研究論文

3"φ×3" NaI(Tl) シンチレーションスペクトロメーター による微弱漏洩 γ 線線量評価の新しい方法 (I)

—バックグラウンド推定法の原理—

松田秀晴^{*1}, 古川滋子^{*1}, 上西時司^{*1}, 湊 進^{*1}

(1980 年 12 月 22 日 受理)

(1981 年 2 月 25 日 再受理)

A New Method for Evaluating Weak Leakage Gamma-Ray Dose
Using a 3"φ×3" NaI(Tl) Scintillation Spectrometer (I)

—Principle of Estimated Background Method—

Hideharu MATSUDA,^{*1} Shigeko FURUKAWA,^{*1} Tokishi KAMINISHI^{*1} and Susumu MINATO^{*1}

A new method for evaluating weak leakage gamma-ray dose without background measurement was developed. A pulse height distribution obtained by a 3"φ×3" NaI(Tl) scintillation spectrometer was converted to the incident gamma-ray energy spectrum by the response matrix method. Weak leakage gamma-ray dose rate with background was directly calculated from the energy spectrum. On the other background exposure rate was evaluated from natural activity concentrations deduced by the peak of ⁴⁰K, ²¹⁴Bi(U) and ²⁰⁸Tl(Th) in the energy spectrum. The results of measurement showed that this method was practically satisfiable technique.

KEY WORDS : weak leakage gamma-ray dose, 3"×3"NaI(Tl) scintillation spectrometer, estimated background method, pulse height distribution, response matrix method, energy spectrum, natural activity concentration, conversion factor.

I 緒 論

近年, 原子力施設の増加にともない, これら施設に起因する自然放射線程度の微弱な γ 線が施設外の環境に漏れ出した線量を高精度で評価できる測定技術の開発は最近の原子力研究分野での重要な課題の一つである。放射線施設からの漏洩 γ 線量を測定する場合, 通常の方法では施設に放射線源がない状態でのバックグラウンド (以下「BG」と略記) を測定し, 実際の測定値からこの分を差し引いて真の漏洩線量を算出する。従って 2 回の測定を

行う必要があり, 運転中の施設では運転を停止してこの BG を測定しなければならない不便がある。筆者らは, 問題とする場所の BG を測定しなくても 1 回の測定だけで微弱な漏洩 γ 線を分離評価することのできる新しい手法を開発した。本報告では, その原理と若干の測定例について述べる。

II 原 理

1. BG の波高分布

3"φ×3" NaI(Tl) シンチレーションスペクトロメーターを用いて, ある放射線施設周辺で BG (自然環境 γ 線) を測定したときの波高分布の一例を Fig. 1 に示す。波高分布はおもに U 系列, Th 系列および ⁴⁰K からの 1

^{*1} 名古屋工業技術試験所; 名古屋市北区平手町 1 (〒462)
Government Industrial Research Institute,
Nagoya; 1, Hirate-machi, Kita-ku, Nagoya-shi.

Fig. 1 Pulse height distribution due to background gamma-rays obtained by a $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl) scintillation spectrometer.

次 γ 線成分とそれらに起因する散乱線ならびに宇宙線成分などからなっている。放射線施設からの漏洩 γ 線成分があるときは、このような BG の波高分布の上に重畳して観測される。

2. レスポンス行列法

シンチレーションスペクトロメーターで測定した波高分布は、一般に入射 γ 線のエネルギースペクトル分布と異なる。そこで真の入射 γ 線のエネルギースペクトルに変換するため種々の方法が考えられている¹⁾。筆者らはレスポンス行列を用いた逐次近似法によって入射 γ 線のエネルギースペクトルに変換した。用いたレスポンス行列は²⁾、環境 γ 線のエネルギースペクトルを精度よく解析できるように特別の工夫を加えて作成したものである。基本的には BERGER³⁾ らが計算した $3''\phi \times 3''$ NaI (Tl) シンチレータのレスポンス関数を用い、シンチレータの入射 γ 線束密度に対する計数率の比で規格化した不等間隔の 22×22 レスポンス行列で $0 \sim 3.2$ MeV までの等方 γ 線場に適用できる。この行列は ^{40}K からの 1.461 MeV と ^{238}U の娘核種である ^{214}Bi からの 1.765 および 2.205 MeV ならびに ^{232}Th の娘核種である ^{208}Tl からの 2.615 MeV の γ 線がそれぞれ一つのエネルギー幅に収まるように工夫されている。これによって後述す

Fig. 2 Background gamma-rays energy spectrum obtained by the response matrix method.

る K, U および Th の放射能濃度を精度よく評価することができる。さらにこの行列は、前述したようにシンチレータの入射 γ 線束密度に対する計数率の比で規格化されているので γ 線の角度分布が等方であればただちに線束密度スペクトルが得られる点も従来のレスポンス行列にくらべて特長のある点である。Fig. 1 の BG の波高分布をこのレスポンス行列を用いて変換した入射 γ 線のエネルギースペクトルを Fig. 2 に示す。図には ^{40}K および ^{214}Bi と ^{208}Tl の高いエネルギー成分による顕著なピークが見られる。それぞれのピークの大きさは、測定点での直接線束密度を表わし、測定した場所（環境）におけるそれぞれの自然に存在する放射能が一樣に分布しているならばその濃度に比例することが知られている⁴⁾。

本測定ではエネルギー範囲を $0 \sim 3.2$ MeV に設定しているが、 $3.0 \sim 3.2$ MeV の計数率は宇宙線寄与分として全波高分布から同じ割合いで差し引いているため宇宙線の寄与はほぼ除かれていると思われる。なお、森内⁵⁾によれば $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl) シンチレータの場合、宇宙線による寄与は $0.23 \mu\text{R/h}$ に相当するとされており、たとえ宇宙線による寄与に誤差があったとしてもきわめて小さいものと思われる。

3. 照射線量率の計算

エネルギースペクトルから照射線量率を計算する方法

には以下の2つの方法が考えられる。

1) エネルギースペクトルから計算する方法

γ線のエネルギースペクトルを $\phi(E)$ [photons·cm⁻²·sec⁻¹·MeV⁻¹]、空気のエネルギ吸収係数を μ_{en} [cm⁻¹] とすれば単位体積の空気が吸収するエネルギー [MeV] は

$$\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} E \cdot \mu_{en} \cdot \phi(E) dE$$

となる。ここで $E_{\max}=3.0$ MeV, $E_{\min}=0.05$ MeV である。これを空気の W 値 [MeV] で割り、照射線量率への換算係数を掛ければ照射線量率 $\dot{X}_s$ [μR/h] は次式により求めることができる。

$$\dot{X}_s = \frac{1.73}{W} \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} E \cdot \mu_{en} \cdot \phi(E) dE$$

実際には $\phi(E)$ は離散的な値として処理されており各エネルギー区分ごとに得られたγ線線束密度にそのエネルギーに対する空気のエネルギ吸収係数を用いてエネルギー区分ごとの照射線量率を計算し、これらを累算することにより全体の照射線量率を求める。以下、本方法を便宜上「スペクトル積分法」と呼ぶ。

2) K, U および Th の濃度から計算する方法

エネルギースペクトル中の ⁴⁰K, ²¹⁴Bi (U 系列) および ²⁰⁸Tl (Th 系列) のピークの大きさは、前述したように測定した環境におけるそれぞれの放射能が一樣に分布しており、娘核種との間に平衡が成り立っているならばその濃度に比例する。したがって K, U, Th の濃度から照射線量率を計算することができる。K, U, Th の濃度を S_K [%], S_U [ppm], S_{Th} [ppm], それぞれの換算係数を k_K , k_U , k_{Th} とすると照射線量率 $\dot{X}_c$ [μR/h] は次式により求めることができる。

$$\dot{X}_c = k_K S_K + k_U S_U + k_{Th} S_{Th}$$

換算係数は、古くから多くの人により評価されているが、その値はまちまちであった。しかしながら最近ではこれらの値も漸次収束し信頼できる値が得られている⁶⁾。筆者らは Table 1 に示すような BECK⁷⁾ らにより評価された値を用いた。

以下、本方法を便宜上「換算係数法」と呼ぶ。

環境中の放射能濃度は次のような方法で評価する。まず無限の平面を持つ大地および空気を対象とし、K, U, Th は地中に一樣に分布し、さらに U 系列, Th 系列は地中で放射平衡の状態にあるものと仮定して、地上1mでの K, U, Th の単位濃度当たりの線束密度を理論的に算出しておく。これを基に測定したエネルギースペクトルから逐次近似法を用いてそれぞれの濃度を計算する²⁾。

Table 1 Exposure rate conversion factors for natural radionuclide in soil.

	μR	
	unit concentration	
K	1.49 per	% K
U	0.62 per	ppm ²³⁸ U
Th	0.31 per	ppm ²³² Th

Fig. 3 Relationship between background exposure rates by using conversion factors and those obtained by spectral integration.

なお、これまでは主に屋外環境を対象に議論を進めてきた。しかし、コンクリート建屋内のように実効原子番号が土壌に近く、検出器に対する立体角が十分大きい場合にも、この「換算係数法」が適用できる。これは次の2つの理由による。すなわち①線源の検出器に対する立体角が少なくとも 2π 以上では、⁴⁰K, ²¹⁴Bi (U 系列) および ²⁰⁸Tl (Th 系列) に対するそれぞれのスペクトルの形が変わらないことが知られている⁸⁾。②単位濃度当たりの照射線量率と線束密度は立体角の増加に伴ない、それぞれ同じ割合で増える。

4. 各種環境における BG の照射線量率の評価

当所構内の種々の場所で測定した BG スペクトルより、スペクトル積分法と換算係数法を用いてそれぞれ求めた BG の照射線量率の相関関係を Fig. 3 に示す。全体として相関関係は一応良好であることがわかった。

5. 微弱漏洩γ線の弁別評価

スペクトル積分法および換算係数法によって算出した照射線量率がほぼ一致することを利用して、⁶⁰Co 照射施設、放射性同位元素 (以下「RI」と略記) や放射性廃棄物の貯蔵庫等の放射線施設からの微弱な漏洩γ線線量を

評価する新しい手法について述べる。

通常の方法では、前述したように前もって問題とする場所の BG ($\dot{X}_{BG}$) を測定しておき、次に施設運転中または RI の貯蔵後の照射線量率 ($\dot{X}_A$) を測定する。漏洩 γ 線線量率 ($\dot{X}_B$) は

$$\dot{X}_B = \dot{X}_A - \dot{X}_{BG}$$

より得られる。しかし前もって BG ($\dot{X}_{BG}$) を測定しておかなかった場所での漏洩 γ 線線量率 ($\dot{X}_B$) を測定しなければならない事態になった場合、上記の方法を適用することはできない。本方法では測定したエネルギースペクトルからスペクトル積分法により BG と施設寄与分を合わせた照射線量率すなわち $\dot{X}_A$ が、一方このエネルギースペクトルの中には施設寄与分のほかに例外なく前述の ^{40}K , ^{214}Bi (U 系列), ^{208}Tl (Th 系列) の 3 核種が含まれているので換算係数法により BG ($\dot{X}_{BG}$) が評価される。このように 1 回の測定で問題としている場所の漏洩 γ 線線量が評価できる。

なお、BG 測定において厳密には換算係数法による値が一般にスペクトル積分法によるものよりやや大きく評

Fig. 4 Example of the measured value obtained by present method (Leakage gamma-rays from ^{60}Co 3000 Ci radiation facility).

Fig. 5 Example of the measured value obtained by present method (Leakage gamma-rays from ^{137}Cs 50 mCi radiation facility).

価される傾向があるので、実際に漏洩 γ 線線量を算出する場合は、Fig. 3 から両者の比を補正係数として求めたものを換算係数法で得た値に乗じて得た値を真の BG とする。今後はさらに種々の条件での測定を増すことにより、より精度の良い補正係数を得る必要がある。

III 本方法による実際の測定例

Fig. 4 は当所の ^{60}Co 3000 Ci を装備した γ 線照射施設において、そのコンクリートしゃへい壁を透過して漏洩してくる γ 線による照射線量率を測定した結果を示したものである。実線は入射 γ 線のエネルギースペクトル、破線は K, U, Th の放射能濃度から推定した BG のエネルギースペクトルである。したがって斜線部分が漏洩 γ 線成分である。この場合の漏洩 γ 線線量率は、本方法を用いて 6.70 $\mu\text{R/h}$ と評価された。確証のため照射を中断し、線源を同施設の地下にある鉛容器に格納した状態にして BG 線量率を測定し、運転中での測定結果から差し引くという通常の方法では 7.14 $\mu\text{R/h}$ と評価された。この両方法の差異は約 6% であって実用上十分よい一致を示した。

Fig. 5 は ^{137}Cs 50 mCi を用いた熱蛍光線量計用の校

正装置が設置してある実験室のコンクリートしゃへい壁外での測定結果である。Fig. 4 と同様、実線は入射γ線のエネルギースペクトル、破線は推定 BG のエネルギースペクトルである。この場合の漏洩γ線線量率は9.84 μR/h、通常の方法では9.59 μR/h と評価された。両者はきわめてよい一致を見た。このように本方法は、実用的に十分満足のいく手法であり、BG と同程度である10 μR/h 以下の微弱な漏洩でも十分測定可能であることがわかった。

IV ま と め

BG 推定法についてその原理と実施例について述べた。本方法は RI 貯蔵庫などの施設からの漏洩γ線の測定にきわめて有効である。

本方法の主な問題として、①漏洩γ線のエネルギーが⁴⁰K からの1次γ線のエネルギーより高い場合、換算係数法により推定評価する BG の線量率に誤差が生ずること、②等方γ線場に対して作られているレスポンス行列を用いているが、一般には漏洩γ線は角度分布が非等方の場であることが多いことの2点が考えられる。①については、原子炉等の施設を除けば一般の RI を使用する施設では高くても⁶⁰Co の1次γ線程度である場合が大部分であると考えられるので実用上大きな問題ではない。②については、あらかじめ角度分布による最大誤差を評価しておく必要があり、今後十分に検討する予定である。一方筆者らは角度分布の問題を解決する方法として3"φ 球型 NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメーターを使って本方法による測定を検討し現在実際の測定を実施中である。これらの問題点も含め、今後はさ

らに種々の条件での測定を実施しながら本方法の適用範囲、測定精度および検出限界などをくわしく調べて行く予定である。

参 考 文 献

- 1) 例えば兵藤知典; “放射線遮蔽入門”, p.187 (1966), 産業図書, 東京.
- 2) 湊 進; 環境γ線解析用 3"φ×3" NaI(Tl) シンチレータのレスポンス行列, 名工試報告, 27, 384 (1978).
- 3) M.J. BERGER and M. SELTZER; Response functions for sodium iodide scintillation detectors, *Nucl. Instrum. Methods*, 104, 317 (1972).
- 4) 例えば L. LÖVBORG and P. KIRKEGAARD; Numerical evaluation of the natural gamma radiation field at aerial survey heights, Risø Report No. 317 (1975).
- 5) 森内 茂; スペクトル荷重関数方式による環境γ線線量測定器に関する研究, JAERI-M 7066 (1977).
- 6) 湊 進; 地中の自然放射性核種濃度-照射線量率換算係数の推移, 保健物理, 13, 197 (1978).
- 7) H.L. BECK, J. DECAMPO and C. GOGOLAK; *In situ* Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry, USAEC Report HASL-258 (1972).
- 8) S. MINATO; A simple analytical approximation for the spectral distribution of natural gamma radiation flux, *Health Phys.*, 33, 205 (1977).