

研究論文

002 TLDによる環境モニタリングにおける 基礎的研究

森嶋 彌重, 古賀 妙子, 辰巳 奇男*¹
丹羽 健夫, 河合 廣, 村野 喜彦*²
石田 修*³, 本田 嘉秀*⁴

Fundamental Studies on the Monitoring of Environmental Gamma Radiation Using Thermoluminescence Dosimeters.

Hiroshige MORISHIMA, Taeko KOGA, Kusuo TATSUMI*¹,
Takeo NIWA, Hiroshi KAWAI, Yoshihiko MURANO*²,
Osamu ISHIDA*³ and Yoshihide HONDA*⁴

(Received Sept. 30, 1977)

The characteristics of four different types of thermoluminescence dosimeter, namely $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$, $\text{LiF}:\text{Mg}$, $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ and BeO , were compared for the purpose of measurement of relatively low dose level, such as environmental γ radiation. Among these, $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ and $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ types were considered to be most suitable from the viewpoints of the sensitivity, reproducibility and temperature fading. The minimum detectable limit and uniformity were estimated to be 0.7 mR and 5.9% for $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$, and 0.9 mR and 6.9%, for $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ respectively, from the measurements of environmental radiation dose for 30 days.

The temperature fading at 60°C for $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ during one week was about 10% larger than that at 20°C. It was found that variation of the sensitivity of thermoluminescence reader was sometimes larger than that of thermoluminescence dosimeter itself. Variation of the environmental γ radiation dose rate at the reactor site of UTR-B Kinki University ranged 5–12 $\mu\text{R/hr}$ for a period Apr. 1975–Mar. 1977 using $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ TLD.

1. はじめに

原子力施設をはじめ, 各種研究および医療機関などの放射線施設からの線量寄与を正しく評価するためにはその場所における自然バックグラウンド放射線量を正確に知り, その動向を把握することが必要である。

一方, アメリカの原子力委員会の発電炉規制案も, また昭和50年5月わが国の原子力委員会も ICRP の「As low as practicable」の考え方から, 軽水型発電炉の周辺環境における「線量目標値」(5ミリレム/年)を定めた¹⁾。このような小線量の測定を目的として TLD の有用性が述べられているが²⁾, 筆者らも環境 γ 線線量率測定用モニターの比較を行いバックグラウンドレベルの測定に簡便でかつ感度のよい方法として, 熱ルミネッセンス線量計 (TLD) が適していることを報告した³⁾。実際, TLD の環境モニタリ

*1 ライフサイエンス研究所

*2 医学部付属病院

*3 医学部放射線医学教室

*4 理工学部原子炉工学科

ゲへの適用についての報告が多くなされている⁴⁻⁸⁾。

当研究所敷地内には最大熱出力1ワットの教育訓練用原子炉施設およびRITレーサー・加速器棟が設置され、従来GMサーベイメータおよびシンチレーションサーベイメータ、フィルムバッジなどによる環境 γ 線線量率分布の測定が行われてきた。1975年4月に熱出力1ワットにパワーアップした際、積算線量計として個人被曝線量モニター用TLDを使用して原子炉監

視区域内および原子炉を中心として1.5km範囲内の10地点について、環境 γ 線線量率監視のためのモニタリングを計画した。1975年4月より1977年3月までの二年間について環境 γ 線線量率の変動を1ヶ月間の積算線量を測定して観察した。環境放射線モニタリングに使用するTLDの発光体として低、および中感度のLiFとCaF₂⁴⁾が初期には用いられていたが、これらの素子は環境の気象変化、光照射の影響、素子の

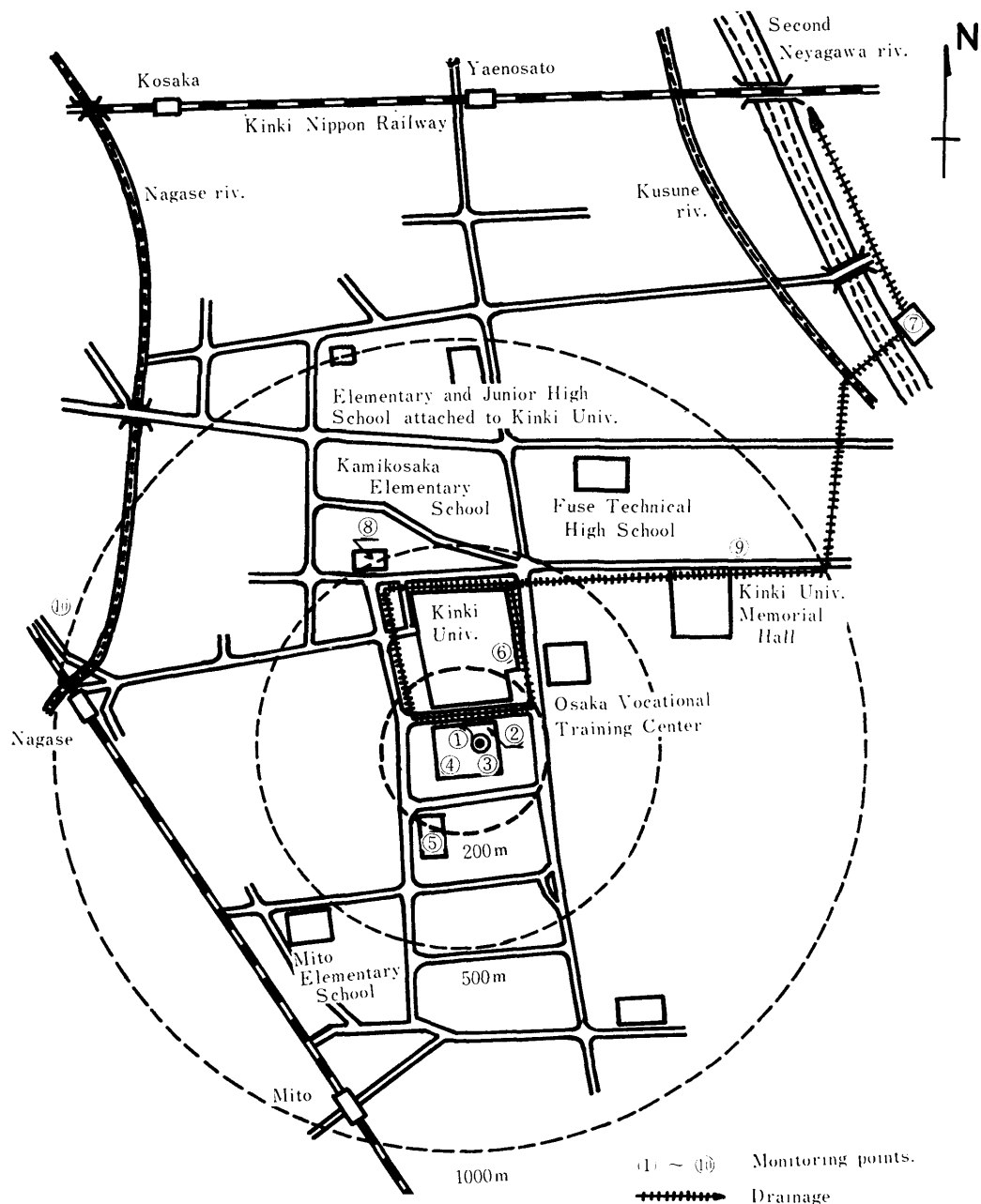


Fig. 1 Monitoring points of environmental γ radiation dose rate.

pre-dose, 感度, 精度などの観点において, 環境モニタとしては必ずしも満足すべきものではないと思われる⁶⁾。今回, 国産の TLD 素子, $\text{LiF}:\text{Mg}$, BeO , $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ および $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ の 4 種について比較的小線量域においてそれらの諸特性について比較検討を行った。

2. 実験方法

2.1 各種 TLD の基礎的特性の比較について

1. TLD 素子には, $\text{LiF}:\text{Mg}$ (根本特殊化学製, NTL-50) 30 本, BeO (松下電器製, UD-170A) およびこれより高感度とされている $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ (極光製, MSO) および $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ (松下電器製, UD-200S) 各々 50 本を使用した。

2. 線量測定は素子を校正用線源 ^{60}Co 3.6 mCi および 3 Ci から一定距離 (10~100 cm) において照射した後, それぞれの熱蛍光測定装置 (アロカ製 TLR-101, 松下電器製 UD-502 および 極光製 1300 型) で 24 時間後に行った。

3. 退行特性いわゆるフェーディングについては ^{60}Co により照射した TLD 素子を未照射のものとともに -15°C から 60°C に調整された恒温器内に入れ, 約 7 日間放置した後測定した。これと 20°C に保存した後測定した線量を基準として相対退行率を次式で求め検討した。

$$\text{相対退行率} = \frac{\text{一定温度で放置した TLD の測定値}}{\text{20}^\circ\text{C に放置した TLD の測定値}}$$

また 20°C および 50°C の恒温器内に入れ, 照射直後より 30 日間にわたり経時的に取り出し測定を行い, フェーディング係数の変化を観察した。

$$\text{フェーディング係数} = \frac{\text{一定時間経過後の測定値}}{\text{照射直後の測定値}}$$

2.2 環境 γ 線線量率の測定

必要, 十分なアニーリングをして残線量が消去されていることを確認した松下電器製 TLD 素子 (UD-200S) $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 4 本を一組として所定のケースに装着した後, ビニール袋に密封しポリエチレン容器 (100 cc) に入れ, Fig. 1 に示した各地点に設置し 1 ヶ月後, 集積線量を測定し 4 本の素子の平均値を用いた。原子炉周辺監視区域内の 4 点については Photo. 1 に示したように高さ 2 m のモニタリングポスト, 他地点はそれぞれの環境状態により異なるが, その内のいくつかを Photo. 2, 3 に示した。

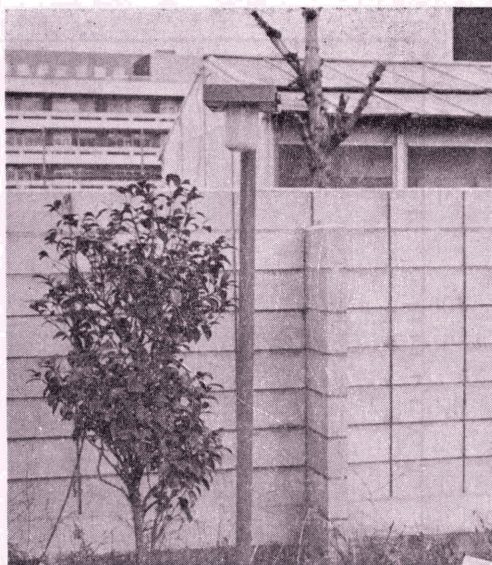


Photo. 1 Monitoring Point No. 1

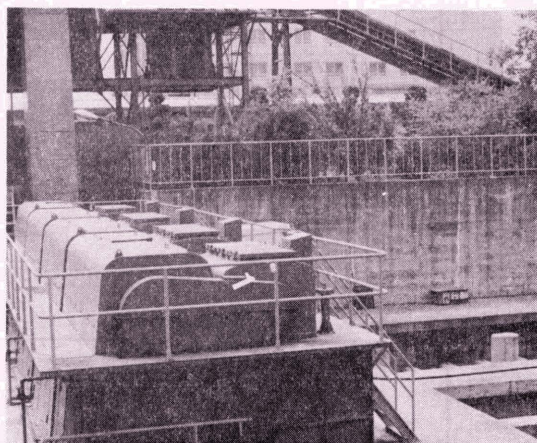


Photo. 2 Monitoring Point No. 7



Photo. 3 Monitoring Point No. 9

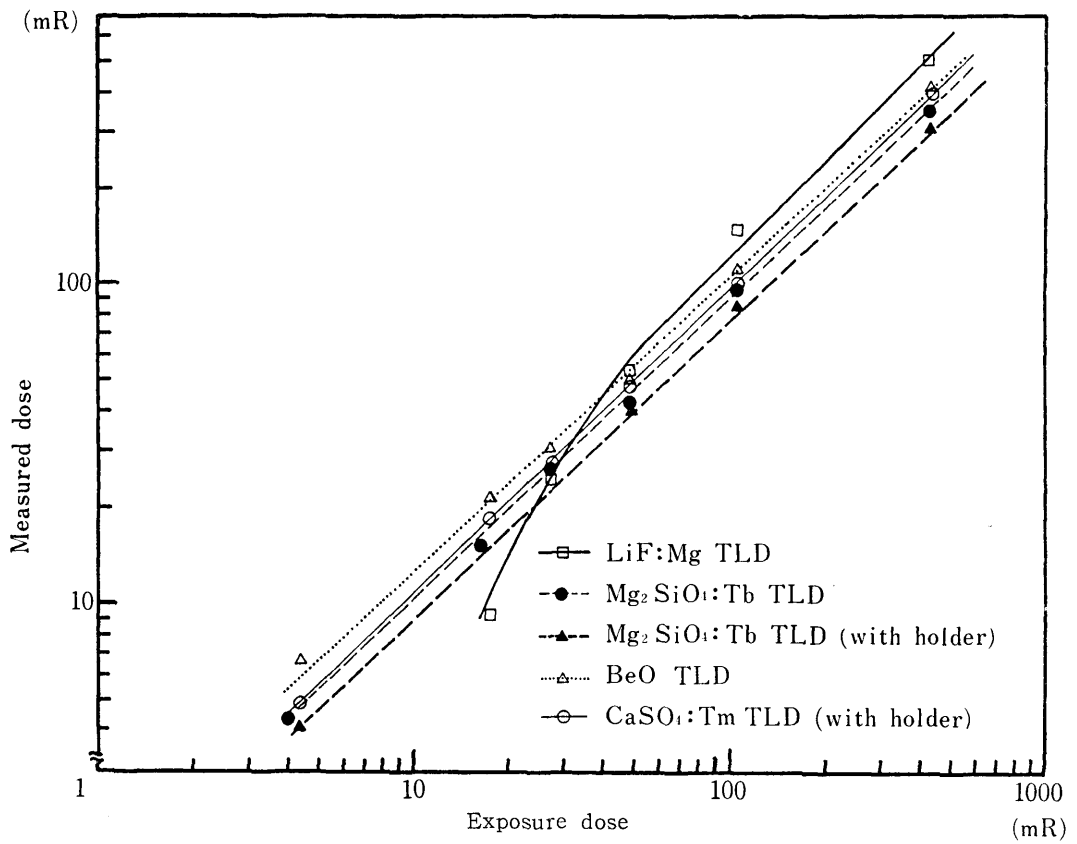


Fig. 2 Calibration curves of several TLD elements.

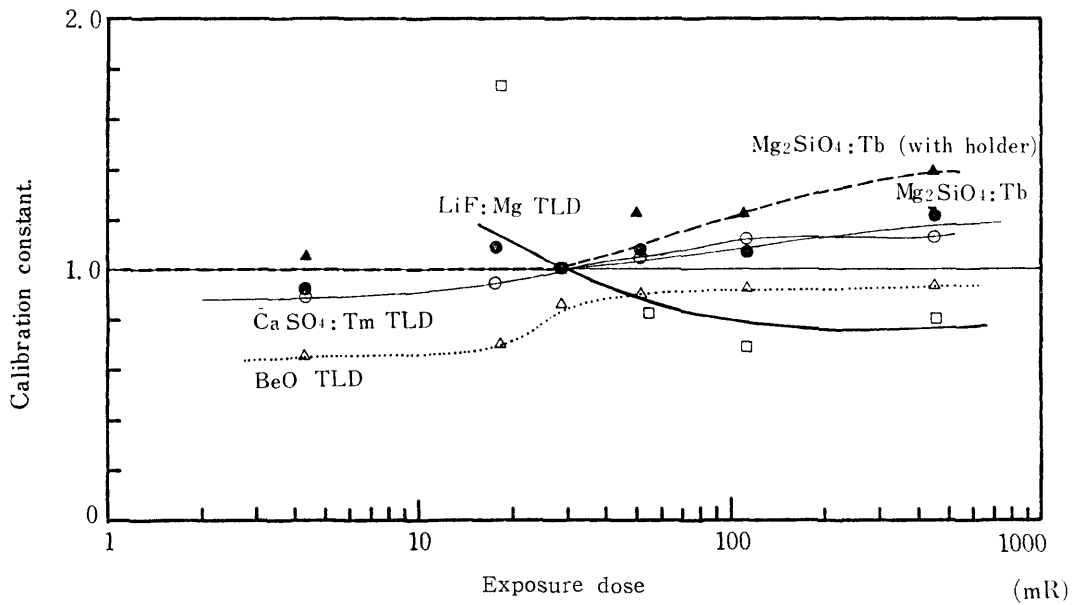


Fig. 3 Calibration constant of several TLD elements.

3. 結果と考察

3.1 各種 TLD 素子の感度および精度について

^{60}Co の校正線源によって行った 4 種の TLD 素子の校正曲線を Fig. 2 に示した。また各線量における校正係数の変化を Fig. 3 に示したが、校正係数は測定値に乗じて真の γ 線照射線量率となる係数である。これらの図からわかるように、今回の実験においては約 4.5 mR から 450 mR の照射線量範囲においても各素子の線量に対する直線性は必ずしも良好ではなく、 $\pm 10\%$ あるいはそれ以上のズレが認められた。この原因については素子の取扱いを含めているいろいろ考えられるが、照射線量の変化を主として線源からの距離の変化によったことが放射線の吸収、散乱などに影響を及ぼしたのかも知れない。しかしこのような要因を考慮しても、 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ および $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ の素子は $\text{LiF}:\text{Mg}$ および BeO の素子に比べて直線性はよいと思われる。これら 4 種の TLD 素子の諸特性を Table 1 に示した。最小検出限界は中島⁶⁾は pre-dose の 3σ としているが、実際に環境放射線量を測定する場合を考慮して著者らはバックグラウンド放射線量を 30 日間測定した時の標準偏差の 2 倍として計算し比較した。これによると $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ および $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ が他の二素子より感度がよく、環境モニタリングへの適用の場合、30 日間の集積線量測定ではば 1 mR が測定可能であり、これは $\mu\text{R/hr}$ オーダーの照射線量率である。 $\text{LiF}:\text{Mg}$ および BeO の実効原子番号は生体組織のそれに近く人体への吸収線量の測定には適しているが $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ および

$\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ の実効原子番号に比べ小さいため¹¹⁾、 γ 線エネルギーの吸収の割合が小さくそれだけ感度が低くなったものと思われる。精度としては、素子相互間の放射線感度のバラツキ（均一性：Uniformity）および 1 素子の繰返し測定における結果のバラツキ（再現性：Reproducibility）を比較し、Table 1, 2 に示した。約 62.5 mR の ^{60}Co γ 線レベルにおいて 10 本の TLD 素子について 5 回ずつ繰返し測定してその相対標準偏差の 10 素子の平均値で再現性を比較するとこの 4 種の TLD 素子の中では $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 素子の変動がもっとも小さく、2.2% となった。 $\text{LiF}:\text{Mg}$ 素子については、5 回続けて測定した場合、順次測定値は減少し感度が低下する傾向にあり、再現性は悪くなった。素子相互間のバラツキは TLD 素子 10 本を同時に照射して測定した結果のバラツキの 5 回の平均値で示し、 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ および BeO が 3~4% ともっとも低かったが γ 線線量 62.5 mR においては $\text{LiF}:\text{Mg}$ 以外は約 10% 以内であった。それぞれの種類の TLD 素子の 30 本について 30 日間のバックグラウンド放射線量を測定した結果、環境状態および測定時期などによっても異なると思われるが 7.6~9.3 $\mu\text{R/hr}$ となり、バックグラウンドレベルでの TLD 素子相互間のバラツキは $\text{LiF}:\text{Mg}$ 素子については 32%、その他の素子については数% 以内であった。Table 2 に示したように、いろいろな γ 線量レベルにおける素子間のバラツキは $\text{LiF}:\text{Mg}$ では 450 mR でも 10% 以上であったが、 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ では 4.5 mR でも素子間のバラツキは数% 以内であった。

TLD 素子の再現性については熱蛍光測定装置自身

Table 1 Characteristics of several TLD elements.

TLD element	Dose linearity*	Minimum detectable limit** (mR)	Background radiation*** ($\mu\text{R/hr}$)	Accuracy (at the exposure level of 62.5 mR)	
				Uniformity	Reproducibility
$\text{LiF}:\text{Mg}$	5 mR ~ 10 ⁴ R	2.7	8.1 \pm 2.7	14.4	28.5
$\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$	0.1 mR ~ 100 R	0.6	9.3 \pm 0.4	10.3	8.2
$\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ (with holder)	0.1 mR ~ 100 R	0.9	8.7 \pm 0.6	7.8	6.1
BeO	1 mR ~ 200 R	1.2	9.3 \pm 0.6	4.4	3.1
$\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ (with holder)	0.1 mR ~ 200 R	0.7	7.6 \pm 0.4	3.2	2.2

* Produced by manufacturers.

** From cumulative dose for 30 days.

*** From cumulative dose for 30 days using 30 elements.

Table 2 Uniformity of TLD elements at various exposure levels.

TLD element	Uniformity (%)				
	4.54 mR	27.2 mR	50.5 mR	113.5 mR	454.1 mR
LiF : Mg	n. d.	23.6	25.4	16.7	12.8
Mg ₂ SiO ₄ : Tb	16.4	10.3	6.0	4.2	4.4
Mg ₂ SiO ₄ : Tb (with holder)	13.7	8.5	8.3	4.1	3.0
BeO	15.1	6.7	7.3	6.3	3.3
CaSO ₄ : Tm (with holder)	3.2	4.3	5.5	5.8	3.9

n. d. : not detectable

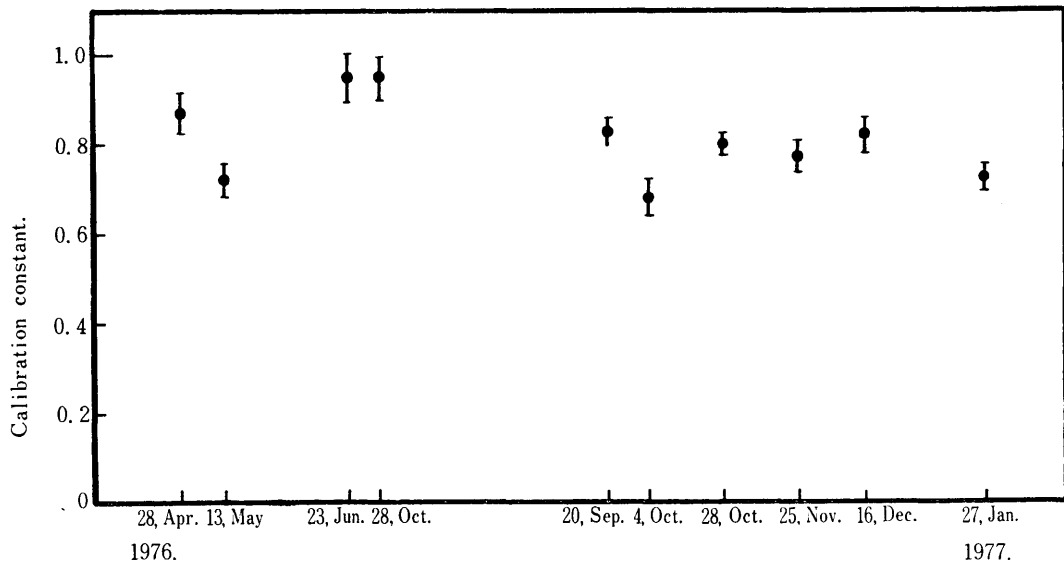


Fig. 4 Variation of relative response on the same TLD reader.
TLD element ; CaSO₄ : Tm.

の変動が大きく影響すると考えられる⁹⁾。そこで同一型式の熱蛍光測定装置(UD502)2台について、同時に測定した場合、同じ条件下で照射したTLD素子(UD-200S)についても校正係数は異なったため、その内の1台について経時的な校正係数の変動を **Fig. 4** に示した。他の1台が校正係数約1前後で変動したのに比較して、これは校正係数の平均値は約0.8と小さく、変動係数は約11%であった。すなわち実験した4種類のTLDの中でもっとも環境放射線量測定に適していると思われる CaSO₄ : Tm 素子についてさえ、同一蛍光測定装置において測定毎に校正係数が変化することはTLDシステムによる線量評価の上で注意すべき

ことである。

3. 2 TLDのフェーディング特性について

TLDのフェーディングについて ⁶⁰Co の校正線源で約20mRを照射したTLD (CaSO₄:Tm) を20°Cおよび50°Cの恒温器に入れ照射直後から30日間の経時の変化を **Fig. 5** に示した。TLDの保存温度が50°Cの時、1時間後には直後の約8%、8日から30日後では、ほぼ一定で約9%の減少が見られた。20°Cの場合は50°Cで放置した場合に比べてフェーディングは少ないことが分った。約20mRを照射したTLD素子を-15°C~60°Cの恒温器に保存した場合のフェ

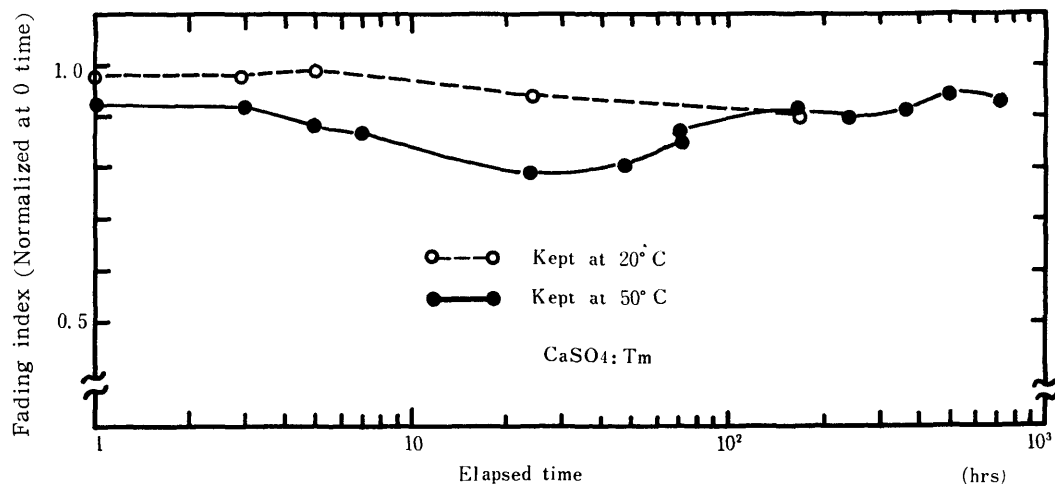
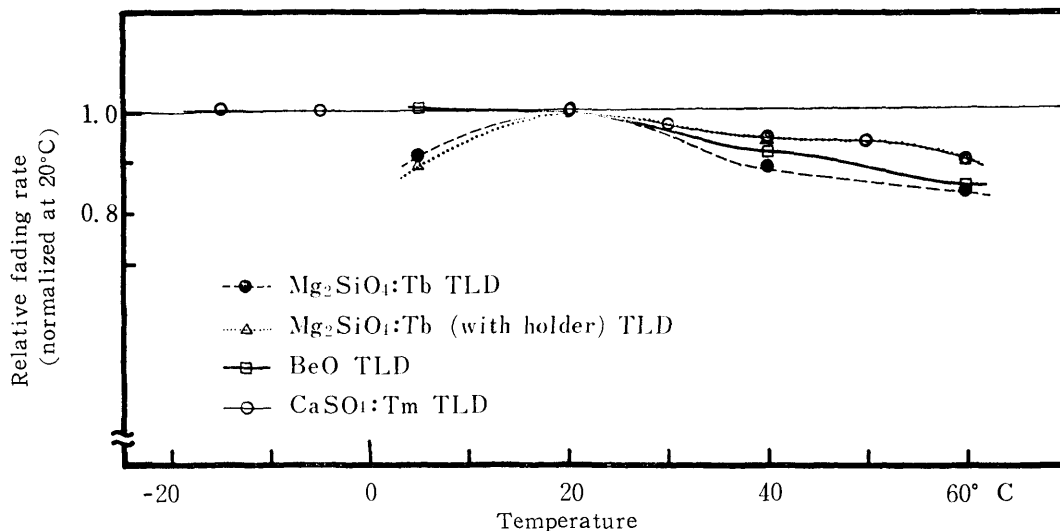
Fig. 5 Time course of fading for $\text{CaSO}_4\text{:Tm}$ element.

Fig. 6 Temperature dependence of fading.

ーディングを Fig. 6 に示した。 $\text{CaSO}_4\text{:Tm}$ については $-15^\circ\text{C} \sim 20^\circ\text{C}$ の温度範囲において相対退行率はほぼ 1 であったが、さらに温度が上昇すると減少し、 60°C においては 20°C の時の測定値の約 10% の減少が見られた。このことは測定値の相対標準偏差が数% 以下であることから、TLD の設置場所の温度環境により影響されるものと思われる。他の 2 種の TLD 素子について観察した結果は $\text{Mg}_2\text{SiO}_4\text{:Tb}$ (ホルダー付) が温度 60°C において約 10% の減少で $\text{CaSO}_4\text{:Tm}$ と共に実験した TLD 素子の中では比較的温度的影響が小さかった。

3. 3 環境 γ 線線量率の変動

1. 気温の変化

本研究所の敷地内にある百葉箱内の気温の変化を 1975 年 4 月から 1 年間について測定した結果から得た分布を Fig. 7 に示した。これによると夏期 (7~9 月) における気温 30°C 以上の月間の割合は 20% を示し、さらに野外に設置したポリエチレン容器内の温度と気温を観察した結果、夏期においては天候などによっても影響されるが、晴天の時にはポリエチレン容器内の最高温度は百葉箱内の気温よりも約 20°C も高くなっていることが分り、夏期に TLD を設置した場所の温度は最高で $50^\circ\text{C} \sim 60^\circ\text{C}$ にもなっていると思われる。

2. 環境 γ 線線量率の変動

原子炉施設周辺監視区域内の 4 ヶ所における 1975

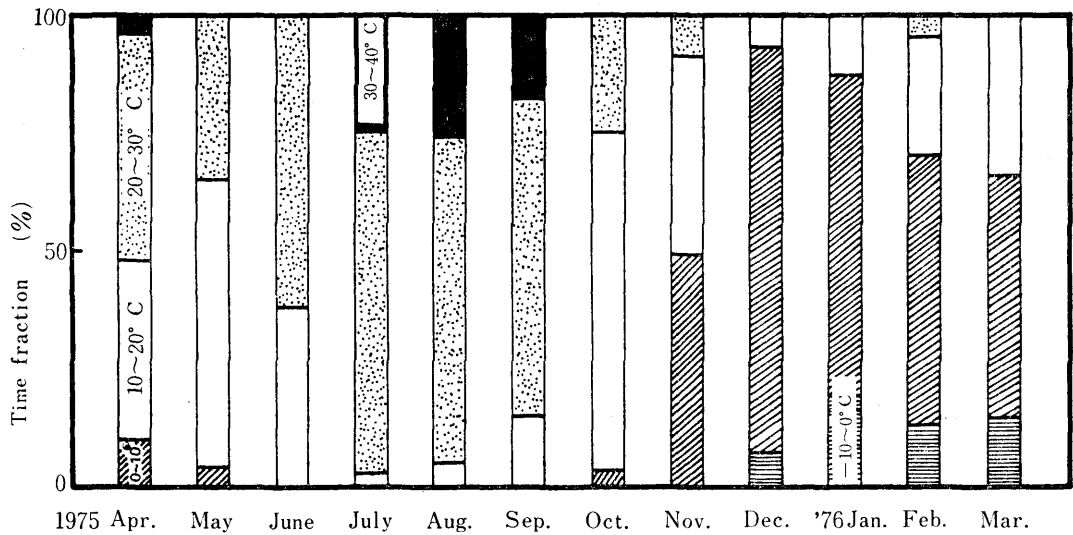


Fig. 7 Distribution of atmospheric temperature during the year of 1975

年4月から1977年3月までの二年間の環境 γ 線線量率の変動を Fig. 8-1 に示した。これによると環境 γ 線線量率は7.0~12.2 μ R/hr の範囲で変動し、1975年には5月に高く、8月に7.0~8.0 μ R/hr と低い季節変動を示したが1976年にははっきりとした変動を示さなかった。また原子炉周辺監視区域外の原子炉より1.5km 範囲内5ヶ所における環境 γ 線線量率分布を Fig. 8-2 に示した。これによると4.9~11.7 μ R/hr 範囲で変動し、周辺監視区域内と同様に春期に高く、夏期に低い季節変動を1975年には示し、1976年には顕著ではなかった。夏期に低い季節変動については

TLDのフェーディング特性についての検討において50°C の環境中においては常温(20°C) の約10%の低下が見られるため、温度による影響もを受けていると思われるが、実際にはそれ以上の変動をしており、放射性降下物の春期に高い季節変動と同じ傾向を示し、また大気中の自然放射能濃度の変動は冬期に高く、夏期に低い傾向と似ており¹⁰⁾それらの影響を受けたものと思われるが、1975年および1976年についてのみ行った結果では必ずしも断定出来ないと思われるので今後の測定が必要である。また地域的に見ると年間を通じ、近畿大学記念会館(モニタリングポイント No. 9)およ

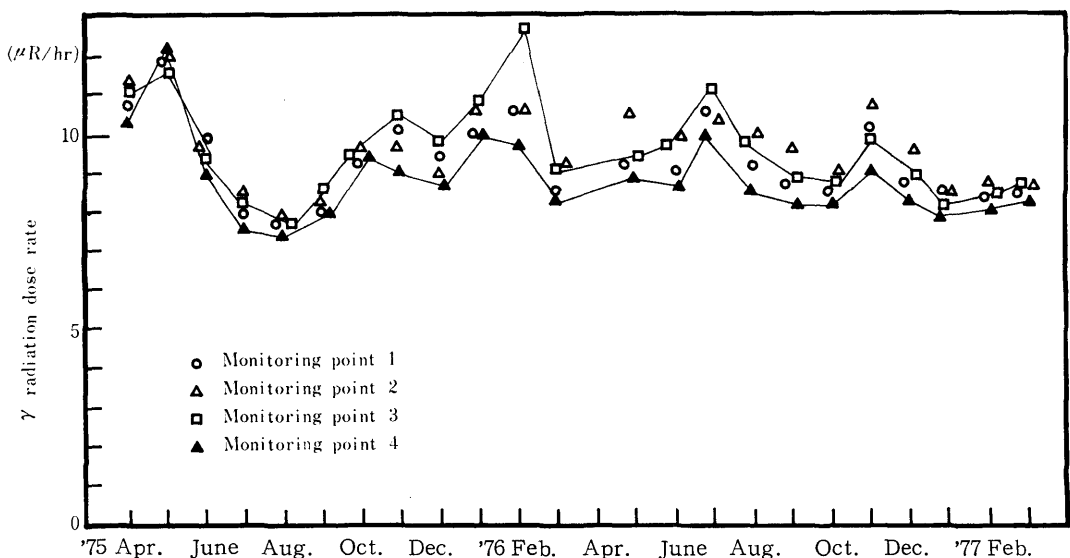


Fig. 8-1 Variation of environmental γ radiation dose rate using TLD.

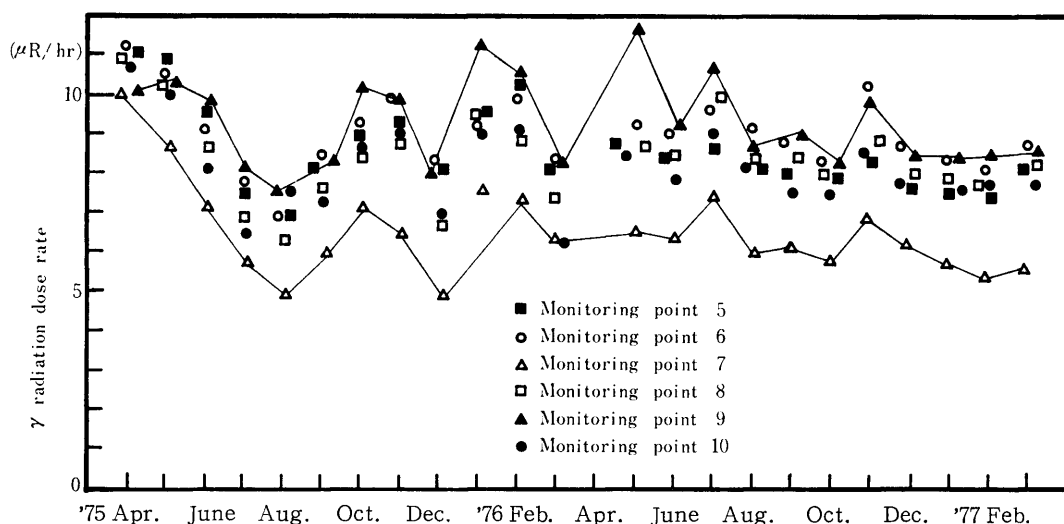


Fig. 8-2 Vaviation of environmental γ radiation dose rate using TLD.

び大学東門(モニタリングポイントNo. 6)において高く、小阪下水処理場(モニタリングポイントNo. 7)において低い傾向を示した。これはモニタリングポイントNo. 6 および No. 9 における TLD 設置場所が直接立木または立木の近くであるため、植物中の ^{40}K の影響を受けているのではないと思われる。モニタリングポイントNo. 7 において他のモニタリングポイントに比べて γ 線線量率が低いのはこの設置場所が周囲より一段低く、またコンクリート舗装されているためコンクリートによる遮蔽効果を示しているものと思われる。このような結果は著者らが γ 線スペクトル法による線量評価法により環境の状態が異なる場所すなわち草地、裸地およびコンクリート舗装上における γ 線線量率を比較した結果、コンクリート舗装上がもっとも低かったことと一致していた¹²⁾。周辺監視区域内における γ 線線量率の変動に比して周辺監視区域外の変動は大きく、これは前者が地上2mの高さのところに比較的大きい(容量2ℓ)ポリエチレン容器に入れて設置しているのに対して後者は設置場所の環境状態がそれぞれ異なり、ポリエチレン瓶も小さい(100cc)などのことが影響していると思われる。

4. ま と め

国産の4種のTLD素子、 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ 、 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ 、 BeO および $\text{LiF}:\text{Mg}$ についてその特性を比較した結果、環境 γ 線線量率レベルの測定には感度および精度の他フェーディング特性なども考慮して $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ および $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ 素子が適していると思われ

る。しかし測定に際しては熱蛍光測定装置の感度変化も含めて測定毎に感度が変化するため標準線源による較正が望ましい。これらの素子のフェーディング特性は温度60°Cに1週間保存した場合測定値は常温(20°C)の場合の約10%の減少を示した。

原子炉周辺の環境 γ 線線量率を $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ のTLD(UD 200S)を用いて1975年～1976年の2年間にわたって測定した結果4.8～12.2 $\mu\text{R/hr}$ と比較的大きく変動したが、これはその測定場所の環境条件とくに温度の影響が大きかったものと思われる。1975年度の環境 γ 線線量率は夏に低く、春期に高い変動を観察したが翌年には必ずしもこのような傾向は認められなかった。

参 考 文 献

- 1) 環境放射線測定専門委員会；“原子力施設周辺の放射線測定の基準化に関する対策研究”，原子力安全研究協会(1976)
- 2) 羽鳥昇，羽後孝，境野宏治，松本満臣，新部英男，加藤正臣；日本医学放射線学会雑誌，**37**(7)，691(1977)
- 3) 森嶋弥重，古賀妙子，河合広，安藤久史，本田嘉秀，三木良太；近畿大学原子力研究所年報，**13**，1(1976)
- 4) K. S. V. Nambi；Environmental Surveillance around Nuclear Installations, Vol. 2, IAEA-SM-180/51, 345(1973)
- 5) S. F. Deus and S. Watanabe；Health Physics, **28**, 793(1975)

- 6) 中島敏行, 渡辺博信, 藤元憲三; 保健物理, **9**, 219 (1974)
- 7) 伊賀和夫, 竹永睦生, 山下忠興, 大西肇; 日本原子力学会誌, **18** (1), 35 (1976)
- 8) C. K. Fitzsimmons, J. T. Whitesell and D. T. Wruble; IAEA-SM-180/35, 119 (1973)
- 9) 岩井敏, 吉沢康雄; 日本保健物理学会 第11回研究発表会, 33 p (1976)
- 10) 片桐浩; NIRS-M-7, 環境放射線測定の現状と将来, 10 p (1975)
- 11) 山下忠興, 長谷川省郎; 原子力工業, **22** (11), 28 (1976)
- 12) 森嶋弥重, 古賀妙子, 河合広他; 未発表