716. TLD による環境中の人工・自然放射線の弁別評価法

中 島 敏 行*

(1980年 7月4日 受 理)

(1980年 9月25日 再受理)

Distinguishing Method of Natural and Artificial Doses in Environmental Radiation by Thermoluminescence Dosimeters

By Toshiyuki NAKAJIMA

Distinguishing method of natural and artificial dose in the environmental radiation has been developed with using thermoluminescence dosimeters. A principle of new thermoluminescence dosimeter is to use a difference in the energy dependence of TL response for each phosphor. One of TL properties that a sensitivity ratio between two different kinds of TL phosphor is dependent on radiation energy is used. Error on the estimation of effective energy in environmental radiation is dependent on the value of estimated energy, accuracy of TL measurement, and a ratio between the effective atomic number of the two TL phosphor. Effective energy of natural background radiation in NIRS is about 710^{+310}_{-240} keV of γ -ray effective energy and this effective energy was distinguished from the energy of ^{131}I γ -rays.

KEYWORDS: thermoluminescent dosimeters, phosphors, environmental radiation, measuring methods, natural radioactivity, accuracy, errors, thermoluminescence, radiation doses, energy dependence, sensitivity

1. はじめに

1979年米国スリーマイル島(TMI)の原子力発電所に事故があり、この折の線量推定的手段として、施設周辺に設置されていた $\text{CaF}_2(\text{Dy})$ の熱発光線量計(TLD)が利用されたと報告されている⁽¹⁾。これはTLDの有する小型、軽量、高感度、広線量計測域、安定性の良さ、簡便さ等の特長に負うところ大である。このように近年、TLDは環境放射線モニタのうちの積分線量評価型のモニタの一つとして利用されている。この分野に使用されているTLDの発光体は感度面の必要性から高感度発光体が一般的である。このような高感度発光体の実効原子番号は人体軟組織や空気のそれより大きいため、放射線のエネルギーによって感度が大きく変る性質が発光体にある。既知のエネルギーの放射線が入射する場合には線量評価は容易であるが、未知の場合には正確な評価は困難である。このため、このよう

なTLD発光体は適当なフィルタを付けることにより、感度のエネルギー依存性を広いエネルギー域にわたってなくすよう考案されてきた。また、このようなTLDが環境モニタに利用されてきた^{(2)~(5)}。したがって、環境モニタのTLDが一定期間内に受けた線量による熱発光光量が平常値と大きく異なる場合、光量から換算した線量の変動が検出できても、その原因を自ら探ることはできなかった。もし、TLDにその原因を探る方法を持たせることができるなら、TLDは一層有用なものとなるであろう。

GorbicsらはTLD発光体である LiF と $\text{CaF}(\text{Mn})$ との感度のエネルギー依存性がおのおのによって異なり、同時に、この違いが γ 線の実効エネルギー推定に利用できるのではないかと報告している⁽⁶⁾。前述のような環境モニタTLDの被曝線量変動の原因を推測する

* 放射線医学総合研究所 物理研究部(Div. of Phys., Nat. Inst. of Radiological Sci.)

簡便法の一つは放射線の実効エネルギーを求めることである。したがって、自然放射線の実効エネルギーと線量とを事前に求めておくなら、異常発光の原因となった放射線がこれらとはどれほど異なるかを知ることにより、その原因を推定することが可能である。

本研究では、環境における自然放射線と人工放射線との線量を弁別評価する TLD の方法について検討してきた。これらの結果について報告する。

II. 原 理

TLD による自然放射線と人工放射線との弁別測定の方法について、放射線と物質の熱発光光量との関係から検討する。

光検出器によって検出される発光体の熱発光光量またはグローピークの高さ TL は、次の関係で与えられる。

$$TL = f_{BG}(\bar{E})D_{BG} + f(\bar{E}_i)D \quad (1)$$

ここで、 D_{BG} , D : 宇宙線を含む自然因子による放射線と人工放射線のおのおのの照射線量

$f_{BG}(\bar{E})$, $f(\bar{E}_i)$: おのおの放射線に対する単位線量当りの熱発光光量で、放射線のエネルギーによって異なる値

いま、実効原子番号の異なる n 種の発光体に単一エネルギー E の人工放射線を同時に一定時間照射した場合、 i 番目の発光体の熱発光光量は次のようになる。

$$TL_i - (f_{BG}(\bar{E}))_i D_{BG} = f_i(E)D \quad (2)$$

2 種の発光体の発光量の比 f_1/f_2 は、発光体の熱発光に関与する放射線のエネルギー E によって決まる値となり、線量に無関係な定数である。

環境放射線が種々の線種とエネルギーより成る場合もまた、 f_1/f_2 の値はこれらの放射線の実効的なエネルギーによって定まる値である。ここでは、この f_1/f_2 より定まる実効的なエネルギーを γ 線実効エネルギーとし、単色 γ 線および X 線の実効エネルギーを γ 線エネルギーとして区別する。したがって、 γ 線エネルギーと発光体間の f_1/f_2 の関係を事前に求めておくなら、環境放射線の実効エネルギーを推定、評価することが

できよう。したがって、事前に長期にわたりモニタリング地点における自然放射線の実効エネルギーと発光量 $f_{BG}(\bar{E})D$ とを求めておくなら、この種の TLD モニタから異常発光が測定、観測された場合、その異常発光の原因放射線の実効エネルギーを f_1/f_2 から推定することができる。これによって、異常発光の原因が人工または自然放射線の線量変動によるかを判定する一助になるであろう。

一方、なんらかの手段によって、放射線場内の γ 線のエネルギー N 種を弁別測定できたとき、各発光体の発光量は

$$TL_i - (f_{BG}(\bar{E}))_i D_{BG} = \sum_{j=1}^N f_{ij}(E_j)D_j \quad (3)$$

となる。発光体の種類数 n より放射線のエネルギーピーク数 N の方が少なく、発光体感度のエネルギー依存性が得られているなら、各放射線ごとの線量が n 元 1 次の連立方程式で求められる。

実効原子番号の異なる 2 種以上の発光体をモニタとして同時に使用することにより、TLD に対する放射線場の実効エネルギーが推定でき、これから人工放射線と自然放射線との弁別が可能であることを述べた。また同時に、この方法はモニタの感度のエネルギー依存性の相違を利用するという観点から、同種発光体でも、フィルタ付きとフィルタなしモニタを同時使用するなら、異種発光体を使う場合と同様、実効エネルギーの推定が可能であるといえる。

III. 実 験

TLD による放射線の実効エネルギーを推定するには、TLD 発光体の実効原子番号が異なるか、同種 TLD 発光体では、フィルタなしとフィルタ付きとでエネルギーによる感度の違いを作り出す必要がある。同時に、これらの TLD 発光体が環境放射線計測に対し、感度的にまた、その他の特性に対して十分対応できることが必要である。Table 1 は市販されている TLD 発光体の実効原子番号と検出可能な最低線量である。この最低線量の数値は各社のカタログから転載した。

現在、市販されている発光体の実効原子番号は 7.1 から 15.2 程度である。人体軟組織の実効原子番号に近

Table 1 Minimum measurable dose, quoted from catalogues, and effective atomic number of each TLD phosphor

Phosphor	BeO(Na)	Li ₂ B ₄ O ₇ (Mn)	LiF(Mg, Cu, P)	Mg ₂ SiO ₄ (Tb)	CaSO ₄ (Tm)	CdSO ₄
Effective atomic number	7.1	7.3	8.2	11.1	15.2	47.3
Minimum dose (mR)	20	10	0.5	0.5	0.1	?

い発光体では、NTL-500 LiFを除けば⁽⁷⁾、環境モニタとして利用するには十分な感度を有するものはない。したがって、発光体選択の条件のうち実効原子番号の観点からすると、LiF(Mg, Cu, P), $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$, $\text{CaF}_2(\text{Dy})$ と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ の硫酸カルシウム系発光体に限定される。

本研究では、根本特殊化学製LiF(Mg, Cu, P)のNTL-500 G, 化成オプトニクス製 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ のMSO-Lと松下電器製の $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ のUD-110 Sを使用した。これらの発光体は長さ約15 mm, 外径2 mmの⁴⁰Kを含まないといわれるガラス管に封入し、それをTLD素子として実験に使用した。

TLDをモニタリング地点内に置く前に、TLD素子を超音波洗浄器で十分に洗浄し、乾燥させた後、Al箔で包装して熱処理($\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$: 500°C, 15 min, $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$: 450°C, 15 min, LiF(Mg, Cu, P): 240°C, 5 min)した後、環境モニタリング地点に設置中の光照射、塵等による汚染の影響を受けないように、直ちに各種TLD素子を5本ずつ4 cm × 4 cmのAl箔で薄暗い所にて包装し、モニタリング用TLD試料とした。

2種以上にわたるTLD相互の感度比のエネルギー依存性を求めるために、3種のTLD素子を包装したモニタリング用TLD試料を⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹³¹Iの γ 線およびエネルギーが118, 78, 65, 58, 38 keVのX線で約1 R照射した。これらの試料から得たTLD感度比とエネルギーとの関係曲線を環境放射線の実効エネルギーの校正曲線とした。一方、これらのTLD素子と同一バッチから成るモニタリング用TLD試料を木造家屋の柱、コンクリート建物のコンクリート壁および当研究所内の環境モニタリング地点に1ヵ月間放置し、その位置の自然放射線のバックグラウンド(BG)を計測し、その線量と実効エネルギーとを発光量とTLD間の発光量比から推定、評価した。

このTLDのモニタリング法の適用できる人工放射線の線量限界を得るために、人工放射線としてエネルギーの主ピークが364 keVの¹³¹Iの線源を用いた。事前に、30日間コンクリート壁に付着させておいたモニタリング用TLD試料の中から、BGの基準試料と¹³¹Iの γ 線照射用試料とに分け、後者に¹³¹Iの γ 線を照射した。照射線量は照射時間を一定にし、放射線の強度と線源と試料間の距離とから求めた。線量はBGの約45%から36倍まで照射した。

各種TLD素子のうち $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ はKyokko-TLD 1200リーダーで、LiF(Mg, Cu, P)はAloka TLDリーダーシステムで被曝試料を計測した。

V. 実験結果と検討

TLDを環境モニタとして使用する場合、気温変動に対し感度の一様性が望まれる。

Fig. 1は、照射時の温度変動に対して本実験に使用したTLD素子の感度の温度依存性を示す。照射線源は¹³⁷Csで、照射時間は9 min, 約2 R照射して得た関係である。

Fig. 1に示すように、照射時の温度が60°C前後まで、実験に使用した3種のTLD素子の感度は照射時の温度にほとんど影響されることがなく、特に、 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ とは約100°Cまではほとんど影響がないことが得られた。これらの結果はこれら3種のTLD素子が環境モニタ用TLDとして利用できる可能性を示している。

次に、これら3種のTLD素子の感度の γ 線エネルギー依存性を求めた。

Fig. 2は、X線および γ 線のエネルギーに対する3種のTLD素子のうち2種のTLD素子間の感度比であり、素子は同時照射したものである。縦軸と曲線Aは $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ との感度比を、曲線BはLiF(Mg, Cu, P)と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ との感度比の値である。左側の縦軸と曲線CはLiF(Mg, Cu, P)と $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ との感度比を示す。曲線A上のa, b両点はモニタリング用TLD試料の $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ との比で

Fig. 1 Changes in relative integrated thermoluminescence intensity of LiF(Mg, Cu, P), $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ and $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ thermoluminescence phosphors as function of irradiation temperature

表わした値であり、おのおの木造家屋内とコンクリート建物内のコンクリート壁に置いて照射された試料のBGの実効エネルギーである。

Curve A: Relative sensitivity ratio between $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ and $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ TLDs

Curve B: Relative sensitivity ratio between $\text{LiF}(\text{Mg, Cu, P})$ and $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ TLDs

Curve C: Relative sensitivity ratio between $\text{LiF}(\text{Mg, Cu, P})$ and $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ TLDs

Points of a and b are a value of ratio $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ and $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ TL intensities upon a concrete wall and a wooden house, respectively.

Fig. 2 Energy dependence of thermoluminescence response ratio among some TLD phosphors

Fig. 2が示すように、木造家屋、コンクリート壁のBGの実効エネルギーと、 ^{131}I から得られた比の値とは明らかに異なっている。したがって、前述のように事前に、その地点におけるBGの実効エネルギーと線量とを求めておくなら、異常TL発光を観測した場合、そのモニタ用TLD試料の感度比から、異常発光の原因が人工的なものか、季節的なBGの変動によるものかを推定する資料を提供してくれるであろう。しかも、3種のTLDを使用するなら、2種の場合と異なり、比の種類は3種になり、3倍の情報量が得られる。このことは2種より3種のTLDをモニタ用TLDとして使用する方が実効エネルギー、線量の推定の信頼性を良くすることができることを示している。

以上のことは、この方法により実効エネルギーを推定しうる可能性を示すものである。この方法によって放医研構内のBGと木造家屋、コンクリート壁からのBGの実効エネルギーを推定した。

Table 2は、放医研構内のモニタリング地点等のBGの実効エネルギーと、これらの値を求める際の熱発光光量計測上の測定誤差とを示す。

モニタリング地点におけるBGの7線相互の実効エネルギーは660~740 keVで、平均で713 keV付近になった。一方、コンクリート壁のBG、木造家屋のBGの実効エネルギーの推定値はこれらの値より幾分大きな値を示している。これらは ^{40}K の濃度の違いによるものと考えられる。また、木造家屋のBGの線量はコンクリート壁のそれより少なく約63%程度であった。

Table 2 Error of TL measurements and effective energy at monitoring points with $\text{Mg}_2\text{SiO}_4(\text{Tb})$ and $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ TLDs

Monitoring point	A	B	C	Concrete building	Wooden house
Estimated effective energy (keV)	660^{+490}_{-210}	740^{+480}_{-240}	740^{+560}_{-260}	790^{+620}_{-260}	880^{+440}_{-260}
TL-error (%)	5.3	5.1	6.3	5.1	4.1

Table 2に示すように、これらの比を求めるためのTL測定の実効エネルギーは標準偏差で4~6%程度であった。しかし、実効エネルギー推定評価の誤差は平均値を中心に高エネルギー側に50~78%、低エネルギー側に30~35%と大きな、しかも異なった幅を示している。これは感度比のエネルギー依存性が、Fig. 2にあるように500 keV以上のエネルギー域で感度比の変化率が小さいためである。したがって、高エネルギー側に推定実効エネルギーが移行するに従って推定誤差エネルギー範囲は拡大した。

次に、推定実効エネルギーの誤差要因について検討

する。Fig. 2から推定できるように、エネルギーの変化に対し、発光体間の感度比の変化率が大きなエネルギー域では、同一のTL測定精度であっても推定したエネルギーの誤差範囲は狭まる。また、2発光体間の実効原子番号の比が1よりどの程度離れるかは、感度比のエネルギー依存性の度合いに大きく作用する。

Table 3は、実効エネルギー推定時の推定誤差域の幅に与えるTL測定精度と2発光体間の原子番号比の影響および推定エネルギー値との関係を示す。

Table 2と3が示すように、推定する実効エネルギー値における感度比の変化率が大きい、例えば、160

Table 3 Correlation among errors in evaluation of effective energy in TL measurements and effective atomic number ratio of two TLD phosphors (values in parentheses are ratio between effective atomic number of TLD phosphors)

Energy (keV)	5% error			3% error
	160	365	500	160
LiF/CaSO ₄ (0.54)	+14 keV -12	+75 keV -60	+150 keV -110	+8 keV -7
Mg ₂ SiO ₄ /CaSO ₄ (0.73)	+22 -17	+95 -70	+220 -125	+13 -10

keV 付近では推定誤差域は10%から15%であるが、感度比の変化率が小さくなるに従って推定誤差域は拡大する。また、同じ2発光体素子を用いても測定精度を5%から3%に改善することにより、誤差域の幅は縮小する。更に、2発光体間の実効原子番号比が Mg₂SiO₄(Tb)/CaSO₄(Tm) の0.73 から LiF/CaSO₄(Tm) の0.54 になった場合、TL の測定精度が同じであっても推定誤差域の幅は縮小する。

これらの結果は、TLD素子間の感度のバラツキを少なくし、熱発光光量の測定精度を向上させ、2発光体間の実効原子番号比を1より大きく離れた発光体同士を利用する場合、推定実効エネルギーの精度を向上させうることを示している。

以上の実験結果は、この方法によって環境放射線の中の人工放射線と自然放射線との線量を弁別した値として評価しうることを示すものと考えられる。

次に、自然放射線と人工放射線との弁別測定において、推定、評価が可能な下限の人工放射線の線量について検討した。

TMI 事故時に放出された放射性気体は Kr, Xe, I 等であり、そのうち約82%が¹³³Xeであるが⁽⁹⁾、人工放射線として主エネルギーが364 keV の¹³¹I の γ 線線源を使用した。

基準となる BG はコンクリート壁に30日間展着させておいたモニタリング用 TLD 試料からの発光量と、これらの発光量比から推定した実効エネルギーとした。BG を基準照射した TLD 試料にさらに¹³¹I の γ 線を照射したが、その線量は BG 線量の0.45から約36倍とした。¹³¹I の γ 線照射した TLD 試料について、(2)式の関係から、 γ 線照射による熱発光光量と発光体間の感度比を求めた。これらの感度比について、BG 線量の36倍の γ 線照射した試料の感度比との相対

感度比を求めた。

Table 4 は、このようにして得た¹³¹I の γ 線照射線量の変化に対する Mg₂SiO₄(Tb) と CaSO₄(Tm) の相対感度比の値を示す。

Table 4 Relative TL sensitivity ratio between MSO/CSO and (MSO/CSO)_{36BG}

Exposure	(MSO/CSO)/(MSO/CSO) _{36BG}
0.45 BG	0.96±0.044
0.54 BG	0.96±0.044
0.85 BG	1.03±0.047
1.50 BG	0.96±0.047
3.40 BG	1.04±0.052
6.0 BG	0.97±0.045
13.6 BG	1.04±0.045
35.6 BG	1.00

MSO/CSO: Sensitivity ratio between Mg₂SiO₄(Tb)- and CaSO₄(Tm)-TLDs simultaneously irradiated with several times of back ground radiation dose from ¹³¹I γ -ray source.

(MSO/CSO)_{36BG}: That with about 36 times of back ground radiation dose from ¹³¹I γ -ray source

Table 4 が示すように、BG線量の約45%程度の¹³¹I の γ 線照射した場合でも、発光量増加が¹³¹I の γ 線によることが示された。この結果は、事前にモニタリング地点の BG 線量と発光量との感度比(実効エネルギー)を求めておいたら、BG の約40%増し以上の異常熱発光の原因を推測する上で、人工または自然放射線に変動の主因を求め、判別することが可能であることを示す。

この方法は、発光体の実効原子番号の相違によるエネルギー依存性の違いを利用したものである。したがって、同一発光体であったとしても、一方にフィルタをかけ、他方にフィルタをかけないで、異なった感度のエネルギー依存性を作り出すことによっても可能である。しかし、フィルタ付き TLD の感度のエネルギー依存性の個体差と価格を配慮するとき、高感度異種 TLD 素子の組合せの方が精度、価格において有利なものと考えられる。

Table 3 に、実効原子番号比が1より離れた場合、同一熱発光光量測定精度であっても実効エネルギーの推定における誤差域の幅が狭くなることを示した。現在、市販されている発光体の実効原子番号は最小で7.1、最大で15.2である。これらより実効原子番号が大きく、高感度で安定性のある環境モニタに適する TLD 発光体が開発されるなら、この方法は一層有用になると考えられる。

Ⅳ. 結 論

異種の発光体間の実効原子番号比と放射線の実効エネルギーが定まった場合、発光体間の感度比は定まった値をとる。このことを利用して、環境中の人工放射線と自然放射線との弁別測定について検討してきた。これから次の結論を得た。

- (1) 市販の国産 TLD の組合せにより、環境放射線の人工部分と自然部分との弁別線量評価が可能である。
- (2) 推定する実効エネルギーの誤差を縮小するには、使用する発光体間の実効原子番号比を 1 より一層離れた値をとるもの同士とするとともに、熱発光量測定精度を上げることが重要である。
- (3) この方法で、BG 線量の約 40% 以上人工放射線を照射した場合(ただし、ここでは ^{131}I の γ 線である)、BG γ 線と人工 γ 線の実効エネルギーとが区別できた。
- (4) 放医研構内のモニタリング地点での自然放射線の実効エネルギーは約 713^{+510}_{-238} keV であった。
- (5) この方式はフィルタ付きとフィルタなしの同種 TLD によっても可能であり、環境放射線計

測のみならず被曝管理等の分野においても応用できる可能性がある。

本研究にあたり、励しのご助言を賜った前放射線医学総合研究所所長 御園生圭輔先生、原子力安全委員 田島英三先生、放医研科学研究官 寺島東洋三先生および橋詰 雅 物理研究部長に心から感謝の意を表します。また、熱発光測定装置を快くお貸し下さったアロカ(株)の 柏木 弘 部長、秋山 豊 両氏に心からお礼申し上げます。

— 参 考 文 献 —

- (1) "Population Dose and Health Impact of the Accident at the Three Mile Island Nuclear Station", U.S. Government Printing Office: 1979 0-293-423.
- (2) HOY, J.E.: *Health Phys.*, **21**, 860 (1971).
- (3) 中島敏行, 藤元憲三, 渡辺博信: 保健物理, **9**, 219(1974).
- (4) KOSICKA, M., WALSKA-WITER, M., KOCZYNSKI, A., BIERNACKA, M.: *Nukleonika*, **21**, 629 (1976).
- (5) FIX, J.J., MILLER, M.L.: *PNL-2489*, (1978).
- (6) GORBICS, S.G., ATTIX, F.H.: *Int. J. Appl. Radiat. Isotop.*, **19**, 81 (1968).
- (7) NAKAJIMA, T., MURAYAMA, Y., MATSUZAWA, T., KOYANO, A.: *Nucl. Instrum. Methods*, **157**, 155 (1978).
- (8) 第 2 次「米原子力発電所事故調査報告書」, (1979), 原子力安全委員会・米原子力発電所事故調査特別委員会.

「和文誌」・「欧文誌」各 専 用

◇ 合 本 ファ イ ル ◇

年間ページ数がふえましたので、拡張新装版を作りました。簡単な操作で自由に入替えできるファイルです。

布装幀で金文字の和文、欧文の各誌名が入った美麗・堅牢なもの。

1 冊 600円(〒 350円)

英 文 論 文 を 書 く

—「欧文誌」投稿者のために—

(吉田正男著)

初版売切れ! 2 月末増刷

B 5 判オフセット印刷, 100 ページ

定価 1,500円(会員特価 1,200円) 送料200円

会員の要望にこたえて、「本誌」Vol. 16, No. 5 (1974)~Vol. 21, No. 2 (1979)に 50 回掲載された「連載講座」の「抜刷集」を昨年12月刊行したもの。

ご希望の方はお早めに学会事務局へ前金にてお申込み下さい。