技術報告

フリッケ線量計による高線量率測定法[†]

山本忠利[†], 鈴木伸武

日本原子力研究所高崎研究所

370-12 高崎市綿貫町1233

1981年9月30日 受理

Key Words: Fricke dosimeter, high dose rate, dosimetry

1. はじめに

現在、広く用いられている化学線量計の中で、高線量率域の測定に適した線量計は、フリッケ線量計（硫酸第一鉄線量計）、硫酸第二セリウム線量計¹⁾、硫酸第一鉄-硫酸銅線量計²⁾である。硫酸第二セリウム線量計は安定性および再現性の面で難点があり、硫酸第一鉄-硫酸銅線量計は溶質濃度に依存する欠点がある。現在のところ、信頼性の面でフリッケ線量計に勝るものはない。本報では、フリッケ線量計による高線量率の精度の高い測定方法を確立するため、高線量率の測定に及ぼす諸因子の影響を調べ、従来の線量測定法に、若干、改良を加えた。さらに、フリッケ線量計による測定値を電離箱による測定値と比較した。

2. 実験方法

2.1 水の精製

線量計溶液の調製に用いた3回蒸留水は、ふつうの蒸留水をつぎの順序に従って精製した。①蒸留水約2~3 lに過マンガン酸カリウム(1 g/l)と濃硫酸(5 ml/l)を加えて蒸留。②①による蒸留水に過マンガン酸カリウム(0.1 g/l)とカセイソーダ(5 g/l)を加えて蒸留。③②による蒸留水をそのまま蒸留し、使用前に再度蒸留した。なお、蒸留器には硬質ガラス容器を使用した。

2.2 線量計溶液の調製

線量計溶液は硫酸第一鉄アンモニウム（モール塩）3.920 g、塩化ナトリウム0.015 g、および濃硫酸5.6 mlを3回蒸留水に溶解し、全容を250 mlにして使用した。これにより、線量計溶液は鉄イオン濃度 4×10^{-2} mol/l、塩化ナトリウム濃度 1×10^{-3} mol/lの0.8 N硫酸酸性水溶液となる。試薬はすべて市販特級品（関東化学）をそのまま用いた。

2.3 ガス飽和の方法

(1) 窒素

濃硫酸および3回蒸留水で洗浄した高純度窒素ガス（純度99.999%以上）を30分間線量計溶液に通した。

(2) 酸素

濃硫酸および3回蒸留水で洗浄した酸素ガス（純度99.99%以上）を15分間線量計溶液に通した。

(3) 空気

清浄な空気を20分間線量計溶液に通した。

2.4 γ 線照射

クロム酸混液または希硫酸でよく洗浄した硬質ガラス製試験管（15 mm ϕ $\times$ 80 mmH および 15 mm ϕ $\times$ 150 mmH）、ポリエチレン製試験管、およびステンレス製試験管に線量計溶液を満し、密栓したのち、当所コバルト棟第7ケープ⁶⁰Co板状線源3.7 PBq(100,000 Ci)で γ 線照射した。

2.5 Fe³⁺の定量

生成 Fe³⁺濃度は日立139形分光光度計で、波長304 nmでの照射溶液と未照射溶液の吸光度差を測定して求めた。波長304 nmでの分子吸光係数は20°Cで $2,126 \text{ l} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ とし、その温度補正は1°C当たり+0.7%とした³⁾。

[†] Measurement of High Dose Rates by Fricke Dosimeter. Tadatosh YAMAMOTO and Nobutake SUZUKI: Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma Pref. 370-12, Japan.

[‡] Present address: Division of Environmental Safety Research, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute.

Table 1 Effect of purification of water on dose measurement by Fricke dosimeter of N₂-saturated system

Absorbed dose (rad)	Concentration of Fe ³⁺ formed (10 ⁻⁴ mol/l)				
	Calculated value	Triply distilled water	Doubly distilled water	Deionized water	Distilled water
1.5×10 ⁴	1.29	1.36	1.35	1.20	1.09
2.4×10 ⁴	2.09	2.03	2.02	2.08	1.98
4.6×10 ⁴	4.02	4.07	4.34	3.91	3.90
8.5×10 ⁴	7.45	7.48	7.35	6.91	6.55

(1 Gy=100 rad)

2・6 線量の算出

波長304 nmでのFe³⁺の吸光度から吸収線量D(rad)を次式によって算出し, 照射線量(R)はこの値から換算した。

$$D = \frac{\Delta E \cdot N}{\epsilon_i \cdot d} \times \frac{1}{1000\rho} \times \frac{100}{G(\text{Fe}^{3+})} \times 1.6 \times 10^{-14} \quad (1)$$

ここで, ΔE : 照射によるFe³⁺の吸光度の変化量

N : アボガドロ数(6.023×10^{23})

ϵ_i : 分子吸光係数($\text{l} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$)

d : 試料の厚さ(cm)

ρ : 線量計溶液の密度 (1.025 g/cm^3)

G : 放射線化学的収率 (窒素飽和の場合,

$G=8.2$)

3. 線量測定に及ぼす諸因子の検討

3・1 水の純度

種々の純度の水を用いたときの吸収線量と生成Fe³⁺濃度との関係を Table 1 に示す。用いた水はイオン交換水 (イオン交換樹脂層を通した水で, 比抵抗が $1 \text{ M}\Omega \cdot \text{cm}$ 以上), ふつうの蒸留水 (金属製蒸留器で蒸留), 2回蒸留水 (ふつうの蒸留水に過マンガン酸カリウムと濃硫酸を加えて蒸留した水を, さらに蒸留), および3回蒸留水である。Fe³⁺濃度の計算値は $G(\text{Fe}^{3+})=8.2$ を用いて求めた値である。3回蒸留水および2回蒸留水の場合には, 測定値は計算値とよく一致するが, イオン交換水およびふつうの蒸留水の場合は計算値に比べて低くなる。

3・2 ガス置換時間

ろ過板式ガス洗浄びんを用いて線量計溶液を窒素および酸素でそれぞれ置換 (ガス流速 1 l/min) し, $8.6 \times 10^3 \text{ Gy}$ ($8.6 \times 10^4 \text{ rad}$) 照射してガス置換時間の影響を調べた。酸素置換の場合, 生成Fe³⁺の吸光度はガス置換時間が10分以上ではほとんど一定であり, 窒素置換の場合には5分以上ではほとんど一定であった。

3・3 照射容器の壁材

ガラス製容器, ポリエチレン製容器, およびステンレス製容器に窒素飽和した線量計溶液を満たし, $2.4 \times 10^3 \text{ Gy}$ ($2.4 \times 10^5 \text{ rad}$) 照射して照射容器の壁材の影響を調べた。いずれの照射容器の場合も, 生成Fe³⁺の吸光度は実験誤差内で一致し, 照射容器の壁材の影響は認められなかった。

3・4 線量計溶液の化学的安定性

未照射溶液の安定性を調べるため, 酸素, 空気, および窒素でそれぞれ飽和した線量計溶液を25°Cで放置し, 自動酸化による生成Fe³⁺の吸光度の経時変化を測定した。酸素飽和の場合, 線量計溶液中の生成Fe³⁺の吸光度は放置時間とともに著しく増加し ($0.021/\text{hr}$), 空気飽和の場合はわずかに増加した ($0.005/\text{hr}$)。これに対して, 窒素飽和の場合, 30時間放置してもほとんど変化しなかった。同様に, 照射溶液の安定性を調べるため, 窒素飽和した線量計溶液を 6.8×10^3 および $5.5 \times 10^3 \text{ Gy}$ (6.8×10^5 および $5.5 \times 10^4 \text{ rad}$) 照射したのち, 25°Cで空気中に放置し, 自動酸化による生成Fe³⁺の吸光度の経時変化を測定した。照射後の線量計溶液中の生成Fe³⁺の吸光度は2時間以上の放置時間でわずかに増加 ($0.005/\text{hr}$) したが, 吸収線量には無関係であった。

4. 高線量率域の線量測定

4・1 改良法による線量測定

従来, 広く使用されている窒素飽和フリッケ線量計による線量測定法⁴⁾に基づいて, $25.8 \text{ C/kg} \cdot \text{hr}$ ($1 \times 10^5 \text{ R/hr}$) 以上の高線量率域の線量測定を試みた。照射容器は線源までの距離の再現性を高めるため, 目盛つきスライダに取り付けた照射容器ホルダに固定した。照射容器の中心は線源中心と一致するように照射台上から15 cmの高さにした。照射は⁶⁰Co線源 3.7 PBq ($100,000 \text{ Ci}$) (高さ30 cm, 幅35 cmの板状線源) を用い, 所定位

Table 2 Comparison of usual method and improved methods for exposures

Distance from source (cm)	Measured values with Fricke dosimeter (10^6R/hr)			Measured values with ion chamber (10^6R/hr)
	Usual method	Improved method A	Improved method B	
10	2.75	2.93	2.99	3.46
15	1.92	2.03	2.05	2.33
20	1.35	1.41	1.43	1.65
30	0.775	0.808	0.816	0.927
45	0.413	0.440	0.446	0.476
65	0.221	0.226	0.234	0.251
90	0.121	0.126	0.128	0.138

(1C/kg=3876R)

Table 3 Yield of Fe^{3+} at three methods of measurement

Distance from source (cm)	Yield of $\text{Fe}^{3+}(\%)$		
	Usual method	Improved method A	Improved method B
10	58.66	24.96	31.93
15	41.00	17.30	21.85
20	28.76	12.07	15.28
30	16.55	6.90	8.82
45	8.81	3.75	4.89
65	4.70	1.94	2.56
90	2.56	1.08	1.42

置に照射容器を各2本並べて1時間行った。その測定結果を電離箱による測定結果と合わせて Table 2 に示す。従来法⁴⁾による測定値は、電離箱による測定値に比べて10~25%低くなる。

このような差異の原因として、つぎのことが考えられる。①線量率 $258\text{C/kg}\cdot\text{hr}(1\times 10^6\text{R/hr})$ では、 Fe^{2+} の Fe^{3+} への転換率は28%以上でかなり高く (Table 3)、吸収線量と生成 Fe^{3+} の量との間に直線関係が成り立たなくなっている⁵⁾。②照射はすべての位置で同時に行っているため、後方の照射容器は前方の照射容器による遮蔽の影響を多少受けている。

前述の原因①を除くため、 Fe^{2+} 初濃度を高くし Fe^{3+} への転換率を低減化する測定法 (改良法A) および照射時間を短縮し、 Fe^{3+} への転換率を低減化する測定法 (改良法B) による線量測定実験を試みた。両改良法による測定結果を Table 2 に示す。改良法Aでは Fe^{2+} 初濃度 $1\times 10^{-1}\text{mol/l}$ で1時間照射、改良法Bでは Fe^{2+} 初濃度 $4\times 10^{-2}\text{mol/l}$ で30分間照射した。両改良法による測定値は、いずれの場合も従来法による測定値に比べて4~10%高くなり、 Fe^{2+} の Fe^{3+} への転換率を低

減化することによって測定値は増大した。この場合、 Fe^{3+} への転換率は Table 3 に示すように32%以下であった。

これらの結果から、 Fe^{2+} の Fe^{3+} への転換率の低減化によって、従来の線量測定法が改良されていることは明らかである。

4.2 電離箱による測定値との比較

改良法AおよびBによる測定値は電離箱による測定値に比べて8~16%低くなる。 $258\text{C/kg}\cdot\text{hr}(1\times 10^6\text{R/hr})$ 以下の線量率域 (線源からの距離が20cm以上) における両者の測定値の不一致の原因として、4.1に述べた原因② (前方の照射容器による遮蔽の影響) が考えられ、 $258\text{C/kg}\cdot\text{hr}(1\times 10^6\text{R/hr})$ 以上の線量率域における両者の測定値の不一致の原因として、測定器自体の大きさの違いによる原因が考えられる。電離箱は電極プレート間距離約1mm、集電極直径20mm、電離容積約0.33ccのアルミ電極平行平板型を用いた⁶⁾。そこで、電離箱の大きさを考慮して、 $15\text{mm}\phi\times 80\text{mmH}$ の小型照射容器を用いて、前方の照射容器による影響を除くため、それを単独で置き線量測定実験を試みた (改良法C)。その測定結果を Table 4 に示す。改良法Cによる測定値は、電離箱による測定値と各測定点において比較的よく一致した。

さらに、照射時間として見なされていない線源昇降時に受ける線量に対する補正 f_1 、および照射容器自身による放射線減衰の補正 f_2 を行う必要がある。 f_1 は $f_1=t-\Delta t/t$ として表され、各測定点における線源昇降時に受ける線量の実効照射時間 Δt ⁷⁾を用いて求めた。 f_2 は照射容器自身による放射線強度の平均減衰値に対する照射容器が存在しない空間での放射線強度の比として求められるが、 $f_2=I_0/I=e^{\Sigma\mu_{\text{eff}}x}$ として近似的に表される。照射容器 (ガラス) と線量計容液に

Table 4 Comparison of measured values with Fricke dosimeter and ion chamber

Distance from source (cm)	Measured values with improved method C (10°R/hr)	f_1	f_2	Values corrected by f_1 and f_2 (10°R/hr)	Measured values with ion chamber (10°R/hr)	$\frac{\text{Ion chamber}}{\text{Corrected value}}$
10	3.23	0.992	1.061	3.40	3.46	1.018
15	2.11	0.990		2.22	2.33	1.050
20	1.54	0.989		1.62	1.65	1.019
30	0.896	0.985		0.942	0.927	1.027
45	0.481	0.982		0.501	0.476	0.950
60	0.253	0.981		0.263	0.251	0.954
90	0.139	0.978		0.144	0.138	0.958

(1C/kg=3876R)

よる放射線の減衰も考慮すると, $\mu_1=0.14$, $\mu_2=0.064$ cm^{-1} , $x_1=0.15$, $x_2=0.60$ cmであるので, $f_2=1.061$ となる。改良法Cによる測定値に f_1 および f_2 を用いて補正した値を Table 4 に示す。 f_1 および f_2 の補正を行うことによって, 両測定値は各測定点において5%以下の範囲内でかなりよく一致した。

文 献

- 1) J.H. Harlan and E.J. Hart: *Radiat. Res.*, **9**, 127 (1958)
- 2) E.J. Hart and P.D. Walsh: *ibid.*, **1**, 342(1954)
- 3) C.M. Henderson and N. Miller: *ibid.*, **13**, 641 (1960)
- 4) 寺川彰:「線量測定講習会用テキスト」, 日本原子力研究所, 日本原子力産業会議主催, p. 66 (1960)
- 5) A. Danno, et al.: *Isot. and Radiat.*, **3**, 488 (1960)
- 6) 田中隆一, 田島訓, 河合視己人: 第34回応用物理学会予稿集, p. 304 (1973)
- 7) 田中隆一, 他: JAERI-M 5608 (1973)