

アンフォールディング法を用いた NaI シンチレーターによる 放射能分析装置



西沢 博志
Nishizawa Hiroshi
(三菱電機(株)先端
技術総合研究所)



渡辺 幸信
Watanabe Yukinobu
(九州大学大学院
総合理工学研究院)

1 はじめに

2011年3月11日の東日本大震災による福島第一原子力発電所事故後、食品・土壌など環境中の放射性Csを計測するニーズが高まった。測定対象は様々であり、食の安全確保や住環境の保全のために、より多くの検体を検査し測定の信頼性を確保していくことが不可欠である。放射性物質の検査では、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs など、核種ごとの濃度を知ることができる適切な分析機器を用いて測定する必要があるが、Ge半導体検出器が一般に使用されている。しかし、Ge半導体検出器は測定に多くの時間を要することに加え、液体窒素による冷却が必要なため運用に要する費用が高く、また装置自体も高価である。一方、汎用のNaIシンチレーターは短時間で測定ができ、更に冷却不要で安価という利点があるが、放射能の分析能力に課題がある。このため、Ge半導体検出器とNaIシンチレーターの両者の利点を併せ持つ測定装置の開発が望まれていた。

今回、筆者らはNaIシンチレーターの放射能分析能力を改善するため、アンフォールディング法(後述)を適用した放射能分析装置を新た

に開発した。これにより、従来は不可能だった放射能分析に要する時間の短縮と装置の低価格化を同時に実現することができた。本稿では、アンフォールディング法の原理と開発した装置を紹介する。

2 アンフォールディング法

放射性核種からは核種ごとに決まったエネルギーの γ 線が放出される。例えば、 ^{137}Cs は0.662 MeV、 ^{134}Cs は0.605 MeVや0.796 MeVなどの γ 線を放出する。放射性物質を核種ごとに分析するためには、放射性物質から放出される γ 線のエネルギーを正確に識別することが必要である。

放射性核種から出る γ 線のエネルギーは、本来は核種ごとに一定の値で決まっている。しかし、ある一定のエネルギーの γ 線を放射線測定器で測定すると、図1に模式的に示すように、測定結果は様々なエネルギーの値を示すことが知られている。これは、同じエネルギーの γ 線が検出器有感部に入射したとしても、 γ 線の全てのエネルギーが検出器の有感部に捉えられる“全エネルギー吸収”の場合と、エネルギー

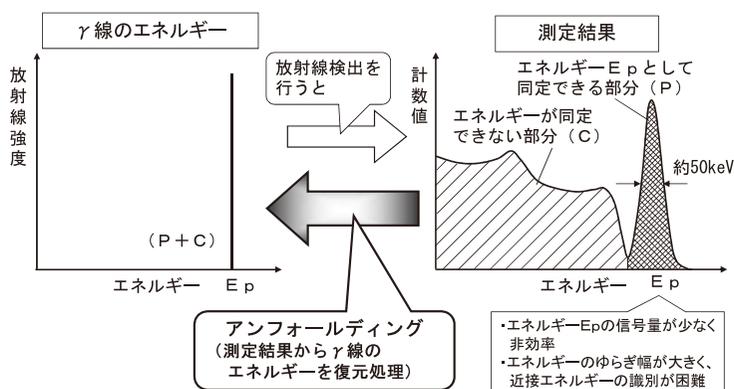


図1 γ 線のエネルギーと測定結果の関係、アンフォールディングの原理

の一部しか有感部に与えず残りのエネルギーは散乱 γ 線となって有感部外に逃げる“コンプトン散乱”の場合など、様々な相互作用過程があるからである。さらに、NaIシンチレーターではエネルギー測定結果のゆらぎ幅が大きい（ピークの幅が大きくエネルギー分解能が低い）ため、近接したエネルギーピークが重なり合うため区別することができず、核種ごとの放射能を分析する能力が不十分だった。

そこで、NaIシンチレーターの欠点であるエネルギー分析能力を改善するため、アンフォールディングと呼ばれる手法により、測定結果（パルスの波高分布）から放射性物質の線源スペクトルを再現する方法を適用した。アンフォールディングとは、各エネルギーの単色線源とパルス波高分布の関係をあらかじめ検出器応答関数行列として用意しておき、測定結果から応答関数行列の逆行列を用いて線源のエネルギースペクトルを求める処理である。すなわち、線源スペクトルを S 、測定された波高分布を M 、検出器応答関数行列を R とすると、

$$M = R \cdot S \quad (1)$$

であるので、

$$S = R^{-1} \cdot M \quad (2)$$

により線源スペクトル S を求めることができ

る。応答関数に信号ゆらぎによる分解能の広がりを含めることにより、NaIシンチレーターの分解能劣化を補正することができるので、実質的にエネルギー分析能力を向上することができる。また、アンフォールディングでは感度（検出効率）も向上する効果もある。アンフォールディングでは、測定結果を線源のエネルギースペクトルに戻すので、測定結果のピーク部分（図1右側の(P)の部分）だけでなく、それ以外の部分(C)も元の線源スペクトルに復元される。このため、全ての相互作用の計数(P+C)をカウントできるので、検出効率を数倍に向上することができる。

アンフォールディングの手法自体は、従来から空間線量の算出など一部で利用されてきたが¹⁾、精度が低く、物質中の放射能を分析するには不十分だった。精度を高め、放射能分析に適用できるようにするためには、検出器応答関数 R をいかに正確に求めるかがキーポイントとなる。そこで、高精度の応答関数を求めるために、筆者らは電子光子輸送モンテカルロ計算コードEGS5²⁾による放射線挙動解析とシンチレーション光の伝播を連成させた独自の解析手法を確立した³⁾。大型のシンチレーターを用いる場合、発光点から集光窓までの光路長が長くなるため、集光効率の発光位置依存性が現れるが、これを解析に反映させた。この手法を用い

て γ 線の入射エネルギーを0~3 MeVまで変化させ、各々のエネルギーに対する応答関数を作成した。これを図2に示す。応答関数行列 R は0~3 MeVまでを300分割したメッシュ幅10 keV、要素数300×300である。また、線源スペクトル S 及び測定された波高分布 M を、応答関数と同様に0~3 MeVまでの300要素とすれば、式(1)又は式(2)により、解である線源スペクトル S を数学的に求めることができる^{4,5)}。

3 放射能分析装置の試作

このアンフォールディング手法を適用した放

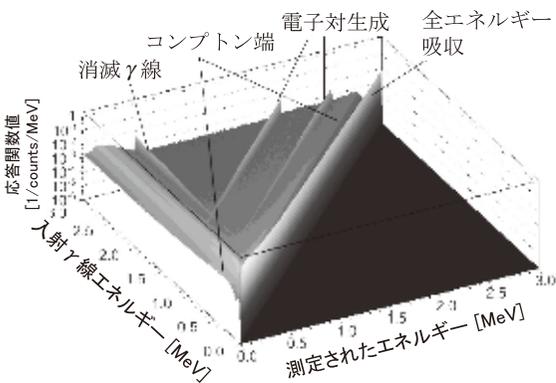


図2 応答関数マトリックスの例

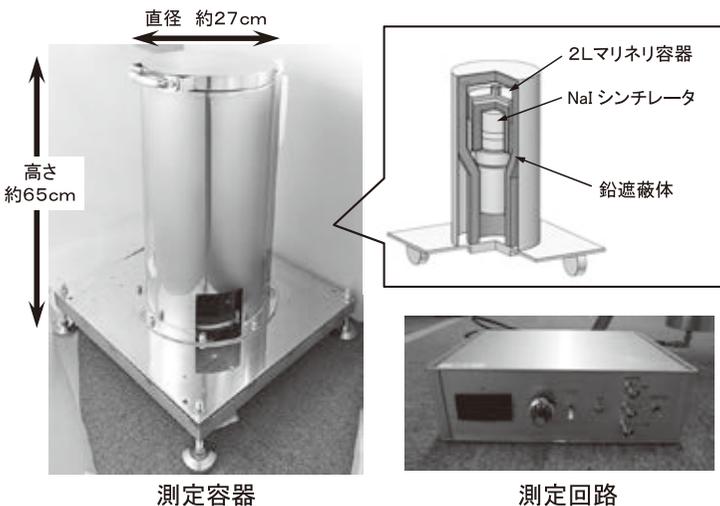


図3 試作した放射能分析装置プロトタイプ

射能分析装置のプロトタイプを試作した。プロトタイプは、図3のとおり試料を入れる2 Lのマリネリ容器、NaIシンチレータ、遮蔽体、測定回路ユニットから成る。測定回路ユニットには、パルス波高分析器（マルチチャンネルアナライザ）とアンフォールディング演算するプログラムが搭載されている。測定表示画面の例を図4に示す。図4は日本アイソトープ協会製の放射能標準ガンマ体積線源MX033MR (¹⁰⁹Cd, ⁵¹Cr, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Coなどの9核種混合)を測定した例であり、画面の右側がパルス波高分布、左側はアンフォールディング後の線源スペクトルである。図4から分かるように、左側のアンフォールディング後の線源スペクトルでは、それぞれのピークが明瞭に分離でき、更にピーク以外の領域（コンプトン散乱等の部分）の大半が除去されている。これにより、核種ごとに分離して放射能濃度を測定することが可能となる。アンフォールディング演算に要する時間は1秒以内であり、ほぼリアルタイムに結果を確認できる。

試作した装置の性能を評価するため、¹³⁴Csと¹³⁷Csが含まれた日本分析化学会の放射能分析用玄米標準認証物質(JSAC0731及びJSAC0732)を2 Lのマリネリ容器に充填し、放射能濃度を測定した。その結果を図5に示す。¹³⁴Csと¹³⁷Csに相当するエネルギーを明確に分離することができた。また、放射能の測定値は標準物質の認証値に対して±10%以内で一致した。この結果、本手法により放射性Csの核種ごとの放射能測定ができることを確認できた。

この試作機を福島県内2か所にて性能評価した。装置の設置場所は屋内で、空間線量率は最大で0.11 μ Sv/hで

あった。検出限界の評価結果を図6に示す。検出限界は、JIS Z4342（食品中の γ 線放射能測定器）に示されている評価方法（Currieの式，危険率5%）を参考に，複数回測定を実施してばらつきの影響を含めて評価した。評価の結果，図6に示すとおり，例えば測定時間1分にて検出限界は10 Bq/kg以下であることが確認できた⁶⁾。

4 試料密度の影響

分析の信頼性を確保するために，測定結果はその不確かさも併せて評価する必要があるが，更にその不確かさを小さくすることも重要である。測定結果が変動する要因は様々あるが，ここでは影響が比較的大きな試料密度についての対策を述べる。

図7に，密度を変化させたときの検出器応答の計算結果例を示す。密度の違いにより，全吸収ピークの高さのほかコンプトン連続部分の形状も変化することが分かる。このことは，応答関数を作成するときの密度と測定時の密度が異なれば，正確に線源スペクトルを復元できなくなることを示している。そこ

で，試料の密度ごとに応答関数を作成して，アンフォールディングを行うこととした。評価結果の一例を図8に示す。日本分析化学会の3種類の標準物質（玄米：0.9 g/cm³，大豆：0.75 g/cm³，しいたけ：0.3 g/cm³）を用い，放射能の認証値に対する測定値の比の値を評価した。その結果，応答関数を試料の密度に合致させたものは不確かさを含めて概ね0.95~1.05の間となり，正確に測定できることが分かった⁷⁾。本

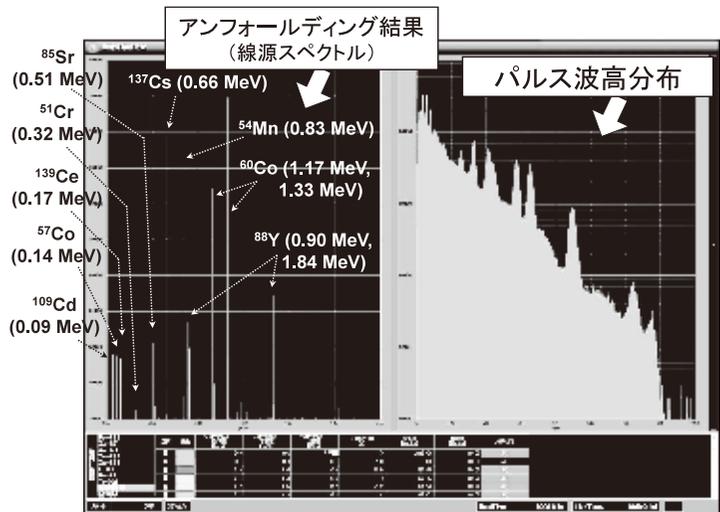


図4 ソフトウェア画面の例

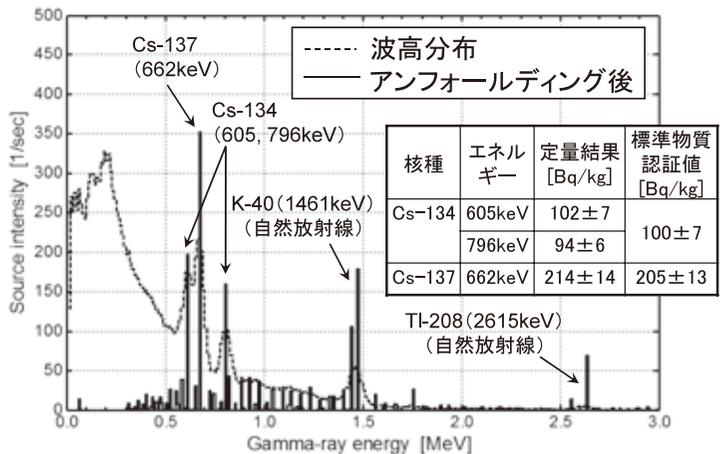


図5 玄米認証標準物質の測定結果

装置ではソフトウェアにて試料の密度を選択できるようにしており，試料重量の測定値などから得られた密度を入力することで，正確な測定が可能である。

5 おわりに

アンフォールディング法により NaI シンチレーターの放射能分析能力を改善した放射能分析装置を開発し，福島県内での実地試験を通じて

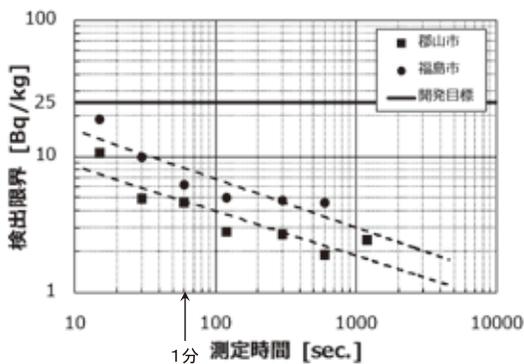


図6 検出限界の評価例（福島県内での実地試験）

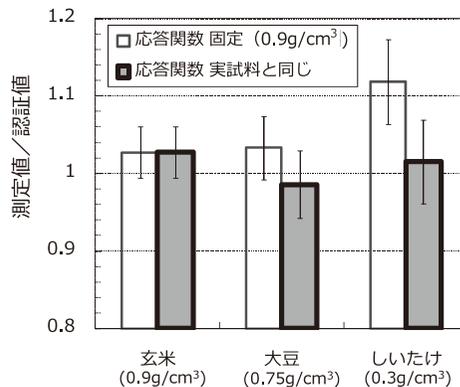


図8 各標準物質試料の放射能測定結果

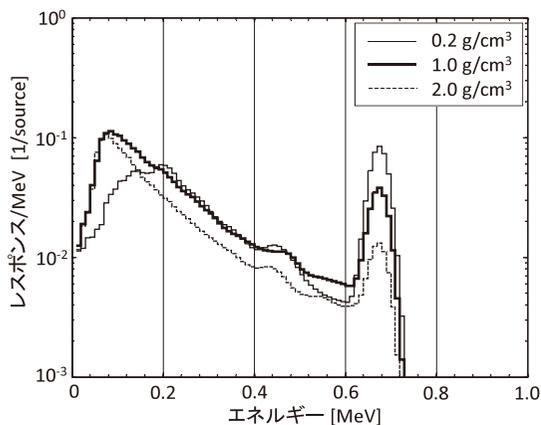


図7 密度が異なる場合の検出器応答の計算例

性能を確認することができた。原発事故から4年以上が経過したが、食の安全や消費者の信頼確保、更に住環境の保全のため、今後数十年間、放射性Csのモニタリングが継続的に実施される見込みである。開発した技術は、安価で短時間測定が可能な放射能測定器を提供できるため、モニタリング活動の大規模化・省力化、測定作業の効率化に貢献できれば幸いである。

この開発は国立研究開発法人科学技術振興機構の研究開発事業（先端計測分析技術・機

器開発プログラム）による成果である。

【謝辞】

福島県内での実地試験にてご協力いただきました、(株)環境分析研究所の菊池美保子様、小林浩哉様、沖澤悠輔様、福島県農業総合センターの佐藤睦人様、齋藤隆様に厚くお礼申し上げます。

参考文献

- 1) 文部科学省，放射能測定シリーズ20「空間γ線スペクトル測定法」，日本分析センター（1990）
- 2) Hirayama, H., *et al.*, The EGS5 Code System, SLAC-R-730 (2005)
- 3) Hayashi, M., *et al.*, Radiation Detectors and Their Uses, KEK Proceedings **2013-9**, 90-99 (2014)
- 4) Nishizawa, H., *et al.*, *Jpn. J. Health Phys.*, **49**(1), 45-47 (2014)
- 5) 西沢博志，渡辺幸信，検査技術，**20**(1)，12-17 (2015)
- 6) 東哲史，他，第16回環境放射能研究会，P-3 (2015)
- 7) 東哲史，他，第4回環境放射能除染研究発表会，P1-08 (2015)