原著論文

種々の大きさの CsI(Tl) シンチレーション検出器の γ 線に対する スペクトルー線量変換演算子 ($G(E)$ 関数) の計算と評価

津田 修一^{*1}, 堤 正博^{*1}

(2012 年 7 月 18 日受理)

(2012 年 10 月 23 日再受理)

Calculation and Verification of the Spectrum —Dose Conversion Operator of Various CsI(Tl) Scintillation Counters for Gamma-ray

Shuichi TSUDA^{*1} and Masahiro TSUTSUMI^{*1}

The spectrum-dose conversion operators (hereafter, $G(E)$ function) were calculated for CsI(Tl) scintillation counters based on the response functions obtained by a Monte Carlo simulation code, MCNP5, in the photon energy range from 40 to 10,000 keV. The $G(E)$ functions were determined in the cases of crystal sizes $5.5 \times 5.5 \times 5.5$, $10 \times 10 \times 10$, $13 \times 13 \times 20$ and $38 \times 38 \times 25$ mm³ for ambient dose, $H^*(10)$. It was found that the values of $H^*(10)$ deduced from the pulse-height spectra and the $G(E)$ function agreed with those of $H^*(10)$ evaluated in the calibration field in Japan Atomic Energy Agency (JAEA) within 2% in the case of irradiations by ¹³⁷Cs, ²²⁶Ra and ⁶⁰Co source, by the measurements using a scintillation counter whose crystal size was $13 \times 13 \times 20$ mm³.

KEY WORDS: $G(E)$ function, CsI(Tl) scintillation counter, photon, $H^*(10)$, ¹³⁷Cs, The Great East Japan Earthquake.

I 緒 論

平成 23 年 3 月 11 日に発生したマグニチュード 9.0 の東日本大震災によって、東京電力福島第一原子力発電所で稼働中だった原子炉は、地震波を感知し正常に停止したものの、その後到達した津波による被害のため全電源喪失状態となり、原子炉全 6 機は冷却機能を喪失した¹⁻³⁾。事故直後から 3 月 15 日の間に、崩壊熱による炉心溶融にともなって 1 号機～3 号機で断続的に発生した水素爆発及びドライウェルベント作業の結果、大量の放射性物質が大気中に放出された。放射性物質は福島県内だけでなく、気流に乗って東日本を中心とした広範な地域に拡散し、降雨等により地面に沈積した。事故後 1 年

以上を経過した現在、ヨウ素 131 等の比較的短半減期の核種による外部被ばく線量は事故直後と比較して低減しているが、依然として¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs からの γ 線は主な外部被ばく源として残存している。

事故直後から国、地方自治体、大学、研究機関等は放射線量測定を開始した。現在、文部科学省及び福島県が中心となって、放射性物質の除染作業の目安となる線量マッピングデータの作成作業が継続して実施されている。文部科学省は、平成 23 年 12 月から平成 24 年 6 月まで、「第 2 次福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布状況等調査」として、航空機及び車を用いた広域モニタリングを実施した⁴⁾。車を用いたモニタリングには、京都大学原子炉研究所で開発された KURAMA システム (Kyoto University Radiation MApping system)⁵⁾ が採用されている。KURAMA システムは、車に搭載した検出器によって測定される線量率及び GPS による緯度経度データを同時に取得し、インターネットを介してリアルタイムに地図ソフトウェア上で、走行ルートの各点に

^{*1} (独) 日本原子力研究開発機構：茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4 (〒319-1195)
Research Group for Radiation Protection, Japan Atomic Energy Agency; 2-4 Sirakata-Sirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195, Japan.
E-mail: tsuda.shuichi@jaea.go.jp

おける線量率を確認できるシステムで、航空機サーベイと比較して、地上での測定値に基づいたより詳細な線量マップの作成に適している。当初、KURAMA システムでは、アロカ製 NaI(Tl) シンチレーション式サーベイメータ (TCS-161 型, または TCS-171 型) が用いられていた。その後、第 2 世代として、同程度に高感度でかつシステムの小型化が可能な浜松ホトニクス製の CsI(Tl) シンチレーション検出器が採用されている。

CsI(Tl) 結晶は、代表的なシンチレーション結晶である NaI(Tl) 結晶と比較して、実効的な原子番号が高いため γ 線の検出感度が高い。また結晶自体の潮解性が低いため比較的取扱いが容易な利点を有している。しかし、シンチレーション結晶を用いた線量計の一般的特性として、電離箱等と比較すると、数 10 keV から 1,000 keV の γ 線に対する応答のエネルギー依存性が大きい。そこで、エネルギー特性を補償した線量を評価するために、スペクトル線量変換演算子 (以下、 $G(E)$ 関数という)^{6,7)} が考案され、シンチレーション検出器を用いたサーベイメータ等に広く用いられている。 $G(E)$ 関数は、測定対象とする γ 線のエネルギー範囲においてあらかじめ計算された検出器の応答関数と、ある線量換算係数に基づいて導出され、測定する場のエネルギースペクトルに依存せず、高い精度で線量を測定することが可能である。例えば NaI(Tl) シンチレーション結晶については、種々の形状、大きさの結晶に対する $G(E)$ 関数が報告されており^{6,8)}、応答関数に関する系統的なデータカタログもある⁷⁾。しかし、CsI(Tl) シンチレーション結晶に対する $G(E)$ 関数の報告はほとんどないのが現状である。

本報では、種々のサイズの CsI(Tl) 結晶に対する $G(E)$ 関数の計算結果及び市販の CsI(Tl) シンチレーション検出器を用いて行った検証結果について報告する。

II 計 算

$G(E)$ 関数による線量評価手法には、場のエネルギースペクトルの解析を行うことなく、測定した波高スペクトルから直接的に高い精度で線量を評価できる利点がある。詳細は森内らの報告⁶⁻⁸⁾を参照してもらうとして、ここでは計算手法の概要を述べる。

ある単色エネルギー E_0 の γ 線に対して、次の積分方程式を成立させるような荷重関数 $G(E)$ が存在するならば、単位フルエンス当りの線量換算係数 $h(E)$ は、検出器の応答関数 $n(E, E_0)$ を用いて以下のように表すことができる。

$$h(E_0) = \int_0^{\infty} n(E, E_0) G(E) dE \quad (1)$$

よって、種々のエネルギー E_i の γ 線混在場における全線量 D は、(1) 式を用いて以下のように書ける。

$$\begin{aligned} D &= \sum_i \phi(E_i) h(E_i) \\ &= \sum_i \int_0^{\infty} \phi(E_i) n(E, E_i) G(E) dE \\ &= \int_0^{\infty} \sum_i \phi(E_i) n(E, E_i) G(E) dE \\ &= \int_0^{\infty} N(E) G(E) dE \end{aligned} \quad (2)$$

ここで $N(E)$: 波高スペクトル, $\phi(E_i)$: エネルギースペクトルである。

このように全線量 D は、場のエネルギースペクトルを解析することなく、測定される波高スペクトルと $G(E)$ 関数から算出される。

CsI(Tl) 結晶の応答関数計算には、中性子及び光子の汎用モンテカルロ輸送計算コード MCNP5⁹⁾を用いた。40 ~ 13,000 keV の 24 点において、単一エネルギーの γ 線に対する応答関数を、Table 1 に示す条件において計算した。これらの中には市販の簡易線量計に用いられている結晶サイズも含まれている。各結晶の表面を 1 mm または 2 mm 厚のアルミニウムで被覆し、空気中に設置する体系とした。

線源の形状は面とし、放出される平行ビームを、結晶面に対して直角に入射させる条件で計算した (Fig. 1 参照)。直方体の場合は、正方形の面に垂直に入射させた。環境に放出された放射性物質による γ 線測定では、結晶に対して等方的に γ 線が入射する体系が実際の状況にもっとも近いと考えられるが、計算した $G(E)$ 関数の信頼性を実験的に検証することが困難であるため、環境放射能に対する線量測定⁶⁾でも採用されている代表的な平行ビーム入射条件を採用した。

線量換算係数には、国際放射線防護委員会 (International Commission on Radiological Protection, ICRP) の光子フルエンスから周辺線量当量 $H^*(10)$ への換算係

Table 1 The calculation conditions of $G(E)$ function for various CsI(Tl) crystals covered with aluminum. (Unit: mm)

Shape	Size	Thickness(Al)
Cube	$5.5 \times 5.5 \times 5.5$	1.0
	$10 \times 10 \times 10$	1.0
Rectangular	$13 \times 13 \times 20$	2.0
parallelepiped	$38 \times 38 \times 25$	2.0

Fig. 1 Irradiation geometries in the calculation of the response functions in CsI(Tl) crystals using MCNP5. (a) cube, (b) rectangular parallelepiped.

数を用いた¹⁰⁾。 $H^*(10)$ 線量当量換算係数及びモンテカルロ輸送計算から求めた応答関数を用いて、離散化した(2)式の逆行列を解く手法によって、高次多項式によって表される $G(E)$ 関数を決定した。

III 実 験

計算した $G(E)$ 関数から導出される線量の妥当性を検証するために、校正された照射場において測定を実施した。使用した線源の核種及び代表的なエネルギーをTable 2に示す^{11, 12)}。

測定には、浜松ホトニクス製 CsI(Tl) シンチレーション検出器 (C12137, 結晶サイズ: 13 mm × 13 mm × 20 mm) を使用した。シンチレータからの光信号は MPPC (Multi-Pixel Photon Counter, マルチピクセル半導体光検出素子) を介して増幅され、30 keV ~ 2,000 keV の範囲の γ 線に対して測定可能である。付属のソフトウェアを使用し、線量率とともに波高スペクトルデータをパソコンに保存した。照射実験前には、 ^{137}Cs 線源の 662 keV 単色エネルギーピークを用いて、1% 以内の精度でゲインを調整した。

またこの測定器には、オシロスコープ等への出力がな

Table 2 Radioactive nuclides used in the experiment. ^{11, 12)}

Nuclides	Energy [keV]
^{241}Am	59.5
^{57}Co	122
^{139}Ce	166
^{133}Ba	81.0, 356
^{113}Sn	392
^{85}Sr	514
^{226}Ra	830*
^{65}Zn	1,116
^{60}Co	1,173, 1,333
^{88}Y	1,836

* from reference ¹²⁾

いため、波形の確認や数え落としの影響評価を行えなかった。そこで、実際の測定時間をライブタイムとみなして評価した。

実験は、(独) 日本原子力研究開発機構の放射線標準施設棟 (The Facility of Radiation Standards, FRS) において実施した。実験の様子を Fig. 2 に示す。FRS には、国家標準とのトレーサビリティを確保した中性子、 γ 線、X線及び β 線の校正用照射設備が整備されており、照射実験を行った γ 線照射場には、散乱線込み及び一次線のみの線量率が距離の関数として値付けされている。

$G(E)$ 関数から導出される線量率のエネルギー特性評価には、線源強度の強い ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 及び ^{60}Co 線源を用いた。線源と検出器間の距離を 200 cm 又は 300 cm に設定し、本試験前に行った線量率依存性の結果から、数え落としの影響が小さいことを確認した約 1 ~ 5 $\mu\text{Sv/h}$ の線量率範囲において、計算条件を再現するように、放出される γ 線が検出器にほぼ平行に入射する条件において実施した。一次線による線量を評価するために、シャドークーン法によって線源と検出器のほぼ中間に直径 10 cm, 厚さ 15 cm の鉛ブロックを設置して同様に測定し、一次線のみによる波高スペクトルデータを得た。

その他の密封微量線源を用いた測定では、シンチレータ表面から約 10 cm 離れた位置に線源を置いて波高スペクトルを測定した。

IV 結果 と 考 察

1. $G(E)$ 関数

Table 1 に示した種々の結晶サイズを有する CsI(Tl) シ

Fig. 2 Experimental set-up in the irradiation room No.3 in FRS. The detector is also shown in the lower-right position in the photo.

ンチレーション検出器の γ 線に対する $G(E)$ 関数を、周辺線量当量 $H^*(10)$ とともにFig. 3に示す。 $G(E)$ 関数の決定に伴う24のエネルギー点における近似誤差の平均値は、いずれの結晶サイズについても1%以内である。 $G(E)$ 関数の値は結晶サイズによらず、100 keV付近で極小となり、それ以上のエネルギー範囲において、検出器から逃れる確率が高くなると増加する傾向を示している。

CsI(Tl)及びNaI(Tl)シンチレーション検出器の $G(E)$ 関数の比較をFig. 4に示す。100 keV以上のエネルギー範囲において、実効原子番号の違いによる差が見られ、

Fig. 3 $G(E)$ functions of $H^*(10)$ based on calculated response functions using MCNP5 for CsI(Tl) crystals of 5.5-mm and 10-mm cubes, $13 \times 13 \times 20$ mm³ and $38 \times 38 \times 25$ mm³ rectangular parallelepiped, and conversion coefficients for $H^*(10)$. The corresponding vertical axes of the $G(E)$ functions and $H^*(10)$ are right and left, respectively.

Fig. 4 $G(E)$ functions of $H^*(10)$ based on calculated response functions using MCNP5 for 10 mm cubic crystals of CsI(Tl) and NaI(Tl).

CsI(Tl)の $G(E)$ 関数の値の方が小さい、すなわち相対的にCsI(Tl)の感度が高いことがわかる。

2. 波高スペクトル

種々の線源を用いて測定した波高スペクトルの例をFig. 5に示す。単色エネルギーのピーク領域のエネルギー分解能 (FWHM) は、²⁴¹Am (20%), ⁵⁷Co (16%), ¹³⁹Ce (14%), ¹¹³Sn (11%), ¹³⁷Cs (9%) である。²⁴¹Am以外のデータの統計精度は高くないが、エネルギーが低くなると、エネルギー分解能が低下する傾向を確認することができる。⁶⁰Coの2本の γ 線 (1,173 及び 1,333 keV) によるピークも弁別できており、²²⁶Raのいくつかのピークも確認できる。また、C12137のカatalogによると、¹³⁷Csに対するエネルギー分解能は8%であり、今回の測定において同程度のエネルギー分解能で測定できていることがわかった。

3. 導出した線量率の評価

測定した線量率の基準線量率に対する比として評価したエネルギー特性をTable 3に示す。直接線及び散乱線を含んだ結果をForegroundとし、シャドーコーン法によってForegroundから散乱線の寄与を差し引いた結果をDirectとして表した。

計算条件をほぼ再現したDirectについて、測定値は基準値よりやや小さいが、測定値は7%以内で基準線量率と一致した。照射した線量率の範囲は約1～4 μ Sv/hであるが、数え落としの影響とともに、計算において、検出器の細部の構造を再現できていないために低エネルギーの散乱成分を再現できていない可能性も考えられる。また、より低線量率の場合、校正場における測定は困難であるが、数え落としが減少するため、よりよく基準値を再現すると考えられる。一方、Foregroundにおける線量率の比は、3核種について $\pm 2\%$ 以内であり、散乱成分を含んだ実際の測定環境に近い条件において、より精度よく測定できる $G(E)$ 関数が計算できたと考えられる。

V 結 論

種々の大きさのCsI(Tl)シンチレーション結晶に対して、 γ 線に対する $G(E)$ 関数を計算した。文部科学省が環境放射線モニタリングにおいて使用したものと同型のCsI(Tl)シンチレーション検出器を用いて、導出される線量率の精度検証を実施した結果、導出される線量率は直接線に対して7%、散乱線を含んだ条件で2%以内の精度で $H^*(10)$ を測定できることを確認した。

また、環境に放出された放射性物質による健康影響が

Fig. 5 Pulse-height distributions measured using the CsI(Tl) scintillation counter (C12137); (a) ^{241}Am , (b) ^{57}Co , (c) ^{139}Ce , (d) ^{113}Sn , (e) ^{137}Cs , (f) ^{226}Ra and (g) ^{60}Co . The arrows show the discriminated energies in the measurements (40 keV).

Table 3 Ratios of dose rates measured using the C12137 scintillation counter to the evaluated values by JAEA. The statistical errors of the ratios are less than 2%.

Nuclides	Ratios	
	1) Foreground	2) Direct
^{137}Cs	0.98	0.93
^{226}Ra	1.01	0.95
^{60}Co	0.98	0.94

心配される中、放射線防護の専門家だけでなく、一般市民の間で需要の高まっている小型の簡易線量計の中には、CsI(Tl)シンチレーション検出器を用いたものもある。なお、紙面の関係で数値データを記載していないが、

著者にご連絡いただければ、随時電子データを提供させていただきたい。これらの線量計において、計算した種々の結晶サイズに対する $G(E)$ 関数データが使用され、計測される線量率データの精度向上の一助となれば幸いである。

謝 辞

シンチレーション検出器の特性試験において、(独)日本原子力研究開発機構の谷村嘉彦氏、古渡意彦氏、吉富寛氏に協力を頂いた。ここに感謝する。

参 考 文 献

- 1) 原子力災害対策本部；原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書—東京電力福島原子力発電所の事故について—, (2011).
- 2) 原子力災害対策本部；国際原子力機関に対する日本国政府の追加報告書—東京電力福島原子力発電所の事故について— (第2報), (2011).
- 3) 福田俊彦, 宮田浩一, 山下和彦, 土方勝一郎；福島第一原子力発電所事故の対応と今後の計画, 日本原子力学会誌, **54** (6), 14–34 (2012).
- 4) 放射線モニタリング情報；文部科学省ホームページ, Available at: <http://radioactivity.mext.go.jp/ja/>, 閲覧 2012 年 7 月 6 日.
- 5) GPS 連動型放射線自動計測システム KURAMA；京都大学原子炉実験所福島原子力災害対策支援グループホームページ, Available at: <http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/kurama/index.html>, 閲覧 2012 年 6 月 12 日.
- 6) 森内 茂；スペクトル—線量演算子による線量評価法とその演算子の決定, JAERI 1209 (1970).
- 7) 齋藤公明, 森内 茂；モンテカルロ計算による NaI(Tl) シンチレーション検出器ガンマ線応答関数のデータカタログ, JAERI 1306 (1987).
- 8) 森内 茂, 長岡 鋭, 坂本隆一, 齋藤公明；球形 NaI(Tl) シンチレーション検出器のスペクトル—線量変換演算子の決定, JAERI-M 8092 (1979).
- 9) X-5 Monte Carlo Team; MCNP —A general Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, Volume I: Overview and Theory (2003).
- 10) The International Commission on Radiological Protection; Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation, ICRP Publ. 74, Annals of the ICRP Vol. 26 (3/4) (1996), Elsevier, UK.
- 11) 日本アイソトープ協会；アイソトープ手帳 (10 版),

(2001), 丸善, 東京.

- 12) The International Commission on Radiation Units and Measurements; Dose and volume specification for reporting interstitial therapy, ICRU Report 58, (1997), Bethesda, USA.

津田 修一 (つだ しゅういち)

(独) 日本原子力研究開発機構放射線防護研究グループ。工学博士。東京電力福島第一原子力発電所事故後、主に車を用いた環境放射線モニタリングに従事。高エネルギーイオンビームを用いた線量測

定に関する研究も継続中。

E-mail: tsuda.shuichi@jaea.go.jp