675. 内部封入型 β 線用電離箱の校正定数の計算

茅野 政道*, 池辺 幸正*, 飯田 孝夫*, 湊 進**

(1978年 5月9日 受理)

Calculation of Calibration Constants of Ionization Chambers for Gaseous β -Emitting Nuclides

By Masamichi CHINO, Yukimasa IKEBE,
Takao IIDA and Susumu MINATO

In determining the concentration of gaseous β -emitters in air with an ionization chamber, the ratio of the energy lost in the chamber as an ionization current to the initial energy of the β -particles must be known. This ratio is called ionization efficiency in this paper. This paper presents the calculation of ionization efficiency by the Monte Carlo method for two types of ionization chamber, parallel plate chamber and cylindrical chamber, filled with air and gaseous β -emitters such as ^{85}Kr , ^{41}Ar , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{13}N and ^{15}O . The results of the calculations for the parallel plate chamber agreed well with those obtained by experiments. The results for the cylindrical one agreed with those by other workers.

KEYWORDS: ionization chambers, ionization efficiency, Monte Carlo method, beta particles, computer calculation, calibration, accuracy, krypton 85, argon 41, xenon 133, iodine 131, nitrogen 13, oxygen 15

I. 緒 言

原子力施設から大気中に放出される放射性ガスの濃度測定的基本的方法の一つとして、電離箱が用いられている。 ^{131}I , ^{85}Kr , ^{41}Ar などの β 放射体を含む空気を電離箱に封入して測定した電離電流値から、これらの β 放射体濃度を知る場合、次のような問題点がある。電離箱内で発生した β 線は集電領域内で電離を行い、一部は壁に到達して壁内で散乱を繰り返して電離箱内にもどるか壁内に吸収される。このとき壁内に吸収されたエネルギーは測定電流値には寄与しないので、測定電流値は β 線の発生時にもつエネルギーに対応する電流値よりも小さくなる。したがって、電離箱を用いて放射性ガス濃度を測定する場合、濃度と電流値の対応を知るためにはこの電流値減少分の補正を行う必要があり、その補正值である電離効率を求めなくてはならない。ここでいう電離効率とは、 β 線が集電領域内でイオン対生成のために消費するエネルギーの β 線発

生時のエネルギーに対する割合をいい、この値は β 線のエネルギー、電離箱の体積、形状等により異なる。

電離効率に関する研究としては、山下らによる種々の球型電離箱の電離効率の理論計算⁽¹⁾、加藤らによる1.5 l ($\phi=114$ mm, $h=150$ mm)ステンレス鋼壁の円筒型電離箱を対象とした点線源と ^{41}Ar による実験⁽²⁾、岩田らによる同型の円筒型電離箱での ^{85}Kr を使用した実験⁽³⁾がある。しかしながら、他の β 線放出ガスおよび他の体積での電離効率については報告されていない。そこで本研究では、種々の β 線放出ガスについてモンテカルロ法により電離効率を計算できるようなプログラムの作成を目的とした。以下に、無限平行平板型電離箱および ^{133}Xe , ^{131}I , ^{85}Kr , ^{41}Ar , ^{13}N , ^{15}O を測定する場合の1.5 l円筒型電離箱の電離効率を示す。 ^{85}Kr ,

* 名古屋大学工学部原子核工学教室 (Dept. of Nucl. Eng., Faculty of Eng., Nagoya Univ.)

** 名古屋工業技術試験所 (Government Ind. Res. Inst., Nagoya)

^{41}Ar の計算結果については文献(2), (3)の実験値と比較する。

II. 計算法

放射性ガス濃度を電離箱で測定する場合、濃度と電流値の対応は次式で表わされる。

$$I = 3.7 \times 10^{10} N \cdot V \times 1.602 \times 10^{-19} \bar{E}_\beta \cdot \varepsilon / W \quad (1)$$

ここで、 I : 測定電流値 (A)

N : 放射性ガス濃度 (Ci/cm^3)

V : 電離箱容積 (cm^3)

$\bar{E}_\beta$: β 線の平均エネルギー⁽⁴⁾⁽⁵⁾ (MeV)

W : 空気の W 値 (MeV)

ε : 電離効率

β 線が電離箱内で毎秒 k 個発生し、それぞれが E_j だけエネルギーを集電領域で失うとすると電離効率 ε は

$$\varepsilon = \frac{\sum_{j=1}^k E_j / k \cdot \bar{E}_\beta}{\quad} \quad (2)$$

で与えられる。

β 線の輸送現象に含まれる諸因子、諸条件を考慮して解析的に効率を計算することは非常に困難なので、ここでは現象を確率的なモデルに置き換えて大型計算機*を用いてモンテカルロ法で行なった。Fig. 1に円筒型電離箱の計算モデルを示す。

x: β -emitting nuclides
 ~: β -rays
 E_i : final energy of the i th section
 AL_i : i th section length

Fig. 1 Model for calculating ionization efficiency for cylindrical chamber

最初に簡単のため β 線の代わりに単色電子線を考える。電子線のエネルギーを

$$E_i/E_{i-1} = 2^{-0.0695} \quad (i=1, 2, \dots) \quad (3)$$

により発生初期値 E_0 から E_{150} 程度まで分割し、その E_i を用いて飛跡も

$$AL_i = (dE/dx)_{\text{air}}^{-1} \cdot (E_{i-1} - E_i) \quad (4)$$

$$WL_i = (dE/dx)_{\text{wall}}^{-1} \cdot (E_{i-1} - E_i) \quad (5)$$

の式により、空気を通る場合 AL_i と壁を通る場合 WL_i の2種について分割しておく。ここで、 dE/dx にはBethe⁽⁶⁾の式を用い、エネルギーには E_i と E_{i-1} の平均値を代入した。次に、線源は電離箱内に均等に分布していると考えて、乱数を用いて線源の位置と電子線の放出方向を決定する。例えば、円筒型電離箱内の線源の位置 (X, Y, Z) は次のように与える。

$$X = a(2R-1), Y = a(2R-1), Z = hR \quad (6)$$

ここで、 a : 円筒の半径

R : $0 \sim 1$ の一様乱数、 h : 円筒の高さ

発生させた (X, Y, Z) のうち、 $X^2 + Y^2 \leq a^2$ をみたす組を線源位置として採用する。発生させた電子線は以下の仮定のもとに移動させる。エネルギー E_0 で放出された β 線は AL_1 だけ直進し、その間連続的にエネルギーを失いエネルギー E_1 になる。 AL_1 の終点で散乱し、この散乱角 θ_1 はMolière⁽⁷⁾の多重散乱公式により得た。散乱角 θ_1 で散乱した電子線はエネルギーを失いながら AL_2 だけ直進し、 AL_2 の終点でエネルギー E_2 となって再び散乱角 θ_2 で散乱する。このような電子線の移動⁽⁸⁾をエネルギーが E_0 から0.01 MeV以下になるまで行い、エネルギーが0.01 MeV以下になった時点で吸収されたとする。電子線が散乱されるごとに散乱点か電離箱の内か外か判定し、散乱点か内から外、または外から内へ変った時、壁を横切る際のエネルギーを求め、それにより電離箱内で失うエネルギーを計算する。例えば、 AL_i だけ直進した時に電子線が電離箱内から壁内に入った場合、 AL_i のうち壁までの距離を a とすると、壁を横切る際のエネルギー E_k は

$$E_k = E_{i-1} - (dE/dx)_{\text{air}} a \quad (7)$$

で表わされる。電子線がその移動の中で集電領域から壁に入射する時の境界でのエネルギーの合計を E_p 、壁から集電領域へもどる時の境界でのエネルギーの合計を E_r とすると、集電領域で失うエネルギー E_c は

$$E_c = E_0 - E_p + E_r \quad (8)$$

で表わされる。以上のような操作により電子線を2,000

* 名古屋大学大型計算機センター FACOM230-60 を利用。

回発生させて電離効率を求める。2,000個のうち j 番目の電子線が集電領域で消費するエネルギーを E_{0j} とすると、電離効率 ε は

$$\varepsilon = \sum_{j=1}^{2000} E_{0j} / 2,000 E_0 \quad (9)$$

で表わされる。

放射性ガスの核種のスペクトルを考慮する場合は、スペクトル⁽⁴⁾⁽⁹⁾⁻⁽¹²⁾をFig. 2のように35区間に分割して、各初期エネルギー E_{0j} について $N(E_{0j})$ 個だけ電子線を発生させる。 $N(E_{0j})$ は

$$N(E_{0j}) = (S_j / \sum_{j=1}^{35} S_j) \times 2,000 (\text{個}) \quad (10)$$

ここで、 S_j : エネルギー E_{0j} で代表された

矩形の面積

で表わされる。以下は単色電子線と同じ計算を行う。

Fig. 2 Designation of initial β -ray energy
 $E_{0j} = (E_{max}/35) (j-1/2), j=1 \sim 35$

計算の際、 β 線が初めて壁に入射した時点で計算を打ち切るか、壁からの後方散乱まで考慮するかということは、プログラムを組む上での複雑さや結果の正確さの点で大きな違いがある。前者を単層の計算、後者を二重層の計算と呼ぶ。

III. 計算結果

1. 無限平行平板型電離箱

Fig. 3に、無限平行平板型電離箱の電離効率を電極間距離の関数として示す。ここでは実際の β 線の代わりに0.1, 0.2, 0.3 MeVの電子線を発生させ、壁材としてはAlを仮定した。破線は単層の、実線は二重層の結果を表わしている。Fig. 3において電離効率曲線は

極板間距離の増加と共に上昇し、飛程の2倍程度の極板間距離で増加が緩やかになり極板間距離 ∞ で100%の点に向かう。エネルギーの小さい電子線ほどこの傾向が強く、電離効率も高い。

Two layers: Considered reflecting electrons from wall
 One layer: Not considered reflecting electrons from wall
 Fig. 3 Ionization efficiency of infinite parallel plate chamber as function of electrode distance

2. 円筒型電離箱

対象とする電離箱は内径114mm、高さ150mm、内容積1.5 lのガス封入型円筒型電離箱とする。二重層コードによる電離効率の計算結果をTable 1およびFig. 4に示す。Fig. 4において実際に ^{133}Xe , ^{131}I , ^{85}Kr , ^{41}Ar , ^{13}N , ^{15}O の β 線スペクトルを考慮した場合の電離効率を○印で示す。この図で横軸には β 線の平均エネルギーをとって表現してある。また、実線は0.1, 0.2, 0.3, 0.4 MeVの単色電子線を発生させた場合の結果を結んだものである。 β 線のスペクトルを考慮した場合の電離効率は、平均エネルギーが等しくてもスペクトルの形により値が異なるため、単色電子線を発生させて計算した場合の電離効率との厳密な比較は無意味であるが、図に見られる程度の一致が得られる。したがって、この結果は未計算の β 放射体核種についての電離効率の概略値を知るのに有用であろう。

Table 1 Ionization efficiency for different energy

Isotope	^{133}Xe	^{131}I	^{85}Kr	^{41}Ar	^{13}N	^{15}O
Average energy (MeV)	0.101	0.181	0.245	0.460	0.487	0.720
Ionization efficiency (%)	34	16	9.9	5.5	4.8	3.1

Fig. 4 Energy characteristic of ionization efficiency for cylindrical ionization chamber (size: 113 mm ϕ , 150 mm h)

IV. 比較と検討

計算結果を検討するため、無限平行平板型電離箱については実験と、円筒型電離箱については他の文献と比較した。

1. 無限平行平板型電離箱

実験に使用した電離箱の形状をFig. 5に示す。電離箱は集電極が直径780 mmのステンレス鋼製の平行平板型電離箱で、極板間距離が0から200 mmまで可変となっている。実験に先立ちプラトー曲線を求めたが、印加電圧が90 Vを超えると電離箱が不安定になるため90 V一定で測定した。電離箱内に放射性ガスを封入すると、ガスは電離箱内で均一に分布する。無限平行平板型電離箱では、軸方向の位置が同じならば横方向はどの位置に線源があっても、電離効率への寄与は同じと考えられるので、電離箱の中心線上に線源が

Fig. 5 Structure of parallel plate chamber used for experiment

一様に分布している時の電離効率を求めればよい。一様線状線源を点線源で近似するために、Fig. 5に示すように、電離箱の中心線を1 cm間隔に分割して、間隔の中心に点線源を置いて電離電流を測定した。線源には薄いマイラー膜に塗布した ^{60}Co を用い、マイラー膜を中心につけた細いナイロン糸を電離箱内に張り渡して支持した。放射能の定量はNaIシンチレーションカウンタで標準線源との比較により行なった。実際には、 ^{60}Co の β 線の飛程は実験に用いた電離箱の半径より長いので無限平行平板型の仮定は成り立たないが、電離箱半径より外へ飛び出した β 線による集電領域外での電離分を測定電流値に加えることにより、無限平行平板型の近似をした。

各座標点での電離電流値から電離箱の電離効率 ε は、

$$\varepsilon = \sum_{m=1}^n I_m / n \cdot I_0 \quad (11)$$

ここで、 I_m : m 番目の座標点で測定された電流値
(A)に後述の補正を加えた値

n : 座標点数

I_0 : β 線のエネルギーがすべて集電領域で失われると仮定した時の電離電流値

で表わされる。

電離電流値 I_0 は次式で与えられる。

$$I_0 = 1.60 \times 10^{-19} \bar{E}_\beta \times 3.7 \times 10^{10} \times C / W \quad (12)$$

ここで、 $\bar{E}_\beta$: β 線の平均エネルギー⁽⁴⁾ (MeV)

C : 線源の放射能 (Ci)

W : 空気の W 値 33.7×10^{-6} (MeV)

(11)式の I_m には以下の4項の補正を考慮している。

- (1) 測定電流値からバックグラウンド電流および ^{60}Co の γ 線による電流を除く: 線源を β 線不透過のカプセルに入れて同様の実験を行い、バックグラウンド電流と γ 線による電流分を見積った。
- (2) 振動容量電位計の抵抗の校正: 標準コンデンサを用いた校正により $10^{12} \Omega$ 表示の抵抗は $0.75 \times 10^{12} \Omega$ であった。
- (3) 線源を塗布したマイラー膜のエネルギー吸収による電流値減少分の補正: モンテカルロ計算により、マイラー膜がない時に比べて電流値が $\sim 2\%$ 減少する。
- (4) 無限平行平板型の近似のための補正: 電離箱の半径390 mmより外へ飛び出した β 線の集電領域外での電離分を測定電流値に加える必要がある。近似計算⁽¹³⁾より、本実験の電離箱では無限

平行平板型に比べて～2%電流値が減少する。

Fig. 6に、 ^{60}Co について無限平行平板型電離箱の電離効率の計算結果と実験結果との比較を示す。Fig. 6において、極板間20 cmでは印加電圧の不足で再結合が増加するため実験結果が低くでるが、15 cm以下では計算結果と実験結果がよく一致しているといえる。

Fig. 6 Comparison of experimental results with calculated results of parallel plate chamber used for experiment for ^{60}Co β -rays

2. 円筒型電離箱

スペクトルを考慮した二重層の計算結果と他の2文献⁽²⁾⁽³⁾との比較をTable 2およびFig. 7に示す。加藤らは、本計算の仮定と同じ電離箱を使用して点線源(^{35}S , ^{60}Co , ^{204}Tl , ^{32}P)を電離箱内に均一に配置することでガス状態の近似として実験を行なっている。さらに ^{41}Ar を用いて実験を行い、点線源による実験結果と比較している。また、岩田らは ^{85}Kr を用いて同型の電

Table 2 Comparison of ionization efficiency

^{85}Kr	Kato <i>et al.</i>	Iwata <i>et al.</i>	Authors
Average energy (MeV)	0.235	0.228	0.245
Ionization efficiency (%)	11	8.76	9.9
^{41}Ar			
Average energy (MeV)	0.461	—	0.460
Ionization efficiency (%)	5.2	—	5.5

Fig. 7 Comparison of present results with those obtained by other workers for cylindrical chamber (size: 113 mmφ, 150 mmh)

離箱による実験を行なって電離効率を求めている。Table 2およびFig. 7において、本計算値は他の文献値とよい一致を示している。低エネルギー領域の核種について加藤らの実験値と本計算値にズレが見られるが、これは加藤らがマイラー膜のエネルギー吸収を考慮しなかったためではないと思われる。Table 2では、各文献で用いた β 線の平均エネルギーを示してある。平均エネルギーを一定値に規格化して電離効率を比較する場合、規格化された電離効率の値を ε 、規格化に用いる平均エネルギーを $\bar{E}_\beta$ 、規格化前の電離効率と平均エネルギーをそれぞれ ε' , $\bar{E}_\beta'$ とすると、 ε は

$$\varepsilon = \varepsilon' (\bar{E}_\beta' / \bar{E}_\beta) \quad (13)$$

で表わされる。本報で用いた β 線の平均エネルギー⁽⁴⁾⁽⁵⁾で規格化した場合、 ^{85}Kr について加藤らの値が10.6%、岩田らの値が8.2%であった。

放射性ガスは、 β 線放出の際 γ 線も同時に放出されるものが多い。本計算コードでは γ 線の影響は考慮していないが、 γ 線の電離電流への影響は無視できる程度であると報告されている⁽⁶⁾。

V. 結 言

以上、 β 線放出ガス測定用電離箱の電離効率の計算結果について述べたが、本研究で作成したプログラムは電離効率の計算に妥当なものと思われる。このプログラムの作成により、必要なデータを与えれば、種々の β 線放出ガスについて任意の大きさの電離箱の電離効率を求めることができる。

—参考文献—

- (1) 山下幹雄, 他: 球形電離箱による放射性希ガスの測定, 原子力誌, 4(9), 588~593 (1962).
- (2) 加藤仁三, 他: 放射性ガス測定用電離箱のエネルギー特性, 応用物理, 32(6), 380~384 (1963).
- (3) 岩田幸生, 他: ^{85}Kr ガス測定用円筒型電離箱の校正, 保健物理, 8, 161~165 (1973).
- (4) MANTEL, J.: The beta ray spectrum, *Int. J. Appl. Radiat. Isotop.*, 23, 407~413 (1972).
- (5) MURTHY, M.S.S.: Shape and average energy of beta-particle spectra, *ibid.*, 22, 111~123 (1971).
- (6) BETHE, H.A.: "Handbuch der Physik", Vol. 24, 273 (1933), Springer.
- (7) MOLIÈRE, G.: *Z. Naturforsch.*, 3a, 78 (1948).
- (8) BERGER, M.J.: "Methods in Computational Physics", 135~165 (1963), I, Academic Press.
- (9) FANO, U.: "Tables for the Analysis of Beta Spectra", NBS Appl. Math. Ser. 13, (1952).
- (10) KONOPINSKI, E.J., ROSE, M.E.: "Alpha-, Beta-, and Gamma-ray Spectroscopy", (SIEGBAHN, K. Ed.), Vol. 2, Chap. 22, (1965), North-Holland Publ.
- (11) PAUL, H.: *Nucl. Data*, 2, 281 (1966).
- (12) BEHRENS, H., JÄNECKE, J.: "Numerical Table for Beta-decay and Electron Capture", Landolt-Börnstein, B 4, (1969).
- (13) CROSS, W.G.: Table of beta dose distributions, *AE CL-2793*, p.1~32 (1967).

◎既刊・専門委員会成果報告書◎ △は品切れ

1. 原子炉物理実験。(臨界実験専門委編)
A 5 判, 244 p. (1968. 8 月再版), コロナ社。
2. △「高速炉技術」研究専門委員会成果報告書。
(1968. 11. A 4 判, 3 分冊)
(1) 高速炉におけるドップラー係数の研究の現状
(2) 高速炉燃料のスウェリング研究の現状
(3) 高速炉用液体 Na 技術の基礎
3. △核燃料の臨界安全。
(「核燃料臨界安全性」研究専門委編)
B 5 判, 365 p. (1969. 4.), 原安協発行。
4. △「高速炉 Na 技術」特別専門委員会成果報告書。
A 4 判, 266 p. (1969. 7.)
5. △パルス炉調査報告。
(「パルス炉設計」研究専門委編)
A 4 判, 96 p. (1970. 3.)
6. △高速増殖炉技術の現状。
(高速炉パネル討論会講演・討論集)
B 5 判, 92 p. (1970. 11.)
7. △「放射線微視的效果」研究専門委員会報告書。
B 5 判, 151 p. (1971. 2.)
8. △繰返し型高速パルス炉総合調査報告。
(「パルス炉開発利用」研究専門委編)
A 4 判, 114 p. (1971. 3.)
9. △ナトリウムの流動伝熱に関する調査研究。
(「高速炉 Na 技術」特別専門委編)
A 4 判, 322 p. (1971. 7.)
10. 原子炉システムの最適化技術。
(「原子炉システム最適化技術」研究専門委編)
A 4 判, 104 p. (1972. 1.)
定価 2,000 円(会員 1,200 円)。(〒160 円)
11. △トリチウム: その性質と挙動。
(「トリチウム」研究専門委編)
A 4 判, 190 p. (1972. 10.)
定価 3,000 円(会員 2,000 円)。
12. △高速炉用燃料集合体の流動伝熱に関する調査研究。
(「高速炉 Na 技術」特別専門委編)
A 4 判, 436 p. (1972. 6.)
13. △相変化を伴うナトリウムの伝熱流動。
(「高速炉 Na 技術」特別専門委編)
A 4 判, 208 p. (1973. 3.)
14. △ナトリウム冷却高速増殖炉。
(「高速増殖炉」研究専門委編)
A 4 判, 106 p. (1974. 2.)
15. 高速増殖炉技術の最近の進歩。
(「高速増殖炉」研究専門委編)
A 4 判, 290 p. (1975. 6.)
定価 4,000 円(会員 3,000 円)。(〒280 円)
16. △環境被曝線量評価。
(「環境被曝線量評価」研究専門委編)
B 5 判, 276 p. (1975. 9.)
定価 4,000 円(会員 3,000 円)。(〒200 円)
17. 炉中性子研究の現状と今後の課題。
(「炉中性子利用」研究専門委編)
B 5 判, 250 p. (1976. 3.)
定価 3,000 円(会員 2,000 円)。(〒250 円)
18. 核融合研究の進歩と動力炉開発への展望。
(「核融合炉調査」研究専門委編)
B 5 判, 575 p. (1976. 8.)
定価 8,000 円(会員 6,000 円)。(〒300 円)
19. △ホットラボの設計と管理。
(「ホットラボ」研究専門委編)
B 5 判, 122 p. (1976. 9.)
定価 2,500 円(会員 1,500 円)。(〒210 円)
20. 遮蔽設計基準等に関する現状調査報告。
(「遮蔽工学」研究専門委(遮蔽工学 W・G)編)
B 5 判, 102 p. (1977. 6.)
定価 3,000 円(会員 2,000 円)。(〒210 円)
21. 溶融塩増殖炉。
(「溶融塩増殖炉」研究専門委編)
B 5 判, 308 p. (1977. 6.)
定価 3,000 円(会員 2,000 円)。(〒250 円)

◎ご希望の方は学会事務局へ。