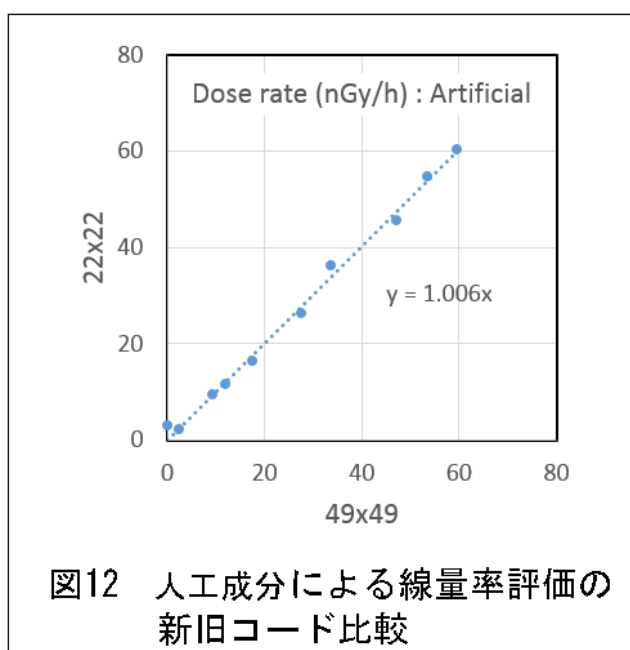


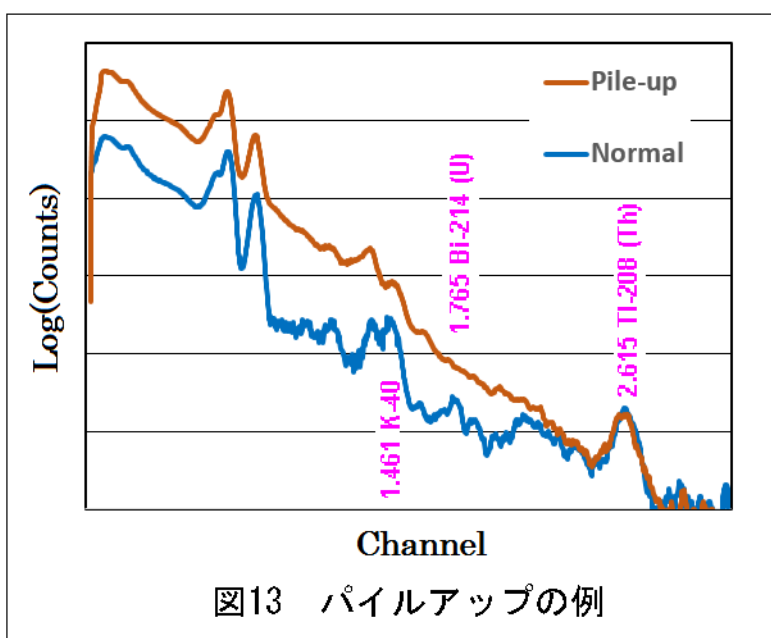
図 10 に示す解析を新旧コードで実施した結果が図 12 である。線量率の低い例だけを選



んだ理由は、線量率が非常に高いと自然起因成分が無視できるので弁別テストにならないからである。

最後に留意点を二つ挙げておく。一つは、福島第一原発事故由来のフォールアウト場は2011年5月以降のデータにのみ有効である。そうでないと Cs-134、Cs-137 以外の核種（特に I-132）の存在により K, U 濃度が過大評価される。2011年3~4月のデータについては別の専用コード<sup>8)</sup>を利用する必要がある。

二つ目は、セシウムのみの場合であっても数  $\mu$  Gy/h 以上の場合は、検出器の分解時間の関係上パイルアップが生じ、誤差が大きくなる。K, U 濃度が過大評価されるのである（図13参照）。

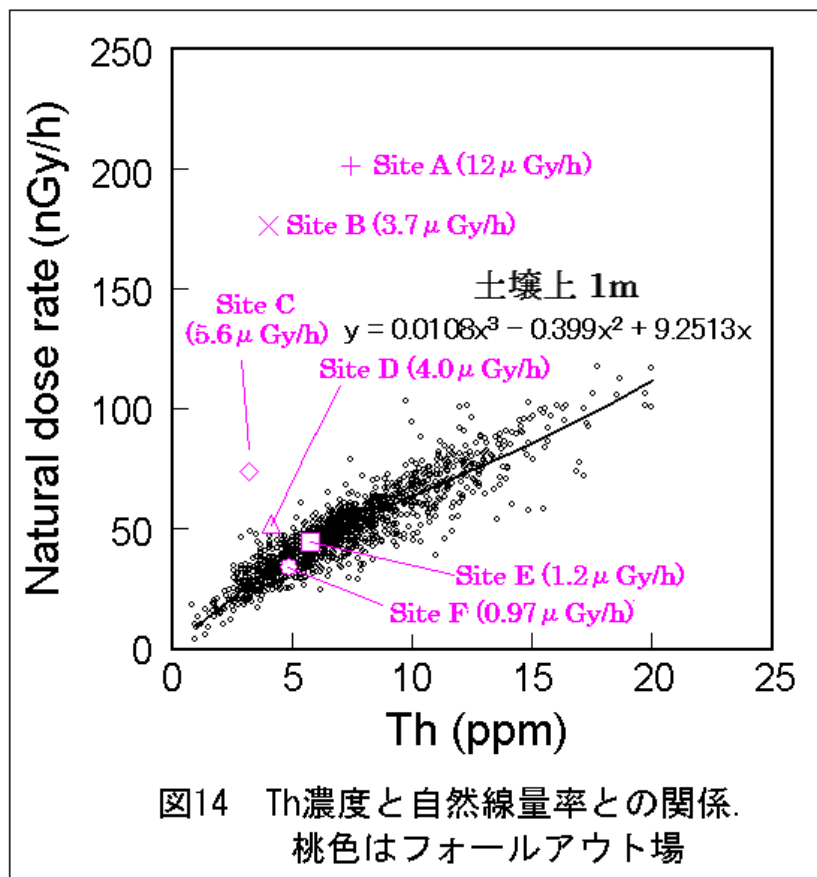


人工成分の弁別について、もう少し詳しく注釈をする。人工成分の線量率が高すぎて、パイルアップにより Tl-208 (2.615 MeV) のピークが識別できない場合にはこのコードは使えない。エネルギー校正ができないからである。

本コードは K (ビン番号 33), U (37), Th (46) の計数率から(3)式により自然線量率を算出している。そのため、これらのビンに人工成分やパイルアップ分が混入していると誤差を生ずることは直前で述べた。では、何を目安にこれらのビンに人工分が混入しているかを判断すべきなのか？を以下に実例で示す。自然線量率は K, U, Th 濃度で決定されるが、フォールアウトが無い自然由来のみの  $\gamma$  線場では Th 濃度ともかなり良い相関を示す。図14がその様子である。Th-系列の Tl-208 (2.615 MeV) のビン(番号 46) に対するフォールアウト成分の寄与は通常無視できるのでこの性質を利用する。

図14の桃色の数値は6ヶ所のフォールアウト場での全線量率である。縦軸はそれぞれの場所での“見かけの”自然線量率、すなわち人工成分が混入した K (ビン番号 33), U (37), Th (46) の計数率から算出した線量率を意味する。これら“見かけの”自然線量率は図中の

経験式よりかなりが高めに出る。Site Bは2011年3月17日に測定されたためI-132の寄与が含まれるので、“見かけの”自然線量率が相当高めに出る。Site B以外ではI-132の影響が無視できる時期に測定されている。



## 文 献

- 1) Minato,S., Kawano,M. (1970) **Evaluation of exposure due to terrestrial gamma-radiation by response matrix method**, Journal of Nuclear Science and Technology, 7: 401-406.
- 2) 湊 進 (1978) 環境γ線解析用3”φ 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
- 3) Beck,H.L., DeCampo,J. and Gogolak, C., (1972) “In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry”, USAEC Report HASL-258, New York, N.Y. 10014
- 4) ICRU Report 53 (1994) Gamma-ray spectrometry in the environment, International Commission on Radiation Units and Measurements, 7910 Woodmont Avenue Bethesda, Maryland, USA.
- 5) Minato,S. (2001) **Diagonal elements fitting technique to improve response matrixes for environmental gamma ray spectrum unfolding**, Radioisotopes, 50: 463-471.
- 6) 松田秀晴、古川滋子、上西時司、湊 進 (1982) 3”φ x 3” NaI(Tl) シンチレーションス

ペクトロメーターによる微弱漏洩 $\gamma$ 線線量率評価の新しい方法 (第 1 報) バックグラウンド推定法の原理、名古屋工業技術試験所報告、**31**: 132-146.

7) 湊 進 (1977) 降雨時の環境 $\gamma$ 線変動の解析、名古屋工業技術試験所報告、**26**: 190-202.

8) 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.