講演

原子力産業のための放射能測定技術の進歩

*Progress in Radioactivity Measurement
Applied to the Nuclear Industry*By Russel L. HEATH*
(原研・松浦祥次郎 抄訳)

(1984年3月30日 本会「昭59年会」(近畿大学)にて招待講演)

座長 (高速炉エンジニアリング(株) 伊藤 登 氏

Heath 氏は1950年代初めにORNLでNaI(Tl)検出器の原子力分野への応用を最初に手掛け、以来放射線計測の基礎および応用両面の研究開発におけるパイオニアとして活躍された。同氏の手になる「Gamma-ray Spectrum Catalogue」は放射線計測専門家の間でつとに有名である。INEL ではシンチレーション検出器とともに半導体検出器の実用化を進め、核物理、宇宙物理から資源探査や原子力発電所モニタリングに至る広範囲の分野での放射線計測技術の確立に寄与された。まさに放射線測定の第一人者である。

I. はじめに

本講演の目的は、放射能測定技術の最近の開発状況と、その成果を原子力産業に応用する上でなされた顕著な進展について述べることである。

まず、放射能測定において必要とされる核データについて、評価済み核データのファイルを確立するための活動について述べたい。次に、放射線検出器の進歩の話題としては、特に固体シンチレータ、固体検出器についてやや詳しく述べる。これに関連して用いられる固体発光材料、光センサーの特性と、それを応用した検出器の性能についても付け加えたい。

ここ数年来、環境中の放射性同位元素の分析、高エネルギー物理や宇宙物理での光子および粒子のスペクトロスコピー、医療用像影技術等からの要請が放射線検出器のより高度な発達を促す刺激となっている。また、原子力発電所からの放出放射能を連続的に自動測定する遠隔監視システム開発の必要性が認識されつつある。現場使用のこのようなシステムを信頼性の高い、かつ取扱いの容易なものとするための設計上の問題点についても言及したい。

II. 核データ

核放射線を検出してその特性を明らかにするためには、放射性核種ごとの標準的な崩壊データベースが必要である。このデータベースを信頼性の高い、かつ使い易いものとするため、核データの測定者、評価・編集者および使用者の組織的な努力と協力が、国レベルあるいは国際的レベルで続けられて来ている。測定値は、全世界にわたって研究所、大学もしくは特別な度量衡研究所から得られている。米国では測定値の評価、データベースのファイル化、ファイルの維持は DOE 支援の国家的計画に基づきBNLの国立核データセンター(NNDC, National Nuclear Data Center)によってなされている。

主要な原子力開発国ではそれぞれ核データ委員会が設置されており、また IAEA の国際核データ委員会(INDC, International Nuclear Data Committee)が国際協力の基盤となっている。崩壊データの評価については、NNDC を通じて経験の深い核データ評価者のネットワーク(国際核構造・崩壊データ・ネットワーク: INSDDN, International Nuclear Structure and Decay Data Network)が構成されている。これには、米、英、ソ連、仏、西独、日本等14ヶ国の科学者が参加し、最良のデータベースを維持するための努力が続けられている。この努力の成果は、核データシート(Nuclear Data Sheets)や同位元素表(Table of Isotopes)として一般に利用できるようなっている。

元来、核データファイルは原子炉設計のための中性子断面積および関連定数を中心に作成された。現在、

* Science and Engineering Fellow, Idaho National Engineering Laboratory, EG & G Idaho, Inc., U.S.A. (1984年5月18日受理)

米国の評価済みデータベースは ENDF(Evaluated Nuclear Data File)としてファイル化されている。原子力産業の成長に伴い、放射線学の必要性が高まり、放射性核種の崩壊データのファイルがINSDDNによって核構造ファイル(Nuclear Structure File)として作成された。現在ではこのファイルは ENDF と一体として使用できるようになっている。このファイルに含まれている崩壊データと、その典型的な利用目的は Fig.1 に示すようなものである。技術進歩により、測定値の即時処理をするようになるにつれ、このようなファイルが重要な役割を果たすようになって来ている。

Decay Data Applications

Measured quantity	End use			
	Decay heat	Nuclide Assay	Biomedical and tracer	Basic physics
Half life	x	x	x	x
Gamma-ray energy	x	x	x	x
Gamma-ray intensity	x	x	x	x
γ -ray branching ratio	x	x	x	x
Electron energy			x	x
Electron intensity			x	x
X-ray intensity	x	x	x	x
Beta-ray energy	x		x	x
Beta-ray intensity	x		x	x
Beta-ray branching			x	
Direct fission yield	x			x
Cumulative fission yield	x			x
Q	x			x
Level spins				x
Level parity				x
Level energies				x

Fig. 1 Classes of nuclear data contained in evaluated data files and examples of their applications

Ⅲ. 放射線検出器の発達

原子力産業の種々の要請に応じて多種多様な放射線検出器が利用可能になって来た。この中でも特に重要なものは、荷電粒子や光子の測定に用いる固体シンチレータと固体検出器であり、まずこの分野の発達を眺

める。

1. 無機発光材料

現在市販されている主要な無機発光材料とそれらの物理的性質、すなわち放出される光の波長、減衰時間、屈折率、密度、吸湿性、光量子転換効率を Table 1 に示す¹⁰⁾。また、その応用の留意点を Table 2 に示す。

NaI(Tl)は今でも一般的に最もよく使用されている固体シンチレータである。これについて材料技術と検出器性能の顕著な進歩がなされ、現在では直径762mmの単結晶インゴットが製造できる。このような材料を用いた大型検出器は、高エネルギー物理学の研究に使用される。また、多結晶状態の NaI(Tl)を製造できるようになり、押し成形で種々の形状の検出器を作れるようになったのも重要な技術進歩である。多結晶材料は熱的機械的衝撃に優れ、かつ光学的性質の低下は無視できるほどのものである。

固体シンチレータの応答にとって重要な特性は、密度、原子番号、発光の減衰時間、発光量である。密度と原子番号が光子の検出効率と全エネルギー吸収効率を決定する主因子である。シンチレーションの現象において光の放出は 0.1~数 μ s の減衰時間の指数関数的減衰法則に従うが、この減衰時間が同時計数回路の分解時間や高計数率測定での数え落しを決定する。

シンチレータの最高励起状態は一定の平均寿命を有するが、ある種の材料では平均寿命の長い励起状態を有するものがある。この励起状態の長寿命成分は残光(afterglow)特性を示す。すべての無機シンチレータはある程度の残光を示すが、CaF₂(Eu)と Bi₄Ge₃O₁₂は残光が最も少ない。この効果は、出力信号と積分電流を用いる時や同時計数法を用いる時に重要になる。

発光材料およびそれと接合する光センサーについて

Table 1 Characteristics of important solid scintillation phosphors

Material	Wavelength of maximum emission (nm)	Decay constant (μ s)	Scintillation cutoff wavelength (nm)	Index of refraction	Density (g/cm ³)	Hygroscopic	γ -scintillation conversion efficiency(%)
NaI(Tl)	410	0.23	320	1.85	3.67	Yes	100
CaF ₂ (Eu)	435	0.94	405	1.44	3.18	No	50
CsI(Na)	420	0.63	300	1.84	4.51	Yes	85
CsI(Tl)	565	1.0	330	1.80	4.51	No	45
⁶ LiI(Eu)	470~485	1.4	450	1.96	4.08	Yes	35
TlCl(Be, I)	454	0.2	390	2.4	7.00	No	2.5
CsF	390	0.005	220	1.48	4.11	Yes	5
BaF ₂	325	0.63	134	1.49	4.88	No	10
Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂	480	0.30	350	2.15	7.13	No	15
KI(Tl)	426	0.24/2.5	325	1.71	3.13	Yes	24
CaWO ₄	430	0.9~20	300	1.92	6.12	No	14~18
CdWO ₄	530	0.9~20	450	2.2	7.90	No	17~20

Table 2 Applications of solid scintillation detectors

Application	Preferred phosphor	Important considerations
Physics research		
High energy calorimeters	BGO	Density, Z , readout
Compton suppression	BGO	Density, Z , τ
Neutron spectroscopy	LiI(Eu)	Li(n, α)
Applied science		
X-ray CT	CdWO ₄ , BGO	Spectral output, low afterglow
Positron CT	BGO, CsF	τ , A
Borehole scanning	BGO	Density, Z
Nuclear fuel scanning	BGO	Density, Z
Environmental assay	BGO	Density, Z

注意すべき他の性質は吸湿性と機械的特性である。これは極端な環境下で使用されることのある現場測定において特に重要である。

近年の固体シンチレータ開発の中で最も囑望されているものの一つは、ゲルマニウム酸ビスマス(Bismuth Germanate: $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, 以下 BGO と略)である。この材料の利点は、高密度(7.13 g/cm^3)、機械的熱的安定性、耐放射線性であり、一方、欠点は室温下で発光量の低いこと、高屈折率および発光量と減衰係数の顕著な温度依存性である。

BGO の発光現象は最初 Weber と Monchomp によって研究された⁽²⁾。1 年後に Nestor と Huang が γ 線スペクトロメータとして使用できることを実験的に示した⁽³⁾。それ以後、種々の技術的制限にもかかわらず普及しつつある。これは BGO が高密度、高 Z 物質であるため、高エネルギー光子に対しても高検出効率を有することが根本的な理由である。Fig. 2 は、光子に対する線吸収係数を光子エネルギーに対してプロットしたもので、BGO は NaI(Tl) より高い検出効率を有することが明らかに示されている⁽⁴⁾。

BGO はその特性によって、X 線 CT の検出器として NaI(Tl) に取って替りつつあるが、このような事情で商業的にも普及が進み、大量の使用および大型のもの使用が可能になって来ている。

大型の BGO が入手可能になるにつれ、 γ 線スペクトロメータとしての実用的可能性に関心が高まって来た。Evans は高さ 38 mm × 直径 38 mm の円筒検出器の γ 線応答を研究し、一般的な利用可能性を実証した⁽⁴⁾。その際のエネルギー分解能は ^{137}Cs のフォトピークに対して 15% (半値幅) であった。Fig. 3 は、BGO と NaI(Tl) とで得られる ^{24}Na の γ 線スペクトルを比較したものである。特徴的なのは、BGO ではフォトピーク

Fig. 2 Plot of linear absorption coefficient μ for bismuth germanate and NaI (Tl) as function photon energy **Fig. 3** Pulse-height spectra obtained using 38 mm × 38 mm cylindrical NaI (Tl) and BGO detectors for γ -radiation from ^{24}Na source

とベアプロダクションピークとが高められていることである。これは、高エネルギー γ 線スペクトロスコピ

ーに対して BGO が有利なことを示している。エネルギー分解能は、最近の連続再結晶技術による材料の高純度化により ^{137}Cs フォトピークに対して 8.9% (半値幅)⁶⁾、あるいは高い光子転換効率を有するシリコン光ダイオードとの接合により電子消滅フォトピークに対して 7.2% (半値幅)⁶⁾等、著しい改善が報告されている。

BGO 使用の難点は、Fig. 4 に示されるような発光量と減衰係数の温度依存性である⁷⁾。もう 1 つの欠点は高い屈折率である。これは BGO で発生した光を結晶の外へ導き出して光センサーに最適に伝達する光学システムを設計する上で難しい問題を生じる。

Fig. 4 Temperature dependence of observed lifetime and intensity of luminescence in BGO

2. BGO の利用

大容積の BGO が使用可能となって来たことにより、X線あるいは陽電子 CT スキャナへの利用に加えて、中・高エネルギー物理研究への利用に関心が高まっている。素粒子のエネルギーと方向を測定する高エネルギー物理実験では、BGO の全エネルギー吸収効率の高さと、ストップパワーの強さは大きな利点である。このような利用の典型的な例は、スタンフォード大学の線形衝突装置 (Linear Collision Facility) での使用のため提案されている BGO 結晶のボールである。これは、1 辺 1 cm × 長さ 20 cm の BGO セグメント 9,200 個を配列した集合体で、重さは 6,000 kg に達する。このほか、CERN のストレージリングでの BGO カロリメータとして使用が考えられている集合体は 12,000 個のセグメントから構成されるもので、容積が約 1,500 l のものである。

多くの分野で、高いフォトピーク比 (もしくはコンプトン比) とエネルギー分解能を有する γ 線スペクト

ロメータへのニーズがある。現在の技術では、最高の分解能は大型の高純度 Ge 検出器で得られるが、そのフォトピーク比を改善するためには、Fig. 5 に示すように、この検出器を中央におき、その周囲を大容積かつ高密度の検出器で外套 (マントル) で包むように取り囲み、中央の検出器で生じて外へ漏洩するコンプトン散乱光子をマントル検出器で捕捉し、計数から除くことである。このようなコンプトン抑制型検出器のマントル検出器にはこれまで NaI(Tl) がよく用いられているが、BGO は NaI(Tl) の 2 倍の吸収係数を有しているので、同レベルの結果を得るためにはずっとコンパクトな設計ができるようになる。

Central Ge detector is surrounded by two BGO detectors operated in coincidence mode to reject events which do not result in total-energy absorption in the central detector.

Fig. 5 Compton-rejection spectrometer detector arrangement

このようなシステムの応用例を Fig. 6 に示す。これは、原子炉のスタックのフィルタから採取された試料に対して、大型のコンプトン抑制型検出器で得られた γ 線スペクトルである。比較のため、マントル検出器からの拒否信号 (コンプトン散乱を取り除くための信号) を用いた場合 (下段) と、用いない場合 (上段) とを示している。このような用途は NaI(Tl) の代わりに BGO を用いると、検出器システム全体がずっとコンパクトになるが、これは現場での利用では大きな利点となる。

3. 光センサーの最近の進歩

これまでのシンチレーション検出器では光電子増倍管が主要な光センサーであったが、これに代わる光センサーの開発にも著しい進歩が認められる。その一つは Si 光ダイオードである。この利点は、物理的およ

Data are shown with and without coincidence rejection of Compton events illustrating peak enhancement of detector system.

Fig. 6 γ -ray spectrum obtain with large Compton-rejection spectrometer for reactor stack filter sample

び電気的特性が安定なこと、サイズの小さいこと、磁気を感じず磁界内での使用が簡単なこと、低価格であること等である。しかし、出力利得は光電子増倍管がはるかに優れており、この点の改良に努力されている。

4. Si 光ダイオード

シンチレータと接合して最近利用されている固体素子は P-I-N 型 Si 光ダイオードで、その表面積は 3cm² に至っている。これは信号増幅回路を必要とするが、高い光量子転換効率を有している。このダイオードは 0.5~1 MeV の範囲のフォトンの検出では雑音が高いため、使用範囲はまだこれ以外のところに限られているが、性能の改善努力が続けられている。最近、雑音特性は大きく改善されたとの報告がある⁽⁶⁾。

5. Si アバランシュ光ダイオード

アバランシュ光ダイオードの欠点は、シンチレータが発する光の波長領域において光量子転換効率が低いことであったが、新しい素子では入射窓の厚みを減少することによってこの点が大きく改善されている。ま

た、低雑音化の工夫がされ、最適状態では出力利得が 100 を越す可能性が示されている。NaI(Tl) に接合した低雑音、大面積の素子の使用で、¹³⁷Cs のフォトピークに対してエネルギー分解能 9.5% (半値幅) を得ている⁽⁷⁾。

6. Ge 半導体検出器

Ge や Si の半導体検出器はその優れたエネルギー分解能のため、粒子や光子のスペクトロメトリに広く応用されて来ている。初期には、測定に必要な電荷収集特性を有する純度の高いかつ形の大きい単結晶を得ることはできなかった。結晶構造の中の不純物や変位のために生じる電荷トラップを中和させるため、Ge 結晶中に Li をドリフトさせる工夫がなされた。この材料はすばらしいエネルギー分解能を示し、また 100 cm³ の容積の検出器が製造できるまでになった。しかし、この型の検出器の欠点は、いったん Li のドリフト処理がなされたら、Li の移動を防ぐため常に液体チッ素温度に検出器全体を保持しなくてはならないこ

とである。

この数年の間に、半導体結晶の純化と成長の技術は長足の進歩を遂げた。現在では直径76.2mmまでの高純度のGe結晶を製造することが可能になっている。これは結晶インゴットの全体積にわたって均一に電荷を収集する性質を示す。このことで、電気的および機械的性質を格段に改良した大容積のGe検出器を製作できるようになった。

第2の大きい進歩は、検出器の結晶の表面に電気的接合構造をつくることについての新しい技術の応用であった。この技術によって n 型接合も p 型接合も極めて薄い層でできるようになった。これによって検出器の有感体積を非常に明確に定義できるようになった。また、このことで低エネルギーフォトンについても優れた応答を与え、また検出器の末端効果が大きく減少するので、単一エネルギーフォトンに対するスペクトル応答を改善した。さらに、検出器の効率を正確に評価できるようにした。

7. 遠隔 γ 線スペクトロメータシステム

原子力発電所の冷却水や放流水、あるいは排気の中に含まれる放射能を実時間で継続的に測定し、同位元素分析をするという要請に応じるため、自動遠隔 γ 線スペクトロメータの開発が必要となって来た。元来、 γ 線スペクトロメータは科学者の研究用に開発されたもので、高度に訓練された分析技術者によって使用される。そして、スペクトルの解析と意味の理解には、かなりこみ入った数値解析技術と相当な知識が必要である。近年、マイクロプロセッサが低価格になり、相当なレベルまでスペクトル分析のできるパルス波高分

析装置が市販されるようになっている。それでも、これを確実適正に使用し、保証できる結果を得るには、高度に訓練されたオペレータが必要である。

長年の間われわれの研究室では、この技術を連続かつ定常的に利用できるようにするため自動化する努力を払って来ているが、必要な機能を完全に発揮するためには、遠隔スペクトロメータシステムは次の諸要求を満足するものでなくてはならないと考えられる。

- (1) 無人運転
- (2) 遠隔ステーションとオペレータあるいは中央制御装置との間の情報(データの現状、指令等)の伝達
- (3) 遠隔ステーションの作業状況の自動的確認
- (4) 自動的なセンサーの校正
- (5) 測定条件の確認能力(実施中の測定が要求通りの測定であることを確認できること)
- (6) 一時的な停電に対する自動的回復能力
- (7) 連続運転能力
- (8) 広い動作範囲(高レートの入力信号への能力)
- (9) 自動的なデータの解析と解釈
- (10) 測定の状況を示すため、多くの測定値を利用してデータの解釈ができる能力(これは多くの検出器や遠隔ステーション、プラントシステムからのデータの相関関係を把握する能力を含む)
- (11) データの編集

遠隔スペクトロメータ・ステーションは、高計数率用電子回路に接続されたGe検出器、遮蔽付検出器アセンブリー、遠隔プロセッサ、プロセス機器(弁、流量

Fig. 7 Block diagram of remote γ -ray spectrometer system

計、温度計、圧力計)等から構成される。これを組み合わせてFig. 7のようなシステムが構成される。

米国では、遠隔7線スペクトロメータは、放射能の放出制限と事故後サンプリングシステムのため、商用原子力発電所に設置されつつある。しかしながら、それらの大部分は昔ながらの設計であり、新しい設計概念はまだとり入れられていない。

[本講演のために、岡下 宏氏(原研)と田口 堯雄氏(Seiko EG&G 社)から強い支援と協力が寄せられた。]

—参考文献—

- (1) FARUKHI, M.R.: *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, NS-29 [3], 1237 (1982).
- (2) WEBER, M.J., MONCHOMP, R.R.: *J. Appl. Phys.*, 44, 5496 (1973).
- (3) NESTOR, O.H., HUANG, Y.: *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, NS-22, 68, (1975).
- (4) EVANS, Jr. A.E.: *ibid.*, NS-27, 172, (1980).

- (5) FARUKHI, M.R.: *Proc. Int. Workshop on Bismuth Germanate, Princeton*, (1982).
- (6) DERENZO, S.E.: *Nucl. Instrum. Methods*, 219, 117 (1984).
- (7) ENTINE, G., et al.: *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, NS-30[1], (1983).

昭59年会 Heath 氏招待講演・配布資料の正誤表

誤		正	
p. 5	Table 1 の左欄 Material	CsI(Tl) <上> を CsI(Na) TlCl(Be, I) を TlCl(Be, I) BaF ₂ を BaF ₂	
p. 6	下から12行目	afterflow	を afterglow
p. 18	上から17行目		(挿入)(Fig. 12)
p. 19	p. 18と重複のため削除。		
付図	Fig. 14 の項目説明	Count rate Corrected peak intensity	を Count rate (C/S) を Corrected peak intensity (%)

去る4月17日(18:00~19:30)、国立教育会館会議室にて、海外原子力調査研究連絡会・ANS 日本支部主催で Florida Power & Light 社 Robert E. Uhrig 副社長の講演会が行われた。以下はその抄訳である。
(座長(FBEC)伊藤 登氏)

長引く不況、電力需要減退、QA 問題、各種連邦および州規制問題、高金利の影響等、米国電力業界は多くの問題と苦しみを抱えているが、その中において FPL 社は4基目の St. Lucie (802 MWe)を1983年8月、ほぼ当初計画時のスケジュール通り完成させ、全4プラントを順調に運転中である。St. Lucie 建設に対しては FPL 社は Ebasco 社と一体的なプロジェクト運営組織を作り、各種工程管理、プロジェクト管理プログラムを並行して進める一方、運転要員は主要系統機器のみならず補助機器に対しても機能試験を始める前から単体としての運転方法に習熟させるようにした。技術的にも各種革新的工法や技術を採用したが、その例は Reactor Auxiliary Building の“stair stepping” concept であり、階段状の補助建屋の一部を早く完成させることにより critical path となる設備、control room, cable vault, NSSS auxiliary 機器、等の据付・調整に十分時間をかけられるようにしたことである。また、Reactor Containment Building は3 ft 厚、190 ft 高、148 ft 内径の鉄筋コンクリート製であるが、これを“Slip forming”法により連続16.5

日間で完成させ、その後、内部 steel vessel の建設を行なった。

建設が約26%進捗した1979年9月ハリケーンにより derrick が崩壊し補助建屋等に大被害を受けた。工程はこの被害回復だけで13週間遅れとなり、最高21週間遅れたが、すべてを克服して1971年安全審査申請時の計画商業運転開始日より9週間遅れで完成することができた。建設許可取得から cold hydro 試験まで59ヵ月は米国平均値95ヵ月と比較すると極めて短い。

成功の原因は TMI および Browns Ferry の火災による NRC の backfit 規制や新規州規制への対応が適切であったこと、プロジェクト関係者が常に運開日を変えないという目的を持って新規に問題が発生する都度

これに対するプログラムを協議し解決したことである。

FPL 社は需要低迷が続くものと考え、原子力の新規発注はさらに3~4年考えていないが、現在の軽水炉技術に極めて満足している。しかし、米国での PA の観点から他の電力4社とともに inherent safety に優れている高温ガス炉の技術開発にも援助を続けている。PIUS 等の新しい炉の概念は開発費の規模も大きくなるばかりでなく、安全面でも未解決事項を考慮すると経済的には難しいものと考えている。

US Nuclear Experience and Trend

Example of a Plant Built on Schedule

(Florida Power and Light Co.)

Dr. Robert E. Uhrig

1984年4月17日(国立教育会館)