

容積試料における 線自己吸収の補正法
Correction Methods of γ -Ray Self-absorption in Bulk Sample

野口正安、小峰隆志、秋山正和*
Masayasu Noguchi, Takashi Komine, Masakazu Akiyama
セイコー・イージーアンドジー株式会社 松戸市高塚新田 563
SEIKO EG & G Co., Ltd. 563, Takatsuka-Shinden, Matsudo-shi
*日本分析センター 千葉市稲毛区山王町 295-3
Japan Chemical Analysis Center 295-3, Sanno-cho, Inage-ku, Chiba-shi

線スペクトロメトリーにおける容積線源の自己吸収補正法として、5 種類の方法について検討した。線減弱係数がおよそ 0.1cm^{-1} より大きい場合は自己吸収補正係数に数%程度の相違が生じることがあるが、4 種類の補正法に大きな差はなかった。その中の一つの方法では、標準線源の測定が不要であり、簡単な計算にもかかわらず結果は妥当であった。減弱係数が大きい場合は、自己吸収の割合はGe結晶の直径に多少依存することが示された。

Abstract

Five methods of γ -ray self-absorption correction for bulk sample were investigated. It was clarified that there is no significant difference in quality among four methods, except for one method, while a few percents of discrepancy were observed in case of larger value of attenuation coefficient than 0.1cm^{-1} . One of those methods is recommended for practical γ -ray spectrometry on account of the simple calculation method and no experimental data needed. Self-absorption for low energy γ -rays with high attenuation coefficient was a little dependent on Ge crystal diameter.

1 はじめに

線スペクトロメトリーによる容積試料の放射能分析では、試料中での線の減弱(自己吸収)が数10%にもなることがあり、その補正は不可欠である。自己吸収の割合は、線エネルギー、試料媒体の元素組成および試料の幾何学的条件(量、形状など)に依存する。標準容積線源を測定して得られるピーク効率(自己吸収を含む)を f_{SA} 、自己吸収を補正したピーク効率を f_0 、自己吸収の補正係数を f_{SA}^* として、次のように表す。

$$f_0 = f_{SA} / f_{SA}^* \quad (1)$$

したがって、標準容積線源と異なる媒体からなる試料に対するピーク効率 f_0^* は、その媒体に対する自己吸収の補正係数を f_{SA}^* とすると、次のように表される。

$$f_0^* = f_0 \times (f_{SA}^* / f_{SA}) \quad (2)$$

後で述べるように自己吸収の厳密な補正は困難であるから、上式から明らかなように、一般的な試料の媒体に近い元素組成をもつ媒体の標準線源を用いることが望ましい。その意味および媒体の

均一性(密度、放射能分布)の点からみて水溶液(寒天も同様)の標準線源が最適である。また、基準とする線エネルギーとしては、通常測定するエネルギー範囲のほぼ中間、例えば一般の環境放射能分析では662keV(^{137}Cs)がよい。なお、ここでは自己吸収以外の補正項(サム効果など)については言及しない。次に、自己吸収の補正に必要な光子減弱(衰)係数または相互作用断面積および自己吸収補正のいろいろな方法について述べる。

2 光子減弱係数

容積試料の自己吸収補正に使われる光子減弱係数(μ)には、全相互作用断面積 = 光電効果() + コンプトン散乱() + 電子対生成() が関与する。線エネルギーが変わらないコヒーレント散乱については、等方散乱と広い線束のため、媒体からの散乱線の出入がほぼ等しいと仮定して考慮しないことにする。

アボガドロ数を N_A 、原子量を A 、媒体の嵩密度を (g/cm^3) とすると、線減弱係数 $\mu(\text{cm}^{-1})$ は次のように表される。

$$\mu = N_A (\quad + \quad) / A \quad (3)$$

多元素物質の媒体では元素組成を $A_a B_b C_c$ 、原子量を A_M 、各元素に対して $= \quad + \quad$ 、とすると線減弱係数 $\mu(\text{cm}^{-1})$ は次のように表される。

$$\mu = N_A (a \quad + b \quad + c \quad + \dots) / A_M \quad (4)$$

減弱係数または光子相互作用断面積の求め方には次のような方法がある。

- 1) 元素ごとに与えられた数値データ¹⁾を補間して求める。この場合、数値は限られたエネルギーに対してのみ与えられているので、測定する光子エネルギーに近いエネルギーの3点以上の値を用いて、補間計算によって求める。この方法では、コンピュータプログラムで計算するために、全元素についての膨大な数値データのファイルを必要とする。
- 2) 特定の物質に対する減弱係数の近似式²⁾、あるいは、物質の元素組成を入力することによって計算する方法³⁾。前者では適用できる試料媒体の種類は限られており、その元素組成から外れるほど、特に光電効果の寄与が大きい低エネルギー領域において誤差が大きくなる。后者では、相互作用断面積が原子番号と光子エネルギーの関数として与えられているので、プログラムに組み込むことによって任意の元素組成に対して減弱係数を求めることができる。

3 自己吸収補正法

自己吸収は、主として線エネルギーと試料の媒体(元素組成、嵩密度)および試料の形状など幾何学的条件に依存するばかりでなく、Ge結晶の形状や大きさなどにも依存する。自己吸収はこのように多くの要因が関係した複雑な事象であるので、補正法には必ずある種の仮定や近似が必要となる。容積試料の自己吸収を厳密に補正するには、試料内のある位置から放出された線が試料中を通過する3次元距離を求めなければならない。モンテカルロ法^{6~14)}は個々の線についてこれを計算して吸収の確率を求めることができる唯一の方法である。しかし、膨大な数の計算および測定する試料や検出器の多様性(サイズなど)のため、モンテカルロ計算を通常のパソコン

で日常的に行うことは困難である。そこで、容易に適用でき、且つよい結果が得られる方法(下記BのISDE法)および他の方法について以下に述べる。下記の方法による結果(Fig. 1, 3, 4, 6, 7)は、主に4.8cmのポリスチロール製試料容器(U-8)中の水の媒体に対するものであるが、他の種類の媒体に対しては元素組成に応じた減弱係数を与えることによって同様な結果が得られる。

3.1 二種類以上の媒体の異なる標準容積線源を用いる方法²⁾ :方法(A)

線減弱係数の異なる二種類以上の媒体(厚さ0.5~5cm、各媒体につき5個程度)からなる多核種標準容積線源を測定し、線エネルギー、試料厚および減弱係数について補間計算をして自己吸収を補正する。この方法は測定データを基にしているため不明確な仮定や近似は少ないが、信頼性の高い多くの標準容積線源を必要とし、さらに測定およびデータ解析に多くの手間と時間を要するので実用性にやや乏しいくらいがある。この方法についての詳細は省略するので、文献2)および4)を参照されたい。

3.2 面線源ピーク効率の積分による方法

一般に容積線源は円筒形容器に入れて測定されるので、容積線源は同一半径をもつ円形面線源の集合と考えることができる⁴⁾。容器の底面からhの距離におかれた面線源に対するピーク効率を $\epsilon(h)$ 、hの関数である線透過率を $\mu(h)$ とすると、厚さHの容積線源に対するピーク効率(H)は次式のように $\epsilon(h)$ 、 $\mu(h)$ を試料の厚さに対して積分することによって求められる。

$$(H) = \int_0^H \epsilon(h) \mu(h) dh \quad (5)$$

したがって、自己吸収補正係数(f_{SA})は次のように計算される。

$$f_{SA} = \int_0^H \epsilon(h) \mu(h) dh / \int_0^H \epsilon(h) dh \quad (6)$$

以下、この原理に基づく幾つかの方法について述べる。

3.2.1 効率一定・平行線束法 (CEPB : Constant Efficiency Parallel Beam)

面線源に対するピーク効率 $\epsilon(h)$ はその位置(h)によって大きく異なるが、ここでは「hに依存しない一定の値(ϵ_c)であり、さらに検出器に入射する線は平行線束である」と仮定すると自己吸収補正項(f_{SA})は次の式で表される。

$$f_{SA} = \int_0^H \epsilon_c e^{-\mu h} dh / \int_0^H \epsilon_c dh \quad (7)$$

この式を解くと、次のようになる。

$$f_{SA} = (1 - e^{-\mu H}) / \mu H \quad (8)$$

ただし、 μ は線減弱係数(cm^{-1})、 H は容積試料の厚さ(cm)である。この補正法ではピーク効率の実測データが不要なため極めて簡単であるが、Fig. 3、4、7 に示されるように、「 ϵ が一定である」という大まかな仮定のために、試料が厚くなると自己吸収補正係数には大きな誤差が生じる。

3.2.2 距離逆二乗法 (ISDE : Inverse Square Distance Efficiency)

厚さ h を変数とする円柱形容積線源に対するピーク効率を $\epsilon(h)$ として、次の実験的な近似式がよく使われる²⁾。同式の a 、 b 、 c は 線エネルギー、検出器、線源などに依存する定数であり、媒体中の自己吸収によっても異なる。

$$\epsilon(h) = (a + b \cdot h + c \cdot h^2)^{-1} \quad (9)$$

しかし、自己吸収がないと仮定した計算(下記 3DD法)結果によると、Fig. 1 に示されるように(9)式の c はほとんど0に等しく、 $\epsilon(h)^{-1}$ は h の一次式として精度よく近似することができる。Ge結晶の直径が 50mm、60mm、70mm の場合(試料容器:U-8)について計算してみると、いずれの場合にもよい直線性が得られた。そこで、面線源に対するピーク効率 $\epsilon(h)$ は、容積線源ピーク効率 $\epsilon(h)$ の微分によって求められるので、次のように近似することができる。

$$d \epsilon(h) / dh = -\epsilon(h)^2 (b + 2c \cdot h) \quad (10)$$

また、 $\epsilon(h)^{-1} = 0$ となる h の値($c_{EC} = -a/b$)は 線エネルギーにほとんど依存しない一定値となる(Fig. 1)。線源媒体中における 線の通過距離を d とすると、透過率は $\epsilon(h) = e^{-\mu d}$ と表されるので、(6)式より自己吸収補正係数は次の式で表される。

$$f_{SA} = \int_0^H (c_{EC} + h)^{-2} e^{-\mu d} dh / \int_0^H (c_{EC} + h)^{-2} dh \quad (11)$$

c_{EC} について : この値は面線源からの広い線束に対する検出器の見かけの実効中心に相当するものであるが、細い線束に対する実効中心(エネルギー依存性がある)のような明確な意味はない。直径が5cmから7cmのGe結晶に対して3DD法で計算した結果によると、Ge結晶の直径(R_D)に対して、 $c_{EC} = 0.35R_D + 0.25$ なる関係が見出された。なお、 c_{EC} が f_{SA} に及ぼす影響はそれほど大きくはないので、標準的なGe結晶($\sim 6\text{cm}$)では、 $c_{EC} = 2.4\text{cm}$ としてよい。Fig. 3 および 4 に示された結果は、 $c_{EC} = 2.4\text{cm}$ として計算されたものである。また、近年、結晶の直径は大きくなる傾向にあり、上記の関係は7cm 以上にも適用できるであろう。

試料中の 線通過距離 : 媒体中における個々の 線(広い線束)の通過距離(d)を計算することは極めて困難であるので、次の2通りで計算してみた。

- 1) 平行線束(ISDP ; ISD Parallel)の仮定 : (11)式において、 $d = h$ とする。明らかな根拠はないが、 $c_{EC} = 3.0\text{cm}$ とすると、ISDPとしてFig.3と4に示されるように他の平行線束法とよく一致した。しかし、薄い厚さ(およそ、1~2cm)では補正がやや足りない傾向を示す。
- 2) 平均通過距離(ISDC ; ISD Convergent)の近似 : 線源の中心軸からGe結晶(半径: R)に入射する 線に対する実効半径($r = R / \sqrt{2}$)を仮定して、(12)式(Fig. 2 参照)のような平均的な通過距離を用いる。

$$d = \{ h / (c_{EC} + h) \} \cdot \{ r^2 + (c_{EC} + h)^2 \}^{1/2} \quad (12)$$

ISDCとして Fig. 3 と 4 に示されるように、後で述べる3DD法による結果とよく一致した。

線源サイズ依存性：容積線源の直径が5~7cmの範囲における3DD法の計算結果によると、直径が大きくなるほど自己吸収補正係数は小さくなるが、Fig. 5 に示されるようにその差は最大(E=88keV, H=5cm)でも±1%程度以内である。そのため、(12)式においては線源の直径については考慮しない。

Ge結晶サイズ依存性：同じ長さをもつGe結晶の直径を6cm, 6.5cm, 7cmと変えた場合、3DD法およびISDC法(6cmのみ)によって計算された自己吸収の補正係数をFig. 6に示す。同図の上側曲線は662keV、下側曲線は88keVに対する結果である。結晶の直径が大きいくほど斜め方向に入射する線の寄与が多くなり、特に減弱係数が大きい低エネルギー線においては、結果として自己吸収が大きくなると考えられる。しかし、一般的なGe検出器(6±0.5cm)では、その違いは±1%程度以内である。なお、(11)式の積分はシンプソンの公式(20分割)で計算された。

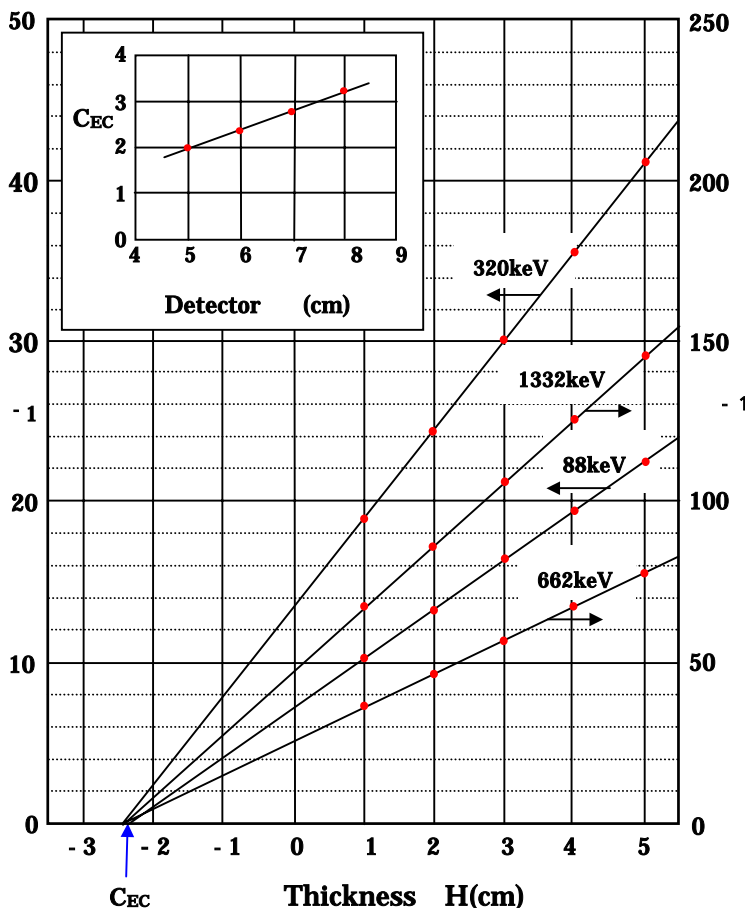


Fig. 1 Inverse peak efficiency (ϵ^{-1}) for volume source

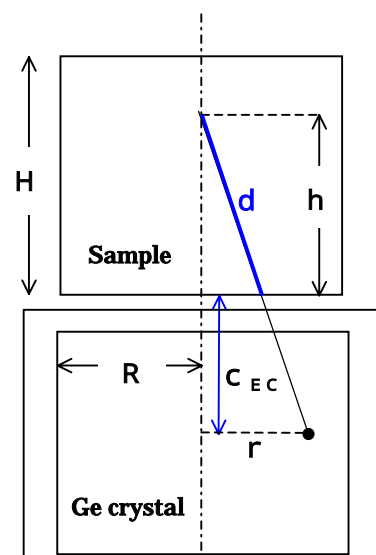


Fig. 2 Effective transmission length (d) through sample matrix

3.2.3 容積線源微分効率法 (VSDP : Volume Source Differential Efficiency Parallel Beam)

厚さの異なる5個程度の標準容積線源を測定して、最小二乗法などによってピーク効率関数(h)を作成する。(h)の関数形としては任意のものでよいが、例えば、線形最小二乗法によって簡単に決定できる(9)式がよく使われる関数である。得られた(h)を解析的あるいは数値的に微分し、減弱を補正することによって面線源ピーク効率(h)が得られる。例えば、(9)式の場合は次のように表される。

$$(h) = (d(h)/dh) / (h) = (b + c \cdot h) (a + b \cdot h + c \cdot h^2)^{-2} / (h) \quad (13)$$

(9)式および(13)式の係数(a, b, c)は線エネルギーによって異なるが、662keVに対して得られた係数を用いて計算した f_{SA} と、88keVに対して得られた係数を用いて計算した f_{SA} にはほとんど差はなかった。したがって、あるエネルギーについて求められた係数を他のエネルギーの線に適用することができる。Fig. 3と4のVSDPは、平行線束の仮定で得られた結果である。VSDPの結果は次に述べるPFPBとほとんど一致しており、薄い厚さ(H=1~2cm)において補正係数がやや大きくなる傾向にある。図には示さなかったが、(12)式の平均的な通過距離を用いた結果では、2cm以上厚くなると補正係数が他の方法に比べて小さくなる傾向があった。

3.2.4 パラメータフィッティング法⁴⁾ (PFPB : Parameter Fitting Parallel Beam)

容積線源の実測ピーク効率を次の(14)式にフィッティングし、関数の未知パラメータを決定する。この関数は、hを変数とする2個の指数関数からなる面線源ピーク効率および平行線束の減弱を仮定してつくられたものである。計算過程は異なるが、原理的には前項のVSDP法と同じである。以下に、その概要を述べる。

はじめに、厚さ(H)の異なる5個程度の標準容積線源を測定し、それぞれのピーク効率()を求める。これら実測ピーク効率のデータを用いて、非線形最小二乗法によって、(14)式の未知パラメータ(C, ,)を決定する。その際、線減弱係数 μ (cm⁻¹)としては、標準線源の媒体に対する値を代入する。例えば、¹³⁷Csからの線(662keV)の水に対する μ は0.086 cm⁻¹である。

$$(H) = \frac{C}{H} \left[\frac{1 - e^{-A \cdot H}}{A} + \frac{1 - e^{-B \cdot H}}{B} \right] \quad A = \quad + \mu, \quad B = \quad + \mu \quad (14)$$

C, , : 非線形最小二乗法で決定される定数

H : 標準線源(または試料)の厚さ(cm)

決定された(14)式を他の試料の自己吸収補正に適用するときは、その試料媒体に対する線減弱係数 μ (cm⁻¹)を代入する。前項で述べたVSDP法と同様に、(14)式の係数(C, ,)はエネルギーによって異なるが、あるエネルギーについて求められた係数を用いても自己吸収補正係数に大きな違いは生じない。Fig.3および4に示された結果は、662keVの標準線源で決定された係数を用いて他のエネルギーに対して計算されたものである。

3.3 三次元透過距離法⁵⁾ (3DD : 3 Dimensional Distance)

容積線源は点線源の集合体と考える。試料内の任意の位置から放出される線について、3次元透過距離から計算される透過率を容積線源の空間にわたって積分する。線源を透過した線に対しては、Ge検出器の物理的パラメータから計算される結晶中の3次元透過距離によって、ピーク効率()が計算される。線が放出される点の座標(h, r)と放出角(θ, ϕ)について積分することによって容積線源に対するピーク効率が計算される。Ge検出器に関するパラメータは、Ge結晶の直径と高さ、検出器入射窓および不感層の厚さ、エンドキャップ上面から結晶表面までの距離、検出器相対効率などである。また、試料に関するパラメータは、媒体の直径と高さ、媒体の元素組成と高密度(減弱係数 μ が計算される)などである。

この方法の特徴は次のとおりである。1)自己吸収補正のみの場合は、ピーク効率などの実測データを必要とせず、上記のパラメータを与えるだけで計算できる。2)計算に使われている仮定や近似が f_{SA} に与える影響は小さい。3)それぞれの線の透過距離は三次元距離で計算される。

媒体内における個々の線に対して計算される透過距離は実際の場合の透過距離にほぼ等しいので、先に述べた他の方法に比べて、最も確からしい補正係数の値を求めることができる。しかし、計算プログラムの作成、特に既成のスペクトル解析プログラムにこの方法を組み込むことは必ずしも容易ではない。

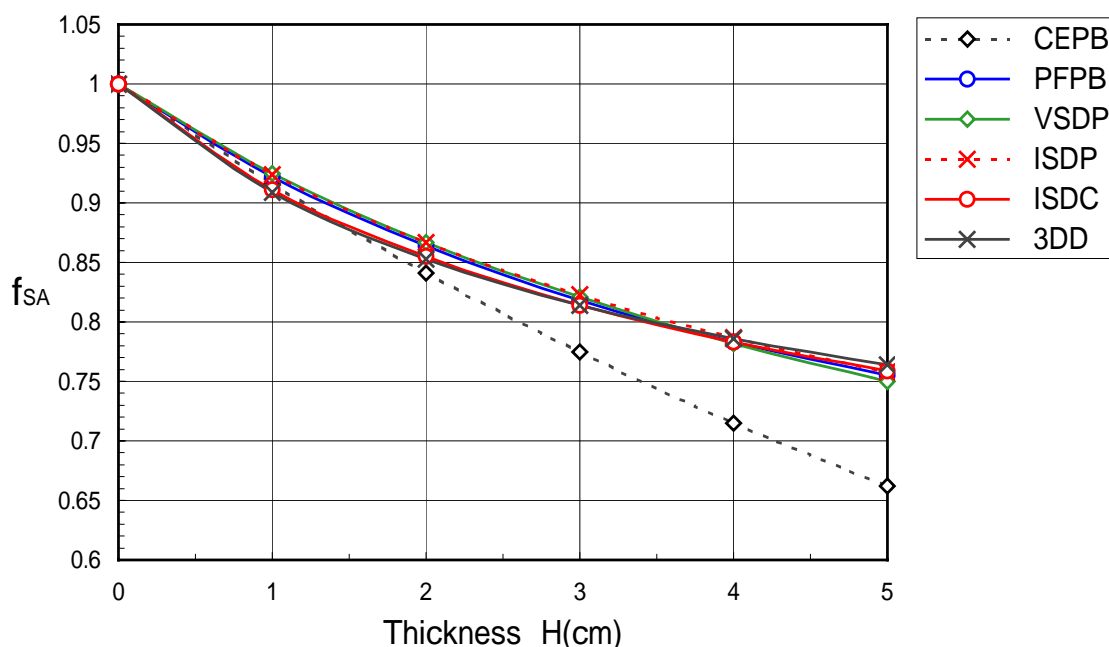


Fig. 3 Self-absorption correction factors by different methods for attenuation coefficient $\mu = 0.178 \text{ cm}^{-1}$ (Water: $E=88\text{keV}$)

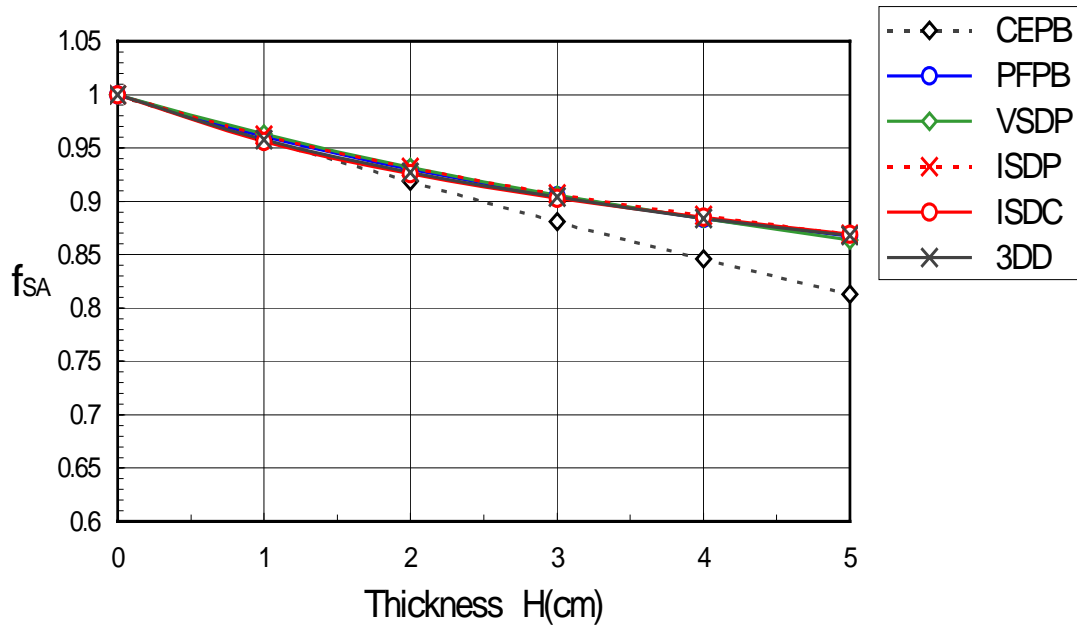


Fig. 4 Self-absorption correction factors by different methods for attenuation coefficient $\mu = 0.086 \text{ cm}^{-1}$ (Water : E=662keV)

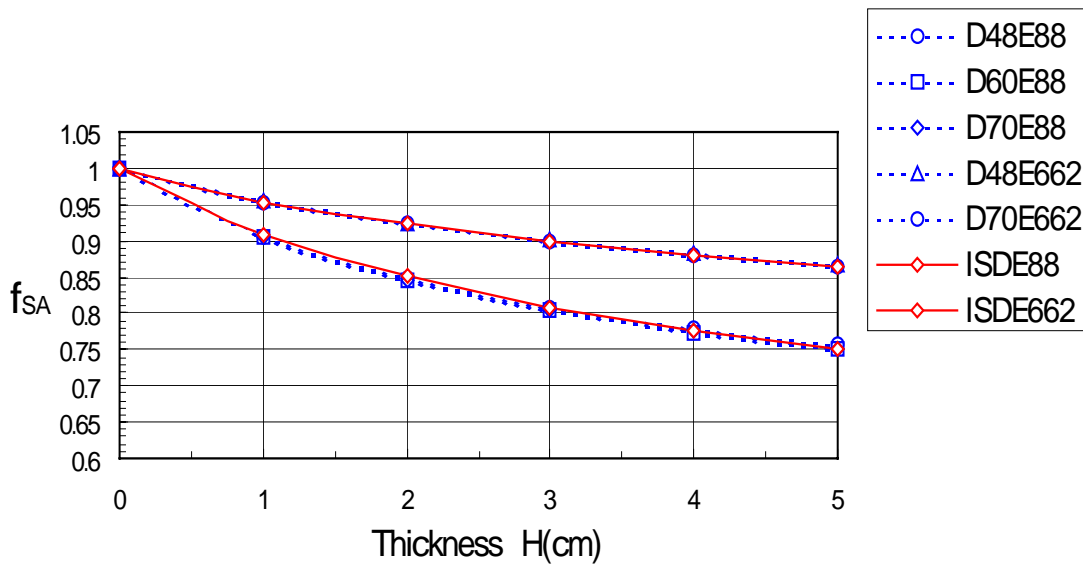


Fig. 5 Self-absorption correction factors dependent on sample diameter for 88keV and 662keV
Dotted : 3DD method Solid : ISDE method

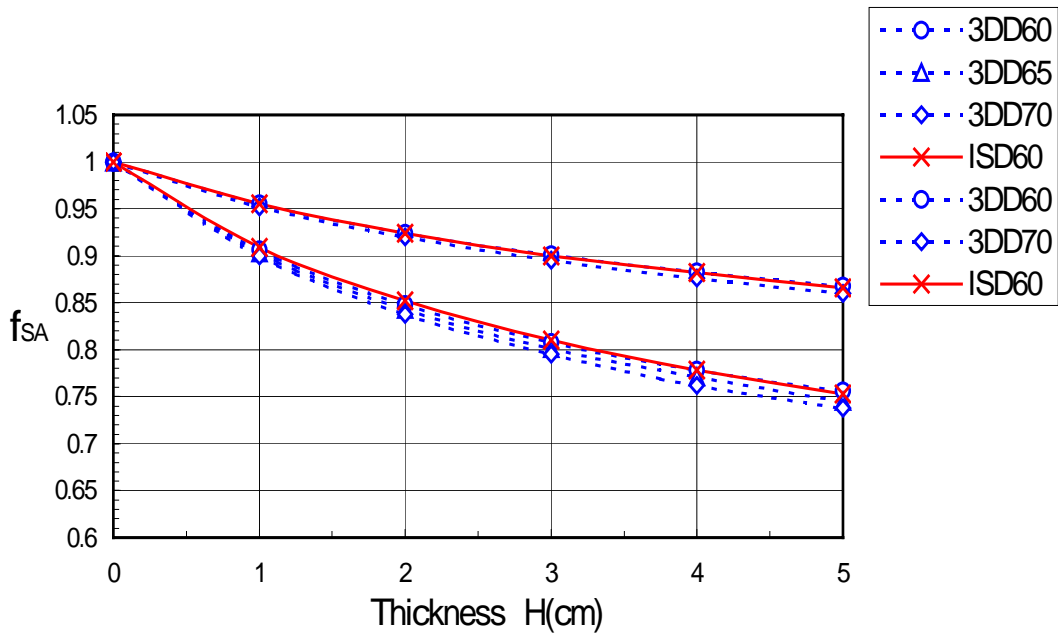


Fig. 6 Self-absorption correction factors dependent on Ge crystal diameter (60, 65, 70mm)
 Dotted : 3DD method Solid : ISDE method

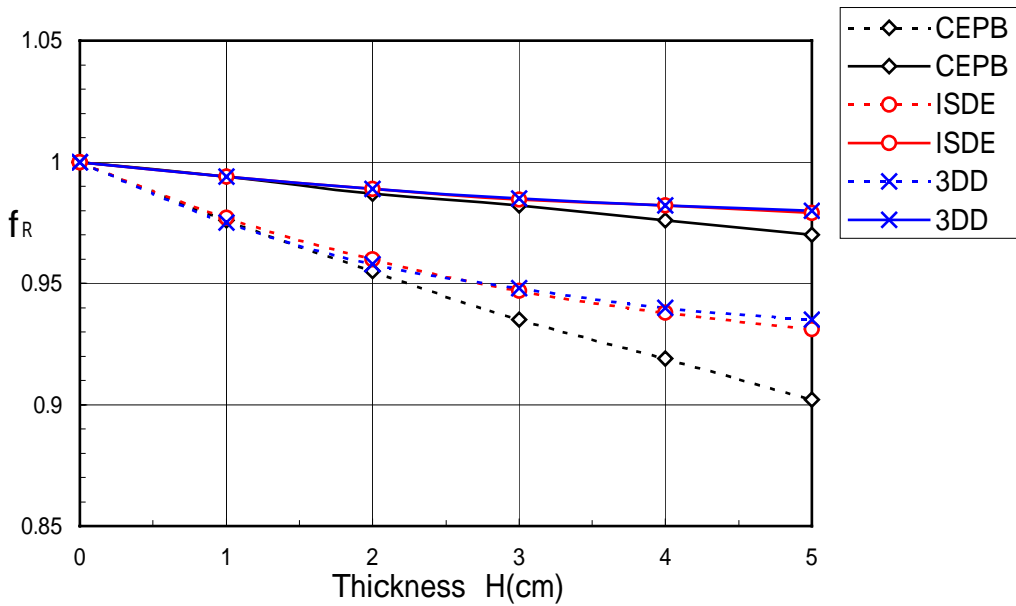


Fig . 7 Ratio of self-absorption correction factors for soil and water $f_R = f_{SA}(\text{soil}) / f_{SA}(\text{water})$
 Dotted : 88keV Solid : 662keV

4 考察および結論

5種類(CEPB, ISDE, VSDP, PFPB, 3DD)の自己吸収補正法について検討した結果、次のようなことが判った。なお、実測データを用いる方法(VSDP, PFPB)では、測定データおよびフィッティング関数の信頼性・精度による影響については検討されていない。

- a) 平行線束の仮定を用いる方法(ISDP, VSDP, PFPB)では、試料が比較的薄いときには自己吸収の補正が足りない傾向を示す。これは、線の媒体内での通過距離が実際の通過距離と大きく異なるためである。
- b) CEPB法を除く他の方法では、どれを用いても、通常的环境試料に対して問題となるほどの差は生じない。しかし、標準線源の測定に基づく補正法(VSDP, PFPB)では、平均的な試料の減弱係数とあまり変わらない減弱係数をもつ標準線源(例えば、 ^{137}Cs 、水溶液)がよい。
- c) 試料の直径が大きくなるほど自己吸収補正係数は小さくなるが、その影響はあまり大きくない。直径がおおよそ5~7cmの範囲では $\pm 1\%$ 未満であった。また、自己吸収補正係数はGe結晶の直径に依存し、直径がおおよそ6~7cmの範囲では差は最大で2%程度であった。
- d) 一般的环境試料(水、土壌、灰化物等)は主成分として原子番号の高い元素を含まないので、水溶液の標準線源を用いてピーク効率を求めるならば、媒体の違いによる自己吸収の差はそれほど大きくはない。Fig. 7は、水の試料を基準として、土壌(アルミナで模擬、 $\rho = 1.3\text{g}/\text{cm}^3$ とした)の自己吸収の割合を3種類の異なる方法(CEPB, ISDE および 3DD)で計算した結果である。

自己吸収補正法は、用いる仮定の確かさ、近似の精度、試料および検出器への適用範囲、測定に用いる標準線源(STD)の個数や入手の難易さ、計算プログラムの作成または導入の容易さなどで判断される。上に述べた6種類の方法について、それらをTable 1にまとめて示す。以上のことを総合的に判断して CEPB 法以外の方法に優劣の大きな差はないが、どれか一つの方法を選ぶとすると次の理由によって平均通過距離を用いるISDC法が推奨できる。1) 3DD 法による結果を基準にして、1~5cmの厚さにわたって平均的に偏差が小さい。2) 標準線源による実測データを必要としないので、容易に適用できる。3) 計算プログラムの作成が簡単であり、また、既存の線スペクトル解析ソフトに組み込みやすい。

Table 1 各種補正法のまとめ

方法	確かさ	精度	範囲	容易さ	STD 数	その他
A		*	*	×	10~20	標準線源の入手に難
CEPB	×	×	×		不要	2cm 以上で誤差が大
ISDE					不要	平行線束、平均通過距離
VSDP					~5	実測データの最小二乗法計算
PFPB					~5	同上
3DD				×	不要	プログラム作成に難

仮定の確かさ、近似の精度 高、 中高、 中、 中低、 ×低

適用の範囲、容易さ 大、 中大、 中、 中小、 ×小

* 使用する標準線源の種類、個数、放射能検定値の確かさ、等に依存

参考文献

- 1) E. Storm and H. Israel : Photon cross sections from 1keV to 100MeV for elements Z=1 to 100,
Nuclear Data Tables, 7(6), 1970
- 2) ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー ; 科学技術庁制定(平成4年度)
- 3) 野口正安 : 光子相互作用断面積の近似式と質量減衰係数 , Radioisotopes, Vol. 36, No.2, 49(1987),
- 4) 野口正安 : 線スペクトロメトリー 日刊工業新聞社、昭和55年
- 5) M. Noguchi and K. Sato : Calculated peak efficiency of Ge detector for volume source, Radioisotopes, Vol. 48, No. 10, 617-625(1999)
- 6) B.Peterman : Monte-Carlo calculation of the self-absorption of gamma rays in a disk shaped source, Nucl. Instr. Methods, 101, 611(1972)
- 7) H. Gotoh : Calculation of the self-absorption of gamma-rays in a disc shaped source, Nucl. Instr. Methods, 107, 199(1972)
- 8) R. Rieppo : Monte Carlo calculation of the self-absorption of γ - rays in a volume shaped source connecting a face-type and well-type NaI-detector, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 27, 605(1976)
- 9) L. Wielopolsky : The Monte Carlo calculation of the average solid angle subtended by a right circular cylinder from distributed sources, Nucl. Instr. Methods, 143, 577(1977)
- 10) A. Cesana and M. Terrani : Gamma-ray activity determination in large volume samples with a Ge-Li detector, Anal. Chem., 49, 1156(1977)
- 11) R. Rieppo : Absolute photopeak efficiency values for planar Ge-detectors in the γ -ray energy region 30-600keV with self-absorption in the source, Nucl. Instr. Methods, 179, No.1, 155-158(1981)
- 12) K. Debertain and B. Grosswendt : Efficiency calculation of semiconductor detectors by primary standard sources and Monte Carlo calculations, Nucl. Instr. Methods Phys. Res., 203, No.1/3, 343-352(1982)
- 13) T. Nakamura and T. Suzuki : Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement, Nucl. Instr. Methods Phys. Res., 205, No.1/2, 211-218(1983)
- 14) CANBERRA Technical information, for example, Model ISOXSW ISOCS calibration software