各種形状寸法の NaI(Tl) シンチレーション検出器の γ 線応答関数の整備と試験

森内 茂^{*1}, 堤 正博^{*2}, 斎藤 公明^{*3}

(2006 年 9 月 12 日受理)

(2007 年 2 月 1 日再受理)

Construction of Response Functions for Various Cylindrical and Spherical NaI(Tl) Scintillation Detectors for Gamma Rays and the Test Results

Shigeru MORIUCHI^{*1}, Masahiro TSUTSUMI^{*2} and Kimiaki SAITO^{*3}

Gamma ray spectra analyses using unfolding techniques and the dose evaluation are performed widely in the fields of environmental radiation monitoring and the relating environmental research. Various sizes and the shapes of NaI (Tl) scintillation detectors can be used depending on the dose levels. However, available response functions are generally limited to 3" ϕ $\times$ 3" cylindrical and 3" ϕ spherical types and the energy range is roughly up to 3 MeV. In this paper, the response functions of eight types of cylindrical and spherical NaI (Tl) scintillation detectors (1" ϕ $\times$ 1", 2" ϕ $\times$ 2", 3" ϕ $\times$ 3", 4" ϕ $\times$ 4", 5" ϕ $\times$ 4" cylindrical, and 2" ϕ , 3" ϕ , 5" ϕ spherical) were determined. The energy ranges were extended to 10 MeV in maximum. The some response functions reported in literatures were unfolded using our response matrices for comparison and the relative characteristics were discussed.

KEY WORDS: gamma ray, spectrum analysis, unfolding, environmental radiation monitoring, NaI(Tl) scintillation detector, various sizes and shapes, response function, response matrix, extended energy range .

I 緒 言

NaI(Tl) シンチレーション検出器, Ge 半導体検出器

^{*1} (財) 原子力安全技術センター防災技術部; 東京都文京区白山 5-1-3-101 (〒112-8604)
Division of Emergency Preparedness Technology, Nuclear Safety Technology Center; 5-1-3-101, Hakusan, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8604, Japan.
E-mail: moriuchi@nustec.or.jp

^{*2} (独) 日本原子力研究開発機構東海研究開発センター原子力科学研究所放射線管理部; 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4 (〒319-1195)
Department of Radiation Protection, Nuclear Science Research Center, Tokai Research Technology Center, Japan Atomic Energy Agency; 2-4, Tokai-mura, Ibaraki 319-1195, Japan.
E-mail: tsutsumi.masahiro@jaea.go.jp

^{*3} (独) 日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門; 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4 (〒319-1195)
Nuclear Science and Engineering Directorate, Japan Atomic Energy Agency; 2-4, Tokai-mura, Ibaraki 319-1195, Japan.
E-mail: saito.kimiaki@jaea.go.jp

を使った γ 線スペクトル解析は、低レベルの環境放射線に関する放射線物理研究、線量率評価、環境放射線モニタリング等の分野で広く実施されている。パルス波高スペクトル測定に使われる放射線検出器には、 γ 線の検出効率が高く、全吸収ピークの効率が高い NaI (Tl) シンチレーション検出器、エネルギー分解能が高くピーク識別能力が優れた Ge 半導体検出器が従来からよく使用されている。これらを使用する標準的なマニュアルとして文部科学省が取りまとめた「空間 γ 線スペクトル測定法」(放射能測定法シリーズ 20)¹⁾があり、環境放射線モニタリング分野での活用を中心に測定解析法や代表的な NaI (Tl) 検出器の応答関数がまとめられている。しかし現実には一部を除き、応答関数はエネルギー間隔が粗く、且つ対象 γ 線のエネルギー範囲も上限が 3 MeV 程度までで、自然放射線を評価対象にした使用に特定されている。また、応答関数が整備されている検出器の形状、寸法が限定されていて、測定するフルエンス率レベルやエ

エネルギー範囲に合わせて任意に選んで利用できないという課題があった。

特に近年、線量評価単位が吸収線量率やカーマ率、さらにシーベルト単位へと多様化が進み、これに伴って線量評価が単純に物理量の測定に止まらない分野へ展開している。測定されたパルス波高スペクトル情報から線量を評価する方法の整備はこのような事態へある程度柔軟に対応するという意味では利点がある。放射線エネルギースペクトル、すなわち空間のフルエンスと多様な線量の関係については、国際放射線単位測定委員会(ICRU)²⁻⁴⁾や国際放射線防護委員会(ICRP)^{5,6)}の報告書において、放射線物理的な理論解析によるフルエンスと線量の諸単位を関連付ける換算係数、線量単位相互間の換算関係を裏付ける資料を提供している。

これまで線量概念や線量単位の変更を経験し、変更があるたびに適宜、換算関係が見直され、従来の単位から新しい単位への対応が進められてきた。大抵の場合このような対応で問題はないと思われるが、スペクトルのような基本測定データから線量評価ができるような多様性を確保しておくことも重要であり、基本量としてのフルエンス、すなわちエネルギースペクトルから線量を算出する線量評価方法を確立しておけば、諸概念の変更への対応もスムーズに進めることが可能と思われる。

以上のような経緯を踏まえ、現在一般に広く使用されている各種サイズ、形状のNaI(Tl)検出器について応答関数を改めて整備するとともに、従来から活用されてきた応答関数との比較を試みた。

II 応答関数の整備

(1) 整備に用いた基本の応答関数

ここで新たに整備を目指した応答関数は、対象 γ 線エネルギーの上限を最大10MeV、応答関数の γ 線エネルギーの刻みを10keV程度の高いエネルギー分解精度を目標とした。応答関数の作成には、単一エネルギーの γ 線を放出する精度の高い線源があれば、実験的に得ることも可能であるが、任意の γ 線エネルギーの線源を得ることは現実に困難である。このような事情から通常、計算で得られた応答関数を基本にして、入手できる線源で確認の上使用するのが一般的である。要求される線量評価精度に見合う高い精度の応答関数を計算できるモンテカルロ計算コードとして、NaI(Tl)シンチレーション検出器応答関数専用のMARTHA⁷⁻⁹⁾、あるいはEGS4^{10,11)}、MCNP¹²⁾のような汎用のモンテカルロ計算コードが知られている。

γ 線エネルギー10keV間隔で10MeVまでの範囲で応答関数を計算するには、1,000個の γ 線エネルギーに対応する応答関数を計算しなければならない上に、統計的に高い精度を得るには十分なヒストリー数(入射光子数10万から100万程度)で計算する必要がある。これだけの数のモンテカルロ計算を検出器ごとに実施するには、相当量の計算時間と作業量を必要とする。また、応答関数のチャンネル幅を変更した場合には追加の計算が必要となる場合もある。このため通常、代表エネルギー数を絞り、パルス波高スペクトルを内挿する方法がとられる。ここでは基本的にこの方法に属する方法で応答関数の整備を進めた。

内挿に用いた基本応答関数は斎藤らが開発したモンテカルロ計算プログラムMARTHA⁷⁻⁹⁾で計算したもので、 γ 線の追跡ヒストリー数をほぼ10万の条件で計算した40keVから10MeVまでの γ 線エネルギー28点の応答関数からなる¹³⁾。ここで整備の対象としたNaI(Tl)シンチレーション検出器は、1"φ×1", 2"φ×2", 3"φ×3", 4"φ×4", 5"φ×4"の5種類の円柱形、2"φ, 3"φ, 5"φの3種類の球形シンチレータで、日本工業規格(JIS)の検出器構造、材質からなるものである。NaI(Tl)シンチレーション検出器の構造は可能な範囲で忠実にモデル化した。検出器容器材料(アルミニウム)、厚み、反射材等をモデルに組み入れることによって容器材料等からの散乱 γ 線、二次電子等の影響を忠実に再現するとともに、二次電子の減速シミュレーションの過程で、吸収エネルギー密度に依存した発光効率の違いで生じるパルス波高スペクトルの非直線性についても考慮した。文献13のモンテカルロ計算で想定された γ 線エネルギー、チャンネル幅、入射 γ 線数をTable 1に示す。

計算結果の精度については、参考文献7, 8で、強度が正確に分かっている点線源を用い、計算と同一の照射

Table 1 Gamma ray energies, channel width and history number of response functions.

Gamma ray Energy (MeV)	Channel Width (keV)	Number of Incident Gamma ray
0.04, 0.005, 0.06 0.08, 0.10	1	100,000
0.13, 0.165, 0.20 0.30, 0.40, 0.50	2	100,000
0.514, 0.60, 0.662 0.80, 0.835, 1.00	5	100,000
1.293, 1.50, 1.835 2.00	10	100,000
2.50, 2.754, 3.00 4.00	20	100,000
6.00, 8.00, 10.0	50	100,000
	100	100,000

条件で測定したパルス波高スペクトルと計算した応答関数を比較し、全検出効率、ピーク計数効率、全体のスペクトル形状等が正確に計算できていることが確認されている。この比較においては、 ^{241}Am , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{88}Y 線源の距離を結晶表面から 10 cm から 30 cm まで変化させ、60 keV から 1.83 MeV のエネルギー範囲で比較を行い、ピーク検出効率で数%以内、周囲からの散乱線の影響を受ける全検出効率においても 5% 以内でほとんどの場合実験値と計算値が一致することを確認した。さらに、 ^{24}Na 点線源からの 2.754 MeV γ 線、ならびに原子炉周辺で観察される ^{14}N からの 6.13 MeV γ 線に対しても、応答関数の相対的な形状が実験値と良く一致することが確認されている^{7~9,14)}。

なお、ここで用いた基本応答関数には、

- ① NaI 結晶の中で吸収された吸収エネルギースペクトル（二次電子のエネルギーに対応した発光効率を考慮）を示すもの、
- ② 光電子増倍管を経て統計的に分散した吸収エネルギースペクトル（共にパルス波高スペクトルに相当）として示したもの、

がある。ここでは γ 線の検出器内における吸収反応別スペクトルの形状を正確に知る必要上、統計的に分散のないスペクトルを内挿の基本スペクトルとして用い、内挿後に必要に応じ統計分散を付与することとした。

(2) 応答関数の内挿と結果の評価

(i) 要素別スペクトル形状の扱いとエネルギーパラメータの内挿法

応答関数の内挿法として一般的に、1) パルス波高スペクトルの同一パルス波高毎の強度を全 γ 線エネルギー範囲に亘って内挿する方法、2) パルス波高スペクトル分布の全吸収ピークの位置を 1 としてエネルギーを基準

化し、1) と同様な方法で内挿する方法、等が一般的であるが、高い精度で内挿するためには何れの場合もスペクトル形状が連続して変化する程度、すなわち不連続に跳躍しない程度の γ 線エネルギー間隔で基本応答関数が得られていることが必要である。ここで用いた基本応答関数は 40 keV から 10 MeV の範囲で 28 個、1 チャンネルあたりのエネルギー幅は γ 線エネルギーで異なっている。ここで整備を目指した応答関数は γ 線エネルギー 10 keV 幅の細かいエネルギー間隔のもので、Table 1 に示すような基本応答関数からでは単純な内挿法では高い精度のものは得られない。このため、ここで採用した応答関数の内挿は次に示すような方法により行った。

この方法はパルス波高スペクトルを、これを構成する各種反応別寄与分布別に分解し、それぞれの成分のスペクトル形状を数式による近似モデルで表わし、 γ 線のエネルギーに依存して変化する各成分の形状、効率を γ 線やパルス波高エネルギーに関するパラメータで一般化する方法で、成分別の各種スペクトルを加算・重畳することによって全体のパルス波高スペクトルを合成する方法である。この方法についてはすでに参考文献 15 に報告しており、その有効性については実証されていることから同じ方法を踏襲しているが、分解スペクトル成分ごとの関数表現パラメータの改良、成分の細分化等を進め、精度の改善を達成している。これら成分別の各種スペクトルを加算・重畳する方法の概要は以下の通りである。

(ii) 反応別の構成スペクトルの発生法

ヒストリー数 10 万程度では、スペクトルを構成する各種の反応の確率が小さいエネルギー領域では、1 ビン当り（チャンネル相当）10 keV 幅に入るイベント数は小さく、統計的に形状が定まりにくい。この問題を解決する方法として前回の報告および本報告では、モンテカル

Table 2 Functions and relating parameters for generating respective spectre spectral elements.

Item	SPECTRAL ELEMENTS	FUNCTION AND RELATING PARAMETERS FOR GENERATING EACH SPECTRAL ELEMENT	
		Function for Forming Spectral Shape	Relating Parameters
1	Total absorption peak	δ -function	Peak efficiency
2	K-X ray peak	δ -function	Peak and K-X ray escape efficiencies
3	Compton spectrum	Coupling of rectangle and exponential function	Compton efficiency
4	Over-tailing of Compton edge	Exponential function	Efficiency of over Compton components
5	Spectrum of 0.511 MeV Annihilation photon from canning	Equivalent to the response function of primary photon of 0.511 MeV	Peak Efficiency of 0.511 MeV pulse height spectrum
6	Spectrum due to positron annihilation in NaI(Tl)	Annihilation related spectrum by Monte Carlo calculation	Compton efficiencies of single and double escape spectrum
7	Single and double escape peak	δ -function	Efficiencies of single escape and double escape peak
8	Tailing after double escape peak	Exponential function	Efficiency of tailing component
9	Broad spectrum components from canning	Coupling of rectangle function and exponential function	Efficiencies of broad component and back scattering component

ロ計算による応答関数の解析から反応別の形状を近似する表現式を予め決めておき、内挿の段階でビン毎の統計誤差の影響が出ないように方法を採用している。全吸収ピーク、K-X線エスケープスペクトル、コンプトンスペクトル等の各スペクトル成分のほか、NaI容器からの散乱線等（コンプトン散乱、二次電子入射、消滅 γ 線寄与分等）の反応別のスペクトル成分はシミュレーション計算による各エネルギーの応答関数を分解する方法で求めた。要素別の反応スペクトル分布は近似する関数、数式でフィッティングした。

成分別のスペクトル形状は基本的に指数関数と台形関数の組み合わせで表現し、各スペクトル成分の発生効率やスペクトル形状表現パラメータは各基本応答関数の値をエネルギー内挿する方法で決定した。今回の報告で取り扱った主要なエネルギー内挿パラメータの種類、形状表現関数形はTable 2に掲げる通りである。前回の報告と比べ、パラメータの数、形状表現関数の数が多く、スペクトル形状の近似精度が向上している。Fig. 1に、 $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl)シンチレータの成分別近似スペクトルの例を、また、同じく $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl)の各種エネルギーガンマ線の合成パルス波高スペクトルの例をFig. 2に、基本応

答関数であるモンテカルロ計算スペクトルと比較して掲げる。基本のモンテカルロ計算スペクトルとよく一致していることが分かる。

(iii) 応答関数の合成結果

元のモンテカルロ計算で想定された γ 線エネルギー以外の部分の応答関数パラメータの内挿によって連続性が確保されていることを示す例を、同じく $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl)の場合についてFig. 3に示す。合成応答関数は統計的な分散の無いもの(2.1の①)と統計的な分散処理を行ったもの(2.1の②)が得られているが、Fig. 3には後者を示す。また、Fig. 4は、合成した統計的に分散の無い応答関数行列を使って、モンテカルロ計算による応答関数（基本応答関数）をアンフォールディングして得た γ 線フルエンスである。ストリッピング法を用いてアンフォールディングを行っているために、アンフォールディング後のスペクトルのピークが広がりを持っているが、ピーク位置以外の擬似スペクトルは殆ど現れていない。これは応答関数の特徴的な形状が精度良く再現され、アンフォールディングが適切に行われたことを示している。分散したスペクトルを積分した値は基本応答関数計算時の照射条件であるフルエンス（100,000 photons/

Fig. 1 Typical elemental spectra composing the response functions and full spectra at the photon energies of 100 keV and 3.0 MeV.

Fig. 2 Comparisons of original and reconstructed response functions of the selected photon energies; A: 40 keV–200 keV, B: 100 keV–500 keV, C: 1.0 MeV–10 MeV. Original response functions are shown with makers, and reconstructed ones are with lines.

Fig. 3 Schematic array of response functions of 3'' ϕ $\times$ 3''NaI(Tl) scintillation detector.

A: displayed up to 300 keV in 10 keV intervals,

B: displayed up to 10 MeV in 300 keV intervals.

$45.6\text{cm}^2 = 2,193\text{ photon}\cdot\text{cm}^{-2}$) をよく再現している。(詳細については以下に述べる解析結果を参照)

以上に述べた方法により応答関数は 40 keV から 10 MeV の範囲で連続的に合成することができたが, NaI (TI) 検出器の大きさ, 種類によってスペクトルの近似精度に違いが見られ, 実用的なエネルギー範囲に差が出た。Fig. 5, Fig. 6 は, 各サイズの円柱形, 球形 NaI(Tl) シンチレータについて内挿・合成した応答関数行列で基本応答関数をアンフォールディングし, 線量換算した結果を示したもので, アンフォールディングで得られたスペクトル解析結果を全エネルギー範囲に亘って積分したフルエンスまたは線量換算値を, 場の標準のフルエンスまたは線量で除した比で示している。この結果を見るとサイズの大きいシンチレータでは合成応答関数の近似精度が高く, また, サイズが小さくなるとともに高エネルギー側でややマイナス側にシフトしていることが分かる。このことは合成した応答関数は元の応答関数よりも過大に再現されていることを意味している。

応答関数の近似精度の影響を受け高エネルギー側では入射 γ 線エネルギー以外のエネルギー領域に擬似ピークが見られる場合があり, 積分値が見かけ上良好な結果を示しても解析スペクトル分布が乱れている場合がある。このような領域を除外し, 全エネルギー範囲に亘って精度の高い解析結果が得られるエネルギー範囲を示したのが Table 3 である。精度の高・低の判断については, アンフォールディングによって得られた γ 線エネルギー

Fig. 4 Results of unfolded photon spectra of original response functions for 3" $\phi \times 3$ " NaI(Tl) by using the reproduced response matrix.

ベクトル分布に主 γ 線エネルギー以外に目立った擬似スペクトルが出現せず, 理論値とのフルエンスと線量換算値の比が $\pm 5\%$ に入ることを選定の基準とした。良好な解析結果が得られていれば, フルエンスと線量換算値は 1.0 に近い値となっている。

Fig. 5, Fig. 6 に示すような積分して得られるフルエンス率や線量率の場合に比べ, エネルギー範囲はやや狭いことが分かる。なお, 40 keV 点に現れている比率の低下は 40 keV スペクトル成分の一部が 30 keV チャンネル側に統計的に分散している (解析結果には反映されない) ことによるものである。この誤差は他のエネルギー域での誤差とともに解析後修正は可能である。

III 実測波高スペクトル, 既存応答関数の解析試験と考察

(1) ^{226}Ra 標準線源の実測波高スペクトルのアンフォールディング試験

正確な応答関数を実験により得るには強度が正確で極力吸収を少なくした点線源あるいは容積が小さく従って吸収・散乱の少ない線源を用いる必要がある。この種の線源としてスペクトル検出器のピーク効率の測定やエネルギー校正に用意された各種の放射能標準線源が利用できる。計算で求めた応答関数の精度の確認に利用できる。得られるパルス波高スペクトルはそのまま応答関数相当となる。また, 線量率で値付けされた線源は, 線源容器自体による吸収や散乱線成分を伴う場合があり, 純粋の単色エネルギーの γ 線として取り扱えない場合が多いが, 線量率で値付けされているため線量評価精度の確認に使うことができる。各種線源, γ 線エネルギーのパルス波高スペクトルの解析例については他の報告¹⁵⁾に委ね, 一例として ^{226}Ra 線量率基準 γ 線源を用いて標準照射した 3" ϕ 球形 NaI (TI) 検出器のパルス波高スペクトルの解析試験の結果を以下に示す。

Table 3 Covering energy ranges of response functions different between various sizes and shapes of the NaI(Tl) scintillators

Type, Shape & Size of NaI(Tl) Scintillator	Energy Ranges without Spurious Energy Peaks after Unfolding
1" $\phi \times 1$ " cylindrical	40 keV - 3.2 MeV
2" $\phi \times 2$ " cylindrical	40 keV - 4.4 MeV
3" $\phi \times 3$ " cylindrical	40 keV - 10 MeV
4" $\phi \times 4$ " cylindrical	40 keV - 10 MeV
5" $\phi \times 4$ " cylindrical	40 keV - 10 MeV
2" ϕ spherical	40 keV - 5.0 MeV
3" ϕ spherical	40 keV - 6.0 MeV
5" ϕ spherical	40 keV - 10.0 MeV

Fig. 5 Error distributions of unfolded fluence and dose by using the reproduced response matrix for the various cylindrical NaI(Tl) scintillation detectors (RATIO means the ratio of the evaluated fluence or dose to the theoretical ones.)

Fig. 6 Error distributions of unfolded fluence and dose by using the reproduced response matrix for the various spherical NaI(Tl) scintillation detectors. (RATIO means the ratio of the evaluated fluence or dose to the theoretical ones.)

Fig. 7 はアンフォールディングの結果であるが、この図から、線源の系列核種の特徴的な γ 線エネルギーピークが分解でき、かつ、推測される γ 線放出割合に大略対応したスペクトル分布が得られていることが分かる。しかし、線源の強度や線量率値付け値に対する定量的な精度評価については、線源の詳細な γ 線放出率や線源容器による吸収等を評価し、検出器に入射する γ 線エネルギースペクトル、フルエンス率を知らなければ議論できない。ここで、線源の線量率に対応した線源強度の推定、線源容器による吸収割合の評価等を行い、可能な範囲で解析精度の検討を実施した。

γ 線エネルギースペクトルの解析精度を試験するには正確な γ 線エネルギースペクトルを知る必要がある。このため、値付けされた線量率に対応した線源の強度を正確に求める必要がある。使用した校正用 Ra 照射線源は 0.7mm の鉄製容器に封入された公称 100 μCi (3.7MBq 相当) の線量校正用 Ra 基準線源 (社団法人日本アイソトープ協会製) である。線量率の値付けは 0.5mm 厚の Pt-

Ir 合金カプセルに封入された Ra 基準線源 (1mg) により比較法によって行われ、その誤差は $\pm 5\%$ である。線量率で値付けされた線源の実質的な線源強度は以下の方法で求めた。

まず、 ^{226}Ra の平衡状態にける全 γ 線について Pt-Ir 壁材と Fe 壁材の各 Ra 基準線源の容器壁材による相対的な遮蔽の違いを計算し、同一線源強度における線量率の違いから校正用線源の線源強度を逆算した。ちなみに 0.5mm の Pt-Ir 合金カプセルに封入された 1mg の Ra 基準線源の距離 1m における照射線量率は 825 $\mu\text{R/h}$ (平衡状態仮定, Gy 単位では 7.23 $\mu\text{Gy/h}$ 相当) である。線源情報、校正法、散乱線寄与等に関する有用な情報は参考資料 1, 16) から 18) にある。

平衡状態の Ra 線源からは、放出率の小さいものまで全て含めてエネルギーの異なる 200 以上の γ 線が放出されており、線量率にはこれら全ての γ 線が寄与する。Ra 線源からの線量率は容器壁材による減衰分を、真エネルギー吸収係数を用いて計算し、評価した。基準線源

の Pt-Ir 合金カプセル壁材による吸収計算については、Ir は質量、原子番号とも Pt に近いことから、Pt の真エネルギー吸収係数で代用させた。線源関連の核データは参考文献 19)、質量エネルギー吸収係数は参考文献 20) より得た。線量率に対する Ra 線源の Pt, Fe 容器壁材による減衰は 0.930, 0.984 となり、Pt 容器, Fe 容器の相対的な差は Fe 容器の値を基準にして 0.945 となった。使用した校正用 Ra 基準線源の線量率値付け値は $80.2 \mu\text{R/h}$ (703 nGy/h) であったことから、試験で使用した Fe 容器封入 Ra 線源の強度は $91.9 \mu\text{Ci}$ (3.40 MBq) 相当となる。これは公称値よりも約 8% 低い値である。

Fig. 8 に、線源強度から計算した γ 線フルエンス率とスペクトル解析から得た結果の例を、主要 γ 線ピークを中心に置いた γ 線エネルギー群別に示した。計算結果と解析結果の比は低いエネルギー部でやや高めの傾向を示した。これは照射試験時の散乱線や線源の値付け精度等が関係しているものと考えられる。なお、エネルギー群 4, 6, 8 で実測/計算比が高い値を示しているのは、主に、NaI 検出器のエネルギー分解能が低いため前後の大きなフルエンス率のエネルギー群からの寄与を受けてい

Fig. 7 Unfolding of a pulse height spectrum for radium standard gamma ray source, measured by $3''\phi$ spherical NaI(Tl) scintillation detector.

ることによるものである。

照射試験時の線源 - 検出器間距離 (d) が 1.524 m 、線源と床面の高さ (h) が 1.0 m で、 h/d 比は 0.66 であった。試験室内での検出器配置状況 (照射試験は複数の研究機関の共同測定として行われたもので、距離 1.5 m の同心円上に 8 個の各種の検出器が配置されていた)、線源や検出器ホルダー等の散乱の影響等を考えると、線量率については少なくとも 6% 以上の散乱線の寄与があったと考えられる^{1, 16, 17, 18)}。校正に使用した基準線源の 1 m 地点における線量率 $80.2 \mu\text{R/h}$ (703 nGy/h) は、 1.524 m の点では $34.5 \mu\text{R/h}$ (302 nGy/h) となる。 1.524 m の点での実測値が 341 nGy/h (照射線量率換算値は $38.9 \mu\text{R/h}$) で、両者に 10% 程度の差がある。スペクトル解析結果から、散乱線寄与はフルエンスについては約 20%, 線量率については約 10% と推定されることから、ここで整備した応答関数を使うことで予想した妥当な解析結果が得られているものと結論できる。なお、より正確な評価精度の確認を行うには、吸収、散乱が無視でき、強度が正確にわかっている放射能標準線源を用い、散乱線寄与を正確に差し引くことができるシャドウシールド法で照射試験を行う必要がある。

(2) 既存応答関数のアンフォールディング試験

環境放射線解析用の代表的な NaI(Tl) シンチレーション検出器の応答関数として、文科省 (旧科学技術庁) が編纂した放射能測定法シリーズ「空間 γ 線スペクトル測定法」(シリーズ番号 20, 平成 2 年, 前出の参考文献 1) に代表的な幾つかが収録されている。また、その一部は参考文献 21 から 25 に別途報告されている。

これらの参考文献に収録されている応答関数は、 $2''\phi \times$

Fig. 8 Comparison of unfolded fluence rate calculated from pulse height spectra measured by a $3''\phi$ spherical NaI(Tl) scintillation detector and theoretical fluence rate in the radiation field exposed by a radium standard gamma ray source.

2", 3" $\phi \times 3$ " 円筒形, 及び 3" ϕ 球形の 3 種であるが, 同一形状の NaI (Tl) シンチレーション検出器について見ても, エネルギービン数, エネルギー幅 (共にエネルギー分解能に関わるもの), 応答関数そのものの形状, 等に違いが見られる。応答関数の形状の違いには, γ 線の入射ジオメトリーが異なることで現れる当然の差と, γ 線の入射ジオメトリーが同じにも関わらず応答関数の形状が異なる絶対的な差の場合がある。ここで同じ照射ジオメトリーの応答関数を選んで本報告で整備した内挿応答関数行列を使ってアンフォールディングすることで, γ 線エネルギースペクトル, 線量評価結果を比較した。ここで示される結果は, 本報告の応答関数を基準にした相対的な差を示すものであって, 本報告の応答関数が正しいことを意味するものではない点に注意する必要がある。解析結果は以下の通りである。なお, スペクトルのアンフォールディングについては参考文献 24 が参考になる。

(i) 3" ϕ 球形 NaI(Tl) シンチレータの場合

球形検出器は, 円柱形状や特殊な形状の検出器と異なり入射放射線の方向性による感度変化がないため, 精度の高い測定に適した検出器として用いられる。先ずこの検出器について, 上に示す文献, 資料に掲げられている応答関数をここで整備した応答関数行列でアンフォールディングすることによって相対的な違いを試験した。試験した応答関数は 5 種類であった。応答関数毎に入射 γ 線のエネルギー間隔, チャンネルのエネルギー幅, 応答関数列数に違いがあるほか, 応答関数がエネルギー幅の中央の γ 線に対応する離散エネルギーのものか, エネルギー幅で平均したものか, 等の詳細が不明な場合があったが, ここではエネルギー幅で平均されたものとして, 内挿した γ 線エネルギー 10 keV 刻みの応答関数行列でスペクトル解析を実施した。これで得られる結果は被試験応答関数がエネルギー幅で平均された応答関数であると見なした解析結果に相当する。

3" ϕ 球形 NaI(Tl) シンチレータ用応答関数 4 例の結果を Fig. 9 に示す。相対比率が 1.0 になれば評価結果はよく一致していることになるが, 図によると γ 線エネルギーが低い方では 1.0 に近い結果となっていて比較的よい一致を示しているが, 高エネルギーでは差が大きくなる傾向が見られる。極端な場合は 3 MeV で 40% 程度の大きなレスポンスの低下がみられる。図に示す比の値が 1.0 よりも小さいまたは大きいということは, 夫々の応答関数を使って解析した結果が図に示す比の逆数分だけ過大に評価, あるいは過小に評価したことになる, とい

う点に注意する必要がある。以上の結果より, 使用する応答関数によって評価結果に 5% から 10% 程度の違いがあることが分かる。大きいもので +70% の過大な結果となる。

(ii) その他形状の応答関数の場合

上に示した球形の検出器の場合は方向性のある入射放射線の場合でも問題なく使用できたが, 円柱形の場合は, 応答関数に入射角度による違いが出るため応答関数を決定した時の条件と同じ照射条件で比較試験を実施する必要がある。ここで解析した応答関数は等方照射条件のものであったが, 照射ジオメトリーを無視して結晶軸並行入射条件の応答関数により解析試験を実施した。解析した結果は 3" $\phi \times 3$ " NaI (Tl) 1 例である。結果を Fig. 10 に示す。なお, 等方入射条件に対応した応答関数で試験的に解析した結果は, 方向特性の違いを反映し, 上に示した違い以上に大きな差が見られた。方向性のない球形の検出器を除く何れの応答関数でも方向分布が不明な放射線場の測定では誤差を伴うものであるが, 球形の検出器で測定した同じ場所の値を標準として補正係数が得られるので, これを使うことで誤差の修正が可能である。

IV 結 言

測定対象の放射線レベルは目的毎に大きな開きがあり, 従来からよく使用されてきた 3" ϕ 球形 NaI (Tl) シンチレーション検出器や 3" $\phi \times 3$ " 円柱形 NaI (Tl) シンチレーション検出器だけでは各種の測定対象に対応できない場合があったが, 今回, より広い測定目的にも対応できるよう, 通常よく使われる球形, 円柱形の大型, 小型検出器について全部で 8 種類の NaI(Tl) シンチレーション検出器について応答関数行列の整備を行った。その結果, 検出器のサイズ及び対象エネルギーによって多少の精度の違いが認められたが, 通常的环境 γ 線エネルギースペクトル解析や線量評価のみではなく他の分野の測定評価目的にも十分使える広いエネルギー範囲と精度の応答関数行列を得ることができた。パルス波高スペクトル情報から直接線量 (率) を得る G(E) 関数を用いた線量評価法はスペクトル解析を経ずに線量が得られることから, 従来から DBM 方式等の線量測定器に使われてきた²⁶⁻²⁹⁾。G(E) 関数計算³⁰⁾に使われた基本応答関数は本報告で使用した基本応答関数と同じものであり, 本報告で整備した応答関数行列を用いたスペクトル解析 (アンフォールディング) による方法, G(E) 関数による方法の線量評価結果は数%の範囲でよく一致している。本報告により, G(E) 関数ならびにアンフォールディング

Fig. 9 Unfolded results of response functions for 3" ϕ spherical NaI(Tl) scintillation detectors reported in the references*), by using the reproduced response matrix.

*) RF-1: analysis results of Minato's response functions¹⁾, R-2: of Urabe's^{1, 21)}, RF-3: Moriuchi's¹⁾ and RF-4: Okano's^{1, 25)}.

Fig. 10 Unfolded results of Minato's response functions for 3" $\phi \times 3$ " cylindrical NaI(Tl) scintillation detector reported in the reference²⁴⁾, by using the reproduced response matrix.

法, 両方法の特徴を生かした相互補完的な測定が様々な状況に対して可能となった。

参 考 文 献

- 1) 文部科学省; 放射能測定法シリーズ 20, 空間 γ 線スペクトル測定法 (1990).
- 2) International Commission on Radiation Units and Measurements (国際放射線単位測定委員会); Measurement of Dose Equivalents from External Photon and Electron Radiations, ICRU REPORT 47 (1992).
- 3) International Commission on Radiation Units and Measurements (国際放射線単位測定委員会), Quantities and Units in Radiation Protection Dosimetry, ICRU REPORT 51 (1993).
- 4) International Commission on Radiation Units and Measurements (国際放射線単位測定委員会); Gamma-Ray Spectrometry in the Environment, ICRU REPORT 53 (1994).
- 5) International Commission on Radiation Units and Measurements (国際放射線防護委員会); Data for Use in Protection Against External Radiation, ICRP Pub. 51 (1988).
- 6) International Commission on Radiation Units and Measurements (国際放射線防護委員会); Conversion Coefficients for Use in Radiological Protection against External Radiation, ICRP Pub 74 (1997).
- 7) K. SAITO and S. MORIUCHI; Monte Carlo calculation of accurate response functions for a NaI(Tl) detector for gamma rays. *Nucl. Instrum. Methods*, **185**, 299–308 (1981).
- 8) K. SAITO and S. MORIUCHI; Monte Carlo Calculation of NaI(Tl) Detector Response Functions for Low Energy Gamma Rays. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **226**, 449–454 (1984).
- 9) 斎藤公明, 森内 茂; モンテカルロ法を用いた NaI(Tl) 検出器応答関数の高精度計算とスペクトル形成過程の解明, JAERI-M 9741 (1981).
- 10) W.R. NELSON, H. HIRAYAMA and D.W.O. ROBERS; The EGS4 code system, SLAC-265 (1985).
- 11) 平山英夫; 保健物理分野の研究への EGS4 の応用, 保健物理, **39**(4), 328–334 (2004).
- 12) BRIESMEISTER, J. F.; MCNP —, a General Monte Carlo N-Particle Transport Code, LA-12625-M (1997).
- 13) 斎藤公明, 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).
- 14) T. MIURA; Assessment of data and methods to form response functions of a $3'' \times 3''$ NaI(Tl) detector, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res.*, **221**, 603–608 (1984).
- 15) Shigeru MORIUCHI, Masahiro TSUTSUMI and Kimiaki SAITO; Development of a dosimetric system using spectrometric technique suitable for operational dose measurements and evaluation, 10th International Congress of The International Radiation Protection Association, IRPA-10 Proceedings, P-3b-197, Hiroshima Japan (May 14–19, 2000).
- 16) 文部科学省; 放射能測定法シリーズ 17, “連続モニタによる環境 γ 線測定法” (1996 年改定).
- 17) (社) 日本アイソトープ協会, “放射能標準体・標準線源とその使用法”, p. 12 (1981 年 5 月 30 日発行)
- 18) (財) 原子力安全研究協会; “環境放射能および環境放射線の計測に関する研究”, (昭和 55 年 9 月)
- 19) E. BROWNE and R. B. FIRESTONE, V. S. SHIRLEY, Editor; “Table of Radioactive Isotopes”, Lawrence Berkley Laboratory, University of California (1986), A Wiley-Interscience Publication, John WILEY & SONS, New York.
- 20) NIST Physics Laboratory, Online Databases, <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/tab3.html>, “X-Ray Attenuation and Absorption for Materials of Dosimetric Interest”, National Institute of Standards and Technology (November 2006)
- 21) I. URABE, T. TSUJIMOTO, K. YAMAZAKI and K. KATSURAYAMA; Estimation of photon energy spectra based on 34×34 response matrix, *J. Radiat. Res.*, **19**, 163–170 (1978).
- 22) M. OKANO; Natural Radiation Environment III, CONF-780422, 867 (1980).
- 23) 湊 進; 環境ガンマ線解析用 $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl) シンチレータのレスポンス行列, 名古屋工業技術試験所報告, **27**, 384–397 (1978).
- 24) 湊 進; 応答行列法による環境ガンマ線波高分布の解析, JCAC, **32**, 2–13 (1998).
- 25) 岡野真治; 環境放射線量測定法, JCAC, **32**, 14–27 (1998).
- 26) 宮永一郎, 森内 茂; 日本原子力学会誌, **9**(8) 440–446 (1967).
- 27) 森内 茂, 宮永一郎; 日本原子力学会誌, **9**(9) 518–523 (1967).

- 28) 森内 茂；スペクトル-線量変換演算子による線量評価法とその演算子の決定，JAERI-1209（1971 年 7 月）。
- 29) 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 年 5 月）。
- 30) 堤 正博，斉藤公明，森内 茂；実効線量当量単位に対応した NaI(Tl) シンチレーション検出器の G(E) 関数（スペクトル - 線量変換演算子）の決定，JAERI-M 91-204（1991 年 12 月）

森内 茂（もりうち しげる）

和歌山県出身。昭和 34 年に日本原子力研究所に入所し，一貫して環境放射線を対象にした線量測定器・測定法に関する研究，環境放射線モニタリング法の技術開発に従事。平成 7 年以降，原子力安全技術センターにおいて緊急時環境放射線モニタリング，環境線量予測関連の業務に従事。工学博士（東京大学）。
E-mail: moriuchi@oregano.ocn.ne.jp