

JAERI - M
85-095

可搬型Ge検出器を用いたin-situ測定法
に関する研究

1985年7月

寺田 博海

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

可搬型 Ge 検出器を用いた in-situ 測定法に関する研究

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

寺 田 博 海

(1985 年 6 月 14 日受理)

可搬型 Ge 検出器を現場に持ち出し、複雑形状の線源を直接測定して放射能強度を定量する in-situ 測定技術の開発を行なった。本報では、可搬型 Ge 検出器の試作、スペクトル解析計算プログラムの作成、実際の野外における環境ガンマ線の in-situ 測定および土壤中放射能濃度、線量率の定量、そして1次系配管に沈着したFP量の非破壊定量測定について述べる。

Study on In-situ Measuring Method
Using a Portable Ge Gamma-ray Detector

Hiromi TERADA

Department Reactor Engineering
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received June 14, 1985)

The study on an in-situ measuring method using a portable Ge gamma-ray detector has been performed.

In this paper are described manufacturing of the portable Ge detector, a computer-programming of a gamma-ray spectrum analysis calculation, in-situ measurements of environmental gamma-rays, quantifying the radioactivities in the soil and the induced exposure rates, and nondestructive measurements of fission-product plateout in the primary duct of the OGL-1.

Keywords : Portable Ge Detector, Gamma-ray Spectrum, In-situ Measurement, Environmental Gamma-rays, Radioactivities in the soil, Exposure Rates, Primary Ducts, Fission-product Plateout, Nondestructive and Quantitative Measuring Method, Mock-up Pipings

目 次

1. 序 論	1
1.1 研究の背景	1
1.2 半導体放射線検出器の開発と in-situ 測定技術	2
1.3 研究の概要	3
参考文献	5
2. 可搬型 Ge ガンマ線検出器の試作および特性測定	6
2.1 緒 言	6
2.2 in-situ 測定用可搬型 Ge 検出器システムの設計	6
2.3 可搬型 Ge 検出器の試作および性能	7
2.4 in-situ 測定用計測システムの耐環境特性	8
2.5 結 言	11
参考文献	12
3. in-situ 測定のためのガンマ線スペクトル解析の方法	22
3.1 緒 言	22
3.2 ガンマ線ピーク解析の数学的記述	23
3.3 小型計算機用スペクトル解析計算プログラムの作成	36
3.4 スペクトル解析プログラムのデータへの適用	41
3.5 結 言	41
参考文献	42
4. in-situ 測定による土壤中放射能の定量	49
4.1 緒 言	49
4.2 土壤放射能定量のための検出効率	50
4.3 in-situ 測定のための Ge 検出器の特性測定	53
4.4 土壤放射能の in-situ 定量測定実験	54
4.5 結 言	55
参考文献	56
5. 環境ガンマ線照射線量率の in-situ 測定	76
5.1 緒 言	76
5.2 HASL 方式による線量率の定量方法	77
5.3 Ge 検出器のスペクトル・線量変換関数 (G(E) 関数) 法	80
5.4 G(E) 関数法および HASL 法による線量率の比較検討	84
5.5 結 言	85
参考文献	88

6. 1 次系配管沈着 FP 放射能の非破壊測定	103
6.1 緒 言	103
6.2 OGL-1 1 次系における FP 沈着量の in-situ 測定	104
6.3 FP 沈着量定量のための換算係数	107
6.4 沈着模擬配管を用いた検証実験	112
6.5 結 言	115
参考文献	117
7. 結 論	146
謝 辞	147
Appendix	148

Contents

1. Introduction	1
1.1 Background of the study	1
1.2 Development of semiconductor radiation detector and in-situ measuring method	2
1.3 Outline of the study	3
References	5
2. Manufacture of a portable Ge gamma-ray detector and measurements of the performances	6
2.1 Introduction	6
2.2 Design of the portable Ge detector system for in-situ use	6
2.3 Manufacturing the portable Ge detector and the performances	7
2.4 Performance tests of the in-situ measuring system under various severe conditions	8
2.5 Conclusion	11
References	12
3. Gamma-ray spectrum analysis method for the in-situ measurement ..	22
3.1 Introduction	22
3.2 Mathematical expression of gamma-ray peak analysis	23
3.3 Programming of spectrum analysis for mini and micro computers	36
3.4 Application of the spectrum-analysis program to the data	41
3.5 Conclusion	41
References	42
4. Quantification of radioactivities in the soil by the in-situ measurements	49
4.1 Introduction	49
4.2 Detection efficiency for quantifying radioactivities in the soil	50
4.3 Calibrations of the in-situ Ge detector	53
4.4 In-situ measurements of gamma-rays due to the activities	54

4.5 Conclusion	55
References	56
5. In-situ measurements of exposure rates due to the environmental gamma-rays	76
5.1 Introduction	76
5.2 Quantifying method of the exposure rate developed by the HASL	77
5.3 Spectrum to dose conversion function method of a Ge detector : G(E) function method	80
5.4 Comparison of the exposure rates obtained with the HASL method and the G(E) function method	84
5.5 Conclusion	85
References	88
6. Nondestructive measurements of fission product plateout in the primary duct	103
6.1 Introduction	103
6.2 In-situ measurements of fission product plateout in the primary circuit of the OGL-1	104
6.3 Conversion coefficient of fission product plateout density ..	107
6.4 Verification experiments of the method using a plateout mock-up piping	112
6.5 Conclusion	115
References	117
7. Conclusion	146
Acknowledgement	147
Appendix	148

1. 序 論

1.1 研究の背景

原子力の平和利用を目的に昭和31年以来、本格的に始まったわが国の原子力開発は、約30年を経過した今日では我われの極く身近な生活に係わる電力の重要な供給源となるほどに、急激な発展を遂げてきている。これにはもちろん、度重なるオイルショックの教訓からエネルギーの石油依存度を低くしようとする政策が加速要因として背景をなしている。今日原子力は、わが国の膨大な総発電量の25%近くを担っており、そう遠くない将来には50%に達すると予測されている。また、原子力エネルギーを発電以外に多目的利用する研究開発も進められており、今後とも益ます原子力開発に拍車がかかるものと思われる。

しかしながら技術革新、高度経済成長の一方では、産業廃棄物に伴う公害問題が深刻となり、科学技術の急速過ぎる開発に大きな警鐘が鳴らされる時代が存在した。原子力開発も例外ではなく、許容被曝基準の切り下げや環境放出規制の強化など従来になかった厳しい条件を満たさなければ、研究すらも立ち往かないことが知らされたのである。さらに、原子力船むつの問題、米国TMI-2の事故などに象徴される原子力への不信感および不安感の増大は未だ払拭されていない。また、わが国の原子力開発は、核燃料サイクルが完結しておらず、再処理技術や廃棄物の終末処理処分技術など重要な部分が残されている。もし、わが国が今後独自の原子力開発を志向するならば、原子炉プラントの経済性と安全性の追求は勿論のこと、以上に述べたダウンストリームに関する技術開発を独力で進めて行かなければならない。

これらの課題を解決して行くには凡ゆる技術の結集が必要不可欠である。国内の他の科学技術開発の現状に目を向けると、半導体集積回路の技術革新によるマイクロエレクトロニクスの普及やファインセラミックスに代表される新素材の開発には目覚ましいものがある。前者の影響を計測技術を例にとって云へば、計測電子回路の信頼性および耐環境性の向上、軽量小型化およびマイクロコンピュータ内蔵によるインテリジェント化などが一挙に進み、センサーの概念や測定方法が大きく変わろうとしている。従来のセンサーでは入出力の関係が直線状であることが必要であった、しかし今日のインテリジェント化によってその必要はなくなった。また、従来かなり複雑で大型の装置構成であった計測機器がコンパクトになり、しかも多機能で高性能、信頼性および耐環境性に優れたものに改良されるようになると、精密な計測器を凡ゆる環境の現場に持ち出して測定を行なうことが可能となる。これによって、限られた場所の少量のサンプリングデータしか得られなかった測定から、種々の箇所における連続的なデータを得ることができるようになる。これを更に進めるとプラントの運転制御に必要な計測監視網を適切にきめ細かくすることができ、不必要な設備安全余裕を切り詰めることができ、プラントの経済性および安全性が飛躍的に向上することにつながる。

原子炉やダウンストリームなどにおける種々のプラントを運転制御する場合、複雑形状の放射能（例えば配管内蔵放射能など）を現場で定量測定する必要性が益ます増大するであろうし、こ

のような計測手法の研究開発が重要となってきた。また、原子力プラントから環境中へ放出する放射能に起因する線量率上昇分、すなわち原子力施設寄与分を自然放射能バックグラウンドから分離して計測する方法も求められている。

1.2 半導体放射線検出器の開発と in-situ 測定技術

今日の所謂技術革新の代名詞的存在として、Ge や Si を用いたダイオード、トランジスタの出現に代表される半導体回路素子の開発がある。さらにその後、IC 回路技術の開発が進み、半導体素子の高密度化によるマイクロエレクトロニクスが飛躍的に進展している。

一方、放射線計測の分野では、1949 年 K. G. McKay が Ge ダイオードの p-n 接合部にアルファ粒子を照射して、これによる電荷パルスを観測して以来、半導体素子を放射線検出に利用する試みが始まった。¹⁾ 1960 年になると、Si 半導体に金を蒸着した表面障壁型 Si 検出器や熱拡散 p-n 接合 Si 検出器を用いたアルファ粒子スペクトル測定が盛んに行なわれ始めた。半導体を用いた放射線検出器の特徴は、エネルギー分解能が極めて優れている点である。

半導体回路素子の開発が小型化高密度化の方向に進んだのとは逆に、放射線検出用の半導体素子の開発では、放射線に対する有感部分を大きくする必要性から素子の大型化を目指した研究開発が進められた。アルファ粒子のみならず電子や陽子のように飛程の長い荷電粒子やガンマ線などの検出には、大型の Si 半導体単結晶を得ること、および Ge など原子番号の高い物質を用いることが必要であった。1962 年には、E. M. Pell が考案した Li ドリフト法を適用して Si 単結晶中に厚い真性領域を放射線有感部としたリチウムドリフト型 Si 検出器 { Si(Li) 検出器 } が出現した。²⁾ 数年後には Ge に対しても Li のドリフトが可能であることが確認され、Ge(Li) 検出器が出現した。さらに A. J. Tavendale らは、円筒形の Ge 単結晶に同軸状に Li をドリフトして、大体積の同軸型 Ge(Li) 検出器を開発した。³⁾ そして 1970 年には、R. N. Hall らが高純度の Ge 単結晶を用いた高純度 Ge 検出器の開発に成功した。⁴⁾ 現在では、Ge(Li) 検出器に代わって高純度型のものが主流となっている。これは測定に使用するときのみ液体窒素による冷却を行なえばよく、保守が容易であるという大きな利点をもっている。

このような開発の歴史を経て、半導体検出器は、放射線計測において一般的なものとして普及してきている。しかしながら、今日においても半導体検出器は極めて高価な理科学器械であり、実験室内に大切に設置しておく場合が殆どである。Ge 検出器は従来の NaI(Tl) 検出器に比較してエネルギー分解能が極めて優れており、測定したガンマ線スペクトルはより多くの情報量を含んでいる。したがって、放射線を発する線源の近傍の現場に Ge 検出器を持ち出してガンマ線スペクトル測定が可能であれば、多量に核種の情報を含んだ有効なデータを採取することができる。先に述べたように原子力施設の安全性および経済性の追求から、より厳密な放射線監視の要求があり、このような現場測定技術のニーズが高まりつつある。現場測定を通常 "in-situ" 測定と呼び、米国では 1972 年頃から HASL (Health and Safety Laboratory) や LLL (Lawrence Livermore Laboratory) などにおいて環境ガンマ線の in-situ 測定が行なわれ始めた。^{5), 6)}

わが国においては、原研の阪井および筆者らが 1974 年頃から可搬型 Ge(Li) 検出器を試作して

in-situ測定を始めた^{7)~11)}。また、理研の岡野や金沢大学の阪上らもGe検出器を用いた環境ガンマ線測定を開始している^{12), 13)}。

1975年頃から筆者らは、in-situ測定法の原子炉施設への応用として1次系配管内蔵放射能の非破壊定量測定法の研究開発を行なってきた^{14)~16)}。

1.3 研究の概要

このような背景から筆者は、Ge検出器を用いたin-situ測定技術の開発と応用について研究を始めた。1974年当時のわが国では、可搬型検出器も高純度Ge検出器も市販品として購入することは困難であった。したがって、in-situ測定用の可搬型検出器をGe(Li)型で試作開発することから研究を始めた。従来では実験室の外に持ち出すことのなかったGe検出器が、種々のin-situ測定現場の環境に適合するための条件および性能などについて明らかにすると共に試作した可搬型Ge(Li)検出器の特性を測定した。第2章に結果を述べる。

また、種々の現場においてガンマ線スペクトルのin-situ測定が可能となると、多量のスペクトルデータが蓄積し、スペクトル解析を迅速に行なう必要が生じる。このため当初は小型計算機による解析プログラムを用いていたが、さらに手軽でしかも数学的に厳密なスペクトル解析計算を測定現場において実施する必要性から、最近急速に普及しているパーソナルコンピュータを用いたスペクトル解析プログラムシステムを作成した。第3章には、国内で最も普及しているパーソナルコンピュータPC-9801(NEC製)を用いたin-situ測定用スペクトル解析プログラムの開発について記す。

以上のように試作開発した可搬型Ge(Li)検出器システムを実際の野外に持ち出して環境ガンマ線のin-situ測定を実施した。第4章には、測定した環境ガンマ線スペクトルを解析して土壤中に存在する天然放射性核種(^{40}K , ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列)およびフォールアウト核種 ^{137}Cs などの濃度を定量するのに必要となる検出器特性の較正方法および結果について述べる。また、in-situ測定によって求めた各核種の土壤中濃度の値を、実際の土壤試料を放射能分析した値と比較し、in-situ測定による定量方法の検討を行なったことについても言及する。

第5章では、同じくin-situ測定した環境ガンマ線スペクトルデータから土壤放射能に起因する線量率を求める方法について述べる。1つの方法はHASL方式に基づいており、土壤中の濃度分布を仮定して核種毎に線量率寄与が求まる。もう1つの方法は、“スペクトル-線量変換関数”をGe検出器スペクトルに適用する方法である。試作した可搬型Ge(Li)検出器に対して較正実験を行ない、Ge検出器に対するスペクトル-線量変換関数を初めて決定した。これを用いて同一の環境ガンマ線スペクトルから線量率を求めた。さらに、NaI(Tl)検出器および電離箱を用いた線量率測定を同時に実施し、結果の比較検討をおこなった。

可搬型Ge(Li)検出器を用いたin-situ測定法の原子炉施設への適用として、1次系配管機器の内面に沈着したFP量を非破壊定量する実験について第6章に述べる。土壤中放射能の定量に比較して1次系沈着FP放射能の定量は、線源の分布が複雑形状となるので、より一層扱いが困難である。このため、Ge検出器に鉛コリメータを取り付け、線源の形状を固定して定量解析を実施した。この定量に用いる換算係数の導出および検出器較正などについて述べる。さらに、

実際の高温照射試験用インパイルガスループ OGL-1 の 1 次系配管 FP 沈着量を in-situ 測定した結果について示す。また、沈着量定量のための換算係数の検証を行なうために、沈着模擬配管を用いて実施した検証実験の結果についても言及する。

参考文献

- 1) McKay, K.G. : Germanium counter, Phys. Rev. 76 1537 (1949)
- 2) Pell, E.M. : Ion Drift in an n-p Junction, J. Appl. Phys. 31, 291 (1960)
- 3) Tavendale, A.J. : Large germanium lithium-drifted p-i-n diodes for gamma-ray spectroscopy, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-12(1) 255-264 (1965)
- 4) Baertsch, R.D. and Hall, R.N. : Gamma-ray detector made from high purity germanium, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-17(3) 235-240 (1970)
- 5) Beck, H.L., DeCampo, J.A. and Gogolak, C.V. : In-situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry, HASL-258 (1972)
- 6) Ansbaugh, L.R., et al. : The in-situ measurement of radio nuclides in the environmental with a Ge(Li) spectrometer, Proc. Natural Radiation Environment II, (1972), UCRL-73904 (1973)
- 7) 阪井英次, 寺田博海, 片桐政樹 : 可搬型 Ge(Li) 検出器を用いた環境ガンマ線の in-situ 測定, JAERI-M 6498 (1976)
- 8) Sakai, E., Tarada, H. and Katagiri, M. : In-situ gamma-ray measurement using Ge(Li) detectors, IEEE Trans., NS-23(1) 726~738 (1976)
- 9) Terada, H., Sakai, E. and Katagiri, M. : Spectrum to exposure rate conversion function of a Ge(Li) in-situ environmental gamma-ray spectrometer, IEEE Trans., NS-24(1) 647~651 (1977)
- 10) Sakai, E., et al. : In-situ environmental gamma-ray spectrometry using an upward-looking dip-stick type Ge(Li) detector, IEEE Trans., NS-25(1) 404~408 (1978)
- 11) Terada, H., Sakai, E. and Katagiri, M. : Environmental gamma-ray exposure rates measured by in-situ Ge(Li) spectrometry, J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 17(4) 281~290 (1980)
- 12) 岡野真治 : 環境放射線測定の基礎, 原子力工業 21 [7], 51 (1975)
- 13) 阪上正信 : 低レベル放射能実験施設, 原子力学会誌 17 (8) 422 ~ (1975)
- 14) Terada, H., et al. : In-situ measurement of fission product plateout in in-pile gas loop using portable Ge(Li) gamma-ray spectrometer, J. Nucl. Sci. Technol. 17 [3], 225~240 (1980)
- 15) Terada, H., et al. : Nondestructive measurement of fission product plateout using in-situ Ge(Li) gamma-ray spectrometer, Proc. 2nd, U.S. Japan Seminar on HTGR Safety Technology, Vol.1 151~161 (1978)
- 16) 片桐政樹, 寺田博海, 高橋秀武 : 可搬型 Ge(Li) 検出器を使用した FP プレートアウト測定 - OGL-1 FP プレートアウト測定のための予備実験 -, JAERI-M 7579 (1978)

2. 可搬型Geガンマ線検出器の試作および特性測定

2.1 緒言

今日市販されているGe検出器の主流は高純度Ge単結晶体を用いた型のものであり、標準的な性能のもので価格は数百万円である。この価格は経済的情勢の全く異なる10数年前のGe(Li)検出器と同じかむしろ安くなっている。当時Ge検出器は極めて高価な精密分析機器であり、実験室に大切に安置され、門外不出の状態にあった。また、Ge(Li)型検出器であったため、液体窒素の補給を怠れば、破壊的な性能劣化を招く。したがってこれを現場に持ち出してin-situ測定を行なうことは極めて冒険的勇気を必要とすることであった。筆者の研究室には当時(昭和49年頃)すでにGe(Li)検出器を手造りする技術が蓄積されており、米国で盛んとなりつゝあったin-situ測定に適する可搬型Ge検出器の試作開発に着手した^{1), 2)}。

本章では可搬型Ge検出器の設計およびその試作開発について述べる。また、可搬型Ge検出器と接続した計測システムをin-situ測定に用いた場合の総合特性として、パルス波高増幅利得のドリフト特性の改善について述べる。

2.2 in-situ 測定用可搬型Ge検出器システムの設計¹⁾

in-situ測定に使用するGe検出器としては、次のような条件を満たすことが望ましい。

- (1) 短時間の測定で十分な統計精度の計数を得るためにできるだけ大きな検出効率をもつ。
- (2) Ge検出器に入射するガンマ線の角度に依存して検出効率が大幅に変ることがない。
- (3) エネルギー分解能およびピーク/コンプトン比が良いこと。
- (4) 検出器の構造材、支持材の中に不純物として存在する放射性核種が可能な限り少ない。
- (5) in-situ測定として持ち運ぶものであるから、できるだけ軽量小型でしかも堅牢な構造であること。
- (6) 液体窒素の消費量が少ないこと。(約1ℓ/日程度)
- (7) 野外などの使用環境を想定して、日射や風雨、湿度および温度変化の影響をなるべく受けない構造であること。
- (8) 取付ける周辺エレクトロニクスの消費電力はできるだけ少ないこと。

これらの条件の重要性は、目的や実験内容によって順序が異なる。

(1)に関してはガンマ線に対する有感領域であるi層(intrinsic layer)の大きなGe単結晶を製作する。(2)に対しては、Ge単結晶の形状を直径と長さが同じ円筒とし、n⁺層やエンドキャップの厚さができるだけ薄くて一様なものとする。(3)に対してはできるだけ小さな静電容量をもち、かつ電荷収集特性のよいGe単結晶が良い。たゞし、(1)の検出効率と相反する関係にあり、目的に応じて最適なものを選ばなければならない。

(4)に対しては検出器周辺の材料(アルミニウム、銅製の結晶支持機構および伝熱棒など)、前置

増幅器および真空用モレキュラシーブなどに含まれる ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{60}Co および ^{137}Cs などの放射能が少ないものを選ぶ。(5)に対しては検出器周辺材料としてアルミニウムの様な軽いものを選び、液体窒素容器は小さいもの(7.5 ℓ程度)にし、持ち運びが容易な形状のものをを用いる。(6)に対しては、Geの単結晶を冷却する機構(クラオスタット)をできるだけ液体窒素の消費量が少なくすむように工夫する。(7)に対しては、高電圧部分に結露が起らないよう電線の材質および太さについても考慮する。日射による増幅器ゲインの変動および液体窒素消費量の増加などがないようにする。また、風で検出器が転倒したり、雨滴による短絡・漏電などを起したりすることのないような工夫を施す必要がある。(8)に対しては、野外など電源供給が困難な場合、ガソリン発電機や電池とDC-ACコンバータを備え、できるだけ消費電力の小さい単純な機能のエレクトロニクスを選んで用いる。

標準的な in-situ 測定用 Ge 検出器システムとしては、7.5 ℓ程度の液体窒素容器をもつクライオスタットに10～20%程度の相対効率と2 keV程度の分解能をもつGe検出器と前置増幅器および高圧フィルタを取付たものが適当である。重量は可搬性の要求を満たすために10～15 kg程度が良い。また、検出器に接続するケーブルは長さ30 m程度の前置増幅器信号、前置増幅器用電源および高圧電源用の3本を束ねたものを作る。スペクトロスコープ増幅器および高圧電源装置、波高分析装置および入出力装置、電源装置等を自動車に搭載したシステムが野外測定には適している。液体窒素を貯留するための大型容器も同時に必要である。

2.3 可搬型 Ge 検出器の試作および性能¹⁾

直径48 mm、長さ44.5 mmのp型Ge単結晶(Hoboken社製)を購入し、リチウムのドリフトを行なって closed-end 同軸型 Ge(Li) 検出器を可搬型にして製作した。

円柱型単結晶の底面を除いた全面にリチウム(Li)を蒸着・熱拡散(400℃, 10分間)させ、 n^+ 層を0.5 mm厚に作る。その後、温度を35℃一定に保ってリチウムをGe結晶中にドリフトさせるために、ノーマルペンタン液槽中に入れ、ドリフト電圧250 V、電流2 Aで約90日間のドリフトプロセスを実施した。その結果、円柱結晶の中心軸に残ったp層芯の直径は12.2 mmとなった。したがって、リチウムによって補償されたi層(intrinsic layer)の厚さは、

$$(48 - 0.5 \times 2 - 12.2) / 2 = 17.4 \text{ mm}$$

となる。円柱の上面からも17.4 mmだけ一様にi層が作られたと仮定すると、i層の体積は、73.2 cm^3 と計算で求められる。

このGe(Li)単結晶をPhoto 2.1に示すように、1.5 mm厚のアルミニウム製の2つ割りのホルダにインジウム(In)箔を巻いて取り付けた。上段および中段の写真は、Ge(Li)単結晶をホルダに乗せた状態、下段の写真はホルダに固定した状態を示す。ホルダの先端部は直径40 mmの窓とし、外からの熱輻射を避けるために薄いアルミニウム板を取り付けた。ホルダは3 mm厚のボロン・ナイトライド板(熱良導体・電氣的絶縁物)を介して、冷却棒にテフロンワッシャーで絶縁したボルトによって取り付けられている。このボルトに細いステンレス線を半田付けし、他端を高圧印加用ハーメチックシール端子に半田付けして n^+ 層へのバイアス電圧印加用に使用した。

Ge (Li)単結晶のp層への接触は、テフロン棒の中にスプリングと針とを仕込んだものを作り、針をp層に押しつけて行なった。針と7本ピンハーメチックシールの1本に細いステンレス線を半田付けして結び、p層から出た検出器出力信号を前置増幅器 (ortec社製 120-4F) の入力に接続するようにした。以上を組み立てた後、1.5 mm厚のアルミニウム製エンドキャップをかぶせた。Fig. 2.1にGe検出器の組み立て詳細図を示す。

以上の組み立て工程が終了したら直ちに、真空バルブを開として、真空排気装置 (油回転ポンプ+油拡散ポンプ+液体窒素トラップ) により速やかに排気し、真空バルブを閉じて真空封じ切りを行なった。

次に、液体窒素容器に液体窒素を供給し、Ge (Li)結晶の冷却を開始する。冷却の過程で Ge (Li)結晶に一定の電力 (700 V, 20 mA程度で12時間) 加え、温度を0℃程度に保持するクーリングアップ処理を行なった。

Ge (Li)単結晶を77°K (液体窒素温度) に冷却した後、漏洩電流および静電容量のバイアス電圧依存特性を測定した。その結果をFig. 2.2に示す。バイアス電圧印加2500Vのとき、漏洩電流は0.1nA以下であり、静電容量は15pF (配線などによる浮遊容量5pFを差し引いた値) であった。

この検出器と標準ガンマ線源との距離を25 cmに保ち、ピーク検出効率および分解能を測定した結果をFig. 2.3に示す。1333 keVのガンマ線 (^{60}Co) に対して分解能2.5 keV、ピーク検出効率は 2.1×10^4 (cts/Photon)であった。この値は3"×3" NaI (Tl) 検出器のピーク検出効率 (1.2×10^3 cts/Photon) に比べて17.5% (相対効率) となった。

2.4 in-situ 測定用計測システムの耐環境特性

2.4.1 in-situ 測定システムの構成

可搬型Ge検出器を用いて環境ガンマ線のin-situ測定を行なう場合には、Photo 2.2に示すように、検出器の中心を地上1 mに支持固定するため3脚を取付けた。Ge検出器には前置増幅器 (ortec 120-4F型) および高圧フィルタ (ortec 119 B型) を取付けた。

計測用電子回路はNIMモジュール用小型ビン電源ortec 401 M/402 Mに、バイアス電源 (ortec 459型)、スペクトロスコピ増幅器 (ortec 450型; 負入力, コースゲイン20, ファインゲイン11.9, 時定数2 μsec, ベースラインレストアラ高計数率, 出力ユニポーラ, 正10 V) を収納した。前置増幅器の出力とスペクトロスコピ増幅器の入力との間、高圧フィルタとバイアス用高圧電源との間は、各々30 m長の同軸ケーブル (RG-62/u) で接続した。前置増幅器の電源はortec 114型を用いた。小型ビン電源の交流100 V入力は100 m長のコードリール (市販品) を用いて、近くの建屋内の電源コンセントに接続するか、発電機 (HONDA EM 3000 J 3 KVA AC 100 V) を使用する方式とした。Fig. 2.4にin-situ測定システムの全構成を示す。

これらのin-situ測定用電子回路を働かせたとき、交流100 Vの電流は0.2 A (高圧電源0.03 A, 前置増幅器0.01 A, スペクトロスコピ増幅器0.15 A) であった。

前置増幅器, 高圧フィルタ, Ge (Li)検出器, クライオスタット, 液体窒素7.5 ℓ, 3脚等の検出器部総重量は16.5 kgとなった。また小型ビン電源, 高圧電源, スペクトロスコピ増幅器およ

びパルサの重量は 1.5 kg になった。

4096 チャンネル波高分析装置については、in-situ 測定用の特種なものを用いることはなかった。通常の市販品で ND-50/50 (Nuclear Data 社製) および CI-8100 (Canberra Industries 社製) を使用した。これらの波高分析装置を通常では、実験室内あるいは測定現場近くの建屋内に設置し、ケーブルを長く引いて接続した状態で用いた。

2.4.2 耐環境特性の測定

(1) 液体窒素の消費特性

試作した可搬型 Ge(Li) 検出器の液体窒素消費特性の測定結果を Fig. 2.5 に示す。上段の図は、Ge(Li) 検出器システムの総重量変化の測定結果を表わしたものである。この曲線の勾配から求めた液体窒素消費率は 0.63 kg/日となった。液体窒素の比重 0.8 で割ると 0.78ℓ/日となる。したがって、7.5 ℓ の容器の場合、6 日に 1 度の頻度で液体窒素の補給が必要となる。通常のディップスティック型クライオスタットの液体窒素消費率は、1 ℓ/日程度であるのに比べて若干小さい。野外の環境中における日射下に本検出器を持ち出したときには、室内に比べて消費量は増加すると考えられる。また、断熱機構の不備や液体窒素容器の真空度劣化などが起った場合には、液体窒素消費量が顕著に増加すると共に検出器エンドキャップ部分や電極端子部分に結露が生じ漏洩電流が増加して使用不能に至る。したがって、液体窒素消費量 (= 液体窒素補給割合) は Ge 検出器性能診断の 1 つの目安として重要である。

(2) ピーク中心位置の変動特性

Fig. 2.4 に示した in-situ 測定用システムを用いて環境ガンマ線のスペクトルを測定した場合、エネルギーの高いピーク (例えば ^{208}Tl の 2614 keV) 中心が大幅に変動する問題に直面することがある。特に晴天の日の朝から正午、夕方から夜の時間帯に最も激しいピーク中心変動 (ドリフト) が生じる。Fig. 2.6 には、 ^{208}Tl の 2614 keV のピーク中心位置 (波高分析装置チャンネル番号) の変動を地上 1.5 m の気温変動の関数として示す。

通常市販品として購入できる前置増幅器およびスペクトロスコープ増幅器の仕様には、温度特性としてゲインドリフトは 0.005 %/℃以下と記されている。Fig. 2.6 の測定において、気温は約 2℃から 15℃に変化しており、温度差は 13℃である。したがって、ゲインドリフトは 0.045 %、ピーク中心位置を 4000 チャンネルとした場合、高々 2 チャンネルのピーク位置変動が仕様上許容される。しかるに実際の測定結果では 75 チャンネルと云う大幅なピーク位置変動が起っていることが分った。

この測定では、スペクトロスコープ増幅器と波高分析装置との間を約 300 m のケーブル (3 C 2 V) で接続し、波高分析装置の入力の所で 75 Ω に終端した。波高分析装置は空気調節設備のある実験室内にあり、その他の in-situ 測定システムは全て屋外に設置した状態で使用した。

このような大幅なピーク位置ドリフトの原因を調べるために、in-situ 測定用システムの各部分を恒温槽に入れてピーク位置ドリフト特性の測定を行なった。

Fig. 2.7 に示すように、主増幅器と波高分析装置を接続するケーブルを恒温槽に入れ、温度を 5℃～35℃変化させた場合のパルサピークおよび ^{88}Y のピーク (1836 keV) の中心チャネ

ル変動の測定結果が最も大きかった。接続の組み合わせは、

(A) 増幅器出力 0 Ω , ケーブル受信側 75 Ω 終端 (a-d)

(B) 増幅器出力 93 Ω , ケーブル受信側終端抵抗なし (b-c)

であった。

(A) の場合、温度変化 5 $^{\circ}\text{C} \rightarrow 35^{\circ}\text{C}$ に対して、パルサピークおよび ^{88}Y (1836 keV) のピークの中心変動は、減少する方向に 60 チャンネルおよび 51 チャンネルであった。

(B) の場合、同様な温度変化に対して、パルサピークおよび ^{88}Y ピークのドリフトは、減少する方向に夫々 9 チャンネルおよび 6 チャンネルであった。

Table 2.1 に実験結果をまとめて示す。ケーブル (3 C 2 V 100 m) の電気抵抗は、5 $^{\circ}\text{C}$ において 10.454 Ω , 35 $^{\circ}\text{C}$ で 11.60 Ω であった。

以上の結果から in-situ 測定においては、(B) の接続方法を採用すべきであることが分る。(A) および (B) の接続方法は同じ様にケーブルの反射を防ぐために終端抵抗を用いたのであるが、ケーブル温度の変動に伴うゲインドリフトの観点から見ると全く異なった効果をもたらしている。この理由として次のように考えられる。

Fig. 2.8 に信号源 (送端)、ケーブル、負荷 (受端) を等価的に示す。負荷 Z_L の両端にかかる電圧 V_L は、

$$V_L = V_S \frac{Z_L}{Z_0 + Z_S} \quad (2.1)$$

である。ここで、

V_S : 信号源電圧

Z_0 : 出力インピーダンス

Z_L : 負荷抵抗

である。

通常負荷抵抗 Z_L は受信装置の入力インピーダンスであり、高い抵抗値をもっている。このため (A) の場合、同軸ケーブルの受端で高い入力インピーダンスをケーブルの特性インピーダンスと整合させて反射を防止するため、75 Ω の終端抵抗を用いている。すなわち、この場合、ケーブルの電気抵抗を (2.1) 式の Z_0 , 75 Ω の終端抵抗を Z_L と見做すことができる。(2.1) 式を変形し、

$$\frac{V_L}{V_S} = \frac{Z_L}{Z_0 + Z_L} \quad (2.2)$$

を得る。さらに温度変化 ΔT ($= 20^{\circ}\text{C}$) に起因する Z_0 の変化

$$\Delta Z_0 = \Delta R = 11.60 - 10.46 = 1.14 \Omega$$

となる。これによる (2.2) 式の変動分は、

$$\Delta \left(\frac{V_L}{V_S} \right) = -1.16 \% \quad (2.3)$$

である。この値をチャンネル数に換算するとパルサピークに対して 42 チャンネル, ^{88}Y (1836 keV)

ピークに対して 36 チャンネルのピーク中心位置変動が起ることになる。

Table 3.1 の実験結果に比べると上の計算値はまだ過少評価となっている。しかし、ピーク中心位置ドリフトの主要原因が、日射や気温変動によるケーブル電気抵抗値変動に起因していることが分った。残りの変動成分はケーブルのインダクタンス (L) およびキャパシタンス (C) の温度変化による変動が電気抵抗値の変動寄与に重畳したものと考えられる。(B) の接続をした場合、ケーブルの特性インピーダンスと等しい電気抵抗器を出力インピーダンス Z_t として送端に入れることになる。このような送端にケーブルを接続すると、ケーブルの受端側の入力インピーダンス Z_L が高くても反射を起さない。さらにケーブルの電気抵抗を含めた出力インピーダンス Z_0 は、

$$Z_0 = Z_t + R \quad (2.4)$$

で表わされる。こゝで、

Z_t : スペクトロスコープ増幅器の出力抵抗 (93 Ω)

R : ケーブル (3C 2V 100 m) の抵抗値

である。また、通常波高分析装置の ADC 入力の入力インピーダンス Z_L は、

$$Z_L \gg Z_0 \quad (2.5)$$

である。したがって (B) の場合 (2.2) 式の値は

$$\frac{V_L}{V_S} = 1 \quad (2.6)$$

となる。つまり、ピーク中心位置変動の主要原因であったケーブル電気抵抗の変動の影響は (B) の接続では殆んどないことを意味する。事実、Table 2.1 の実験結果に示すように (B) のピーク中心位置変動は (A) に比較して極めて小さい。

2.5 結 言

in-situ 測定に用いることを目的とした可搬型 Ge 検出器の設計を行ない、これに基づいて試作開発を行なった。

試作した検出器の基本性能として、相対検出効率 17.5 %, 半値幅分解能 2.5 keV を得た。また、可搬型を目的としているので冷却用液体窒素容器には、容量 7.5 ℓ の小型のものを用了。さらに、Ge 単結晶体を液体窒素容器に保持し、冷却を行なうための伝熱棒として Al 材のものを用了。伝熱の点では銅材が最も適しているが、ガンマ線測定の場合には後方散乱の原因となるので、Ge 単結晶体の近傍に用いるのは望ましくない。ただし、Al 材を用了場合、液体窒素容器への取付および Ge 単結晶体の保持などを厳重に行なわないと冷却が不十分となるので注意しなければならない。さらに、Ge 単結晶体に接続するリード線の材質の選択も重要である。試作の初期にはリード線として銅線を用いていたが、湿気の多い場所では、高圧電源用および信号用ハーメチックシールのピンに結露が生じ易いことが分った。このため細いステンレス線をリード線に用い、結露の問題を解決することができた。以上のような試行錯誤を重ねた結果として、この検出器の

液体窒素消費量は0.78 ℓ/日となり、6日に1度の液体窒素補給を行なうことにより十分維持できるようになった。液体窒素を容器一杯に満し、支持用の三脚および台を取り付けた状態のGe検出器総重量は16.5 kgに抑えることができ、in-situ測定のための運搬は極めて容易であった。

可搬型Ge検出器に計測電子回路を接続したin-situスペクトル測定システムの総合性能として、屋外の環境中に設置した場合のピーク中心位置変動特性を調べた。その結果として、スペクトロスコーピ増幅器と波高分析装置を結ぶ信号ケーブルの終端処理を波高分析装置の受端側で行なった場合、ケーブルの電気抵抗が周囲温度によって変化するのに伴ってピーク中心位置が大幅に変動することが分った。このため、ケーブルの終端処理をスペクトロスコーピ増幅器の送端側で行なうことにした。これによってピーク中心位置の変動を極めて小さくすることが分った。

参考文献

- 1) 阪井英次, 寺田博海, 片桐政樹: 可搬型Ge(Li)検出器を用いた環境ガンマ線のin-situ測定, JAERI-M 6498 (1976)
- 2) 阪井英次他: 可搬型Ge(Li)検出器を用いたJRR-3原子炉におけるガンマ線スペクトル測定, JAERI-M 6024 (1975)
- 3) 藤野充平他: In-situ Ge(Li)検出器による環境ガンマ線の時間的変動の測定(II)ーパルス波高のドリフトの原因の検討ー, 原子力学会 昭和51年秋の分科会 予稿集(II) F61 p.139

Table 2.1 Variation in center channel-number of pulser peak
and 1836keV gamma-ray peak

	Pulser peak			1836keV gamma-ray peak		
	5°C	35°C	Difference	5°C	35°C	Difference
(A) a-d	3566	3506	60	3136	3112	51
(B) b-c	3792	3781	9	3364	3558	6

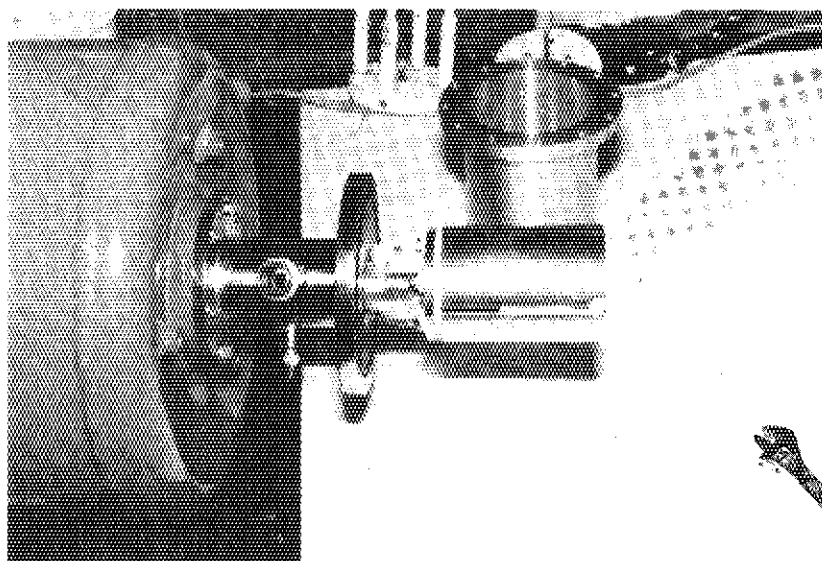
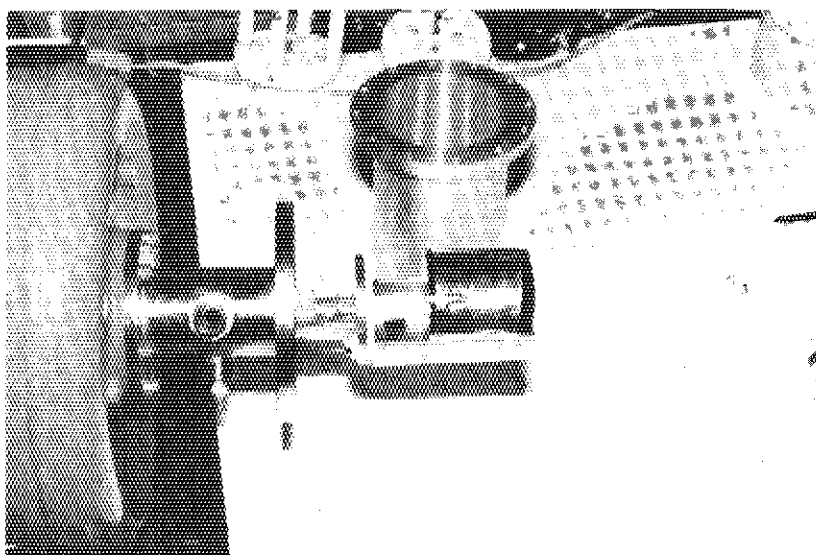
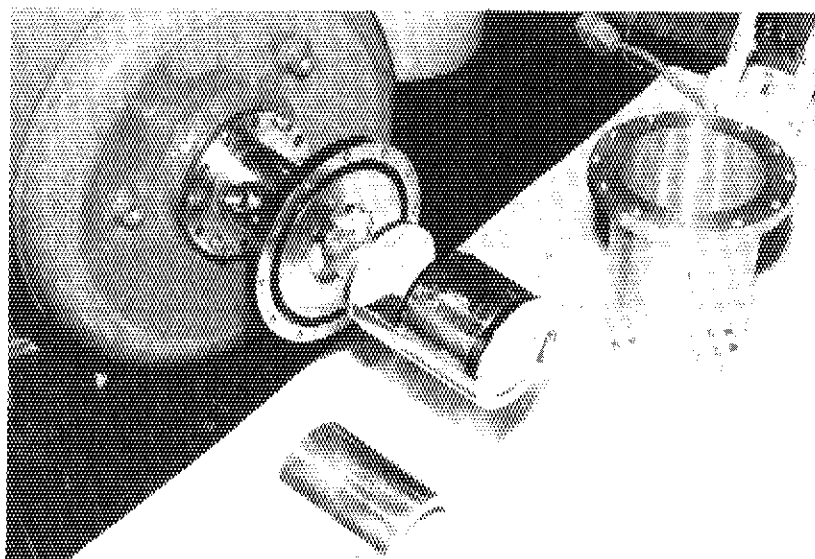


Photo. 2.1 Ge(Li) detector mounting procedure¹⁾

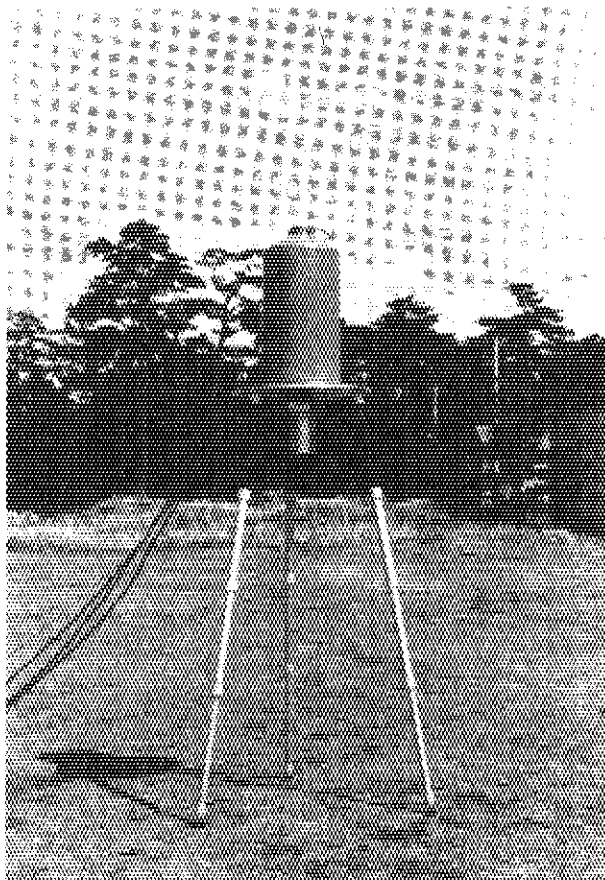


Photo. 2.2 Photograph of portable in-situ environmental gamma-ray spectrometer (73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) detector in 7.5 liter liquid nitrogen cryostat)

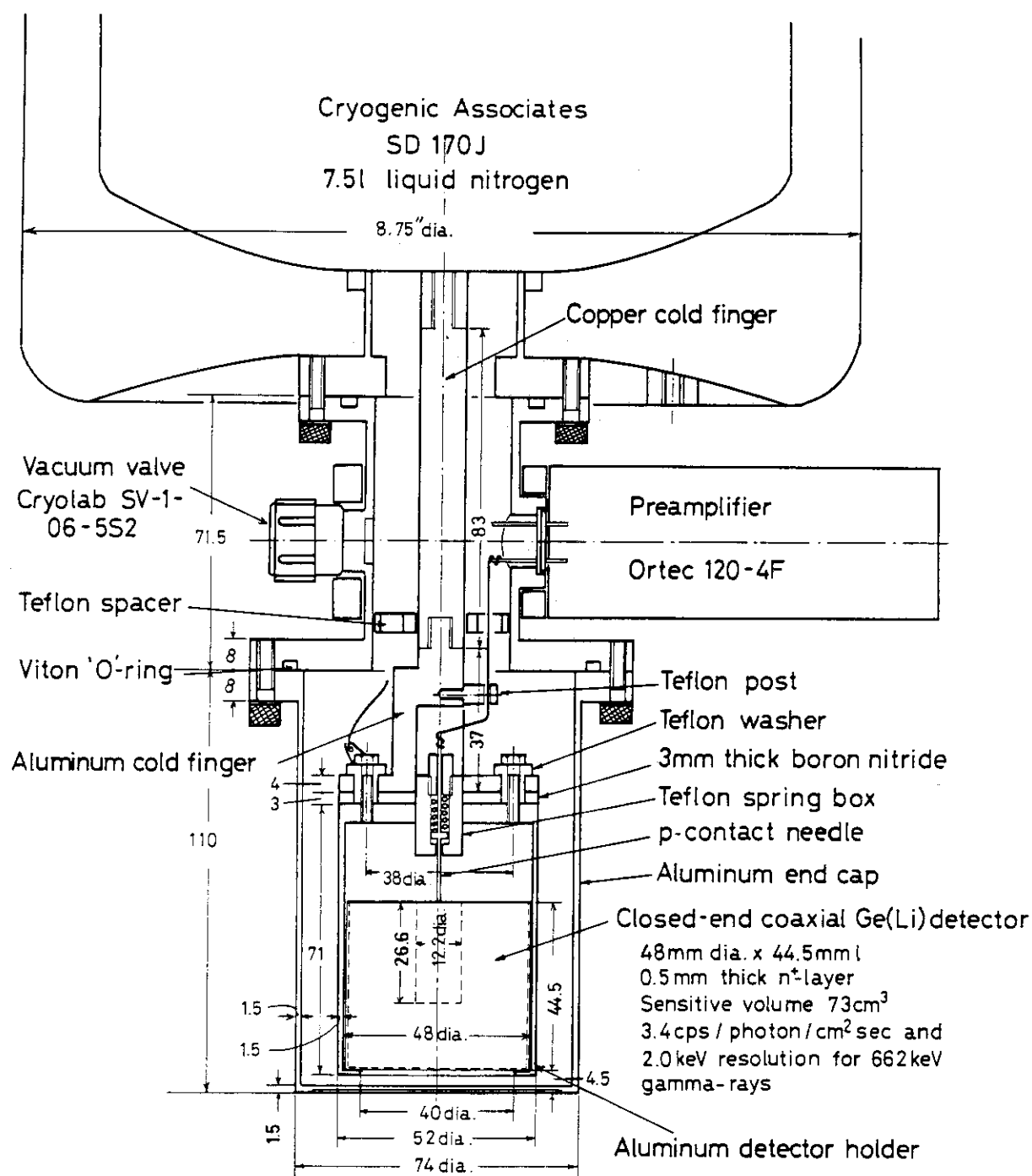


Fig. 2.1 Mounting detail of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) detector for in-situ gamma-ray measurement¹⁾

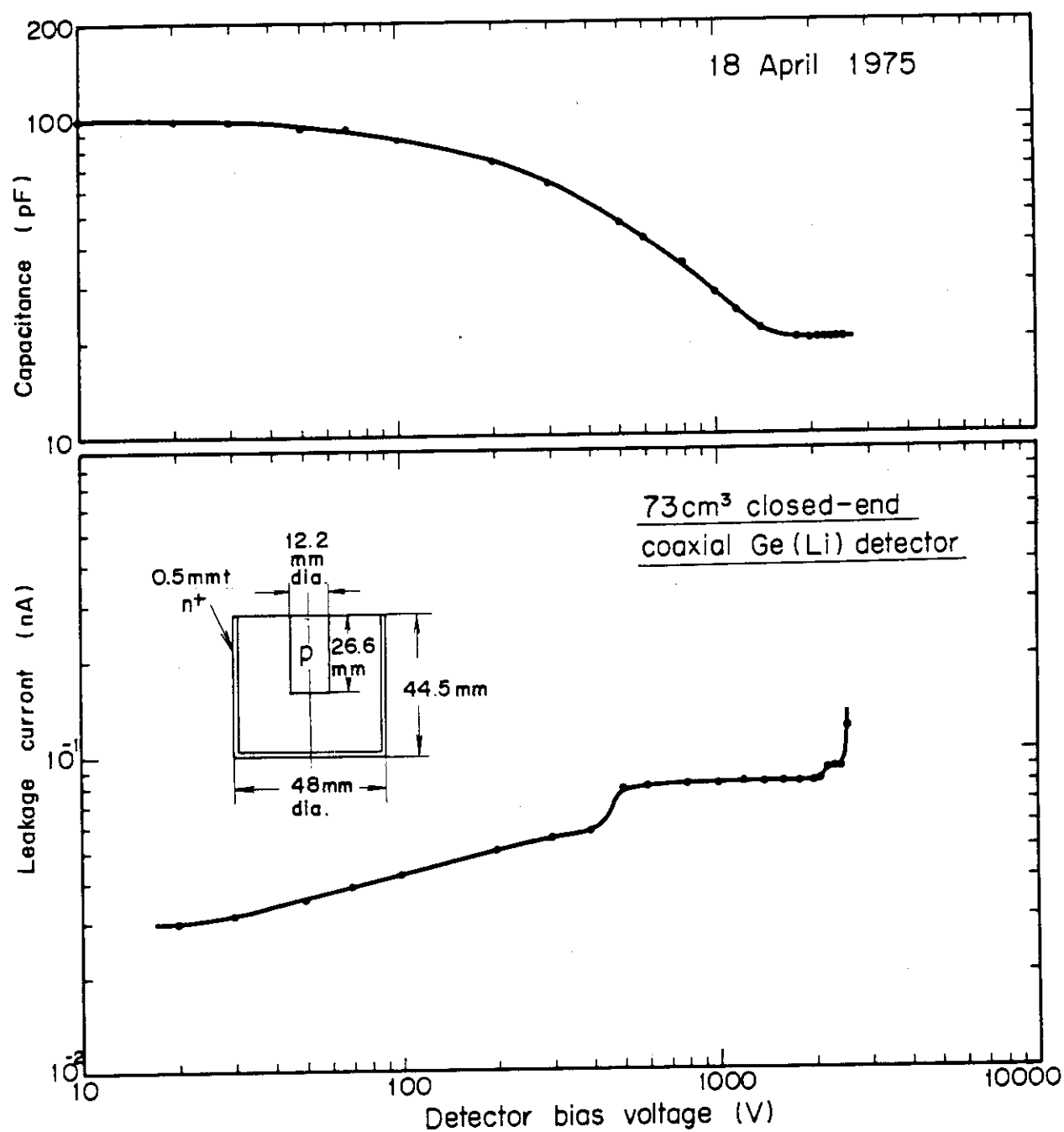


Fig. 2.2 Capacitance and leakage current vs. bias voltage characteristics of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) detector

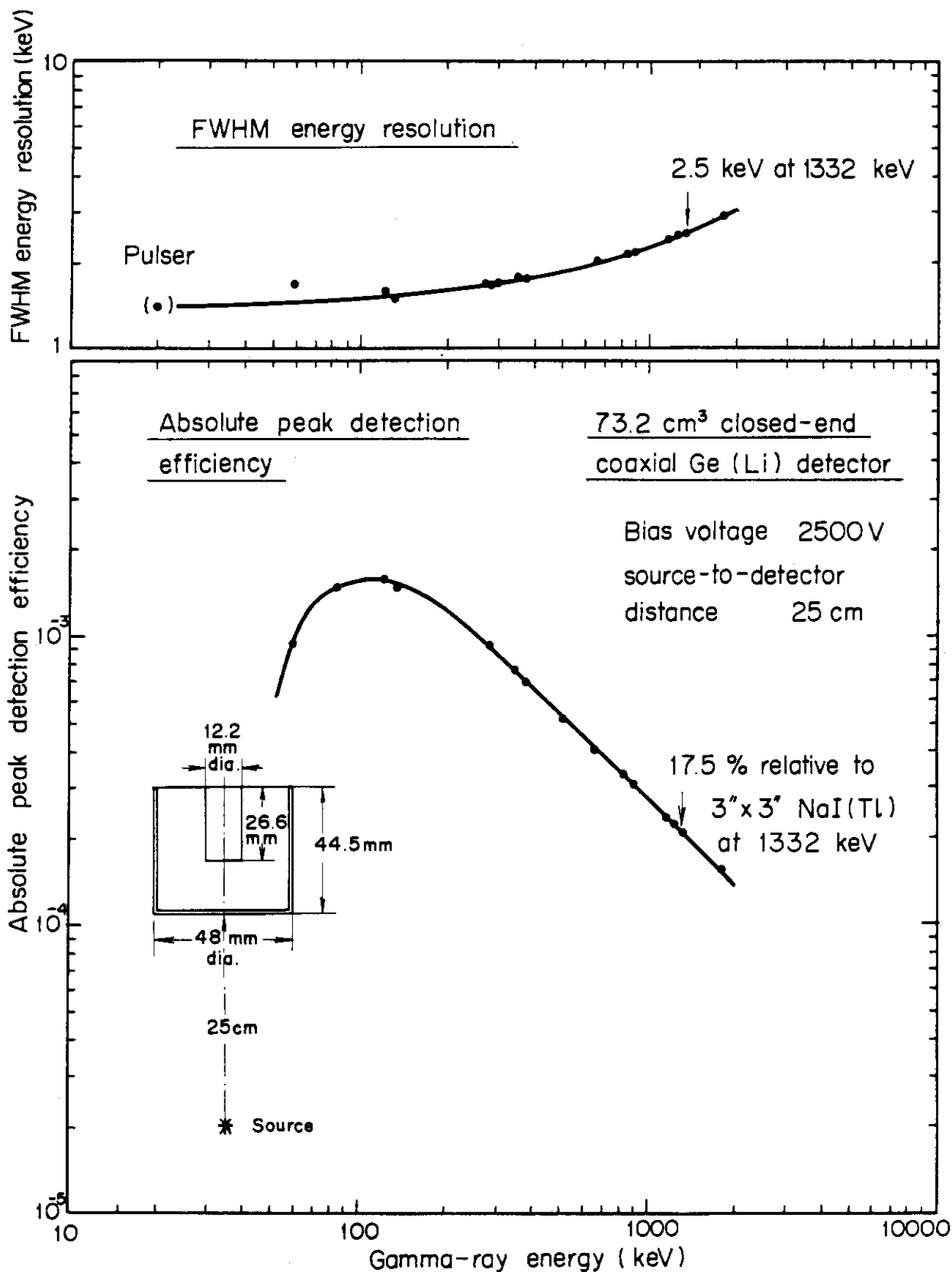


Fig. 2.3 Performance of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) detector measured at source-to-detector distance 25cm

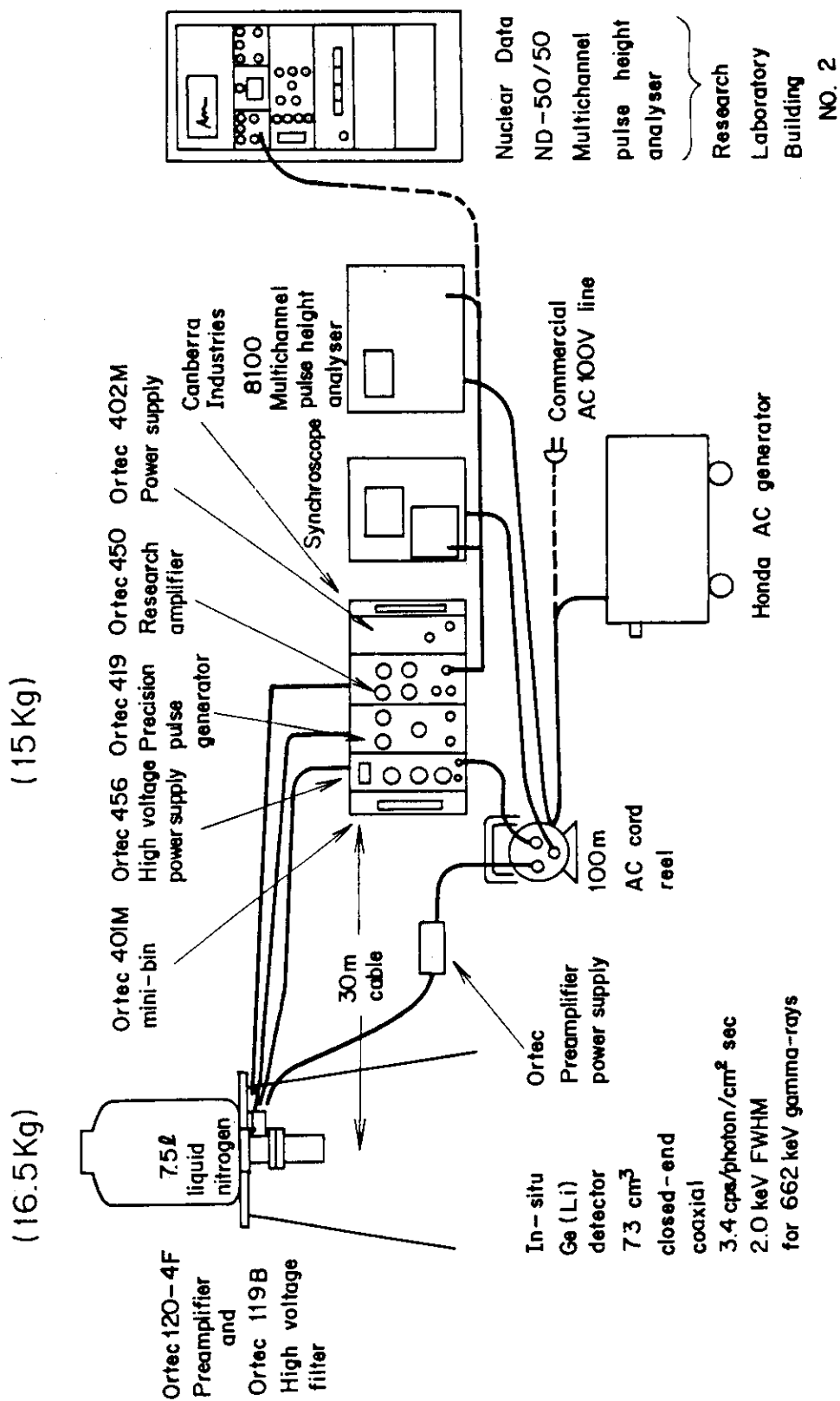


Fig. 2.4 Schematic diagram of in-situ Ge(Li) detector system for environmental gamma-ray spectrometry¹⁾

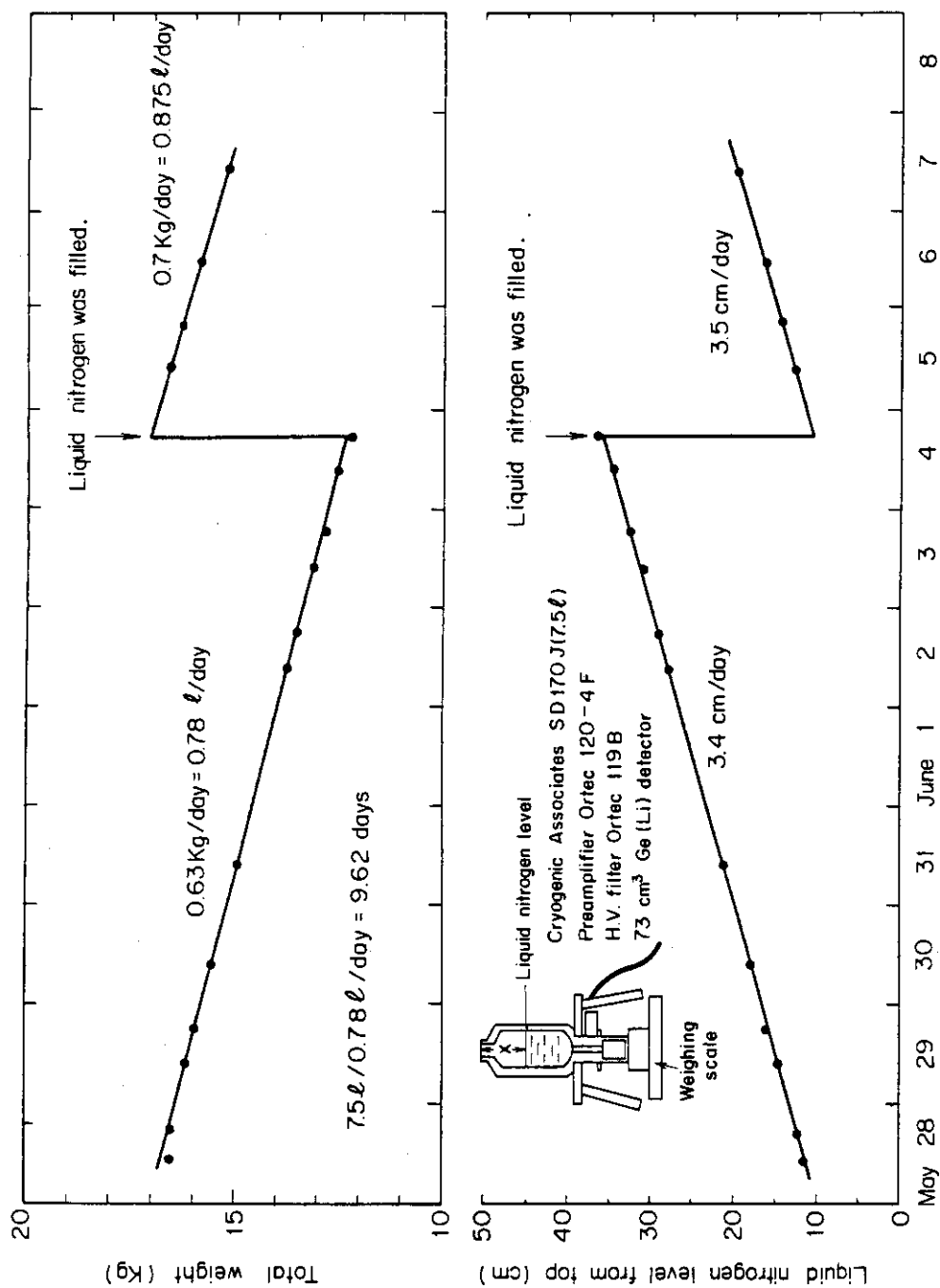


Fig. 2.5 Liquid nitrogen consumption of cryostat with 73cm³ Ge(Li) detector¹⁾

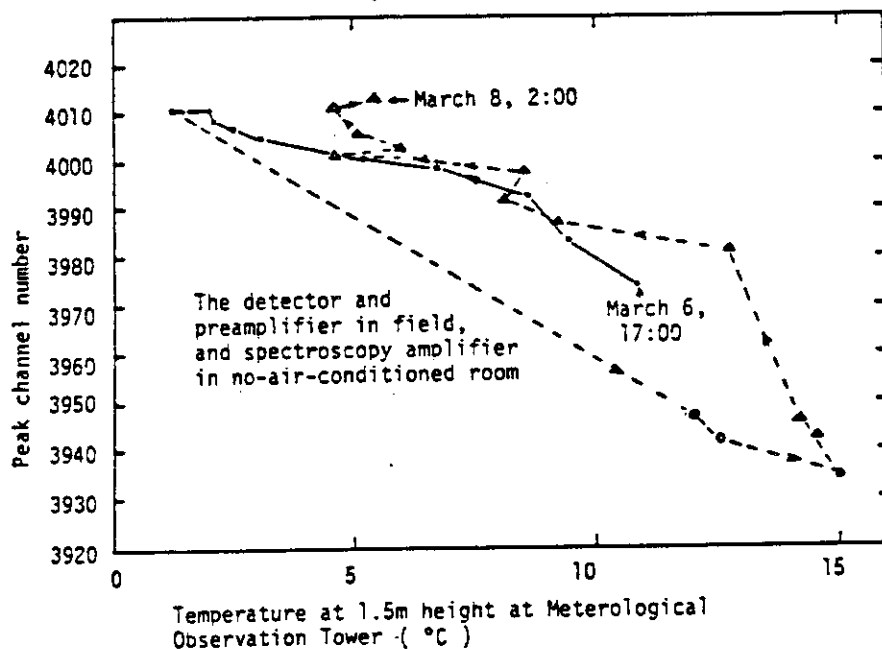


Fig. 2.6 Variation of center channel-number of 2614keV gamma-ray peak in Ge(Li) in-situ environmental gamma-ray spectrometer³⁾

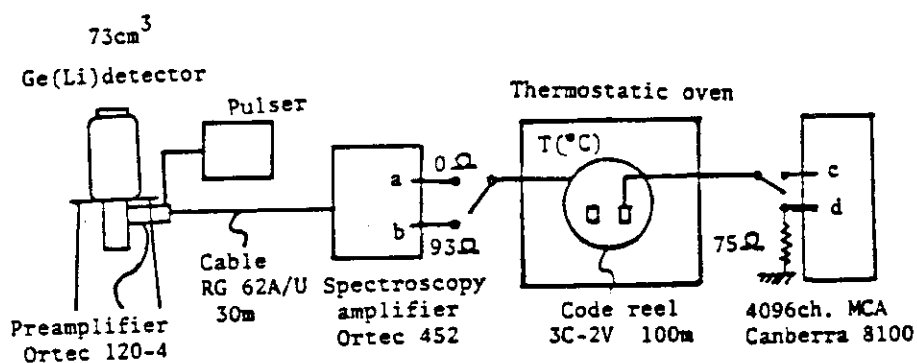
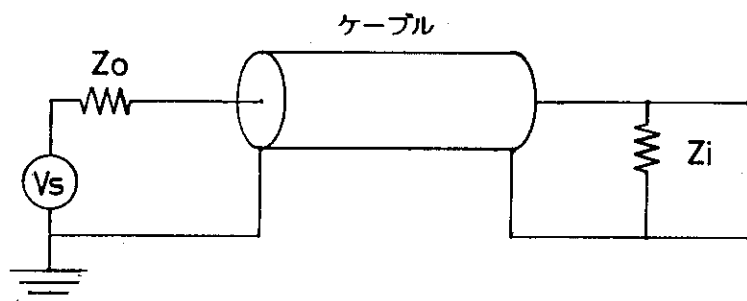


Fig. 2.7 Block diagram of experiment³⁾



Z_o : output impedance

Z_i : input impedance

V_s : signal output

Fig. 2.8 Equivalent circuit of signal source, cable and load resistance

3. in-situ 測定のためのガンマ線スペクトル解析の方法

3.1 緒言

in-situ 測定に限らず測定したガンマ線スペクトルには、ガンマ線を放出する核種の種類および放射能強度などの情報が含まれている。しかし、これらの情報を得るためには、測定したガンマ線スペクトルデータにスペクトル解析と呼ばれる数学的データ処理を施す必要がある。今日の様に多重波高分析装置 (Multi-channel Pulse height Analyser : MCA) およびデジタル計算機が普及する以前には、測定したスペクトルデータをプリンタによって印字出力したものを手でプロットし、手計算によるスペクトル解析を簡便的に実施するのが通常であった。このため数学的に厳密な扱いをしたピーク解析を行うことはかなり困難であった。

しかしながら今日、半導体エレクトロニクスの驚異的な技術革新により MCA およびデータ処理用デジタル計算機等が極めて高性能でしかも廉価で市販される様になった。これによりガンマ線スペクトルの測定・解析の方法も急速に自動化が進むことになった。また、半導体を用いた放射線検出器の開発も進み、Si (硅素) および Ge (ゲルマニウム) を用いた高性能な半導体検出器が市販品として入手できる様になり、ガンマ線スペクトルの測定解析が益々容易となった。この様なスペクトル中のガンマ線ピークの解析を行うことにより核種の同定および放射能強度の定量が極めて高い確度で実行可能となったのである。これはガンマ線スペクトルの in-situ 測定が今日盛んになった大きな要因でもある。

検出器、MCA および計算機の開発に伴ってガンマ線スペクトル解析の方法自体も数学的により厳密でしかも高度なものに進歩して来ている。対象とするスペクトルも NaI (Tl) シンチレーション検出器によるものから高分解能 Ge 半導体検出器による明確に分離したピークスペクトルへと変遷している。1950 年代の末頃には NaI (Tl) 検出器によるスペクトル中のピーク解析を目的とした Covell の方法が発表されている。¹⁾ 計算機が普及し始めた 1960 年代後半には、大型計算機を用いたスペクトル解析計算コードが発表され始めている。^{2),3),4)} 特に文献 4) の計算コード "SAMPO" では、半導体検出器によるガンマ線ピークの解析としてピークの非対称性およびピーク両裾のテーリングを数式的に取り扱っている。ピーク中心部を Gauss 関数で表わし、両裾に指数関数を接続している。そして複雑な重畳ピークについての解析も行われている。1970 年前半には、馬場らの BOB 70/73⁵⁾ および Shick らの SKEWGAUS⁶⁾ などのスペクトル解析コードが発表された。これらの解析コードでは各々ピーク関数およびバックグラウンド関数などに特徴があり、当てはめるための最小自乗法はガウス・ニュートン法によっている。ピーク関数としてガウス曲線と指数関数の合成関数を用いてピークの非対称性を表している。ピークの非対称性の原因としては、ガンマ線に対して有感部となる Ge 半導体の単結晶体中に存在する不純物や結晶構造の欠陥に起因して生じる電荷捕獲中心の影響によると考えられている。すなわち入射したガンマ線によって Ge 結晶体中に正孔・電子対が生成され、電氣的パルスが誘起される時、捕獲中心に捕えられた正孔または電子が一定の時間遅れの後、再び解放され各々の電極に収集される。

これはパルス立上り時間の遅い成分となる。この影響により Ge 検出器で測定したガンマ線スペクトル中のピーク形状は広がりを示すことになる。また、ピーク中心より左側の裾がより広がってしまい対称性が悪くなるのである。以上の様な理由からピーク形状の当てはめ関数としてガウス関数と指数関数を合成して用いているスペクトル解析の方法が一般化しつつある。

またピークの下バックグラウンド関数としてどのような関数を当てはめるか興味ある問題である。馬場らは sigmoid 関数 $f_B = \sum_j a_j (x - x_j)^{\frac{1}{n}} + b$ (n は整数) を用いている。⁵⁾ 笹本らは、多項式と Valley count 関数 $f_B = 1 - e^{-\lambda x}$ (ピーク左側), $f_B = e^{-\lambda x}$ (ピーク右側) を用いている。⁷⁾

田坂は以上のガウス関数を基本とした関数の当てはめと異なる標準スペクトル法による解析方法を発表した。⁸⁾ これは種々のエネルギーのガンマ線単一ピークスペクトルの測定データを用いて、標準ピークスペクトルを決定しこれを基に最小自乗法により任意のエネルギーのピークを解析する方法である。

以上に大型計算機を用いたガンマ線スペクトル解析コードの開発の動向を述べた。一方、先に述べた通りエレクトロニクスの進歩により MCA および小型計算機の普及は目覚ましく、MCA と小型計算機を一組みにして市販する場合が最近では多い。したがって小型計算機によるスペクトル解析も盛に行われ、高度に複雑な解析をも実施可能なプログラムが開発され、市販される様になっている。⁹⁾ 小型計算機によるスペクトル解析の分野では、実験者が目的に合った結果のみを得るように作成したプログラムが多い。^{10), 11)}

また、極く最近ではマイクロコンピュータの性能が小型計算機とほぼ同等な性能にまで高められており、これを用いたスペクトル解析が普及し始めている。本章に述べるスペクトル解析プログラムは、in-situ 測定にパーソナルコンピュータが頻繁に使用される事を予想して作成したものである。in-situ スペクトル測定において必要最小限の機能を具備し、なおかつ誤差の扱いを数学的により厳密に行っている。

3.2 ガンマ線ピーク解析の数学的記述

3.2.1 ガンマ線スペクトルにおけるピーク形状の特徴

Ge 半導体検出器によって測定したガンマ線スペクトル中に現われるピーク形状は、ガンマ線と物質の相互作用の一つである光電効果によって生じられた正孔・電子対に起因するものである。ある放射性核種が単一エネルギーのガンマ線を放出する場合、これを Ge 検出器で検出し波高分布を測定すると、そのスペクトルは Fig. 3.1 (模式図) のような形状を示す。ピークの左側にはコンプトン効果による断崖形状 (コンプトンエッジまたは端) およびそれに続く平坦部分がある。ピークの左側の裾とコンプトン端の間は谷の形状をしている。ピーク自身の形は左右の裾に広がりをもち、線スペクトルとはならない。放出ガンマ線のエネルギーには幅はなく正に単一エネルギーであるが、物質に入射して相互作用を起した後生成される正孔・電子対が電極に集められ、電気的パルスを発生する場合、このパルスの高さに微小な違いが生じるのである。これがピークの広がりを生ずる素になっている。また、Ge 結晶中に存在する不純物および結晶の格子欠陥などは、生成された正孔・電子対を捕獲 (トラップ) する働きをする。捕獲された正孔または電子は、非常に短い時間で再び解放され、集電極に到達することになる。この過程を経るとパルスの波高値

は低くなり、スペクトル中のピーク左裾部分が広がってしまう。これによって、単一ピークであってもその形状は裾部分において左右対称なガウス分布関数と異なって来るのである。

ガンマ線ピーク解析において求めるべき項目は、ピークの半値幅 (FWHM: Full Width at Half Maximum), ピーク中心位置, ピークの下のバックグラウンド計数およびピークの面積値である。半値幅はGe検出器のエネルギー分解能を表わす目安であり, ピークの面積値は検出効率を用いて放射能強度に換算される。ピーク中心位置はエネルギー較正によって, ガンマ線エネルギーの決定 (核種の同定) に用いられる。

もし, 測定すべき線源が核分裂生成物 (以下FP: Fission Product) などの場合, 着目するガンマ線ピークが他のFP核種の近接したピークと重畳する場合が起る。このようなピークを多重ピーク (Multiplett) と云い, ピーク解析によって着目する核種の放射能強度を求める場合, 誤差は大きくなる。大型計算機を用いた解析計算コードによれば十分な誤差解析は可能であるが, 小型計算機やマイクロ計算機を用いたピーク解析の場合, メモリサイズや計算時間の制約により厳密な誤差の解析はなされていない。また, 単一ピークの解析における誤差解析についても同様に厳密な取り扱いがなされている例は少ない。したがって, やむを得ない場合を除いて多重ピークの解析結果を用いて放射能強度の定量値を求めることは避けるべきである。

最近の市販されているGe検出器の性能は極めて優れており, 特にエネルギー分解能が改善されている。このためピークの形状は益々幅が狭くなり, 左右の両裾を含めてピーク全体の形状を単純ガウス関数のみを用いて当てはめを行うことが困難となって来ている。したがって, ピーク中心から左右に1半値幅の範囲, つまり2倍の半値幅の範囲にあるピーク計数データに限定して, ガウス関数の当てはめ計算を行うと都合が良い。以下のピーク解析では, 上記の範囲のデータについて当てはめを論じている。また, ガウス関数の当てはめ計算の目的は, 半値幅を正確に求めることにある。この半値幅を基にピーク面積を求める範囲を決定している。

3.2.2 ピーク形状の関数当てはめ計算

ピーク形状の当てはめ関数としては, ガウス関数またはガウス関数と指数関数の合成関数を用いることが多い。ガンマ線スペクトルデータのピーク部分にこのような関数を当てはめる問題は非線形最小自乗法によらねばならない。関数形が複雑になれば求めるべき未知数の数も増える。単純ガウス関数を当てはめる場合, 以下に示すように未知数の数は3である。

今, ガンマ線スペクトルデータのうちピーク部分からバックグラウンドを差し引いたデータの集合を行列 $\mathbf{y}$ で表す。

$$\mathbf{y} = \begin{pmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_i \\ \vdots \\ y_{n-1} \end{pmatrix} \quad (i = 0, 1, 2 \dots n-1) \quad (3.1)$$

また, y_i の i に対応するのは波高分布のChannel番号であり, Channel番号には誤差が無いとする。測定値 $\mathbf{y}$ の共分散行列 (Covariance Matrix) は,

$$C_y = \begin{bmatrix} C_{00} & C_{01} & \cdots & C_{0n-1} \\ C_{10} & C_{11} & \cdots & C_{1n-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ C_{n-10} & C_{n-11} & \cdots & C_{n-1n-1} \end{bmatrix} \quad (3.2)$$

である。ここで $C_{ij} = C_{ji}$ であり、共分散行列はこのように対称行列となる。もし、測定値 y_i が互いに独立であれば、共分散行列は対角行列となり、 $C_{ii} = \sigma_i^2$ である。さらに共分散行列の逆行列は

$$G_y = C_y^{-1} = \begin{bmatrix} g_{00} & g_{01} & \cdots & g_{0n-1} \\ g_{10} & g_{11} & \cdots & g_{1n-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ g_{n-10} & g_{n-11} & \cdots & g_{n-1n-1} \end{bmatrix} \quad (3.3)$$

となり、これが重み行列である。ここで、

$$g_{ii} = \frac{1}{\sigma_{ii}^2} \quad (3.4)$$

である。

ピークスペクトルの真値、すなわち測定によって求めるべき真値を $\bar{\eta}$ とする。

$$\bar{\eta} = \begin{bmatrix} \eta_0 \\ \eta_1 \\ \vdots \\ \eta_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.5)$$

次にピーク形状を数式的に表わす関数における未知数を $\mathbf{X}$ とする。

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_{r-1} \end{bmatrix} \quad (3.6)$$

r は未知数の個数を表わす。

ピーク形状をガウス関数とした場合、

$$h_j(x_0, x_1, x_2) = x_2 \exp \left\{ -\frac{(T_j - x_1)^2}{2x_0^2} \right\} \quad (3.7)$$

である。真値 $\bar{\eta}$ と未知数 $\mathbf{X}$ の関係は、

$$\left. \begin{aligned} F(\mathbf{X}, \bar{\eta}) &= \bar{\eta} - \mathbf{h}(\mathbf{X}) = 0 \\ F_j(\mathbf{X}, \bar{\eta}) &= \eta_j - h_j(x_0, x_1, x_2) = 0 \end{aligned} \right\} \quad (3.8)$$

である。このような関係は非線形系であり、最小自乗法を適用して、未知数の最も尤らしい最良推定値を求める場合、線形系の扱いと若干異なる所がある。このような場合、次のような仮説を立ててこの関係を近似的に線形化する。すなわち、未知数 $\mathbf{X}$ に対して何らかの方法によって近似値 $\mathbf{X}_0$ を求めることが出来ると仮定する。

$$\mathbf{X}_0 = \begin{bmatrix} x_{00} \\ x_{10} \\ x_{20} \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

この近似点のまわりで F_j を Taylor 展開し、2 次以上の項を省略した関係式を求める。

$$\begin{aligned} F_j(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = F_j(\mathbf{X}_0, \bar{\eta}) &+ \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_0} \right)_{\mathbf{X}_0} (x_0 - x_{00}) + \dots \\ &\dots + \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_1} \right)_{\mathbf{X}_0} (x_1 - x_{10}) + \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_2} \right)_{\mathbf{X}_0} (x_2 - x_{20}) \end{aligned} \quad (3.10)$$

さらに次のような変数変換を行う。

$$\bar{\xi} = \mathbf{X} - \mathbf{X}_0 = \begin{bmatrix} x_0 - x_{00} \\ x_1 - x_{10} \\ x_2 - x_{20} \end{bmatrix} \quad (3.11)$$

この式を用いて (3.10) 式を書き換えると

$$F_j(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = F_j(\mathbf{X}_0, \bar{\eta}) + \left[\left(\frac{\partial F_j}{\partial x_0} \right)_{\mathbf{X}_0} \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_1} \right)_{\mathbf{X}_0} \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_2} \right)_{\mathbf{X}_0} \right] \cdot \bar{\xi} \quad (3.12)$$

となる。上式の $\bar{\xi}$ の係数を A_j とすると

$$F_j(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = F_j(\mathbf{X}_0, \bar{\eta}) + A_j \cdot \bar{\xi} \quad (3.13)$$

$$A_j = \left[\left(\frac{\partial F_j}{\partial x_0} \right)_{\mathbf{X}_0} \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_1} \right)_{\mathbf{X}_0} \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_2} \right)_{\mathbf{X}_0} \right] \quad (3.14)$$

のように式を整理できる。(3.13) 式の第 1 項は、

$$F_j(\mathbf{X}_0, \bar{\eta}) = \eta_j - h_j(x_0) \quad (3.15)$$

である。ここで $\bar{\eta}$ は真値であり、次式による。

$$\bar{\eta} = \mathbf{y} - \bar{\epsilon} \quad (3.16)$$

したがって (3.15) 式は、

$$F_j(\mathbf{X}_0, \bar{\eta}) = y_j - \epsilon_j - h_j(\mathbf{X}_0) \quad (3.17)$$

となる。さらに (3.17) 式は

$$F_j(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = y_j - \epsilon_j - h_j(\mathbf{X}_0) + A_j \cdot \bar{\xi} \quad (3.18)$$

となり、これをまとめると

$$F_j(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = F_j(\mathbf{X}_0, \mathbf{y}) - \epsilon_j + A_j \cdot \bar{\xi} \quad (3.19)$$

を得る。行列の全要素を含めて表記すると関数 f は次のように書き直される。

$$F(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = F(\mathbf{X}_0, \mathbf{y}) - \bar{\epsilon} + \mathbf{A} \cdot \bar{\xi} \quad (3.20)$$

この式は変数 $\bar{\xi}$ の線形結合であり、 $\mathbf{X}$ と $\bar{\eta}$ の非線形関係を近似的に線形化することが出来たことになる。

さらに議論を進めるために (3.20) 式の第 1 項を次の $\mathbf{C}$ で置き換えて整理する。

$$F(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = \mathbf{A} \cdot \bar{\xi} + \mathbf{C} - \bar{\epsilon} \quad (3.21)$$

ここで, $\mathbf{C}$ は

$$\mathbf{C} = \mathbf{F}(\mathbf{X}_0, \mathbf{y}) = \mathbf{y} - \mathbf{h}(\mathbf{X}_0) \quad (3.22)$$

で, 測定値および近似値 $\mathbf{X}_0$ を用いて計算できる。

以上において用いた行列を以下に一般式として整理して示す。

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} \left(\frac{\partial F_0}{\partial x_0} \right) \mathbf{X}_0 & \left(\frac{\partial F_0}{\partial x_1} \right) \mathbf{X}_0 & \left(\frac{\partial F_0}{\partial x_2} \right) \mathbf{X}_0 \\ \left(\frac{\partial F_1}{\partial x_0} \right) \mathbf{X}_0 & \left(\frac{\partial F_1}{\partial x_1} \right) \mathbf{X}_0 & \left(\frac{\partial F_1}{\partial x_2} \right) \mathbf{X}_0 \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ \left(\frac{\partial F_{n-1}}{\partial x_0} \right) \mathbf{X}_0 & \left(\frac{\partial F_{n-1}}{\partial x_1} \right) \mathbf{X}_0 & \left(\frac{\partial F_{n-1}}{\partial x_2} \right) \mathbf{X}_0 \end{bmatrix} \quad (3.23)$$

$$= \begin{bmatrix} a_{00} & a_{01} & \cdots & a_{0r-1} \\ a_{10} & a_{11} & \cdots & a_{1r-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ a_{n-10} & a_{n-11} & \cdots & a_{n-1r-1} \end{bmatrix} \quad (3.24)$$

ここで

$$a_{j\ell} = \left(\frac{\partial F_j}{\partial x_\ell} \right) \mathbf{X}_0 = - \left(\frac{\partial h_j}{\partial x_\ell} \right) \mathbf{X}_0 \quad (3.25)$$

である。

$$\mathbf{C} = \begin{bmatrix} y_0 - h_0(\mathbf{X}_0) \\ y_1 - h_1(\mathbf{X}_0) \\ \vdots \\ y_{n-1} - h_{n-1}(\mathbf{X}_0) \end{bmatrix} \quad (3.26)$$

また, 誤差 $\bar{\epsilon}$ は, $\mathbf{F}(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = 0$ であるから (3.21) 式より

$$\bar{\epsilon} = \mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C} = \begin{bmatrix} \epsilon_0 \\ \epsilon_1 \\ \vdots \\ \epsilon_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.27)$$

である。

以上に述べた過程が非線形系の線形近似の過程である。次の過程では未知数 $\bar{\xi}$ の最良推定値を求めるための最小自乗法計算を行なう。非線形最小自乗法の場合, 上に述べたように線形近似を行っているので, 1 回の最小自乗計算で求まる値は仮説として用いた近似値の改良値である。この改良値を最初に用いた近似値の代りに用い, 最小自乗計算を繰り返して行く。求まる改良値を用いて次々とこの計算を繰り返す。そして, 以下に述べる最小値関数が一定値に収束し, しかもその系の自由度 $(n-r)$ に対応する χ^2 値以下になったときに, 近似のために立てた仮説が正しいと判定し繰り返し計算を中止する。(n : 測定値の個数, r : 未知数の個数) このときの $\bar{\xi}$ (または $\mathbf{X}$) の値が求めるべき最良推定値である。

以下に最小自乗法計算について述べる。

今、測定値 y は、0 のまわりに正規分布する誤差 $\bar{\epsilon}$ を含むとする。これは多くの場合、中心極限定理により許される仮定である。従って、

$$\left. \begin{aligned} \eta_j &= y_j - \epsilon_j \\ E(\epsilon_j) &= 0 \\ E(\epsilon_j^2) &= \sigma_j^2 = \frac{1}{g_j} \end{aligned} \right\} \quad (3.28)$$

のように書ける。E は期待値を意味する記号である。このような仮定を行うと測定値 y_j を微小区間 dy の中に見出す確率は

$$f_j dy = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_j} \exp\left[-\frac{(y_j - \eta_j)^2}{2\sigma_j^2}\right] dy = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_j} \exp\left(-\frac{\epsilon_j^2}{2\sigma_j^2}\right) dy \quad (3.29)$$

であり、その確率密度は

$$f_j = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_j} \exp\left(-\frac{\epsilon_j^2}{2\sigma_j^2}\right) \quad (3.30)$$

である。n 個の測定値全部に対して尤度関数 L は、

$$L = \prod_{j=0}^{n-1} f_j = (2\pi)^{-\frac{n}{2}} \left(\prod_{j=0}^{n-1} \sigma_j^{-1} \right) \exp\left(-\frac{1}{2} \sum_{j=0}^{n-1} \frac{\epsilon_j^2}{\sigma_j^2}\right) \quad (3.31)$$

となる。さらに尤度関数の対数をとった対数尤度関数 ℓ は、

$$\ell = \ln L = -\frac{n}{2} \ln 2\pi + \ln \left(\prod_{j=0}^{n-1} \sigma_j^{-1} \right) - \frac{1}{2} \sum \frac{\epsilon_j^2}{\sigma_j^2} \quad (3.32)$$

となる。上式の最後の項の係数を除いた部分を M とおく。これが最小値関数である。

$$M = \sum_{j=0}^{n-1} \frac{\epsilon_j^2}{\sigma_j^2} \quad (3.33)$$

(3.32) 式は、M が最小値をとるときに最大となる。すなわち、最も尤もらしい確率が最大となる条件である。最小値関数 M を行列を用いて表記すれば、

$$M = \bar{\epsilon}^T G_y \bar{\epsilon} \quad (3.34)$$

である。 $\bar{\epsilon}^T$ は $\bar{\epsilon}$ の転置行列を表わす。さらに (3.27) 式を用いて上式は

$$M = (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C})^T G_y (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) \quad (3.35)$$

となる。M が最小となる条件は

$$\frac{\partial M}{\partial \bar{\xi}} = 0 \quad (3.36)$$

である。すなわち、

$$\begin{aligned} \frac{\partial M}{\partial \bar{\xi}} &= \left\{ \frac{\partial}{\partial \bar{\xi}} (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C})^T \right\} \{ G_y (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) + \\ &(\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C})^T \cdot G_y \cdot \frac{\partial}{\partial \bar{\xi}} (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) \} \end{aligned} \quad (3.37)$$

である。ここで $(\mathbf{A}\bar{\xi} + \mathbf{C})^T$ を少し詳細に書き下すと、

$$\mathbf{A}\bar{\xi} + \mathbf{C} = \begin{bmatrix} a_{00} & a_{01} & \cdots & a_{0r-1} \\ a_{10} & a_{11} & \cdots & a_{1r-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ a_{n-10} & a_{n-11} & \cdots & a_{n-1r-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \xi_0 \\ \xi_1 \\ \vdots \\ \xi_{r-1} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} C_0 \\ C_1 \\ \vdots \\ C_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.38)$$

$$= \begin{bmatrix} a_{00}\xi_0 + a_{01}\xi_1 + \cdots + a_{0r-1}\xi_{r-1} + C_0 \\ a_{10}\xi_0 + a_{11}\xi_1 + \cdots + a_{1r-1}\xi_{r-1} + C_1 \\ \vdots \\ a_{n-10}\xi_0 + a_{n-11}\xi_1 + \cdots + a_{n-1r-1}\xi_{r-1} + C_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.39)$$

$$(\mathbf{A}\bar{\xi} + \mathbf{C})^T = (a_{00}\xi_0 + a_{01}\xi_1 + \cdots + a_{0r-1}\xi_{r-1} + C_0 \cdots a_{n-10}\xi_0 + a_{n-11}\xi_1 + a_{n-1r-1}\xi_{r-1} + C_{n-1}) \quad (3.40)$$

となる。これより $\frac{\partial}{\partial \bar{\xi}} (\mathbf{A}\bar{\xi} + \mathbf{C})^T$, $\frac{\partial}{\partial \bar{\xi}} (\mathbf{A}\bar{\xi} + \mathbf{C})$ を求める。式を簡単にするため、

$$\mathbf{Z} = \mathbf{A}\bar{\xi} + \mathbf{C} = \begin{bmatrix} Z_0 \\ Z_1 \\ \vdots \\ Z_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.41)$$

のように書き、 $\frac{\partial \mathbf{Z}}{\partial \bar{\xi}}$ および $\frac{\partial \mathbf{Z}^T}{\partial \bar{\xi}}$ を求める。

$$\frac{\partial \mathbf{Z}}{\partial \bar{\xi}} = \begin{bmatrix} \frac{\partial Z_0}{\partial \xi_0} & \frac{\partial Z_0}{\partial \xi_1} & \cdots & \frac{\partial Z_0}{\partial \xi_{r-1}} \\ \frac{\partial Z_1}{\partial \xi_0} & \frac{\partial Z_1}{\partial \xi_1} & \cdots & \frac{\partial Z_1}{\partial \xi_{r-1}} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ \frac{\partial Z_{n-1}}{\partial \xi_0} & \frac{\partial Z_{n-1}}{\partial \xi_1} & \cdots & \frac{\partial Z_{n-1}}{\partial \xi_{r-1}} \end{bmatrix} \quad (3.42)$$

(3.39) 式より

$$\frac{\partial \mathbf{Z}}{\partial \bar{\xi}} = \begin{bmatrix} a_{00} & a_{01} & \cdots & a_{0r-1} \\ a_{10} & a_{11} & \cdots & a_{1r-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ a_{n-10} & a_{n-11} & \cdots & a_{n-1r-1} \end{bmatrix} = \mathbf{A} \quad (3.43)$$

である。次に $\frac{\partial \mathbf{Z}^T}{\partial \bar{\xi}}$ を求める。

$$\frac{\partial \mathbf{Z}^T}{\partial \bar{\xi}} = \begin{pmatrix} a_{00} & a_{10} & \cdots & a_{n-10} \end{pmatrix}$$

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{Z}^T}{\partial \xi_1} &= (a_{01} \ a_{11} \ \cdots \ a_{n-11}) \\ &\vdots \\ \frac{\partial \mathbf{Z}^T}{\partial \xi_{r-1}} &= (a_{0r-1} \ a_{1r-1} \ \cdots \ a_{n-1r-1}) \end{aligned} \right\} \quad (3.44)$$

$$\frac{\partial \mathbf{Z}^T}{\partial \xi} = \begin{bmatrix} a_{00} & a_{10} & \cdots & a_{n-10} \\ a_{01} & a_{11} & \cdots & a_{n-11} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{0r-1} & a_{1r-1} & \cdots & a_{n-1r-1} \end{bmatrix} = \mathbf{A}^T \quad (3.45)$$

(3.43) 式および (3.45) 式を (3.37) 式に代入する。

$$\frac{\partial M}{\partial \xi} = \mathbf{A}^T \mathbf{G}_y (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) + (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C})^T \mathbf{G}_y \mathbf{A} = 0 \quad (3.46)$$

行列の演算公式によると

$$(\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{B}_2 \cdot \cdots \cdot \mathbf{B}_n)^T = \mathbf{B}_n^T \mathbf{B}_{n-1}^T \cdots \mathbf{B}_2^T \mathbf{B}_1^T \quad (3.47)$$

である。(3.46) 式にこの公式を適用する。

$$\mathbf{A}^T \mathbf{G}_y (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) = (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C})^T \mathbf{G}_y^T \mathbf{A} \quad (3.48)$$

ここで $\mathbf{G}_y$ は対称行列であるから $\mathbf{G}_y = \mathbf{G}_y^T$ である。よって、

$$\mathbf{A}^T \mathbf{G}_y (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) = (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C})^T \mathbf{G}_y \mathbf{A} \quad (3.49)$$

である。従って (3.46) 式はさらに、

$$\frac{\partial M}{\partial \xi} = 2 \mathbf{A}^T \mathbf{G}_y (\mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{C}) = 0 \quad (3.50)$$

$$\mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \mathbf{A} \bar{\xi} + \mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \mathbf{C} = 0 \quad (3.51)$$

となる。この行列方程式は $r \leq n$ ならば解くことができ、この解が $\bar{\xi}$ の最良推定値、 $\tilde{\xi}$ である。

$$\tilde{\xi} = -(\mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \mathbf{C} \quad (3.52)$$

最終的に、未知数 $\mathbf{X}$ の最良推定値は、

$$\tilde{\mathbf{X}} = \tilde{\xi} + \mathbf{X}_0 \quad (3.53)$$

のように求まる。以上が最小自乗計算の1回の過程である。非線形最小自乗法の場合、(3.53) 式によって求めた未知数の最良推定値が満足すべき値であるか否かを判定し、否となったときにはその最良推定値を改良された近似値として代入し、再び最小自乗計算を繰り返して行う必要がある。この判定条件としては最小自乗計算の各回に求まる最小値関数 M の値が一定値に収束していること、およびその値が自由度 $(n-r)$ の有意水準 α に対応する χ^2 値以下であることなどがある。すなわち、

$$M = \bar{\epsilon}^T G_y \bar{\epsilon} < \chi^2_{1-\alpha} (n-r) \quad (3.54)$$

である。この条件を満たさない場合、最初に与えた近似値が悪すぎる、或は仮定した関数 $h(\mathbf{X}, \bar{\eta})$ が不適当であるなどの理由がある。ガンマ線ピーク解析においては、対象としたピークが複数のピークの重なり合った複合ピークであるとき、このような結果となる。

最小自乗計算の繰り返しの後、最小値関数 M が一定値に収束し、(3.54) 式を満たした場合、繰り返し計算を終了させる。そして求めた未知数 $\mathbf{X}$ の誤差評価を次のように共分散行列を求めることによって行う。

まず (3.52) 式の $\mathbf{C}$ に (3.22) 式を代入し、 $\tilde{\xi}$ と $\mathbf{y}$ の関係式を求める。

$$\begin{aligned} \tilde{\xi} &= -(\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y \mathbf{y} + (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y \mathbf{h}(\mathbf{X}_0) \\ &= \mathbf{T}_1 \mathbf{y} + (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y \mathbf{h}(\mathbf{X}_0) \end{aligned} \quad (3.55)$$

上式から $\tilde{\xi}$ と $\mathbf{y}$ の変数変換行列 $\mathbf{T}_1$ は、

$$\mathbf{T}_1 = -(\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y \quad (3.56)$$

である。測定値 $\mathbf{y}$ の共分散行列は (3.2) 式のように与えられるので、 $\tilde{\xi}$ の共分散行列は (3.56) 式を用いて誤差の伝播法則により、

$$\mathbf{C}_{\tilde{\xi}} = \mathbf{T}_1 \mathbf{C}_y \mathbf{T}_1^T \quad (3.57)$$

である。これを詳しく書き下すと、

$$\mathbf{C}_{\tilde{\xi}} = [(\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y] \mathbf{C}_y [(\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y]^T \quad (3.58)$$

となる。上式中の G_y 、 $\mathbf{C}_y$ および $(\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})$ は対称行列であるから転置しても変化はない。従って (3.47) 式の公式を適用して上式を変形する。

$$\begin{aligned} \mathbf{C}_{\tilde{\xi}} &= (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y \mathbf{C}_y G_y \mathbf{A} (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \\ &= (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A}) (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \\ &= (\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \end{aligned} \quad (3.59)$$

$\tilde{\xi}$ と $\mathbf{X}$ の関係は (3.11) 式に定義されており、

$$\mathbf{C}_{\tilde{\mathbf{X}}} = \mathbf{C}_{\tilde{\xi}}$$

が成り立つ。従って未知数 $\mathbf{X}$ の共分散行列を (3.59) 式により数値的に求めることができる。これによりピークの当てはめ関数の未知パラメータの最良推定値 $\tilde{\mathbf{X}}$ の誤差評価ができたことになる。

以上のピーク解析によって未知数 $\mathbf{X}$ を用いてピークの半値幅、ピーク中心位置およびピーク計数値が求まる。

$$\begin{aligned} \text{FWHM (半値幅)} &= x_0 \times 2 \sqrt{2 \ln 2} \\ \text{ピーク中心} &= x_1 \\ \text{ピーク計数} &= x_2 \end{aligned}$$

3.2.3 バックグラウンド関数の決定

Fig. 3.1 に示すようにピークスペクトルの下にはバックグラウンド計数の寄与が存在する。ピークの解析を行う前処理として、まずこのバックグラウンド関数を決定しなければならない。この場合、Fig. 3.2 に示すようにピークの両裾のデータを用いて関数当てはめ計算を行う必要がある。今までに発表されているスペクトル解析計算コードは緒言に述べたように夫々特徴のあるバックグラウンド関数を用いている。本研究においては、用いる解析用計算機（小型計算機またはマイクロ計算機）の速度および記憶容量等の制約を考慮して、なるべく簡単な関数形を採用し、しかも当てはめが容易であることを条件とした。その結果バックグラウンド関数としては、次式のような3次式を選択した。

$$h(t) = x_0 + x_1 t + x_2 t^2 + x_3 t^3 \quad (3.60)$$

ここで t はチャンネル番号に対応する変数である。この場合未知数 $\mathbf{X}$ のパラメータ数は、

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} x_0 \\ x_1 \\ x_2 \\ x_3 \end{bmatrix} \quad (3.61)$$

のように4個である。(3.60) 式は線形関数であり、線形の最小自乗法計算によって未知数 $\mathbf{X}$ が決定できる。このとき用いる測定値 $\mathbf{y}$ のデータは Fig. 3.2 に示すピーク両裾の計数値である。 y_i は互いに独立な計数値である。

$$\mathbf{y} = \begin{bmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_{n-1} \end{bmatrix}$$

$$C_y = \begin{bmatrix} \sigma_0^2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & \sigma_{n-1}^2 \end{bmatrix} \quad (3.62)$$

ここで、 $\sigma_i = \sqrt{y_i}$ である。さらに重み行列は、

$$G_y = \begin{bmatrix} g_0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & g_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.63)$$

であり、 $g_i = 1/\sigma_i^2$ である。

$\bar{\eta}$ をバックグラウンドの真値とすると、バックグラウンド関数の値との関係式は

$$F(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = \bar{\eta} - h(\mathbf{X}) = 0 \quad (3.64)$$

である。(3.60) 式を行列記法によって表わすと、

$$h(t_j) = (1 \ t_j \ t_j^2 \ t_j^3) \begin{bmatrix} x_0 \\ x_1 \\ x_2 \\ x_3 \end{bmatrix} \quad (3.65)$$

である。(3.65)式を行列記法によって全要素を含めて表わすと

$$-h(\mathbf{X}) = \mathbf{A} \cdot \mathbf{X} \quad (3.66)$$

$$= \begin{bmatrix} a_{00} & a_{01} & \cdots & a_{0r-1} \\ a_{10} & a_{11} & \cdots & a_{1r-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ a_{n-10} & a_{n-11} & \cdots & a_{n-1r-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_{r-1} \end{bmatrix} \quad (3.67)$$

ここで r は未知数の個数を表わし、3次式の場合 4である。また、

$$\mathbf{A} = - \begin{bmatrix} a_{00} & a_{01} & \cdots & a_{0r-1} \\ a_{10} & a_{11} & \cdots & a_{1r-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ a_{n-10} & a_{n-11} & \cdots & a_{n-1r-1} \end{bmatrix} \quad (3.68)$$

であり、3次式の場合、

$$\mathbf{A} = - \begin{bmatrix} 1 & t_0 & t_0^2 & t_0^3 \\ 1 & t_1 & t_1^2 & t_1^3 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 1 & t_{n-1} & t_{n-1}^2 & t_{n-1}^3 \end{bmatrix} \quad (3.69)$$

である。したがって(3.64)式は

$$F(\mathbf{X}, \bar{\eta}) = \bar{\eta} + \mathbf{A} \mathbf{X} = 0 \quad (3.70)$$

$$= \mathbf{y} + \mathbf{A} \mathbf{X} - \bar{\epsilon} = 0 \quad (3.71)$$

となる。これより、

$$\bar{\epsilon} = \mathbf{y} + \mathbf{A} \mathbf{X} \quad (3.72)$$

である。ここで(3.34)式の最小値関数の定義によりこの場合の最小値関数 M は

$$M = (\mathbf{A} \mathbf{X} + \mathbf{y})^T G_y (\mathbf{A} \mathbf{X} + \mathbf{y}) \quad (3.73)$$

である。 M が最小となる条件は、

$$\frac{\partial M}{\partial \mathbf{X}} = 0 \quad (3.74)$$

である。以下の数式的過程は(3.37)式から(3.52)式までの過程と全く同様であり、未知数 $\mathbf{X}$ の最良推定値は、

$$\tilde{\mathbf{X}} = -(\mathbf{A}^T G_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T G_y \mathbf{y} \quad (3.75)$$

のように求まる。(3.70)式から $\mathbf{y}$ と $\mathbf{X}$ の変数変換行列 $\mathbf{T}_2$ は、

$$\mathbf{T}_2 = -(\mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \quad (3.76)$$

である。したがって、誤差伝播の法則により未知数 $\mathbf{X}$ の共分散行列は

$$\mathbf{C}_\mathbf{X} = \mathbf{T}_2 \mathbf{G}_y^{-1} \mathbf{T}_2^T \quad (3.77)$$

$$= (\mathbf{A}^T \mathbf{G}_y \mathbf{A})^{-1} \quad (3.78)$$

である。以上がバックグラウンド関数決定の過程である。

次にこのバックグラウンド関数を用いてピークの下バックグラウンド計数 B_i を各チャンネル番号 (t_i) 毎に求める。そして、各チャンネル番号に対応して (3.69) 式を用いて、行列 $\mathbf{A}$ を新たに求め、この $\mathbf{A}$ を (3.78) 式に代入してバックグラウンド計数の共分散行列 $\mathbf{C}_{BG}$ を求める。この場合、求めたバックグラウンド計数は互いに独立ではなく相関をもつ。このため、 $\mathbf{C}_{BG}$ は対称ではあるが対角行列ではない。

$$\mathbf{C}_{BG} = \begin{bmatrix} b_{00} & b_{01} & \dots & b_{0n-1} \\ b_{10} & b_{11} & \dots & b_{1n-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ b_{n-10} & b_{n-11} & \dots & b_{n-1n-1} \end{bmatrix} \quad (3.79)$$

次に必要なことは、ピーク部分の計数値 W_i からバックグラウンド計数 B_i を差し引いて正味の計数を求めることである。

$$y_i = W_i - B_i \quad (3.80)$$

ここで W_i は各チャンネル独立の計数値であり、その共分散行列は、

$$\mathbf{C}_W = \begin{bmatrix} W_0 & \dots & 0 \\ \vdots & W_1 & \ddots & \vdots \\ 0 & \dots & \dots & W_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.81)$$

である。従って正味の計数値の共分散行列 $\mathbf{C}_y$ は

$$\mathbf{C}_y = \mathbf{C}_W + \mathbf{C}_{BG} \quad (3.82)$$

$$= \begin{bmatrix} c_{00} & c_{01} & \dots & c_{0n-1} \\ c_{10} & c_{11} & \dots & c_{1n-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ c_{n-10} & c_{n-11} & \dots & c_{n-1n-1} \end{bmatrix} \quad (3.83)$$

となる。ここで、

$$c_{ii} = W_i + b_{ii} \quad (3.84)$$

$$c_{ij} = b_{ij} \quad (3.85)$$

である。(3.80) 式および (3.83) 式が夫々 (3.1) 式および (3.2) 式の入力となる。また、後

述するピーク面積および誤差の計算にも用いる。

求まった未知数 $\mathbf{X}$ の妥当性を吟味するために (3.73) 式を用いて最小値関数 M の値を求める。もし、 M が (3.54) 式と同様に

$$M < \chi^2_{1-\alpha} (n-4) \quad (3.86)$$

の条件を満たさない場合は、仮定したバックグラウンド関数（この場合 3 次曲線）が不適当であるか、ピーク形状が複雑ピークであるか、などの原因がある。バックグラウンド関数として、直線および指数関数を用いた場合いずれも (3.86) 式の条件を満たさなかった。

3.2.4 ピーク面積の決定

ガンマ線スペクトル解析の最終的目標は、ピークガンマ線の計数(率)を得ることにある。参考文献に掲げた大型計算機用のスペクトル解析コードの場合、ピークに当てはめた関数を積分して求めるものが多い。特に複雑ピークに対しては、当てはめ関数積分の方法以外に方法はない。小型計算機以下におけるスペクトル解析では、ピーク部分のスペクトルデータ (W_i) からバックグラウンド計数を差し引いた値を数値積分する方法が殆んどである。しかし、複雑ピークに対しては大型計算機コード並みの扱いをしているものもある。

本研究においては、ピークの当てはめ関数として単純ガウス関数を用いており、前述のピーク形状非対称性を考慮していない。このため、後者のスペクトルデータ数値積分の方法を用いている。ただし、前節に述べたバックグラウンド計数の誤差については厳密に取り扱ってある。以下にピーク面積値およびその誤差について数式的に示す。

ピーク面積 S は

$$S = \sum_{i=0}^{n-1} (y_i) = \sum_{i=0}^{n-1} (W_i - B_i) \quad (3.87)$$

である。ここで y_i は i チャンネルの正味の計数値、同様に W_i は計数の測定値、 B_i は計算によって求められたバックグラウンド計数値である。(3.87) 式を行列記法によって表わすと、

$$S = \underbrace{(1 \ 1 \ \cdots \ 1)}_{n \text{ 個}} \begin{bmatrix} y_0 \\ y_1 \\ \vdots \\ y_{n-1} \end{bmatrix} \quad (3.88)$$

となる。上の式から S と $\mathbf{y}$ の変数変換行列 $\mathbf{T}_3$ は

$$\mathbf{T}_3 = (1 \ 1 \ \cdots \ 1) \quad (3.89)$$

である。一方、正味の計数値 $\mathbf{y}$ の共分散行列は前節 (3.82) ~ (3.85) 式の C_y のように求まっている。従って、 S の共分散行列 C_S は誤差伝播の法則により

$$C_S = \mathbf{T}_3 C_y \mathbf{T}_3^T \quad (3.90)$$

である。これをさらに書き下すと、

$$C_S = (1 \ 1 \ \dots \ 1) \begin{bmatrix} c_{00} & c_{01} & \dots & c_{0n-1} \\ c_{10} & c_{11} & \dots & c_{1n-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ c_{n-10} & c_{n-11} & \dots & c_{n-1n-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ \vdots \\ 1 \end{bmatrix} \quad (3.91)$$

となる。この行列演算は最終的に共分散行列 C_y の全要素を全て加算した値となり、これが求めたピーク面積の分散値となる。

3.3 小型計算機用スペクトル解析プログラムの作成

3.3.1 プログラムの設計

最近市販されている多重波高分析装置 (MCA) には、計算機との接続を容易にするため、標準的なインタフェース (例えば RS232C および GPIB 方式など) が内蔵されている。これによってガンマ線スペクトルデータを速やかに計算機メモリ上にもって来ることができる。

一方、マイクロコンピュータを内蔵した "Desk top" 型のパーソナルコンピュータ (パソコン) の普及および充実は目覚ましく、メモリ容量および演算速度などの性能において小型計算機 (例えば、米国 DEC 社の PDP-11 型など) と同等以上となっている。特に最近の 16 ビットマイクロコンピュータの高性能化に伴って、小型計算機 (ミニコン) の存在意義が問われる状況に至っている。

本研究では in-situ 測定に適したスペクトル解析プログラムの作成を狙いとしているので、解析用計算機として現在最も普及しているパーソナルコンピュータ PC-9801 (NEC 製) を用いることにした。

"パソコン" を用いる場合、プログラム言語として普及しているのは BASIC 言語 (PC-9801 では N88-BASIC (86)) である。BASIC は逐次翻訳型プログラム言語 (インタプリタ) の範疇に入り、演算速度が遅い欠点をもつ。したがって、前節に述べたピーク解析で用いる行列演算には適さない。しかしながら、BASIC 言語はプログラミングおよびデバッグには極めて使い易い言語である。

したがって、スペクトル解析プログラムの作成においては、メインプログラムを BASIC 言語によって作成し、行列演算処理をマシン語によって作成している。行列演算用マシン語プログラムについては、Appendix に詳しく述べるように、高速の演算が要求される。

スペクトル解析プログラムのメインプログラムのフローチャートを Fig. 3.3 に示す。主な機能はピークの検索、ピークの関数当てはめ計算、ピークの面積計算および誤差評価、スペクトルデータのグラフィック表示およびフェイリング処理等である。

パソコンの特徴の一つとして、グラフィック機能が優れている点が挙げられる。スペクトル解析計算では後述するように初期に入力するパラメータが解析精度を左右する。このため、スペクトルデータをグラフィック表示して人間の判断の助けとするのに便利である。

本プログラムでは、種々のコマンドを Function key を押すことによって実行させることにしている。各コマンドの機能の概要を Table 3.1 に示す。メインプログラムでは、処理すべきタス

クがない場合、常にコマンド待ちの状態にあり、プロンプトが点滅している状態にある。
Function key のコマンドは画面の最下段の行に内容を表示するようにしている。

3.3.2 ピークの判定および位置の決定

Ge 検出器および MCA で測定したガンマ線スペクトルデータは 4096 チャンネルの波高分布データである。4096 チャンネルのスペクトル中にあるピーク形状を見付け出して、ピーク番号とピーク位置のチャンネルを認識する機能をピークサーチ（検索）と云う。ピークサーチの方法も多くの研究者によって種々の方法が考え出されている。殆んどの場合、データの一次微分や何階かの差分を行うために、スペクトルデータの平滑化を行っている。平滑化処理を済ませたスペクトルデータの一次微分をとり、微分係数が正から負に変化するチャンネルを見付け、さらに閾値との比較を行うことによりピークを判定している。また、ピーク形状の特徴に着目して、ピーク左側では右上り、右側では右下りとなることを判定してピークと認識する方法も一次微分方式の変形である¹⁰⁾。本解析プログラムではこの方法を採用している。これはスペクトルデータの平滑化処理を必要としない。以下にこの方法について述べる。

Fig. 3.4 の点 P をピークサーチの始点とする。まず右上り傾向を求めるために、次式の演算を行う。

$$Q_1 = \text{ADC}(P + \text{FWHM}) - \text{ADC}(P) \quad (3.92)$$

そして、

$$Q_1 \geq 5 \sqrt{\text{ADC}(P)} \quad (3.93)$$

であるかを判定する。もしこの条件を満たす場合、右上りの傾向有りとして、次に右下りの判定を行う。これには次式の計算を行う。

$$Q_2 = \text{ADC}(P + \text{FWHM} + I) - \text{ADC}(P + 2 \text{FWHM} + I) \quad (3.94)$$

そして、

$$Q_2 \geq 5 \sqrt{\text{ADC}(P + 2 \text{FWHM} + I)} \quad (3.95)$$

であるかを判定する。この条件を満たすとピークの右下りが有ると判定し、ピークと認識する。この条件を満たさない場合、 $I = I + 1$ として (3.94) 式、(3.95) 式の過程を繰り返す。これは、 $I = 0 \sim 2 \text{FWHM} - 1$ の範囲でテストされる。(3.93) 式および (3.95) 式のテストに合格しない場合、 $P = P + 1$ とチャンネル番号を +1 する。この様なピークサーチを $P = 0 \sim 4095$ の範囲で行う。以上において $\text{ADC}(J)$ は J チャンネルのスペクトルデータを意味する。また、FWHM はスペクトル中に存在するピークの平均的半値幅の見積り値であり、解析プログラムの開始時点で入力する値である。

次にピークと判定した場合には、ピーク位置を決定するための計算が必要であり、次に示すような Covell の計算式を用いて求めている。すなわち、 P_c をピーク中心と仮定し、ピークの左右両側に n チャンネルの範囲を設定する。Fig. 3.5 にこの様子を示す。この範囲の計数の総和は、

$$P = \text{ADC}(P_c) + \sum_{i=1}^n \text{ADC}(P_c - i) + \sum_{i=1}^n \text{ADC}(P_c + i) \quad (3.96)$$

である。一方、ピークの下バックグラウンド計数の総和を

$$Q = (2n+1) \left\{ \frac{\text{ADC}(P_c - n) + \text{ADC}(P_c + n)}{2} \right\} \quad (3.97)$$

とする。するとピークの正味の計数は

$$N = P - Q \quad (3.98)$$

のように求まる。Covell 法は本来このようにしてピーク面積を求める簡単な方法の一つである。しかしまた、ピーク中心 P_c を求める計算にも応用できる。ピーク中心が不明の場合、始点のチャンネルを i_0 として、(3.96) 式を変形する。

$$P_0 = \sum_{i=0}^{2n} \text{ADC}(i_0 + i) \quad (3.99)$$

また、

$$Q_0 = (2n+1) \left\{ \frac{\text{ADC}(i_0) + \text{ADC}(i_0 + 2n)}{2} \right\} \quad (3.100)$$

である。(3.98) 式を用いて N_0 を求める。そして始点のチャンネルを +1 し、同様な計算により N_1 を求める。ピークが存在すると判定したチャンネル範囲において逐次 N_i を求め、 N_i の中の最大値 $N_{\max}$ を見出す。 $N_{\max}$ を与えた計算の始点となったチャンネル $i_{\max}$ に n を加えたチャンネルがピーク中心チャンネルである。

$$P_c = i_{\max} + n \quad (3.101)$$

解析プログラムでは $n = 2$ としている。

以上の手法によりピークの判定およびピークチャンネルを決定している。ただし、このピークチャンネルの値は、後に行うガウス関数当てはめの場合の第 1 近似値として用いるものである。正確なピークチャンネルの値は、当てはめ計算の結果として得られる。

3.3.3 ピーク解析計算プログラム

ピークサーチを行った後、認識したピーク個々についてピーク解析計算を実行するプログラムである。Fig. 3.6 にピーク解析計算の流れ図を示す。ピークサーチプログラムによってピーク中心位置の近似値が求められ、また初期設定手続きのときにピーク半値幅 (IFWHM) がチャンネル幅で与えられる。これらの近似値を用いてピーク解析計算を開始する。解析計算に用いる数式の考察についてはすでに述べてあるので、本項においてはデータの選択方法、繰り返し計算の収斂判定方式および評価方法等について述べる。

1) バックグラウンド計数

バックグラウンド計数を求めるために使うデータとして、前に述べたようにピーク両裾のデータを用いる。ピークサーチによって求めたピークチャンネル (PCENT) を中心にして、Fig. 3.7 に示すように 5 倍の半値幅 (IFWHM) の区間を設定する。バックグラウンド関数 (3 次式) 当てはめに用いるデータは、この設定区間の両端の $2 \times \text{IFWHM}$ 個のデータである。Ge 検出器によって測定したピークスペクトルにおいて、両裾のバックグラウンドデータは Fig. 3.8 に示すように、左側が右側より 1 段高い階段状の形をしている。このようなデータを直線または指数関数等で当てはめるのは相当に無理があると考えられる。実際に上記関数を用いて当てはめ計算を行っ

た場合、最小値関数 M の値は (3.86) 式の条件を満たさない。したがって本解析計算では 3 次式をバックグラウンド関数として用いている。3 次式の場合、通常のピークでは (3.86) 式を満たす。しかし、この場合でも最小値関数の値はさほど小さくはない。バックグラウンド関数として採用した 3 次式も最適なものではないと云える。しかしながら、未知数の数が多い複雑な関数を導入するのは、小型計算機を使用する場合、得策ではない。本プログラムでは、(3.86) 式を満たさない場合、 $CHECK = 9$ として先の計算に進む。(3.86) 式を満たす場合、 $CHECK = 0$ とする。 $CHECK$ は各ピークの解析計算結果と共にプリント出力される。したがってもし、プリント出力の $CHECK$ の 1 桁目が 9 となっていた場合、バックグラウンド関数の当てはめに問題があったことを意味する。

バックグラウンド関数を決定した後、この関数を用いてピーク下のバックグラウンド計数値および誤差を求めている。誤差は (4.83) 式の共分散行列から必要部分を取り出して求めることができる。

ii) ピーク当てはめ解析

ピーク解析の対象となるデータはピークチャンネル (PCENT) を中心にして Fig. 3.9 に示すように 2 倍の半値幅の区間のデータとする。前に述べたように Ge 検出器によって測定したピーク形状はピーク裾部分で左右の対称性が悪くなる。このため、本来対称形である Gauss 関数を当てはめようとする、最小値関数 M は (3.54) 式の条件を満たさない。したがって、PCENT を中心にして左右に $2 \times \text{IFWHM}$ の幅を設定し、この区間のスペクトルデータに対してのみガウス関数の当てはめ最小自乗計算を実施している。第 1 回目の計算には近似値として半値幅 (IFWHM)、ピーク中心チャンネル (PCENT) およびそのチャンネルの正味の計数値 (PCONT) を用いており、繰り返し計算の結果として最小値関数 M の収束と (3.54) 式の条件判定を実施する。繰り返しの回数は最高 20 回までとし、条件を満足する結果が得られない場合、近似値として与えた半値幅 (IFWHM) を 2 チャンネル減らし、再度データ区間を設定し直す。そして最小自乗計算プロセスを最初から繰り返す。このようなデータ選択操作の結果、ピークの両裾部分のデータが取り除かれるため、ガウス関数による当てはめは容易となる。

条件判定に合格した場合、当てはめの結果として半値幅、ピーク中心チャンネルおよびピークの正味の計数値等の最良推定値が求められる。また同時に共分散行列が求まるので、これらの値の分散を求めることができる。

iii) ピーク面積の計算

ピーク当てはめ解析は上に述べた通りピークの先端部分についてのみ行っている。一方、ピーク面積を計算する際には、ピークの両裾部分も含めなければならない。したがって、ピーク面積を求める場合、当てはめ関数はいらず、ピーク部分の正味の計数データを直接に台形積分して求めている。ピーク面積を求める際に用いるデータの範囲は Fig. 3.10 に示すように、ピークチャンネルを中心にして $3 \times \text{FWHM}$ の区間内にあるデータとする。また、対応するバックグラウンド計数値をバックグラウンド関数から求め、差し引きを行って正味の計数値を求めている。ここではピーク面積と同時に誤差も (3.91) 式を基にして求めている。

3.3.4 ガンマ線スペクトルデータの表示およびファイル

スペクトルの解析計算と共にデータの表示およびファイル等のデータ処理機能もスペクトル解析プログラムには要求される。特にガウス関数の当てはめ計算においては、半値幅の近似値を何らかの方法で求め、初期設定の段階で入力する必要がある。このためには収集したスペクトルデータを CRT 上に画像表示し、目で見て平均的な半値幅を求める方法が確かである。また、in-situ 測定によるガンマ線スペクトルの測定の機会が増えるとスペクトルデータの数は飛躍的に増加する。このためには高密度で効率的なデータファイルの手法が必要である。

i) スペクトルデータの CRT 表示プログラム

Fig. 3.11 にスペクトルの CRT 表示例を示す。図では画面右側にページ 1 として全スペクトルデータ (4096 チャンネル) を Log スケール (或は Linear スケール) で表示してある。左側にはページ 2 画面として、ページ 1 画面の指定部分 (カーソルによる指定) のみを抜き出して表示できる。ページ 2 画面に表示したスペクトルデータはカーソル key の指示により左右に移動が可能である。また、Linear スケールによるスペクトル表示では、コマンドによって縦軸のスケールを変化させて拡大縮小表示することが可能である。さらに画面上にカーソル線を出し、カーソル key によって移動させることができる。このときカーソル線によって指定されたチャンネル番号および計数値が画面に表示される。

以上のプログラムのメインコントロール部分は BASIC 言語で書かれており、表示プログラムは機械語のサブルーチンプログラムとなっている。BASIC 言語のみを用いたスペクトル表示プログラムでは、縦軸が Log 目盛の場合、4096 チャンネルの CRT 表示に約 45 秒間かかる。縦軸が Linear の場合でも約 35 秒間かかる。(クロック周波数が 5 MHz の PC-9801 の場合の計時)、これらの表示プログラムを機械語に置き換えると、約 10 秒間で作画を完了するが、未だ遅い感じを拭い切れない。そこで本プログラムでは、数値演算プロセッサ 8087 を用いることによって時間短縮を図っている。本表示プログラムによれば、4096 チャンネルの Linear プロット表示が約 2.7 秒で完了する。また、Log プロット表示は約 3.5 秒で完了する。この程度の時間であれば、待時間として許容できる。

ii) スペクトルデータの読み込みおよびファイル

ガンマ線スペクトルの in-situ 測定が通常の実験における測定と同様に普及すると、スペクトルデータの数は飛躍的に増加することになる。大量のスペクトルデータを効率的に処理するためには、MCA からスペクトルデータを計算機に読み込みさらに適当な記憶媒体に収録ファイルする機能をもつプログラムが必要不可欠である。スペクトルデータを記憶し計算機に inputs する媒体として、古くからある穿孔紙テープ、磁気テープおよびカセットテープ、および各種フロッピーディスク等がある。記憶密度およびデータの書き込み速度は上記の順に上って来ている。また、MCA と計算機とのデータ伝送方法についても最近では、殆んどが RS 232C 方式および GP-IB 方式に統一され充実して来ており、媒体を中介せずに計算機に直接入力できる。このような背景を考慮して作成したプログラムにおいては、スペクトルデータのファイルをフロッピーディスク上に作り、ファイル管理および編集を計算機で行うことにしている。

3.4 スペクトル解析プログラムのデータへの適用

i) 半値幅およびピーク中心位置の解析結果

Ge 半導体ガンマ線検出器によって ^{60}Co 標準線源からのガンマ線を測定し、その 1173 MeV のガンマ線ピークをプロットした図を Fig. 3.12 に示す。このピークに対して本スペクトル解析計算プログラムを適用して、半値幅 (FWHM) およびピーク中心位置 (PCENT) を求めた。

Fig. 3.13 には解析用計算機の印字出力結果を示す。このピークの半値幅の解析結果は、

$$\text{FWHM} = 7.72 \pm 0.02$$

であり、ピーク中心位置は

$$\text{PCENT} = 48.61 \pm 0.02$$

と求めることができた。これらの値を検討するために Fig. 3.12 には、作図による解析の結果を示す。プログラムによる解析結果はこの結果と良く一致しており、本解析方法および作成したプログラムを実際のデータに適用した場合、正しい結果を与えることを示している。また、求めた結果の誤差に関する情報も得られている。

ii) ピーク面積値および誤差の解析結果

求められた半値幅およびピーク中心位置の値を基にして Fig. 3.12 のピーク面積値および誤差の値を求めた結果が下記である。

$$S_0 = 238547 \pm 625$$

このようにピーク面積値およびその誤差を近似を用いることなく正確に求めることができた。全く同じピークデータを五藤らの改良 Covell 法¹²⁾ によって解析し、ピーク面積を求めた結果が下記である。

$$S_1 = 238722 \pm 642$$

S_0 , S_1 は極めて良く一致した。

3.5 結 言

in-situ 測定によって得たガンマ線スペクトルを測定現場において迅速に解析処理および収録等を実行するための計算機プログラムを般用のパーソナルコンピュータおよび小型計算機用のものとして作成した。従来このような規模の解析プログラムでは、計算速度および記憶容量等の制限から誤差の解析に不正確さが伴うことを我慢せざるを得なかった。しかし、本解析プログラムにおいては、複雑な行列演算をマシン語プログラムによって高速で処理することが可能であることにより、共分散行列を用いた厳密な誤差解析が可能である。また、最近のパーソナルコンピュータは非常に大きな記憶容量を有しており、スペクトル解析における厳密な誤差解析を実行するのに十分な性能であることが実証できた。また、従来の小型計算機に比較してパーソナルコンピュータは CRT 表示のためのソフト/ハードウェア機能が極めて充実しており、in-situ 測定現場におけるガンマ線スペクトルの目視が容易であり、スペクトル解析計算に必要な初期入力近似値の精度を向上させることが可能である。このことによってスペクトル解析において用いている Gauss-Newton 法非線形最小自乗法解法のもつ収束性の問題点を改善することができた。

参考文献

- 1) Covell, D.F., "Determination of Gamma-Ray Abundance Directly from the Total Absorption Peak", Anal. Chem. Vol 31, No.11 Nov. (1959)
- 2) Helmer R.G., Heath R.L., Schmitroth L.A., Jayne G.A. and Wagner L.M., "Analysis of Gamma-Ray Spectra from NaI(Tl) and Ge(Li) Spectrometers. Computer Programs", Nucl. Instr. and Meth. 47 (1967) 305-319
- 3) Mariscotti, M.A., "A Method for Automatic Identification of Peaks in the Presence of Background and its Application to Spectrum Analysis", Nucl. Instr. and Meth. 50 (1967) 309-320
- 4) Routti, J.T. and Prussion, S.G., "Photopeak Method for the Computer Analysis of Gamma-Ray Spectra from Semiconductor Detectors", Nucl. Instr. and Meth. 72 (1969) 125-142
- 5) Baba H., Sekine T., Baba S. and Okashita H., A method of the gamma-ray spectrum analysis : FORTRAN N programs "BOB 73" for Ge(Li) detectors and "NAISAP" for NaI(Tl) detectors, JAERI-1227 (1972)
- 6) Shick W.C., "SKEWGAUS : A FORTRAN Program for Fitting Peaks in Semiconductor Detector Spectra", IS-3460, (1974)
- 7) Sasamoto N., Koyama K. and Tanaka N. "An Analysis Method of Gamma-ray Pulse-height Distributions Obtained with a Ge(Li) Detector", Nucl. Instr. and Meth. 125 (1975) 507-523
- 8) 田坂完二「標準スペクトルを使った γ 線スペクトルの解析」JAERI-M 6145 (1975年)
- 9) Canberra Industries, Inc., "Technical Reference Manual for SPECTRAN-F Version 1", CI-SE-522 (1980)
- 10) 片桐政樹「波高分析装置 ND-50 / 50 のデータ処理」JAERI-M 6989 (1977年)
- 11) 小坪龍男「小型計算機による γ 線スペクトル解析コード "GSFIT"」JAERI-M 84-104 (1984年)
- 12) Gotoh H., Yagi H. and Teranishi K., "An Algorithm for the Determination of Peak Area", JAERI-M 82-114 pp.117-119 (1982)

Table 3.1 スペクトル解析プログラムのコマンドと機能

No.	Command	Function
1	Carsor	表示したスペクトルにカーソルを付ける。
2	Page	表示画面のページ選択を行なう (1 or 2)
3	Expand	カーソルで指示した箇所のスペクトルを拡大
4	Shift	カーソル key の操作によってスペクトルを移動
5	V-gain	表示スペクトルの縦軸のスケールを変更
6	D-read	スペクトルデータを FD から読み込む
7	Display	スペクトルデータをページ 1 に表示 (log or linear)
8	Onolysis	スペクトルデータの解析ルーチンを Coll
9	MCA→FD	MCA のスペクトルデータを FD に書き込む
10	Lpen	ライトペンで指定した箇所を拡大

FD : Floppy Disk

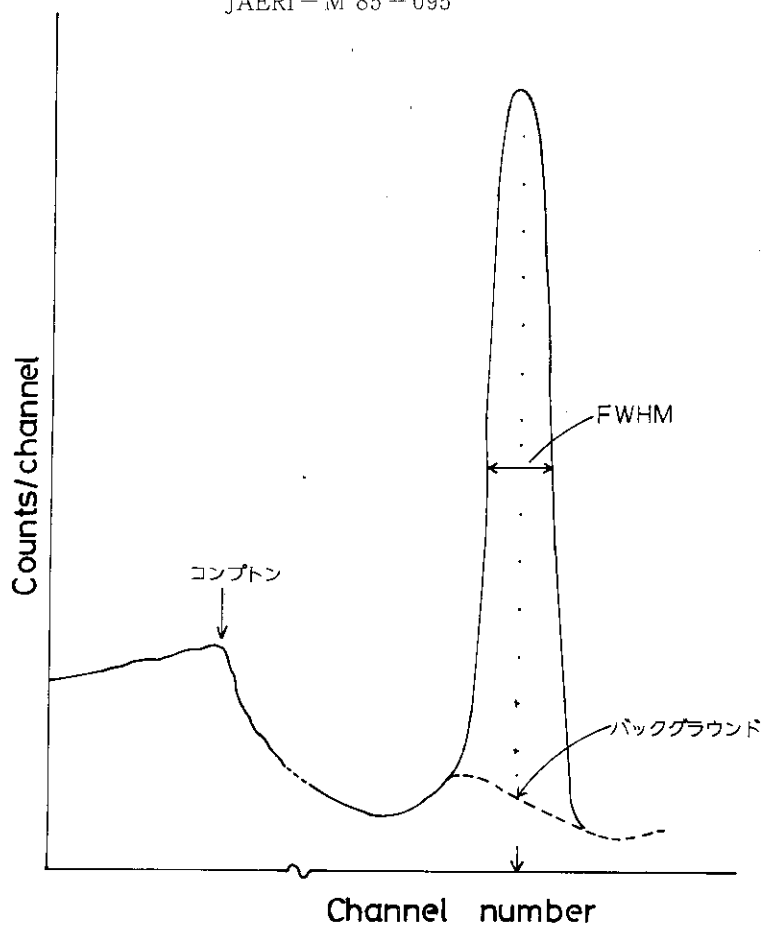


Fig. 3.1 A model of a gamma-ray peak measured by a Ge detector

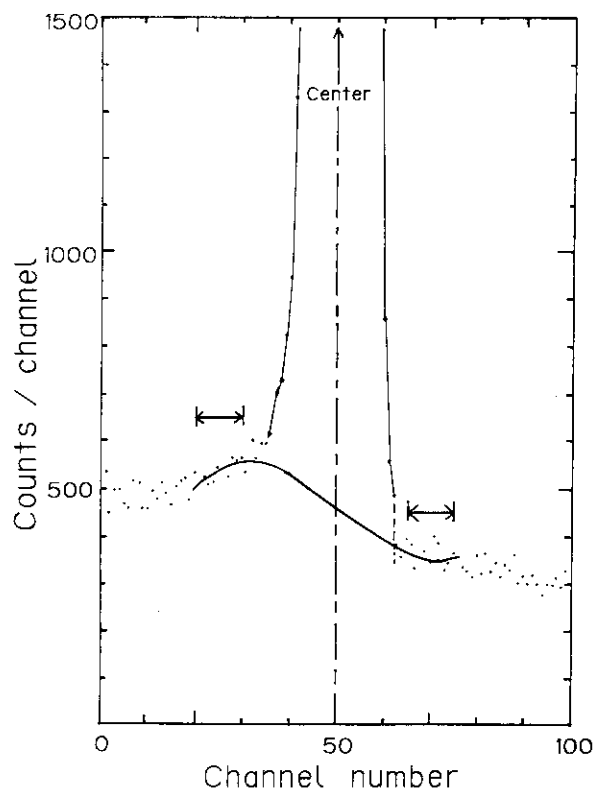


Fig. 3.2 Fitting of a background function under a peak

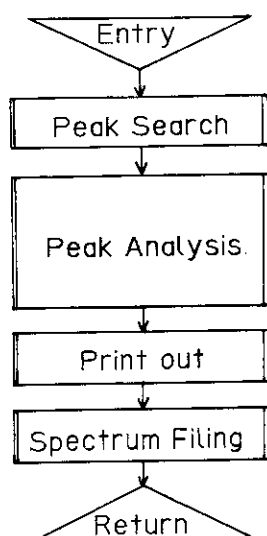


Fig. 3.3 Flow chart of spectrum-analysis program

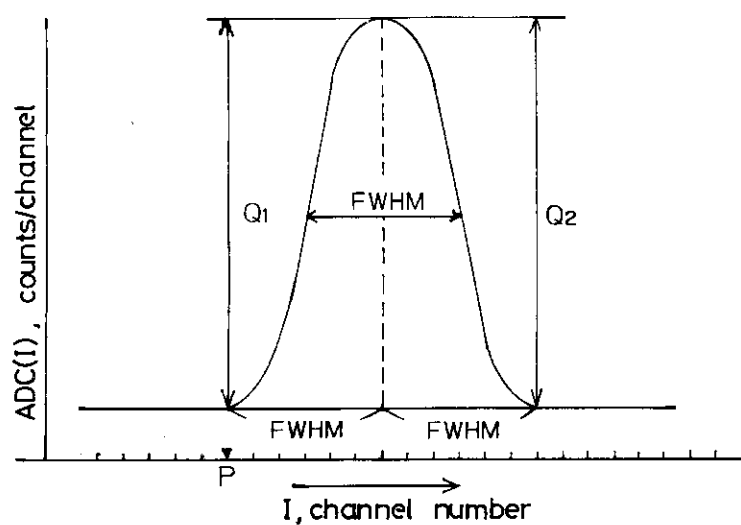


Fig. 3.4 Finding method of a peak

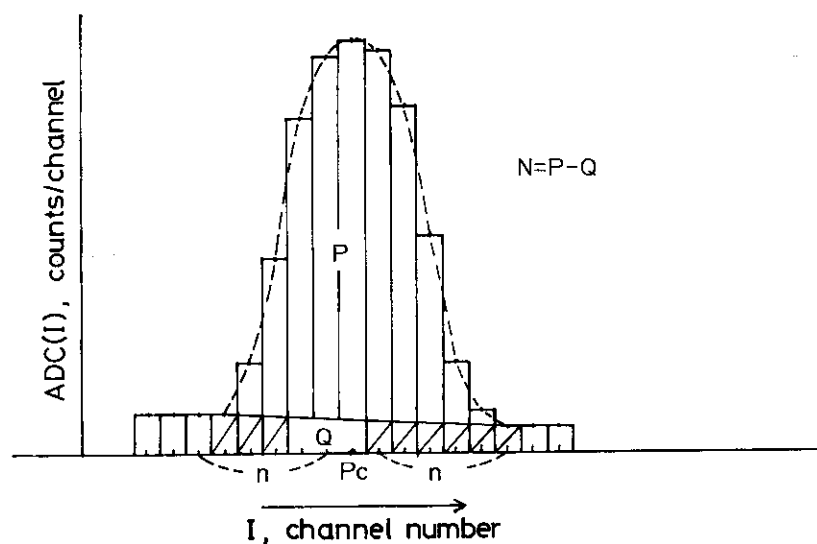


Fig. 3.5 Procedure of the Covell's method

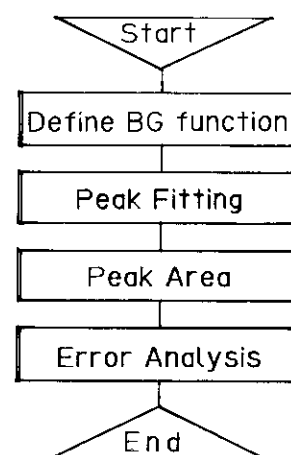


Fig. 3.6 Flow chart of peak analysis program

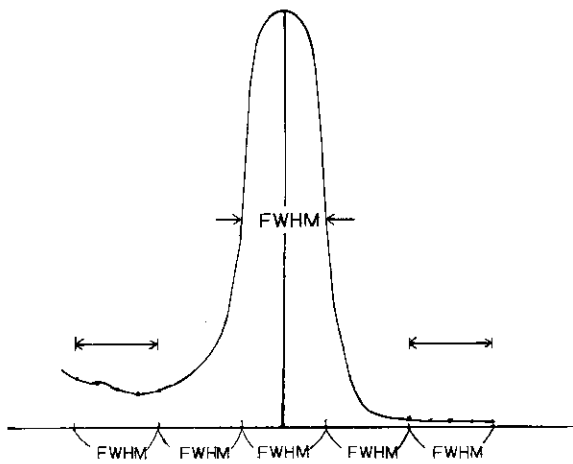


Fig. 3.7 Data regions ($\longleftrightarrow$) required in defining a background function

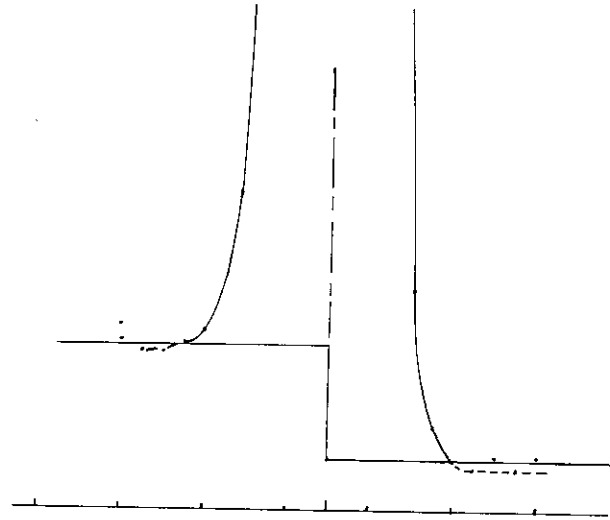


Fig. 3.8 Detail shapes of both side slopes of a peak

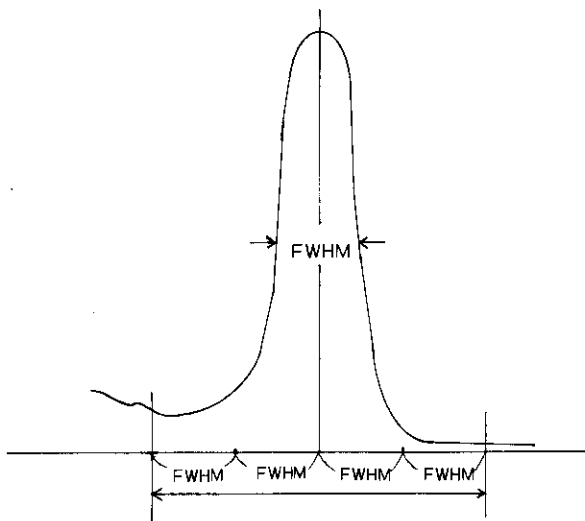


Fig. 3.9 Data region required in defining a fitting function of a peak

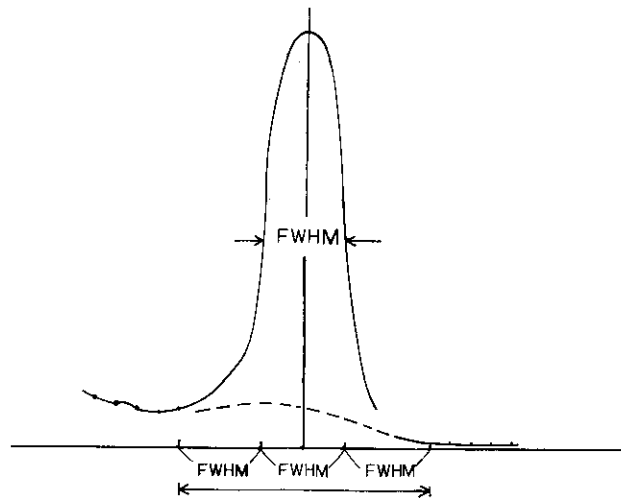


Fig. 3.10 Data region required in defining a peak area

Gamma-ray spectrum data of Page 2 (3481 Ch. to 3580 Ch.)

3481	533	447	495	497	469	460	517	512	458	458
3491	495	479	512	490	467	503	518	523	476	534
3501	510	524	508	511	542	541	521	565	561	566
3511	551	601	563	595	597	619	698	729	823	945
3521	1332	1920	3026	4768	7596	11396	16276	21292	26000	28771
3531	29262	27299	23307	17774	12702	8128	4833	2597	1474	859
3541	559	486	384	357	395	383	334	357	370	346
3551	400	387	330	343	369	358	339	329	313	364
3561	324	362	326	343	316	342	332	364	304	318
3571	303	319	300	278	298	297	312	293	328	316

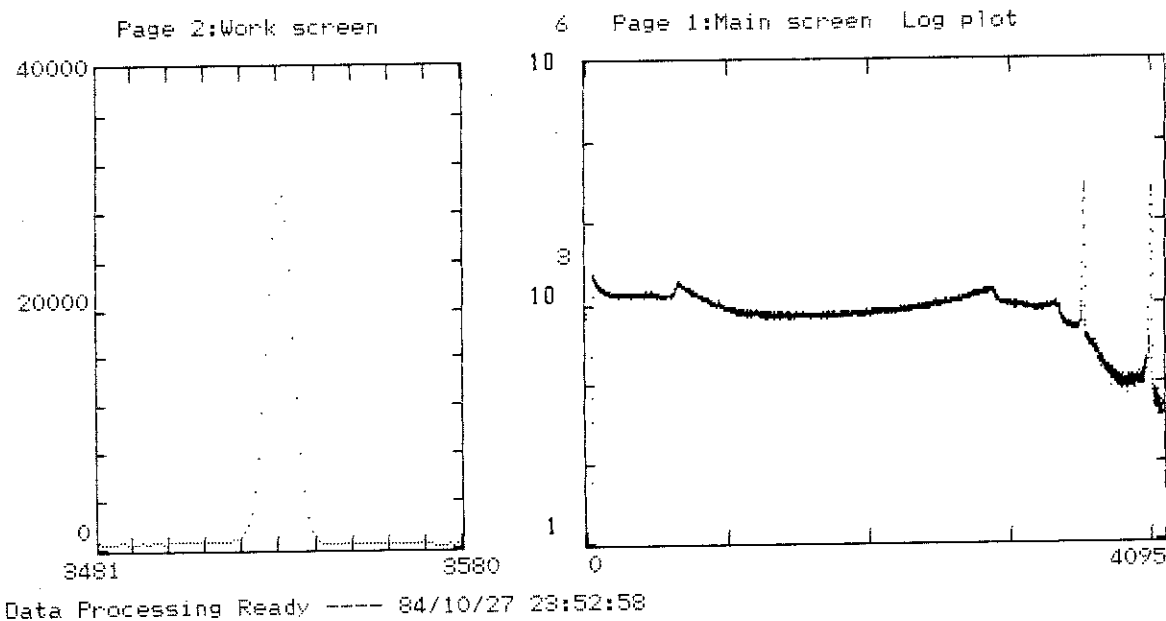


Fig. 3.11 CRT-display of gamma-ray spectra

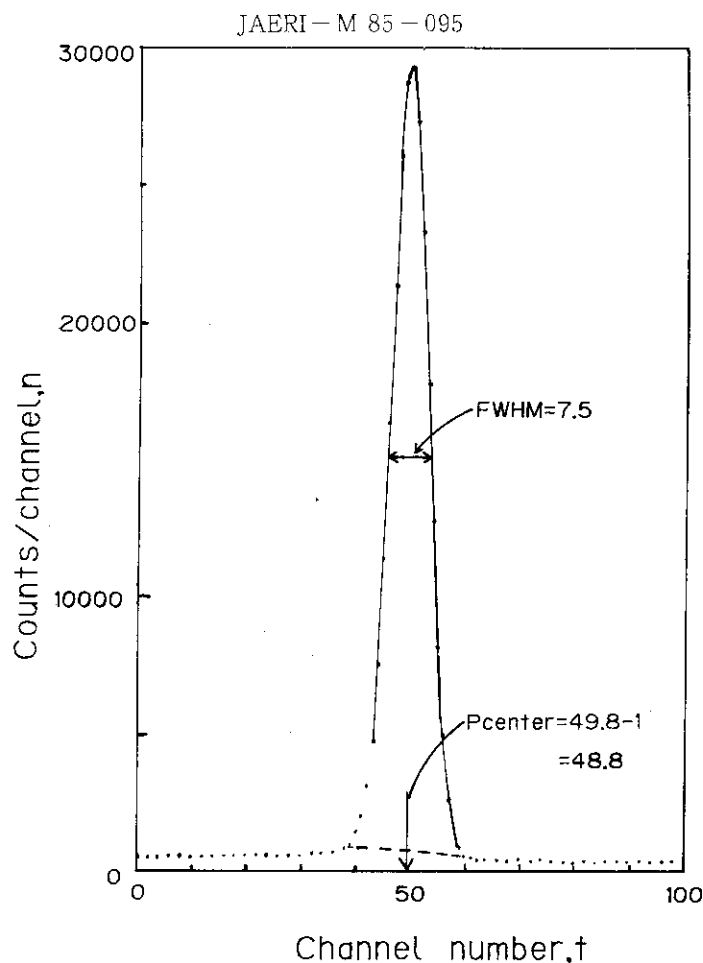


Fig. 3.12 A measured gamma-ray peak (1173 keV, ^{60}Co)

FWHM = 7.71567 PCENT1 = 48.6099 PCONT = 28926.6

0	823	635.848
1	945	635.848
2	1332	651.82
3	1920	664.389
4	3026	673.735
5	4768	680.04
6	7596	683.484
7	11396	684.25
8	16276	682.518
9	21292	678.47
10	26000	672.286
11	28771	664.148
12	29262	654.237
13	27299	642.733
14	23307	629.819
15	17774	615.675
16	12702	600.483
17	8128	584.423
18	4833	567.677
19	2597	550.427
20	1474	532.852
21	859	515.134
22	559	497.455
23	486	479.995

Peak Area = 238547 (625.409)
FWHM = 7.71567 (.0183838)
Peak Center = 48.6099 (.0219264)
Peak Count = 28926.6 (228.691)
Remarks of Fitting = 0

Fig. 3.13 An output of a spectrum analysis result

4. in-situ 測定による土壤中放射能の定量

4.1 緒 言

米国の Health and Safety Laboratory (HASL) および Lawrence Livermore Laboratory (LLL) では、1970 年頃から盛んに環境ガンマ線スペクトルの in-situ 測定が始められた。^{1), 2)} これはエネルギー分解能の優れた Ge (Li) 検出器を野外に持ち出してスペクトル測定を行なうもので、従来の NaI (Tl) 検出器によるスペクトル測定に比較して、土壤中の U (ウラン) および Th (トリウム) 系列の娘核種、⁴⁰K およびフォールアウト ¹³⁷Cs などに起因するガンマ線を極めて明瞭なピーク形状として分離して検出することができる。

HASL の Beck らは、NaI (Tl) 検出器によって in-situ 測定したスペクトル中の各ピーク計数率値から土壤放射能の濃度 (pCi/g または Ci/km²) を求める方法を開発した。さらに Ge 検出器を用いた in-situ 測定スペクトルのピーク計数率に対して適応できるようにこの方法を発展させている。²⁾

この方法では、in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトル中の核種 i のピーク計数率を N_i とすると、この値から次式のように土壤中の放射能濃度 X_i を求めている。

$$X_i = N_i / (N_f \cdot Ac^{-1}) \quad [pCi/g] \quad (4.1)$$

ここで、 N_f / Ac は一種の検出効率として用いる値であり、4.2 節で詳細に述べるように予め実験と計算とにより校正しておく量である。

わが国においては、1974 年頃から理化学研究所の岡野³⁾、日本原子力研究所の阪井および筆者らが Ge (Li) 検出器を使用した環境ガンマ線の in-situ 測定を始めた^{4)~8)}。その後金沢大学低レベル放射能実験施設が阪上らによって設立され、Ge 検出器による in-situ ガンマ線測定が盛んに行なわれるようになって来ている⁹⁾。

NaI (Tl) 検出器による環境ガンマ線スペクトルの in-situ 測定はこれらよりずっと古くから、保健物理関係の研究者によってなされている。しかし、エネルギー分解能が Ge 検出器に比較して極めて悪いので、ピーク解析による定量測定には用いられていなかった。

土壤中の放射能濃度を求める方法として、従来では実際の地点の土壤を試料として採取し、実験室において Ge 検出器と低バックグラウンドシステムを用いた機器分析法を実施するのが一般的である。1 個の土壤試料は数百 g であり、含まれる放射能量は数 pCi 程度である。このため試料 1 個あたり 10 数時間の計数が必要である。しかも確度の高い測定のためには、1 点だけではなく何点もの測定による評価が不可欠であり、膨大な労力と時間を必要とする。

一方、Ge 検出器を環境中に持ち出して行なう in-situ 測定では、土壤全体から到来するガンマ線を測定するので 4000 秒程度で十分な計数が得られ、しかも平均値として評価できると云う大きな利点がある。

本章では、HASL で開発した in-situ 測定による土壤放射能定量方法を試作した可搬型 Ge (Li) 検出器に適用する場合、必要となる検出器の諸特性を明らかにすると共に校正方法およ

び結果について検討した結果を述べる。また、これらの較正結果を用いて、実際の環境ガンマ線の in-situ 測定スペクトルから土壤中の放射能濃度を定量した結果を示す。さらにこの結果を土壤試料の分析結果と比較検討した結果についても言及する。

4.2 土壤放射能定量のための検出効率

Beck らの開発した in-situ 測定方式においては、Fig. 4.1 に示すように地上 1 m の高さに Ge 検出器を固定したジオメトリを採用し、その後の定量式を導出している²⁾。線源は無限の半空間を占める大地の表面および地中に分布すると仮定している。さらに地中の分布については、深さ方向に指数関数的に減少する分布あるいは一様分布など、核種によって異なる仮定を行なっている。土壤中のこれらの放射性核種から発するガンマ線は地上 1 m に固定した Ge 検出器に種々の角度で入射する。しかし、in-situ 測定したガンマ線スペクトルには、線源の分布および入射角度の分布などの情報は一切含まれていない。したがって、Fig. 4.2 に示すようなジオメトリの数式化を図ると共に検出効率の入射角度依存性も考慮した以下の定量式 (N_f/Ac) を導出している。

$$\frac{N_f}{Ac} = \frac{N_0}{\phi} \cdot \frac{N_f}{N_0} \cdot \frac{\phi}{Ac} \quad (4.2)$$

ここで

$\frac{N_f}{Ac}$: 土壤に含まれる放射性核種単位濃度 [pCi/g または mCi/km²] あたりのピーク計数率 [CPS]

$\frac{N_0}{\phi}$: 点線源を検出器直下に 1 m 以上離して置いたときの単位ガンマ線束 (Photon/cm²·sec) あたりのピーク計数率 (CPS) であり、実験によって求めることができる値である。

$\frac{N_f}{N_0}$: 検出器には入射して来るガンマ線の角度によってピーク検出効率が異なる特性がある。(R(θ)) また、土壤中のガンマ線源の分布状態に依存して検出器位置に入射するガンマ線束 (Photon/cm²·sec) の角度分布が存在する。(dφ/dθ) これらの効果を補正するための因子が N_f/N_0 であり、次式で定義される。

$$\frac{N_f}{N_0} = \frac{1}{\phi} \int_0^{\pi/2} R(\theta) \frac{d\phi}{d\theta} d\theta \quad (4.3)$$

$\frac{\phi}{Ac}$: 土壤中の単位放射能 (pCi/g あるいは mCi/km²) あたりの検出器位置におけるガンマ線束 (Photon/cm²·sec)。この場合、散乱線を含まない直接ガンマ線束である。直接ガンマ線が Ge 検出器に入射し、全吸収されるとピークを形成する。

上述の因子に含まれる φ および $\frac{d\phi}{d\theta}$ は次のように計算される。検出器および線源の位置関係は Fig. 4.2 に示すように、地表面上 h cm の高さに検出器をおく。地下 Z cm の深さの、

$$S' = S_0 \exp(-\alpha Z) \quad (4.4)$$

で与えられる単位体積の土壤の単位時間あたりのガンマ線放出率 (Photon/cm³ sec) の線源が、検出器位置にもたらす直接ガンマ線束 ϕ (Photon/cm² sec) を求める。ここで S_0 は地表面 ($Z=0$) にある土壤の単位体積、単位時間あたりのガンマ線放出率、また α はガンマ線放出核種の土壤中深さ方向の分布状態を示す減衰定数 (cm⁻¹) である。図に示すように θ は検出器からの垂直線に対して検出器と着目した点とを結ぶ直線の作る角度である。空気中のガンマ線の減衰定数を μ_a (cm⁻¹)、また土壤中の減衰定数を μ_s (cm⁻¹)、土壤の密度を ρ (g/cm³) とし、 r を検出器の中心と土壤中の着目点との間の距離とすると、

$$\phi = \iint \frac{S_0}{4\pi r^2} \exp[-(\alpha/\rho)(\rho Z)] \exp(-\mu_s Z/\cos\theta) \cdot \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \times 2\pi r \sin\theta \cdot r dr d\theta \quad (4.5)$$

$$= \frac{S_0}{2} \int_0^{\pi/2} \int_{h/\cos\theta}^{\infty} \exp[-\{(\alpha/\rho)\rho + (\mu_s/\cos\theta)\}Z] \cdot \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \sin\theta dr d\theta \quad (4.6)$$

ここで、 $\cos\theta = \omega$, $r = \frac{Z+h}{\omega}$, $dr = \frac{dZ}{\omega}$ とおくと、

$$\phi = \frac{S_0}{2} \int_0^{\pi/2} \int_0^{\infty} \exp[-\{(\alpha/\rho)\rho + (\mu_s/\omega)\}Z] dZ \cdot \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \frac{\sin\theta}{\cos\theta} d\theta \quad (4.7)$$

$$= \frac{S_0}{2\rho} \int_0^{\pi/2} \frac{\sin\theta}{(\alpha/\rho)\cos\theta + (\mu_s/\rho)} \exp(-\mu_a h/\cos\theta) d\theta \quad (4.8)$$

のように求まる。さらに $\frac{d\phi}{d\theta}$ は、

$$\frac{d\phi}{d\theta} = \frac{S_0}{2\rho} \cdot \frac{\sin\theta}{(\alpha/\rho)\cos\theta + (\mu_s/\rho)} \cdot \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \quad (4.9)$$

となる。

(4.8) 式および (4.9) 式は、フォールアウト核種 ¹³⁷Cs のように地中の深さ方向に (4.4) 式に示す指数関数分布する核種に対して使用できる。 α の値は、測定地点における土壤試料を採取して、核種の深さ方向の分布を測定して求めなければならない。

次に地中に一様分布する ⁴⁰K, ²³⁸U 系列および ²³²Th 系列の場合は、 $\alpha = 0$ とおける。すなわち (4.4) 式は、

$$S' = S_0 \quad (4.10)$$

(4.8) 式および (4.9) 式は、

$$\phi = \frac{S_0}{2\rho} \cdot \frac{\rho}{\mu_s} \int_0^{\pi/2} \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \cdot \sin\theta d\theta \quad (4.11)$$

$$\frac{d\phi}{d\theta} = \frac{S_0}{2\rho} \cdot \frac{\rho}{\mu_s} \exp(-\mu a h / \cos \theta) \cdot \sin \theta \quad (4.12)$$

となる。次に地表面にのみガンマ線源が分布する場合を考える。これはすなわち核実験によるフォールアウトが地表に降下した直後の状態を表わしている。このような分布は、

$$\alpha = \infty \quad (4.13)$$

として扱えばよい。この場合、 S_A を 1 cm^2 の断面積をもち深さ方向に無限長の土壌の円柱が含む核種の放出するガンマ線の総和 (Photon/cm²・sec) として定義しておく。

$$S_A = \int_0^\infty S_0 \exp(-\alpha Z) dZ = S_0 / \alpha \quad (4.14)$$

これを用いて $\alpha = \infty$ の場合の (4.8) 式および (4.9) 式を求める。

$$\begin{aligned} \phi &= \frac{\alpha S_A}{2\rho} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{\sin \theta}{(\alpha/\rho) \cos \theta + (\mu_s/\rho)} \cdot \exp(-\mu a h / \cos \theta) d\theta \\ &= \frac{S_A}{2} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \tan \theta \cdot \exp(-\mu a h / \cos \theta) d\theta \end{aligned} \quad (4.15)$$

したがって、

$$\frac{d\phi}{d\theta} = \frac{S_A}{2} \tan \theta \cdot \exp(-\mu a h / \cos \theta) d\theta \quad (4.16)$$

のように求まる。

(4.3) 式の N_f / N_0 因子を求める際には、 $\frac{d\phi}{d\theta}$ および $R(\theta)$ が必要である。 $R(\theta)$ は in-situ 測定に用いる Ge 検出器がもつピーク検出効率の角度依存性を表わす項であり、測定によって求まる特性である。

$\frac{\phi}{Ac}$ の値は計算によって求められる値である。Beck らは Table 4.1 に示す組成と密度をもつ土壌に対して $\frac{\phi}{Ac}$ を求めた²⁾。すなわち、深さ $Z \text{ cm}$ (または $\rho Z \text{ g/cm}^2$) にある放射性核種が、単位重量の土壌あたり毎秒 S 個のガンマ線光子を出すとき、地上 1 m の検出器位置に与える直接ガンマ線 (散乱されないガンマ線) の線束 (Photon/cm² sec) の計算値を求めている。これを Table 4.2 に示す。ここで S は

$$S = \frac{S'}{\rho} = \frac{\alpha}{\rho} S_A \exp(-\alpha Z) \quad (4.17)$$

であり、 $S_A = 1.0 \text{ Photon/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。すなわち表の値は単位 S_A あたりのガンマ線束 ϕ の値を示す。土壌中に一様分布する核種の場合 ($\alpha/\rho = 0$)、 $\frac{S_0}{\rho} = 1.0 \text{ (Photon/sec} \cdot \text{g)}$ に対する ϕ の値を示す。

Table 4.2 の $\alpha/\rho = 0$ に対する値をプロットした図が Fig. 4.3 である。また、深さ方向に対して $\exp(-\alpha Z)$ で分布するガンマ線源による値の例を Fig. 4.4 に示す。

無限に広い大地の土壌中に一様に 1 g あたり 1 pCi の放射性核種があり、エネルギー $E \text{ (keV)}$ のガンマ線を 1 崩壊あたり r 本放出する場合、地上 1 m に配置した検出器中心における非散乱ガンマ線束の値が求めるべき $\frac{\phi}{Ac}$ の値である。すなわち、土壌 1 g あたりエネルギー E の光子を r

$\times 3.7 \times 10^{-2}$ 個放出していることになり、この値を Table 4.2 の値に掛ければ $\frac{\phi}{Ac}$ を求めることができる。

4.3 in-situ 測定のための Ge 検出器の特性測定

in-situ 測定に用いる Ge 検出器のガンマ線ピーク検出効率 (N_0/ϕ) およびそのガンマ線入射角度依存性 ($R(\theta)$) 特性を測定する必要がある。

(1) N_0/ϕ の測定

検出器の真下 ($\theta = 0^\circ$) に 1 m 以上離して標準線源を置いて、ピークガンマ線の計数率 N_0 (CPS) を測定する。このとき用いた線源は約 10 μCi の ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{88}Y である。検出器位置のエネルギー E のガンマ線束は

$$\phi_E = \frac{3.7 \times 10^4 \times \gamma}{4 \pi \times R_d^2} \quad [\text{Photon/cm}^2 \cdot \text{sec}] \quad (4.18)$$

である。ここで R_d は線源と検出器の距離 (cm) である。これより、

$$\frac{N_0}{\phi_E} = \frac{4 \pi \times R_d^2 \times N_0}{3.7 \times 10^4 \times \gamma} \quad \frac{[\text{CPS}]}{[\text{Photon/cm}^2 \cdot \text{sec}]} \quad (4.19)$$

が求められる。Fig. 4.5 に Ge 検出器の特性を示す。

(2) $R(\theta)$ の測定

Fig. 4.5 は $\theta = 45^\circ$ および 90° に標準線源を置いた場合の N_0/ϕ の測定値を同時にプロットしてある。この結果から使用した Ge 検出器は 300 keV 以下のガンマ線に対するピーク検出効率に顕著な入射角度依存性をもつことが分る。入射角度依存性 $R(\theta)$ の測定では、線源の位置を検出器中心からの距離 1 m に保ちながら、垂直方向との角度 θ を $0^\circ \sim 90^\circ$ の間、 15° おきに変えて、夫々の角度における N_0/ϕ を求めた。これらの測定値を $\theta = 0^\circ$ の値に規格化した分布が $R(\theta)$ 特性である。Fig. 4.6 ~ Fig. 4.9 に種々のエネルギーのガンマ線に対する $R(\theta)$ 特性の測定値を示す。

(3) N_f/N_0 因子の決定

N_f/N_0 の値は (4.3) 式の定義から $R(\theta)$ のデータを用いることによって求めることができる。このためにまず各エネルギーのガンマ線に対するピーク検出効率の角度依存性 $R(\theta)$ の測定結果に次式に示す多項式を当てはめる。

$$R(\theta) = a_0 + a_1 \theta + a_2 \theta^2 + \dots + a_n \theta^n \quad (4.20)$$

さらに対応するガンマ線エネルギー毎に ϕ および $\frac{d\phi}{d\theta}$ の計算式を求め、最終的な N_f/N_0 の値が求められる。 N_f/N_0 の例として土壌中に一様分布する核種 (^{40}K , ^{238}U および ^{232}Th 等の系列) に対する計算式を示す。

$$\frac{N_f}{N_0} = \frac{\int_0^{\frac{\pi}{2}} R(\theta) \cdot \exp(-\mu a h / \cos \theta) \cdot \sin \theta d\theta}{\int_0^{\frac{\pi}{2}} \exp(-\mu a h / \cos \theta) \cdot \sin \theta d\theta} \quad (4.21)$$

また、Fig. 4.10 には (4.21) 式を用いて計算した結果をガンマ線エネルギーに対してプロットしたものを示す。

土壌中の濃度が深さ方向に指数関数分布するフォールアウト ^{137}Cs (662 keV のガンマ線) に対する N_f / N_0 の値を α / ρ の関数としてプロットすると Fig. 4.11 が得られる。 $\alpha / \rho = 0.0625 \sim 6.25$ に対して $N_f / N_0 = 0.95$ である。したがって N_f / N_0 因子を求める場合、 α / ρ の値の確度はあまり重要ではないことが分る。

(4) N_f / Ac の決定

以上に述べた(1)～(3)の因子を用いて (4.2) 式により in-situ 測定用 Ge 検出器の N_f / Ac の値をガンマ線エネルギーの関数として決定した。

Table 4.3 には土壌中に一様に分布する ($\alpha = 0$) 自然放射能 (^{40}K , ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列) 核種に対する N_f / Ac の値を示す。これらの値は環境ガンマ線の in-situ 測定に用いた 73 cm^3 closed-end 同軸型 Ge (Li) 検出器について求めたものである。また Table 4.4 は土壌中の深さ方向に指数関数的に分布するフォールアウト ^{137}Cs について同様に N_f / Ac 値を求めた結果を示す。Fig. 4.12 にプロット図を示す。

以上のように求めた N_f / Ac は、土壌中に単位濃度 (pCi/g または mCi/km^2) の放射性核種が存在するときに、地上 1 m の高さに固定した 73 cm^3 closed-end 同軸型 Ge (Li) 検出器が検出するはずのガンマ線ピーク計数率値を与える。したがって、環境中における in-situ 測定ガンマ線スペクトルから得たピーク計数率値を対応する N_f / Ac で割算すれば、土壌中の放射能濃度を定量することができる。

4.4 土壌放射能の in-situ 定量測定実験

実際の環境中における土壌放射能に起因するガンマ線のスペクトルを試作した可搬型 Ge (Li) 検出器を用いて in-situ 測定した。そして前節で述べたように実験と計算とによって求めた N_f / Ac の値を用いて土壌中放射能濃度の定量を行なった。また、その結果を検証するために、in-situ 測定した場所の土壌試料を採取して分析した結果とを比較検討した。

Photo. 4.1 に環境ガンマ線スペクトルを in-situ 測定している様子を示す。測定場所は日本原子力研究所東海研究所構内の Fig. 4.13 に示す地点である。Fig. 4.14 にはこのとき測定したガンマ線スペクトル図を示す。また、Table 4.5 はスペクトル解析によって求めたピーク計数率の値を示す。さらに、Table 4.6 は N_f / Ac を用いて求めた土壌中放射能濃度の値である。

これらの結果を検証するために in-situ 測定地点から土壌試料を Fig. 4.15 に示すように採取して含有する放射能濃度を分析した。この測定結果を Fig. 4.16 ～ Fig. 4.20 に示す。Table 4.6 には、さらに環境中の主な核種について、in-situ 測定の結果と土壌試料分析結果との比較を示す。

この測定地点において、 ^{40}K は一様分布と異なり、地表付近では深さが増すに従って濃度が増加している。

一方、 ^{238}U および ^{232}Th 系列は地表付近を除いてはほぼ一様に分布にしている。 ^{137}Cs は表面から 10 cm 程度の深さまではほぼ指数関数的な分布を示しているが、深さ 15 cm 程度の地層で再

び濃度の増加を示した。以上の様に実際の土壌中の放射能濃度分布は、 ϕ の計算のために仮定した分布とは大分異なったものである。しかしながら、in-situ 測定による土壌中放射能濃度の定量結果は、土壌試料測定の結果と比較的良く一致した。

4.5 結 言

in-situ 測定用に試作した可搬型 Ge (Li) 検出器を用いて測定した環境ガンマ線のスペクトルから、土壌中の ^{40}K 、 ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列などの自然放射性核種、およびフォールアウト ^{137}Cs などの放射能濃度の定量値を求められることを明らかにすることができた。そしてこの定量方式を実際に適用する場合必要となる検出器の諸特性（検出効率の入射角度依存性など）を明らかにすると共に較正方法を実践的に確立することができた。

HASL 方式の土壌中放射能濃度定量方法では、測定点の選定条件として、その土壌が周辺の環境に典型的な特徴を有していること、また平坦で相対的に乱されていないこと、そして近くに建物や自動車などが無いことなどが望まれている。このような理想的測定点を見出すことはかなり、困難であり、実際の測定点はこれらの条件を満たしているとは云えない。また、地中の分布についても均一分布および指数関数分布を仮定した計算を基に定量値への換算を実施している。しかしこの地中の分布を実測すると、均一分布を仮定した核種（ ^{40}K 、 ^{238}U および ^{232}Th 系列など）は地表付近で分布が乱れ、地下 10 cm 程度の深さになってほぼ一定の濃度となる分布であった。in-situ 測定から求めたこれらの核種の濃度は、この深さにおける濃度と良く一致している。

地中の深さ方向に指数関数的に減少する分布を仮定した ^{137}Cs については、地表付近の濃度が最も高く、深さ 5 ～ 6 cm の所では濃度一定となる分布が測定された。これを基に求めた ^{137}Cs の濃度を真値として in-situ 測定スペクトルから求めた濃度と比較すると約 10 % の差を許すなら良く一致している。

以上のように、試作した可搬型 Ge (Li) 検出器により in-situ 測定したスペクトルから求めた土壌中の ^{137}Cs 、 ^{40}K 、 ^{238}U および ^{232}Th 系列などの放射能濃度は、土壌試料のサンプリング分析測定の結果と良い一致を示した。このことから、HASL 方式の土壌放射能濃度の定量方法が有用であると共に本章に述べた検出器較正方法が正しい結果を与えることなどを実験によって示すことができた。

今後、本定量方式の高精度化を図るためには、土壌中放射能の分布が理想的である標準場を設ける必要があると考えられる。

参考文献

- 1) Anspaugh, L.R., et al. : The in-situ measurement of radionuclides in the environment with a Ge(Li) spectrometer, Proc. Natural Radiation Environment II, (1972), UCRL-73904 (1973)
- 2) Beck, H.L, DeCampo, J.A. and Gogolak, C.V. : In-situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry, HASL-258 (1972)
- 3) 岡野真治 : 環境放射線測定の基本, 原子力工業 21 (7), 51 (1975).
- 4) 阪井英次 : 寺田博海 ; 片桐政樹 ; 可搬型 Ge(Li) 検出器を用いた環境ガンマ線の in-situ 測定, JAERI-M 6498 (1976)
- 5) Sakai, E., Terada, H. and Katagiri, M. : In-situ gamma-ray measurement using Ge(Li) detectors, IEEE Trans., NS-23(1) 726~733 (1976)
- 6) Terada, H., Sakai, E. and Katagiri, M. : Spectrum to exposure rate conversion function of a Ge(Li) in-situ environmental gamma-ray spectrometer, IEEE Trans. NS-24(1) 647~651 (1977)
- 7) Sakai, E., et al. : In-situ environmental gamma-ray spectrometry using an upward-looking dip-stick type Ge(Li) detector, IEEE Trans. NS-25(1) 404~408 (1978)
- 8) Terada, H., Sakai, E. and Katagiri, M. : Environmental gamma-ray exposure rates measured by in-situ Ge(Li) spectrometry, J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 17(4) 281~290 (1980)
- 9) 阪上正信 : 低レベル放射能実験施設, 原子力学会誌 17 (8) 422 (1975) .

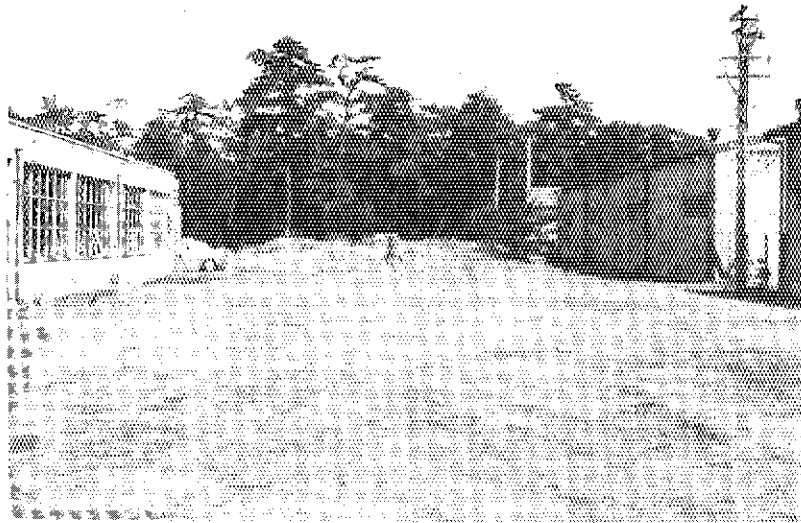


Photo 4.1 Location of in-situ Ge(Li) spectrometry on the lawn between Machine Shop and Storehouse of JAERI, Tokai Research Establishment

Table 4.1 Mass attenuation coefficients in soils of varying moisture content and composition of soil used in transport calculations

E (keV)	(μ/ρ) - cm ² /g				
	Soil 0% H ₂ O	Soil 10% H ₂ O	Soil 25% H ₂ O	Alum.	Air
20	3.01	2.78	2.05	3.22	0.683
25	2.34	1.52	1.13	1.76	-
30	1.00	0.938	0.838	1.03	0.315
35	0.656	0.644	0.566	0.669	-
40	0.470	0.471	0.433	0.492	0.225
45	0.380	0.381	0.338	0.386	-
50	0.327	0.314	0.298	0.319	0.193
55	0.282	0.277	0.265	0.277	-
60	0.254	0.248	0.239	0.246	0.177
65	0.233	0.230	0.221	0.219	-
70	0.218	0.214	0.206	0.205	-
75	0.204	0.202	0.194	0.193	-
80	0.192	0.190	0.189	0.185	0.161
85	0.189	0.185	0.181	0.177	-
90	0.179	0.178	0.175	0.171	-
95	0.173	0.173	0.170	0.166	-
100	0.166	0.167	0.167	0.160	0.151
150	0.138	0.139	0.141	0.134	0.134
200	0.124	0.125	0.127	0.120	0.123
250	0.114	0.115	0.118	0.111	-
300	0.106	0.108	0.109	0.103	0.106
350	0.100	0.101	0.105	0.098	-
400	0.0950	0.0963	0.0975	0.0925	0.0953
450	0.0906	0.0919	0.0931	0.0875	-
500	0.0869	0.0875	0.0894	0.0844	0.0868
550	0.0831	0.0844	0.0856	0.0806	-
600	0.0800	0.0813	0.0825	0.0775	0.0804
650	0.0769	0.0788	0.0800	0.0756	-
700	0.0744	0.0756	0.0775	0.0731	-
750	0.0725	0.0731	0.0750	0.0706	-
800	0.0706	0.0713	0.0725	0.0681	0.0706
850	0.0681	0.0694	0.0706	0.0669	-
900	0.0669	0.0675	0.0688	0.0644	-
950	0.0656	0.0650	0.0669	0.0631	-
1000	0.0638	0.0638	0.0650	0.0614	0.0635
1500	0.0515	0.0521	0.0530	0.0500	0.0517
2000	0.0444	0.0449	0.0456	0.0432	0.0444
2500	0.0398	0.0401	0.0413	0.0388	-
3000	0.0362	0.0364	0.0371	0.0353	0.0358

Composition by weight of soil used in transport calculations:

Al₂O₃ - 13.5% CO₂ - 4.5%
 Fe₂O₃ - 4.5% H₂O - 10%
 SiO₂ - 67.5%

From H.L.Beck, et al; HASL-258 (1972)

Table 4.2 Unscattered flux at one meter above ground for exponentially distributed sources in the soil

Source Energy (keV)	$(\alpha/\rho) - \text{cm}^2/\text{g}$						
	0 (Uniform)	0.0625	0.206	0.312	0.625	6.25	∞ (Plane)
50	1.4403	0.0816	0.2245	0.3049	0.4748	1.147	1.577
100	2.7744	0.1458	0.3627	0.4708	0.6786	1.359	1.710
150	3.3264	0.1702	0.4103	0.5261	0.7438	1.427	1.775
200	3.7056	0.1843	0.4550	0.5770	0.8018	1.483	1.804
250	4.0640	0.2008	0.4697	0.5910	0.8185	1.506	1.863
364	4.7184	0.2268	0.5158	0.6429	0.8775	1.578	1.933
500	5.3904	0.2519	0.5595	0.6918	0.9334	1.650	1.995
662	6.1456	0.2788	0.6041	0.7412	0.9889	1.719	2.054
750	6.5312	0.2919	0.6257	0.7649	1.015	1.752	2.084
1000	7.5280	0.3245	0.6769	0.8209	1.077	1.830	2.151
1173	8.1472	0.3437	0.7067	0.8531	1.113	1.874	2.189
1250	8.4384	0.3523	0.7198	0.8675	1.129	1.895	2.205
1333	8.7504	0.3617	0.7336	0.8826	1.145	1.914	2.224
1460	9.1472	0.3731	0.7511	0.9011	1.166	1.941	2.247
1765	10.091	0.3997	0.7897	0.9428	1.211	1.997	2.294
2004	10.818	0.4188	0.8173	0.9725	1.243	2.036	2.334
2250	11.397	0.4357	0.8414	0.9982	1.271	2.071	2.358
2500	12.173	0.4536	0.8667	1.025	1.300	2.105	2.385

*The activity at depth Z cm or ρZ g/cm² is S (gammas emitted per gram soil per sec) = $\alpha/\rho S_A e^{-(\alpha/\rho)(\rho Z)}$ where $S_A = 1.0$ gamma/cm²-s is the total number of gammas emitted in a column of area 1 cm² and infinite depth (see equation 3). For $\alpha/\rho = 0$, $S_0/\rho = 1.0$ gammas emitted per gram of soil for all Z .

From H.L.Beck, et al; HASL-258 (1972)

Table 4.3 In-situ gamma-ray detection characteristics of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) spectrometer for naturally occurring radionuclides uniformly distributed in the soil

Nuclide	Gamma-ray energy (keV)	N_0/ϕ ($\frac{\text{cps}}{\text{photon/cm}^2\text{sec}}$)	N_f/N_0	ϕ/Ac ($\frac{\text{photon/cm}^2\text{sec}}{\text{pCi/g}}$)	N_f/Ac ($\frac{\text{cps}}{\text{pCi/g}}$)
K-40	1461	1.76	0.976	3.63(-2)	6.24(-2)
U-238 series					
Ra-226	186	11.7	0.940	4.58(-3)	5.04(-2)
Pb-214	242	9.30	0.952	1.04(-2)	9.21(-2)
	295	7.90	0.960	2.91(-2)	2.21(-1)
	352	6.65	0.961	6.01(-2)	3.84(-1)
Bi-214	609	3.95	0.969	9.42(-2)	3.61(-1)
	666	3.65	0.970	3.39(-3)	1.20(-2)
	768	3.19	0.971	1.17(-2)	3.62(-2)
	934	2.68	0.972	8.10(-3)	2.11(-2)
	1120	2.24	0.972	4.21(-2)	9.17(-2)
	1238	2.05	0.972	1.72(-2)	3.43(-2)
	1378	1.86	0.974	1.49(-2)	2.70(-2)
	1401-08	1.80	0.975	1.25(-2)	2.19(-2)
	1510	1.69	0.976	7.12(-3)	1.17(-2)
	1730	1.48	0.978	1.02(-2)	1.48(-2)
	1765	1.46	0.978	5.39(-2)	7.70(-2)
	1845	1.40	0.979	7.91(-3)	1.08(-2)
	2205	1.18	0.979	1.95(-2)	2.25(-2)
	2448	1.06	0.979	6.66(-3)	6.91(-3)
Th-232 series					
Ac-228	129	13.0	0.894	2.90(-3)	3.37(-2)
"	210	10.2	0.948	5.80(-3)	5.61(-2)
Pb-212	239	9.40	0.952	7.25(-2)	6.49(-1)
Ra-224	241	9.39	0.952		6.48(-1)
Ac-228	270	8.50	0.958	1.02(-2)	8.31(-2)
Tl-208	277	8.30	0.958		8.11(-2)
Ac-228	282	8.15	0.959		7.97(-2)
Pb-212	301	7.75	0.960	5.53(-3)	4.11(-2)
Ac-228	338	7.70	0.961	2.18(-2)	1.61(-1)
Mixed	328-340	6.98	0.961	2.90(-2)	1.95(-1)
Ac-228	463	5.10	0.963	9.20(-3)	4.52(-2)
Tl-208	510	4.65	0.965	1.93(-2)	8.66(-2)
Tl-208	583	4.12	0.968	6.39(-2)	2.55(-1)
Bi-212 } Ac-228 }	727	3.35	0.970	1.86(-2)	6.04(-2)
Ac-228	755	3.25	0.971	2.70(-3)	8.52(-3)
"	772	3.18	0.971	4.10(-3)	1.27(-2)
"	795	3.10	0.971	1.20(-2)	3.61(-2)
"	830+835+840	2.90	0.971	9.40(-3)	2.65(-2)
Tl-208	860	2.88	0.971	1.18(-2)	3.30(-2)
Ac-228	911	2.71	0.971	7.55(-2)	1.99(-1)
"	965+969	2.58	0.971	6.13(-2)	1.54(-1)
"	1588	1.62	0.975	1.23(-2)	1.94(-2)
Tl-208	2615	1.01	0.979	1.67(-1)	1.65(-1)

Table 4.4 In-situ gamma-ray detection characteristics of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) spectrometer for 662keV gamma-rays from Cs-137 exponentially distributed in the soil

α/ρ (cm ² /g)	0.0625	0.206	0.312	0.625	6.25	infinite
$\frac{N_0}{\Phi}$ (cps)						
$\frac{N_0}{\Phi}$ (photon/cm ² sec)	3.64	3.64	3.64	3.64	3.64	3.64
N_f / N_0	0.956	0.953	0.952	0.950	0.946	0.944
$\frac{\Phi}{Ac}$ (photons/cm ² sec)						
$\frac{\Phi}{Ac}$ (mCi/km ²)	8.73(-4)	1.89(-3)	2.32(-3)	3.08(-3)	5.38(-3)	6.42(-3)
$\frac{N_f}{Ac}$ (cps)						
$\frac{N_f}{Ac}$ (mCi/km ²)	3.03(-3)	6.55(-3)	8.03(-3)	1.06(-2)	1.85(-2)	2.20(-2)

Table 4.6 Concentrations of activities in the soil obtained by in-situ analysis and sampling method

In-situ measurement point: Lawn between Machin Shop and Storehouse, JAERI

Nuclide	In-situ Ge(Li) 14:00 - 16:00 October 26, 1975	Soil sampling method average of 5 sampled points	
		Surface	30 cm depth
Bi-214	0.27 pCi/g	0.154 pCi/g	0.245 pCi/g
Tl-208	0.48 pCi/g	0.421 pCi/g ⁺	0.459 pCi/g
K-40	9.37 pCi/g	3.85 pCi/g	14.8 pCi/g
Cs-137	69.47 mCi/km ² *	77.7 mCi/km ²	

⁺ Average of two points

* $\alpha/\rho = 0.461$ cm²/g

Table 4.5 Results of gamma-ray spectrum analysis of in-situ Ge(Li) environmental gamma-ray measurement made from 14:00 to 16:00 on October 26, 1975

*D 19

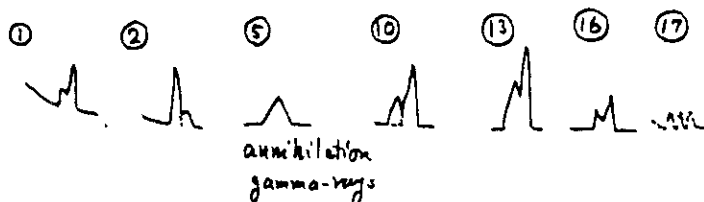
ENERGY CALIBRATION
CHA=908 ENA=662
CHB=2040 ENB=1461

In-situ Ge(Li) 1975. 10. 26
second measurement 14:00 ~ 16:00

EA= 0.705830
EB= 21.10610
*D 31

DATA KAISEKI PROGRAM 3

FWHM=6
ERROR=2 %



COUNT TIME= 7200

NO	ENERGY	CHANNEL	FWHMC	FWHMK	PEAKARE	ERROR	ESDEV	COUNTRAT	CNTERROR	CK
1	187.001	235.035	4.829	<u>3.408</u>	596	121	23.69	0.082715	0.019592	75
2	241.112	311.699	5.897	<u>4.163</u>	2271	113	5.625	0.315409	0.017740	55
3	339.625	451.268	2.995	2.114	598	53	9.022	0.083107	0.007498	35
4	353.074	470.323	3.489	2.462	791	59	7.661	0.109809	0.008413	15
5	511.827	695.239	4.587	<u>3.237</u>	778	50	6.667	0.108006	0.007201	15
6	583.886	797.330	4.221	2.979	1019	46	5.060	0.141508	0.007161	75
7	610.226	834.648	3.297	2.327	738	39	5.700	0.102522	0.005843	35
8	662.243	908.344	3.625	2.558	4753	75	2.543	0.660189	0.016790	3
9	911.824	1261.94	4.148	2.927	627	34	5.838	0.087102	0.005085	3
10	967.769	1341.20	8.829	<u>6.232</u>	557	40	7.513	0.077379	0.005814	35
11	1120.00	1556.88	6.427	4.536	175	31	18.00	0.024255	0.004366	25
12	1461.30	2040.43	4.790	3.381	4210	67	2.553	0.584675	0.014926	2
13	1591.38	2224.72	8.560	<u>6.042</u>	141	18	12.52	0.019561	0.002449	2
14	1721.86	2409.58	12.56	<u>8.864</u>	73	18	24.85	0.010160	0.002525	90
15	1764.79	2470.40	5.051	3.565	149	15	10.31	0.020649	0.002129	35
16	2203.45	3091.89	9.259	<u>6.535</u>	54	13	23.58	0.007477	0.001763	35
17	2450.57	3442.00	6.000	4.235	31	8	25.83	0.004348	0.001123	10
18	2615.01	3674.97	6.532	4.611	569	25	4.830	0.079053	0.003818	1
19	211.35	0	07.10							

*

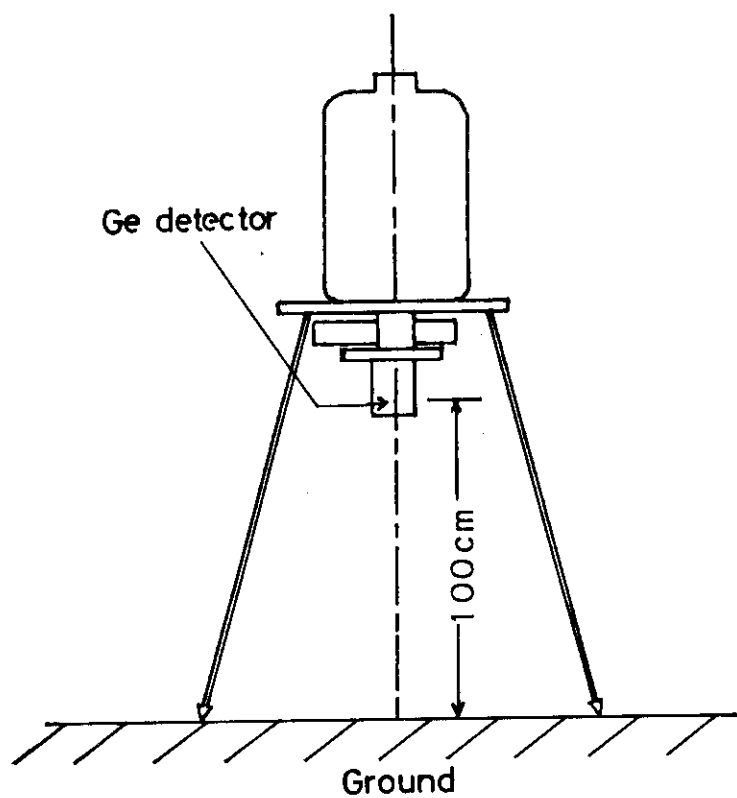
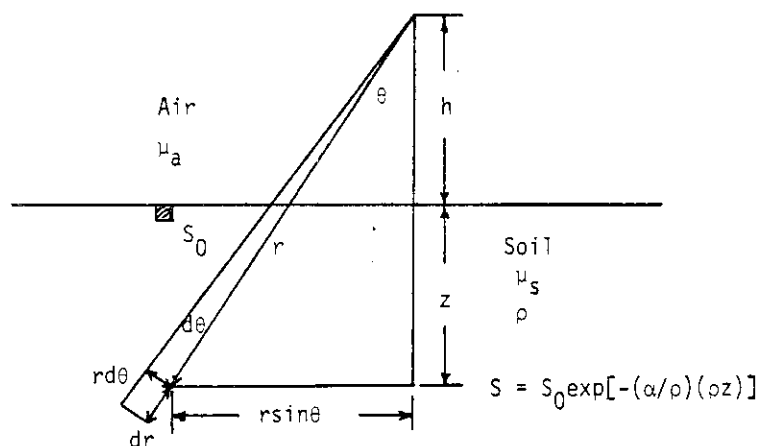


Fig. 4.1 Geometry between a Ge detector and radiation sources in in-situ measurement of soil-activities

Fig. 4.2 Gamma-ray flux Φ and its angular dependence $d\Phi/d\theta$ at h meter above the ground for three different distributions of gamma-ray emitting nuclides in the soil⁴⁾



For exponentially distributed source with depth(ex.fallout nuclides)

$$\begin{aligned}\Phi &= \iint \frac{S_0}{4\pi r^2} \exp[-(\alpha/\rho)(\rho z)] \exp(-\mu_s z/\cos\theta) \exp(-\mu_a h/\cos\theta) 2\pi r \sin\theta \, r dr d\theta \\ &= \frac{S_0}{2} \int_0^{\pi/2} \int_{h/\cos\theta}^{\infty} \exp[-\{(\alpha/\rho)\rho + (\mu_s/\cos\theta)\}z] \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \sin\theta \, dz d\theta\end{aligned}$$

$$\frac{d\Phi}{d\theta} = \frac{S_0}{2\rho} \frac{\sin\theta}{(\alpha/\rho)\cos\theta + (\mu_s/\rho)} \exp(-\mu_a h/\cos\theta)$$

For uniformly distributed source with depth (ex. K-40, U-238 series,Th-232 series)

$$\alpha/\rho = 0$$

$$\Phi = (S_0/\rho)/[2\mu_s/\rho] \int_0^{\pi/2} \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \sin\theta \, d\theta$$

$$\frac{d\Phi}{d\theta} = \frac{(S_0/\rho)\sin\theta}{2(\mu_s/\rho)} \exp(-\mu_a h/\cos\theta)$$

For infinite plane source (ex. fresh fallout nuclides)

$$\alpha/\rho \rightarrow \text{infinite}$$

$$\Phi = (S_A/2) \int_0^{\pi/2} \tan\theta \exp(-\mu_a h/\cos\theta) \, d\theta = (S_A/2) E_1(\mu_a h)$$

$$\frac{d\Phi}{d\theta} = (S_A/2) \tan\theta \exp(-\mu_a h/\cos\theta)$$

S_A ; soil activity per unit area

E_1 ; exponential integral

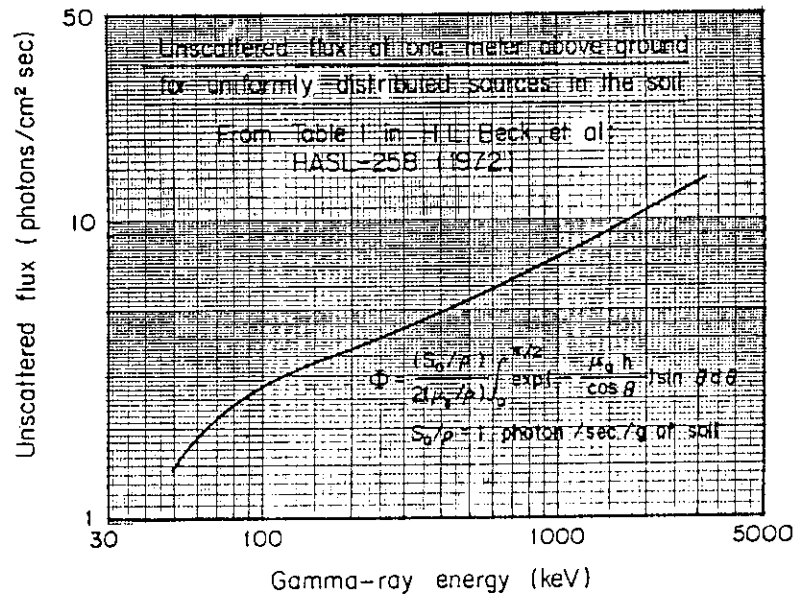


Fig. 4.3 Unscattered flux at one meter above ground for uniformly-distributed sources in the soil

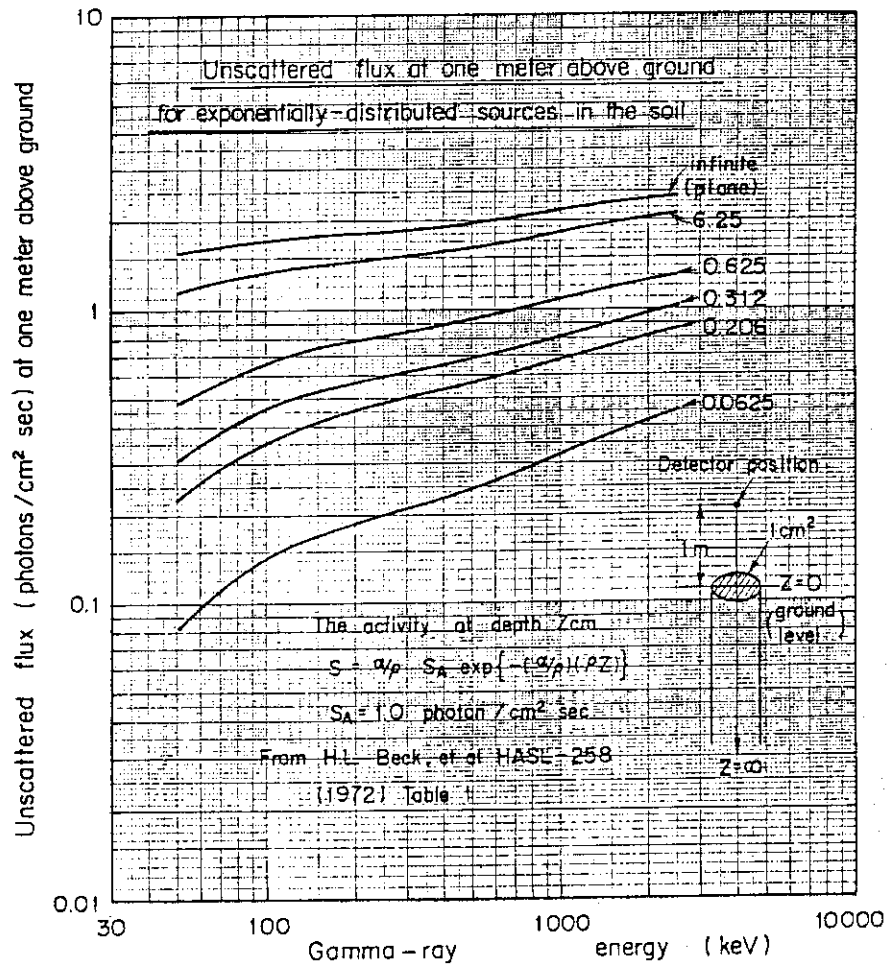


Fig. 4.4 Unscattered flux at one meter above ground for exponentially-distributed sources in the soil

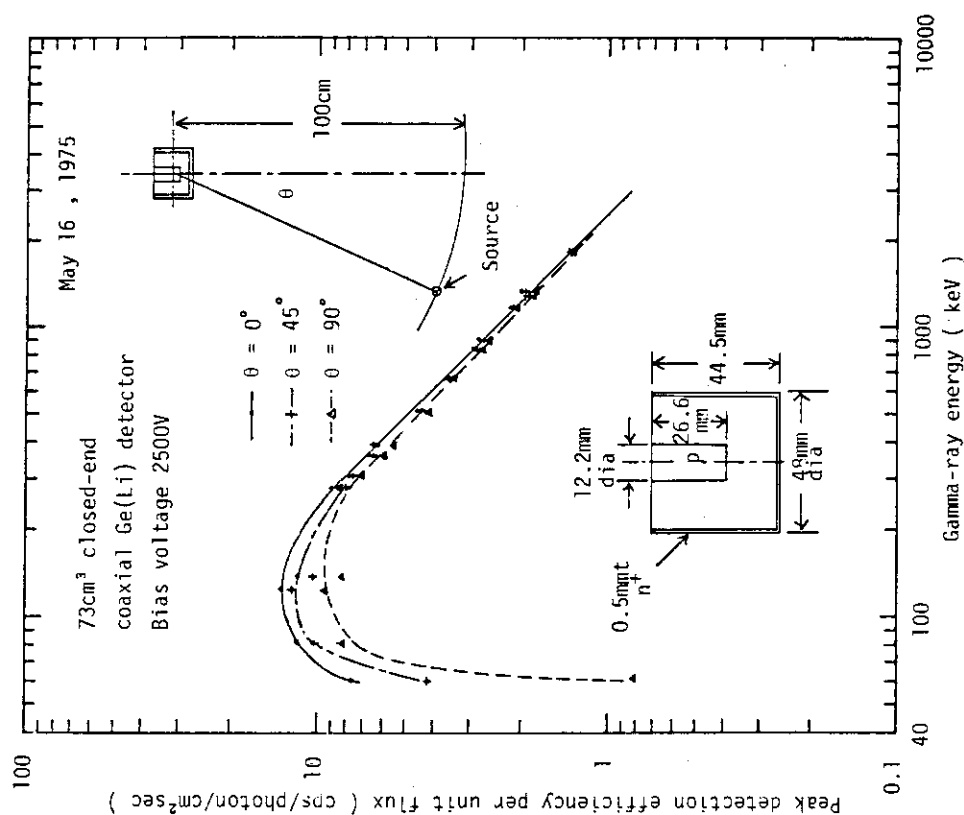


Fig. 4.5 Peak detection efficiency per unit flux of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) gamma-ray spectrometer measured at source-to-detector distance 100cm

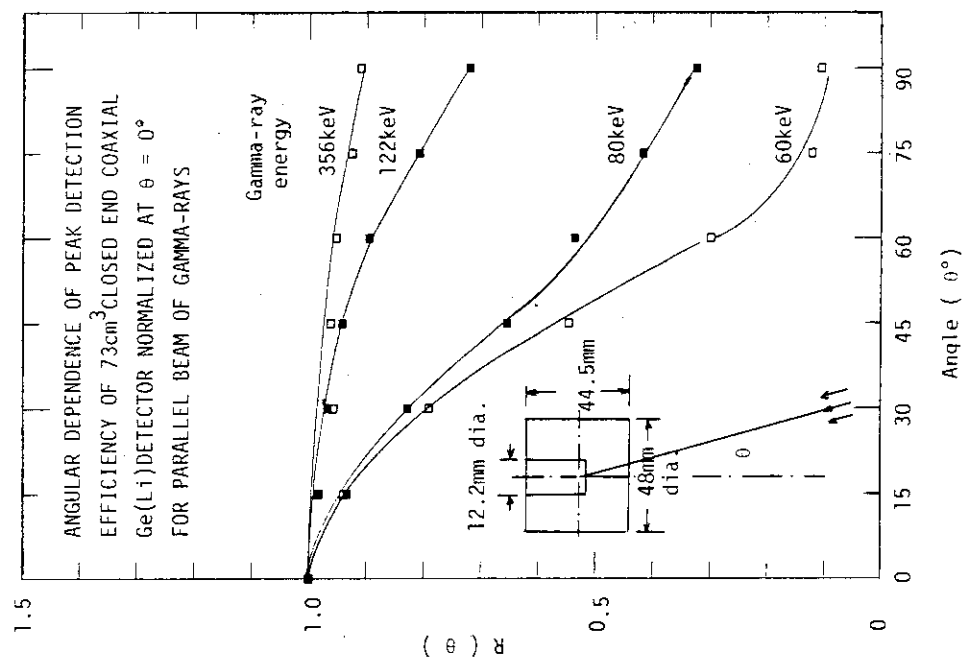


Fig. 4.6 Angular dependence of peak detection efficiency of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) detector normalized at $\theta = 0^\circ$ for parallel beam of gamma-rays of 60, 80, 122, and 356keV

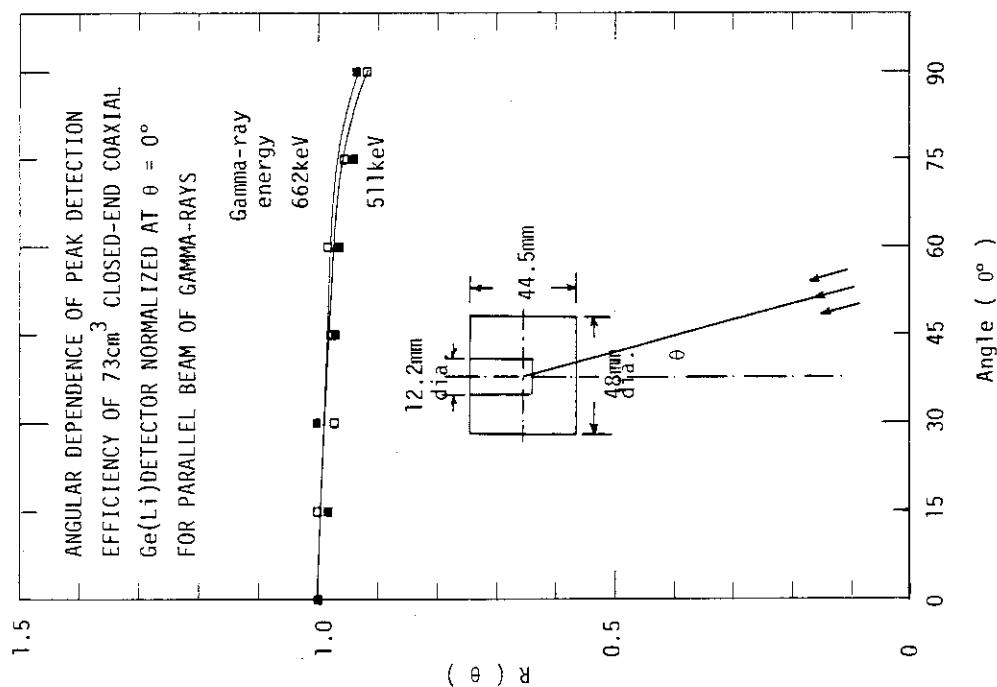


Fig. 4.7 Angular dependence of peak detection efficiency of 73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) detector normalized at $\theta=0^\circ$ for parallel beam of gamma-rays of 511keV and 662keV

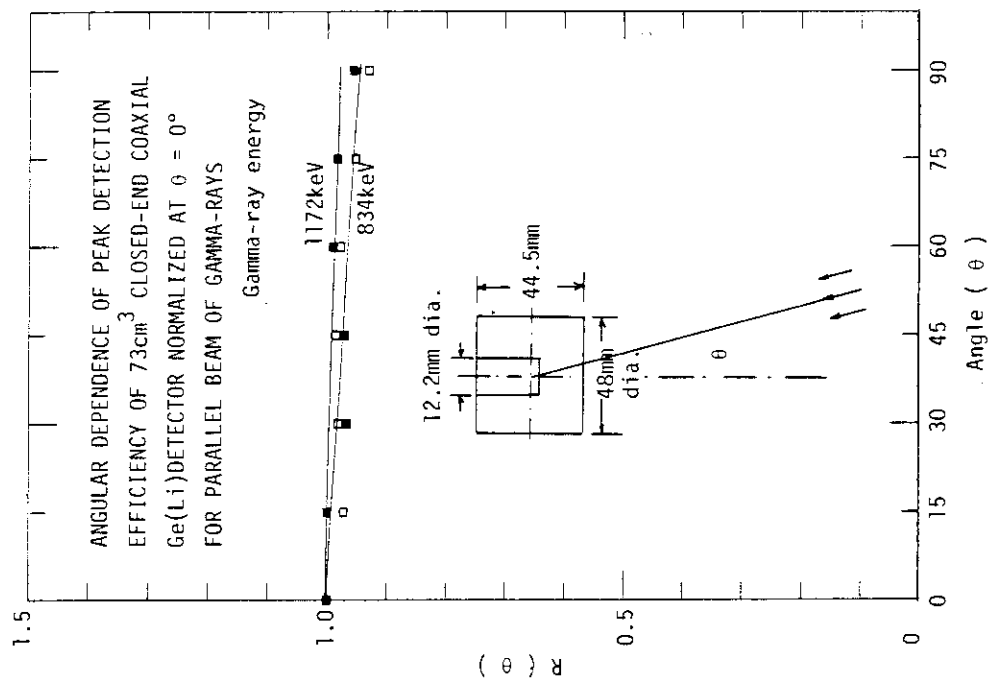


Fig. 4.8 Angular dependence of peak detection efficiency of 73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) detector normalized at $\theta=0^\circ$ for parallel beam of gamma-rays of 834 and 1173keV

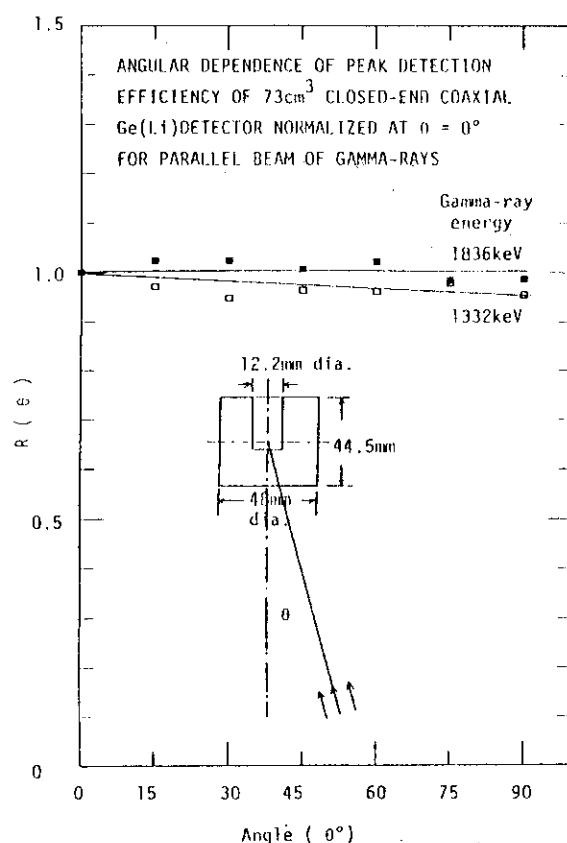


Fig. 4.9 Angular dependence of peak detection efficiency of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) detector normalized at $\theta=0^\circ$ for parallel beam of gamma-rays of 1333 and 1836keV

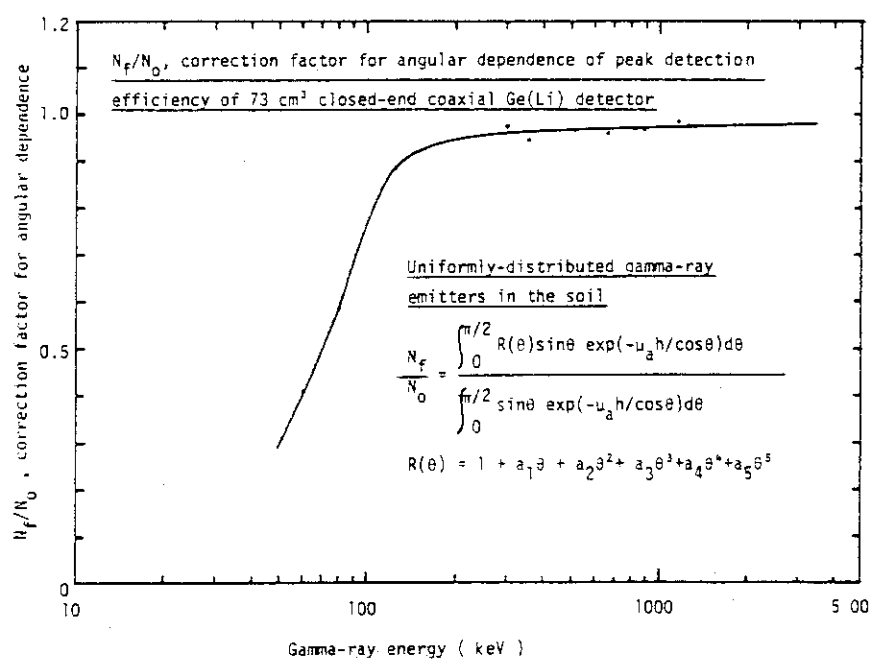


Fig. 4.10 Correction factor N_f/N_0 for angular dependence of peak detection efficiency of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) detector for uniformly-distributed emitters in the soil

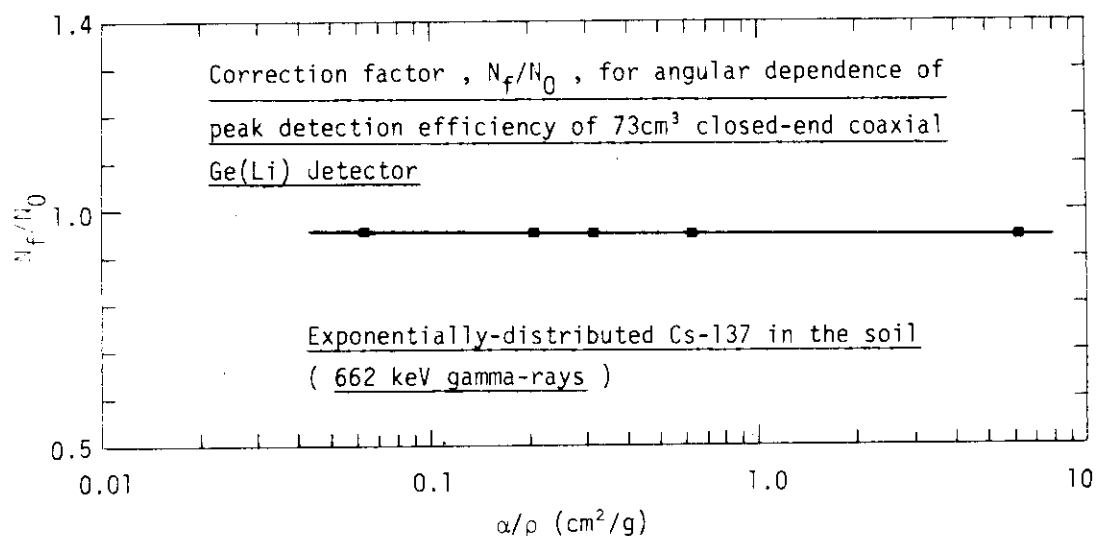


Fig. 4.11 Correction factor, N_f/N_0 , for angular dependence of peak detection efficiency of 73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) detector

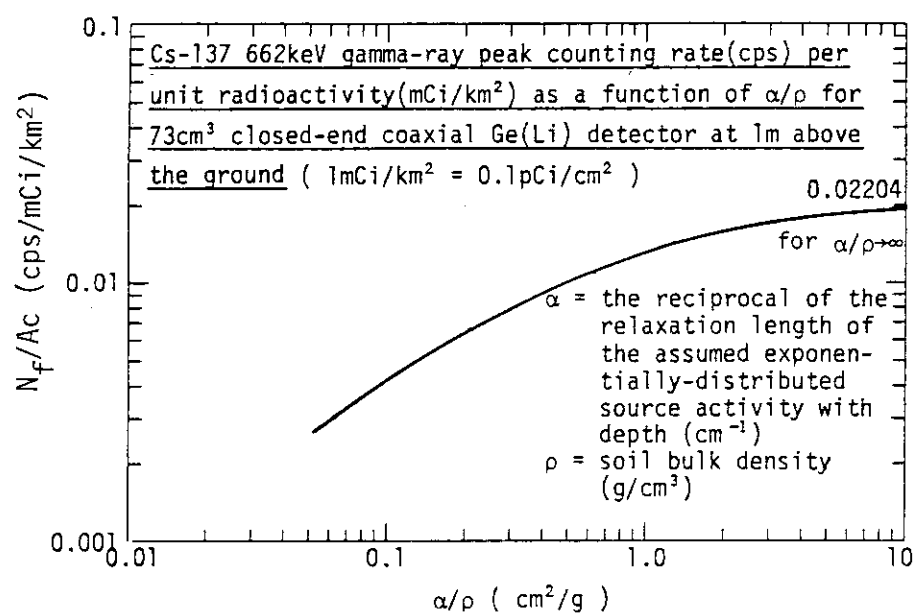


Fig. 4.12 Cs-137 662keV gamma-ray peak counting rate (cps) per unit radioactivity (mCi/km^2) as a function of α/ρ for 73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) detector at 1m above the ground

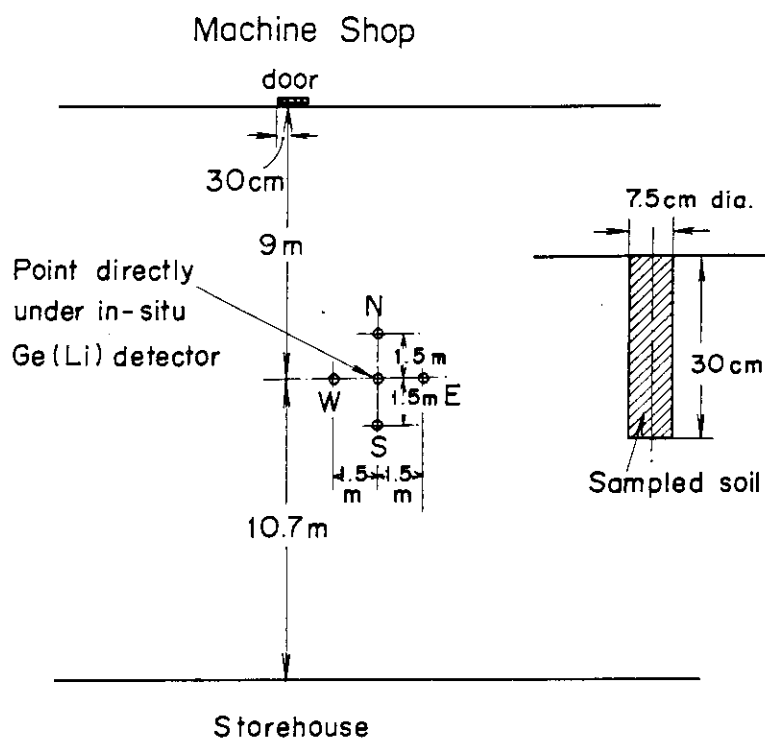


Fig. 4.13 In-situ Ge(Li) detector measurement point and soil-sampled points

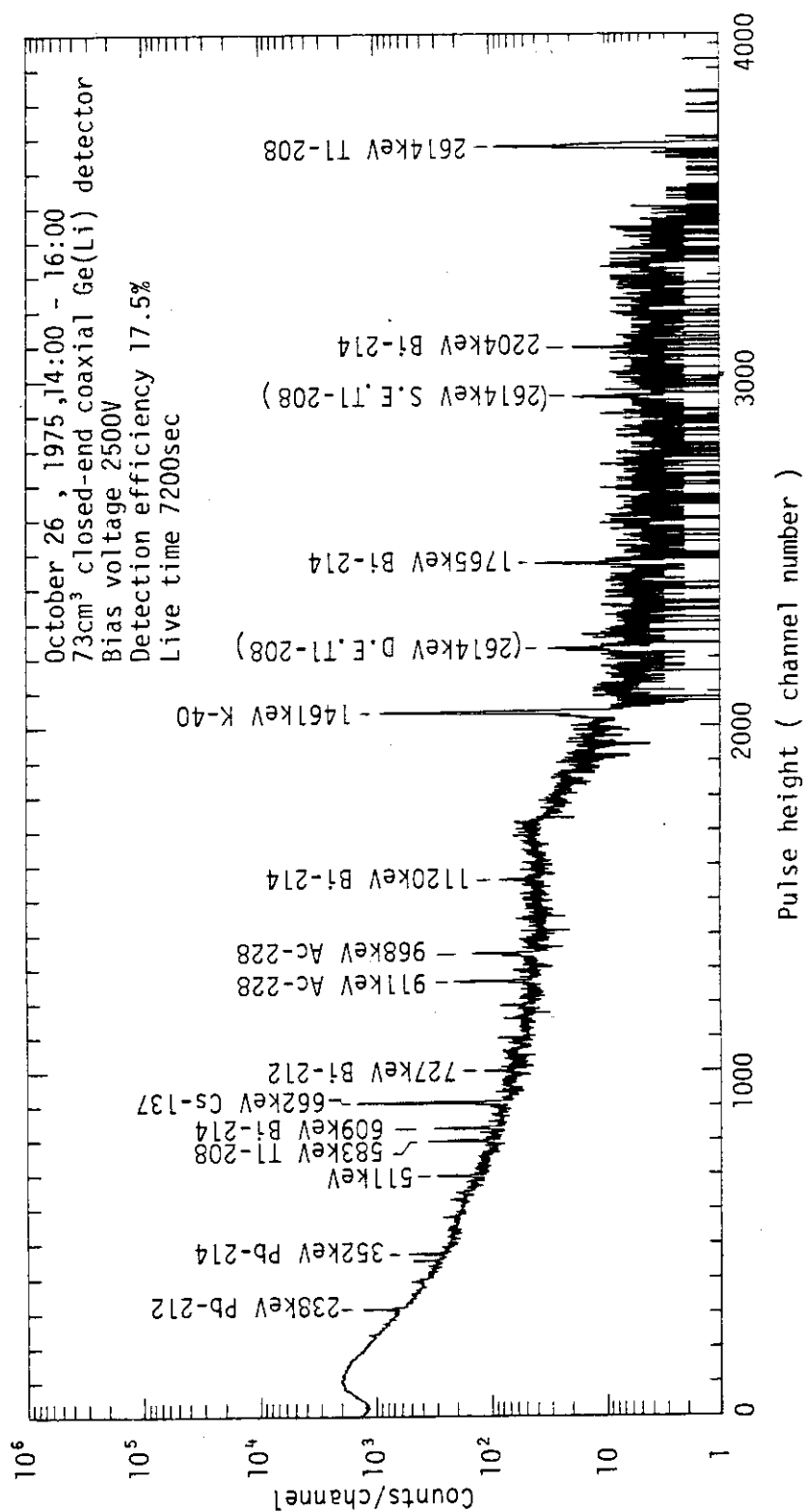


Fig. 4.14 In-situ gamma-ray pulse height distribution measured on the lawn between Machine Shop and Storehouse in Japan Atomic Energy Research Institute on October 26, 1975

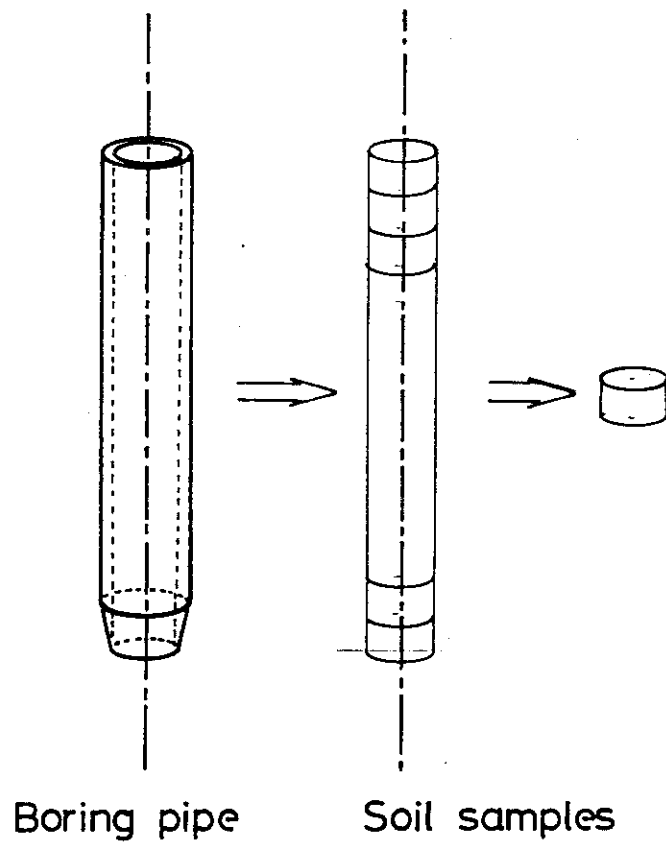


Fig. 4.15 Iron pipe (outer diameter 9.0cm, inner diameter 7.5cm, length 39cm; very simple core sampler) and a stack of sampled soil

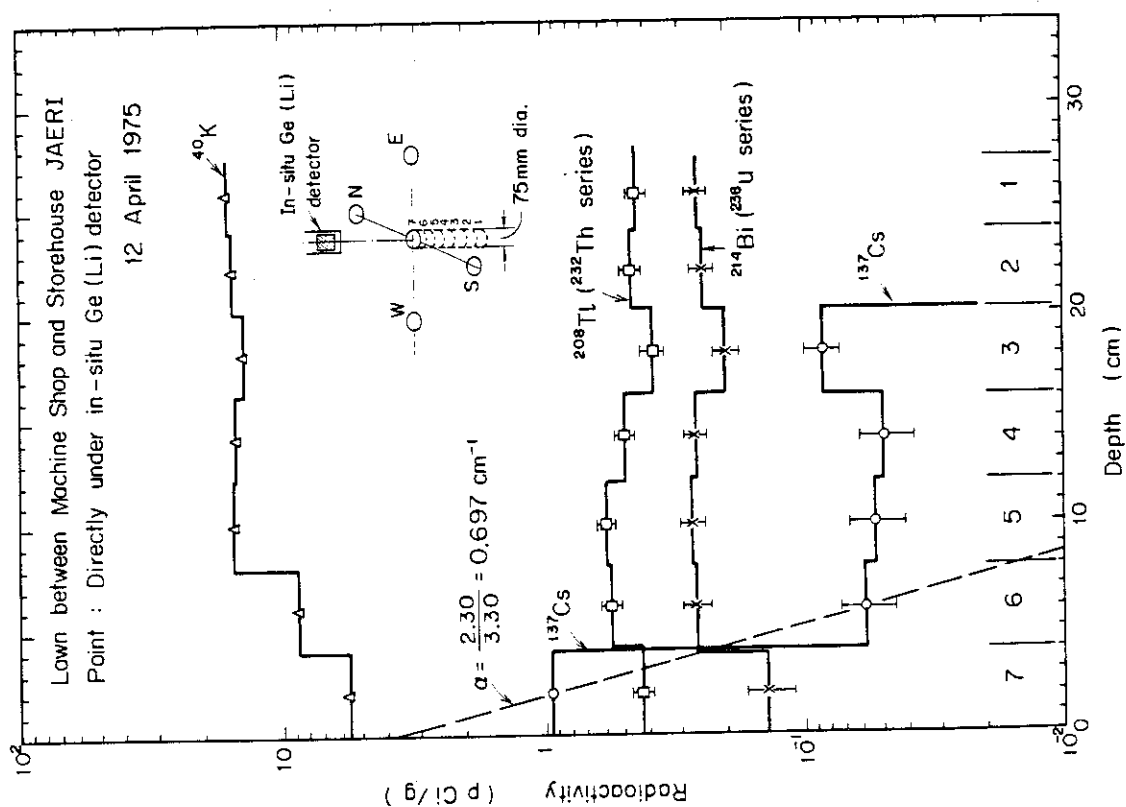


Fig. 4.16 Depth distribution of radioactivities in soil directly under in-situ Ge(Li) detector

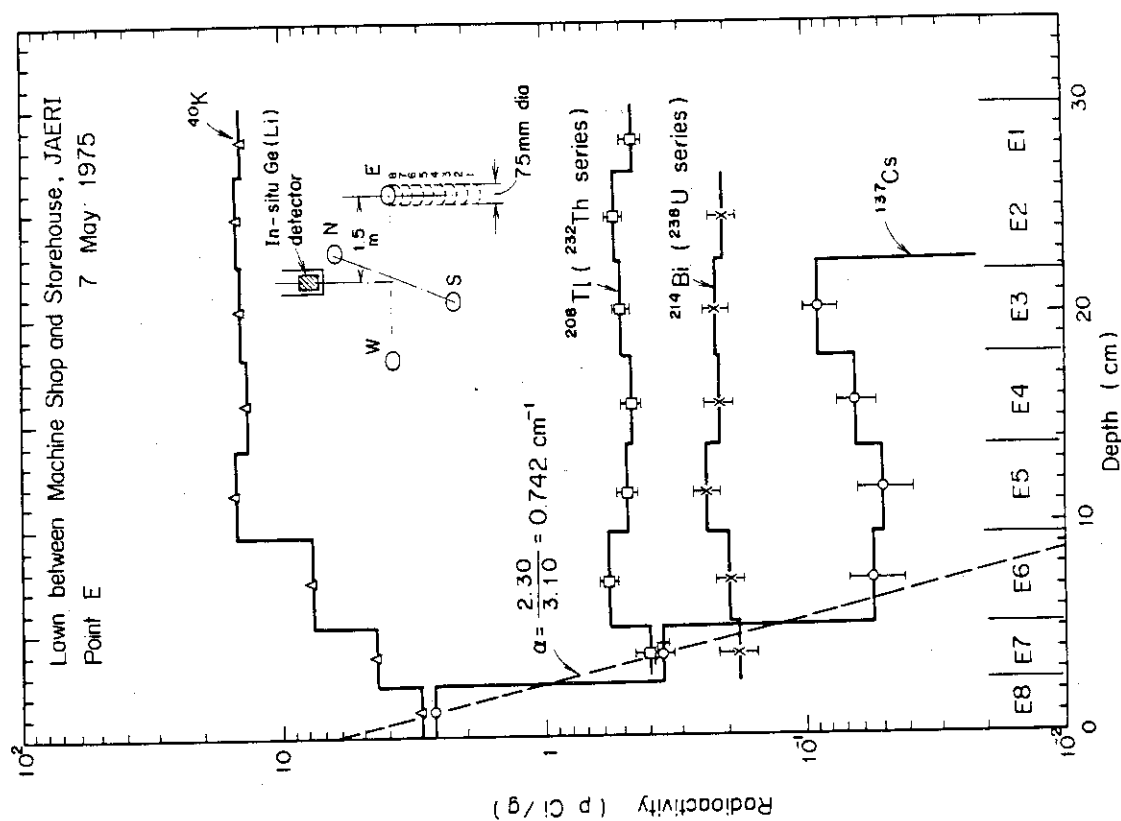


Fig. 4.17 Depth distribution of radioactivities in soil at point E

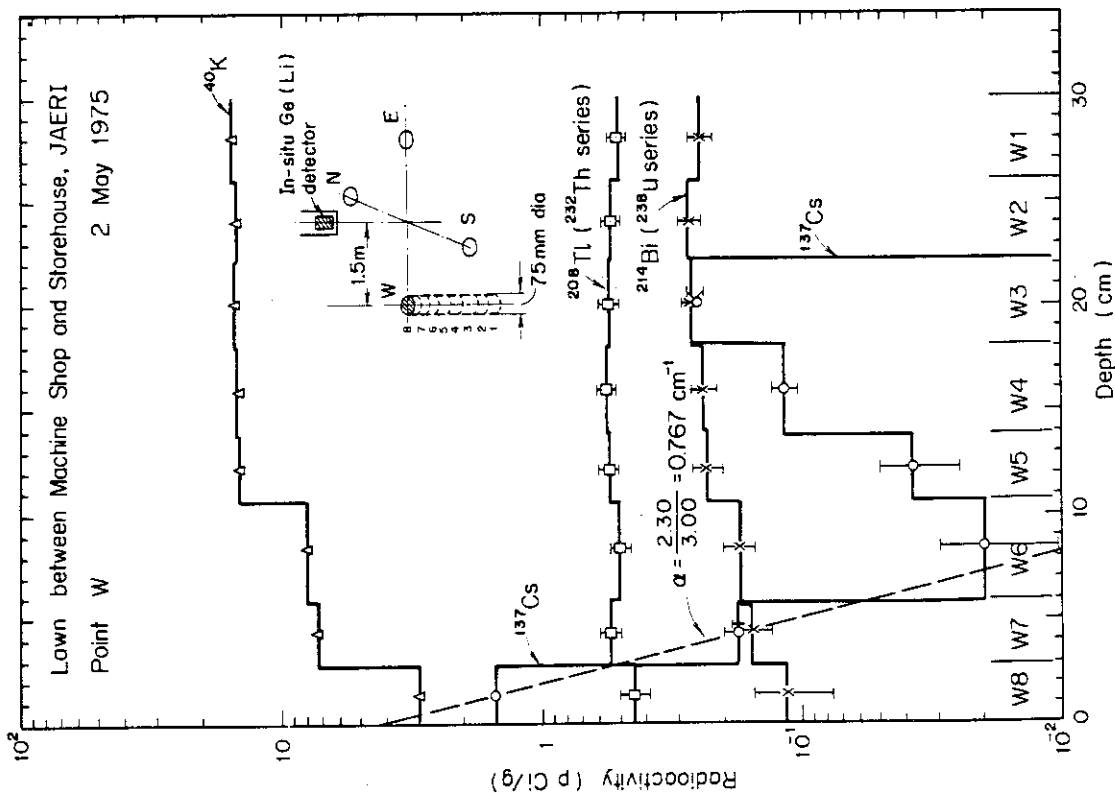


Fig. 4.18 Depth distribution of radioactivities in soil at point W

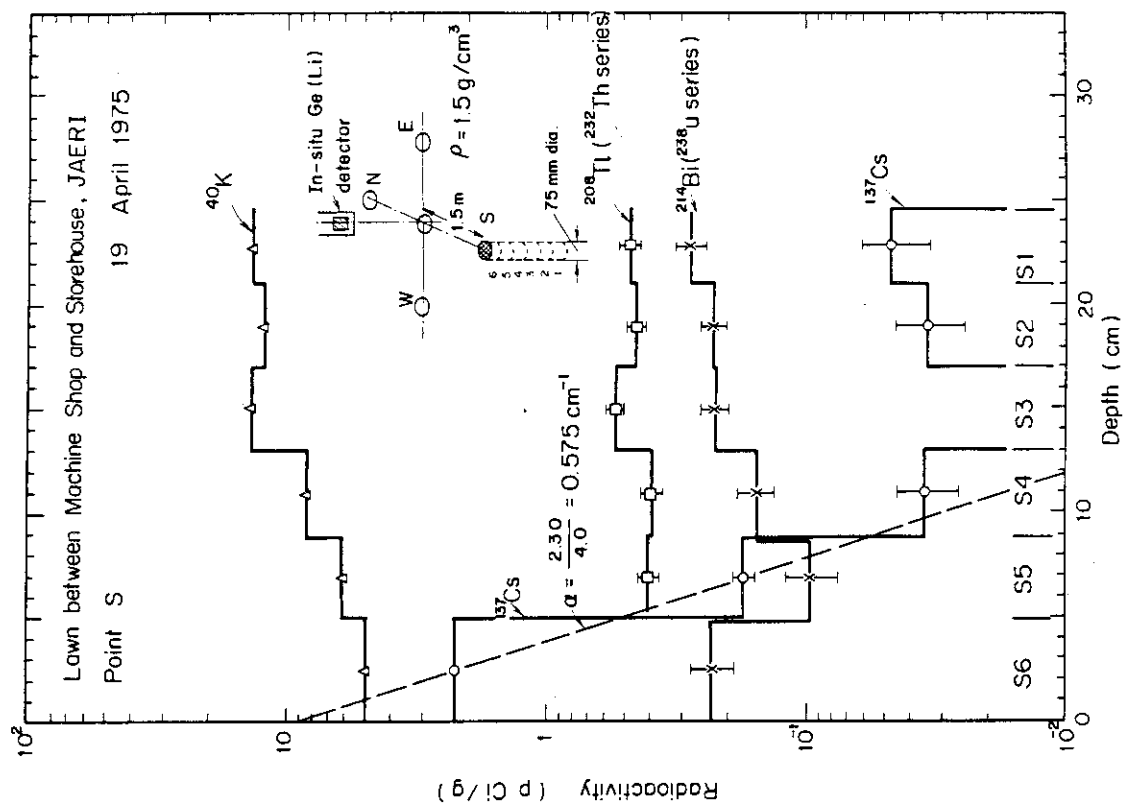


Fig. 4.19 Depth distribution of radioactivities in soil at Point S

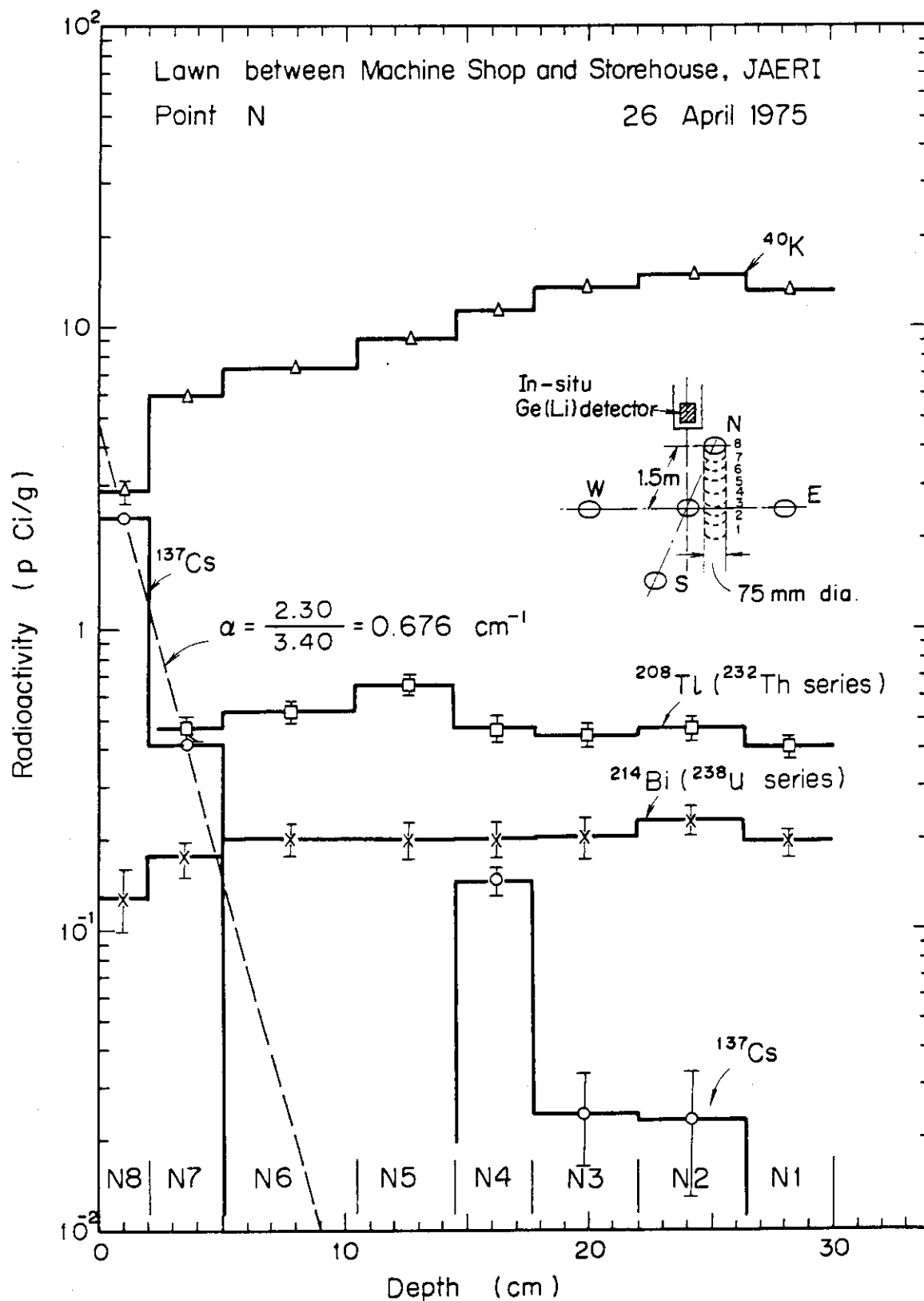


Fig. 4.20 Depth distribution of radioactivities in soil at point N

5. 環境ガンマ線照射線量率のin-situ 測定

5.1 緒 言

環境放射線モニタリングの基本目標は、原子力施設周辺公衆の健康と安全を守るため、環境における放射線量が公衆の個人に容認される線量限度を十分下まわっていることを確認することにある。この環境放射線モニタリングにおいて従来では、電離箱、GM管計測装置、積算線量計およびNaI (Tℓ) 検出器などをモニタリングポストおよびステーションに設置して用いていた。しかし、原子力開発の進展と共に放射線防護の考え方も進み、“as low as practicable”の考え方から許容被曝線量以下に設定した線量目標値が維持されていることを推定評価することが具体的目的となって来ている。

我国における軽水型発電炉の周辺環境における線量目標値として、5ミリレム／年が原子力委員会によって昭和50年5月に定められた。そしてこれに対応するため、新しい環境放射線測定法の研究開発および従来方法の試験評価が行なわれた。¹⁾

原研の森内は、スペクトル線量変換演算子値関数法を開発し、NaI (Tℓ) 検出器を用いて環境ガンマ線の線量評価を行なった^{2), 3)}。この方法は、ガンマ線パルス波高(ガンマ線のエネルギー)に応じた線量寄与率を到来するパルス毎に積算し一定時間の線量を求めるものである。したがって、標準線源の線量との比較測定に基づく従来の測定方法よりも厳密に線量を評価できる方法である。

Ge 検出器は長期間における環境ガンマ線のモニタリングに用いるのには適さないとされており、高純度のGe結晶を用いたGe検出器が普及している今日においてもこのような考え方は変っていない。しかしながら、短期的に環境ガンマ線の測定を行ない、原子力施設に起因するガンマ線の弁別や線量の精密な値を求める方法として、可搬型Ge検出器を用いた環境ガンマ線のin-situ スペクトル測定は有効な方法と考えられる。

Ge 検出器の特徴は、その優れたエネルギー分解能にあり、従来のNaI (Tℓ) 検出器によるガンマ線スペクトルに比較してより多くの情報を得ることができる。そして、Ge 検出器によるガンマ線スペクトルから線量を精密に定量することが可能であれば、先の線量目標値(5ミリレム／年)を確認する測定法の一つとして、in-situ 測定方法は有益なものとなる。このような考えに基づいて、in-situ 測定したGe 検出器スペクトルから線量値を定量する方法の研究を行なった。

HASLのBeckらは、NaI (Tℓ) 検出器によってin-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルの各ピーク計数値から土壌放射能に起因する線量(率)を求める方法を開発し、さらにGe 検出器スペクトル中のピーク計数値にも同様な方法を拡張して適用した。⁴⁾また、筆者は森内の開発したスペクトル線量変換演算子値関数法をGe 検出器スペクトルに適用し、Ge 検出器によってin-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルから線量を定量することに成功した^{5), 6)}。

本章においては、試作した可搬型Ge (Li) 検出器を用いてin-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルから線量(率)を定量するために、HASL方式の較正を行なうと共にスペクトル線量

変換関数を決定し、同一スペクトルからこれら二つの方法による線量（率）の値を求めて比較検討を行なった結果について述べる。さらに同一の in-situ 測定地点において同時に、NaI(Tl) 検出器および電離箱を並べて環境ガンマ線の線量（率）を求め、Ge 検出器スペクトルから求めた線量（率）値との比較を行なった結果についても述べる。⁷⁾

5.2 HASL 方式による線量率の定量方法

試作した可搬型 Ge(Li) 検出器を用いて in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルを解析して求めた各ピーク計数率の値から土壤放射能に起因する線量率値を定量するために、HASL方式の検出器較正を行なった。前の第4章に述べたように、地上1mに設置したGe検出器には土壤中の自然放射能核種 ^{40}K , ^{238}U および ^{232}Th 系列、そしてフォールアウト ^{137}Cs などに起因するガンマ線が入射し、スペクトル解析によって各々のピーク計数率 N_i が求まる。HASL方式では、この N_i を用いて核種 i に起因する線量率 Y_i を次式のように求めている。

$$Y_i [\mu\text{R}/\text{h}] = N_i / (N_f \cdot I^{-1}) \quad (5.1)$$

ここで (N_f/I) は第4章で述べた (N_f/Ac) と同様に一種の検出効率として用いる値であり、線量率を求める場合、使用する検出器について予め求めておかねばならない。 N_f/I は、

$$\frac{N_f}{I} = \frac{N_0}{\phi} \cdot \frac{N_f}{N_0} \cdot \frac{\phi}{I} \quad [\text{CPS}/\mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}] \quad (5.2)$$

で定義される量である。上式の各因子の定義を示す。

$\frac{N_f}{I}$: あるエネルギーのガンマ線が地上1mのGe検出器位置に与える線量率が $1 \mu\text{R}/\text{h}$ であるときのピーク計数率の値 (CPS)。この場合の線量率には直接ガンマ線ばかりでなく散乱ガンマ線の寄与も含まれている。

$\frac{N_0}{\phi} \cdot \frac{N_f}{N_0}$: 前の第4章に述べた定義と同じであり、検出器の特性測定によって決定される因子である。

$\frac{\phi}{I}$: ϕ は検出器に入射する直接（非散乱）ガンマ線束 ($\text{Photon}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$) であり、 I は散乱ガンマ線の寄与も含む全照射線量率 ($\mu\text{R}/\text{h}$) である。

5.3.1 $\frac{\phi}{I}$ 因子の計算

上記の最後に述べた $\frac{\phi}{I}$ について以下に考察する。照射線量が 1 R (Röntgen) であると云う定義は、 0°C , 760 mm Hg の空気 1 cm^3 (0.001293 g) 中で 1 e.s.u. の電荷を作る X線およびガンマ線の量である。したがって、SI 単位系では 0°C , 760 mm Hg の空気 1 kg 中に、 5.28×10^{-4} Coulomb の電荷が生成される。すなわち、

$$1 \text{ R} = 5.28 \times 10^{-4} [\text{C}/\text{kg}] \quad (5.3)$$

であり、

$$1 \text{ R}/\text{h} = 7.166 \times 10^{-8} [\text{C}/\text{kg} \cdot \text{sec}] \text{ または } [\text{A}/\text{kg}] \quad (5.4)$$

である。さらに

$$1 \mu\text{R}/\text{h} = 7.166 \times 10^{-14} \text{ A}/\text{kg} \quad (5.5)$$

となる。

一方、エネルギー E_D のガンマ線が線束 $\phi(E_D)$ で 1 kg の空気に入射し単位時間に失うエネルギーは

$$E' = \frac{\mu_e E_D \phi(E_D)}{\rho} \quad [\text{J}] \quad (5.6)$$

であり、これによって電荷が生成される。入射するガンマ線には、直接に入射して来るものおよび散乱を経て入射して来るものが含まれており、エネルギーに関する分布関数である。したがって、空气中で失う全エネルギー E_ℓ は

$$E_\ell = \int_0^{E_D} \frac{\mu_e E \phi(E)}{\rho} dE \quad [\text{J/kg} \cdot \text{sec}] \quad (5.7)$$

である。空気の分子 1 個を電離するのに必要なエネルギー値を $W_{\text{air}} [\text{J}]$ とすれば、生成されるイオン対の数 N は

$$N = \frac{E_\ell}{W} \quad [\text{対/kg} \cdot \text{sec}] \quad (5.8)$$

であり、また生成される全電荷は

$$Q = 1.602 \times 10^{-19} \times \frac{1}{W_{\text{air}}} \int_0^{E_D} \frac{\mu_e E \phi(E)}{\rho} dE \quad [\text{C/kg} \cdot \text{sec}] \quad (5.9)$$

である。これを定義に従って線量率 $I (\mu\text{R/h})$ で表わすと

$$I = \frac{1.602 \times 10^{-19}}{7.166 \times 10^{-14}} \times \frac{1}{W_{\text{air}} \cdot \rho} \int_0^{E_D} \mu_e \cdot E \cdot \phi(E) dE \quad (\mu\text{R/h}) \quad (5.10)$$

となる。先に定義した $\frac{\phi}{I}$ において I は上式 (5.10) によって求められる。しかし、(5.10) 式の $\phi(E)$ は、放射性核種の土壤中の分布、地質および土壤中の水分など種々の影響を受けるので、簡単に求めることはできない。通常このように散乱ガンマ線の寄与を含めて線量率を評価する場合、いわゆるビルドアップファクタを使用する方法およびボルツマンの輸送方程式をルジャンドル多項式を用いて解く方法とがある。Beck らが後者の輸送方程式を用いて地上 1 m における線量率を求めた結果が Table 5.1 に示す値である。第 4 章の Table 4.2 とこの Table 5.1 の $\alpha/\rho = 0$ に対応する値の比が Table 5.2 に示すように $\frac{\phi}{I}$ の値である。Fig. 5.1 にそのプロット図を示す。これらの $\frac{\phi}{I}$ の値は ^{40}K のような単一エネルギーのガンマ線を放出する核種に適用できる。

実際の環境においてガンマ線を放出する核種のうち ^{238}U 系列や ^{232}Th 系列などに属する核種は 1 崩壊あたり種々のガンマ線を放出する。これらの核種については、個々のピークガンマ線計数率から各々の系列全体の全線量率を評価する場合が多いので、このための $\frac{\phi}{I}$ の値が必要である。

環境の土壤中における ^{238}U 系列や ^{232}Th 系列に属する核種は、通常では放射平衡に達しており、親核種と娘核種の崩壊速度はほぼ一定となる。したがって、系列内の各核種の毎秒の崩壊数すなわち放射能強度は等しい。したがって、土壌 1 g 中の各崩壊系列の親核種 1 pCi あたりの全線量率（地上 1 m の検出器位置における）は、各核種 1 pCi/g（土壌）あたりの線量率の和である。

核種 K_0 が次のような崩壊系列で平衡であるとする。

$$K_0 \rightarrow K_1 \rightarrow K_2 \cdots \cdots \rightarrow K_i \rightarrow \cdots \cdots K_n$$

$$(i = 0, 1, 2, \cdots n)$$

また、娘核種の各々は、エネルギー E_{ij} [$i = 1, 2, 3 \cdots j_{\max}(i)$] のガンマ線を放出し、その崩壊あたりの放出率を r_{ij} とする。娘核種 K_i が土壤中に 1 pCi 存在するとすれば、毎秒放出されるガンマ線光子の数 N_{ij} は

$$N_{ij} \left[\frac{\text{Photons/sec}}{\text{pCi}} \right] = r_{ij} \times 3.7 \times 10^{-2} \quad (5.11)$$

である。一方、Table 5.1 に示した Beck らの計算値からエネルギー E_{ij} のガンマ線の検出器位置に与える線量率 I_{ij} は内挿によって求められる。 N_{ij} と I_{ij} の積は、

$$N_{ij} \cdot I_{ij} \left[\frac{\mu R/h}{\text{pCi/g}} \right] = r_{ij} \cdot I_{ij} \times 3.7 \times 10^{-2} \quad (5.12)$$

となり、エネルギー E_{ij} のガンマ線の線量率寄与分を表わす。そしてこの崩壊系列の全線量率 I は、

$$I \left[\frac{\mu R/h}{\text{pCi/g}} \right] = 3.7 \times 10^{-2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^{j_{\max}(i)} r_{ij} I_{ij} \quad (5.13)$$

で表わすことができる。

また、Table 4.2 に示した Beck らの計算値からエネルギー E_{ij} のガンマ線の検出器位置における線束値 ϕ_{ij} を内挿によって求めることができる。 N_{ij} と ϕ_{ij} の積は、

$$N_{ij} \cdot \phi_{ij} \left[\frac{\text{Unscattered } \phi}{\text{pCi/g}} \right] = r_{ij} \cdot \phi_{ij} \times 3.7 \times 10^{-2} \quad (5.14)$$

である。上式を (5.13) 式で割った値が

$$\frac{\phi}{I} \left[\frac{\text{Unscattered } \phi}{\mu R/h} \right] = \frac{r_{ij} \phi_{ij}}{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^{j_{\max}(i)} r_{ij} I_{ij}} \quad (5.15)$$

である。したがって、どれか1本のエネルギー E_{ij} のガンマ線の検出器位置 (地上 1 m) における非散乱ガンマ線束が求まれば、 K_0 で始まる崩壊系列中の全核種の放出するガンマ線による線量率を求めることができる。Table 5.3 には、Beck らの求めた ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列の各核種に対する (5.15) 式の ϕ/I の値を示す。以下に述べる実験ではこれらの値を用いて線量率の定量を行なった。同様に Table 5.4 はフォールアウト核種に対する ϕ/I の値を示す。

5.2.2 試作した可搬型 Ge (Li) 検出器の N_f/I の決定

試作した可搬型 Ge (Li) 検出器について (5.2) 式に従って各因子を校正実験と計算とによって求めた N_f/I の値を Fig. 5.2 にガンマ線エネルギーの関数として示す。この場合用いた ϕ/I の値は Fig. 5.1 に示したものである。したがって、単一ピークの核種に対する N_f/I の値であり、また土壤中に一樣分布している核種を対象にした値である。

Table 5.5 には、土壤中に一樣分布する ^{40}K および ^{238}U 系列、 ^{232}Th 系列に属する種々の核種に対して決定した本可搬型 Ge (Li) 検出器の N_f/I の値を N_0/ϕ , N_f/N_0 , ϕ/I の値と共に示す。また、Table 5.6 には同様に求めたフォールアウト ^{137}Cs に対する N_f/I を

N_0/ϕ , N_f/N_0 および ϕ/I の値と共に種々の指数関数分布について示す。

以上の様にして決定した N_f/I の値を in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルに適用し、土壌中の ^{40}K , ^{137}Cs , ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列などの核種に起因する線量率を求めた結果を Table 5.7 に示す。測定スペクトルは第4章 Fig. 4.14 に示したものであり、ピーク計数率の解析結果は Table 4.5 の値を使用した。線量率の総和は、約 $4.0 \mu\text{R/h}$ であった。Table 5.7 の右側の欄には、この値を評価検討するために同地点で別の日時に行なった NaI (Tl) 検出器による線量率測定の結果を示す。この結果は $4.6 \mu\text{R/h}$ であり、 $0.6 \mu\text{R/h}$ だけ大きい値となったが、以上に行なった可搬型 Ge (Li) 検出器について求めた N_f/I の値が妥当であることを示している。さらに詳細な検証実験については後の 5.4 節で詳しく述べる。

5.3 Ge 検出器のスペクトル・線量変換関数法

Ge 検出器や NaI (Tl) 検出器を用いて測定したガンマ線スペクトルは、何らかの形で検出器位置における照射線量に関する情報を含んでいるはずである。森内らは、スペクトルから直接的に線量を算出するための“スペクトル・線量変換演算子値関数法”を開発し、NaI (Tl) 検出器を用いて実用化に成功した^{2), 3)}。この方法の利点は、線源の存在分布に関係なく、検出器位置の線量を求められる点および入射するガンマ線のエネルギーに依存した線量寄与を積算できる点などである。本節では、スペクトル・線量変換関数法を Ge 検出器で測定したスペクトルにも適用することを目的とし、試作した可搬型 Ge (Li) のスペクトル・線量変換関数を求め、この関数の種々のパラメータについて影響を調べ、この関数を実測した環境ガンマ線スペクトルに適用して線量率を求めた結果について述べる。

5.3.1 スペクトル・線量変換関数の計算方法

スペクトル・線量変換関数を $G(E)$ と表わす。エネルギー E_j (MeV) のガンマ線が単位線束 (Photon/cm²·sec) で Ge 検出器に入射したとき生じるパルスの分布関数を $n(E, E_j)$ [Count·sec⁻¹·MeV⁻¹/Photon·cm⁻²·sec⁻¹] とすると検出器位置における線量率 $D(E_j)$ [$\mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$ /Photon·cm⁻²·sec⁻¹] は

$$D(E_j) = \int_0^\infty n(E, E_j) \cdot G(E) dE \quad (5.16)$$

の様にスペクトル・線量変換関数 $G(E)$ を用いて表すことができる。実際の環境ガンマ線スペクトルには、種々のエネルギーのガンマ線が混在しているので、スペクトルは、

$$N(E) = \sum_j \phi(E_j) \cdot n(E, E_j) \quad (5.17)$$

で表わされる。ここで、 $\phi(E_j)$ はエネルギー E_j のガンマ線束である。したがって種々のエネルギーのガンマ線の線量率の総和 D は、

$$D = \sum_j \phi(E_j) \cdot D(E_j) \quad (5.18)$$

$$= \sum_j \phi(E_j) \int_0^\infty n(E, E_j) \cdot G(E) dE$$

$$= \int_0^{\infty} \left[\sum_j \phi(E_j) n(E, E_j) \right] \cdot G(E) dE$$

(5.17) 式を代入すると

$$D = \int_0^{\infty} N(E) \cdot G(E) dE \quad (5.19)$$

となる。このように、種々のエネルギーのガンマ線が混在するときにも $G(E)$ を適用することができ、線量率を求めることができる。これがスペクトル・線量変換関数の原理および定義である。^{2), 3)}

次に Ge 検出器のスペクトル・線量変換関数を実験データを用いて決定する方法について示す。

(1) 標準スペクトルの測定

$G(E)$ 関数を求めるべき Ge 検出器によって種々のガンマ線の標準線源を用いて各々の標準スペクトルを測定しておく。すなわち、標準線源のガンマ線スペクトルを測定し、それからバックグラウンドガンマ線スペクトルを差し引いたスペクトルを求める。これがその線源の標準スペクトルである。このとき、標準線源と検出器との距離は 1 m とした。同時にその線源が検出器位置に与える線量率は次式により予め求められる。

$$D_j = \frac{(\sum E_p \cdot r_p \cdot \mu_p) \times 1.602 \times 10^{-6} \times 3.7 \times 10^4 \times 3.6 \times 10^3 \times X_j}{84 \times 4 \pi (100)^2} \quad [\mu R/h] \quad (5.20)$$

こゝで、 j : 用いた標準線源の番号

p : ピークガンマ線の番号

E_p : ピークガンマ線のエネルギー (MeV)

r_p : ピークガンマ線の放出率

μ_p : 空気のエネルギー吸収係数 (cm^2/g)

X_j : 線源の強度 (μCi)

以上の様に標準スペクトル N_j およびその線量率 D_j ($i = 1 \sim \text{JMAX}$) を予め求めておき大型計算機に入力する。³⁾

(2) $G(E)$ 関数の数式化

求めるべき $G(E)$ 関数を次の様に多項式として表わす。

$$G(E_i) = \sum_{k=1}^{\text{KMAX}} A_k \times (\log_{10} E_i)^{k-m-1} \quad (5.21)$$

こゝで、 k : 多項式の項数 ($k = 1 \sim \text{KMAX}$)

m : 任意に設定する定数

i : パルス波高分布 (スペクトル) のチャンネル番号 ($i = 1 \sim \text{IMAX}$)

E_i : チャンネル番号 i に対応するガンマ線エネルギー

A_k : 多項式の係数

である。この段階では A_k は未知数である。標準スペクトルの各チャンネルの計数値 N_{ij} に

(5.21) 式を掛けた値の総和が線量率 R_j となり次式の様になる。

$$R_j = \sum_{i=1}^{\text{IMAX}} \sum_{k=1}^{\text{KMAX}} N_{ij} \times A_k \times (\log_{10} E_i)^{k-m-1} \quad (5.22)$$

$$= \sum_{k=1}^{KMAX} A_k \sum_{i=1}^{IMAX} N_{ij} \times (\log_{10} E_i)^{k-m-1} \quad (5.23)$$

$$\text{次に } B_{jk} = \sum_{i=1}^{IMAX} N_{ij} \times (\log_{10} E_i)^{k-m-1} \quad (5.24)$$

とおくと、 R_j は、

$$R_j = \sum_{k=1}^{KMAX} A_k \cdot B_{jk} \quad (5.25)$$

となる。この B_{jk} を条件 (KMAX, m) に従って各々の標準スペクトル (N_{ij}) について計算を行なう。

(3) $G(E)$ 関数の最小自乗法による決定

(5.20) 式の D_j と (5.22) 式の R_j は一致すべき量である。すなわち D_j と R_j が等しくなるように A_k を決定すれば $G(E)$ 関数が求まる。このために次のように最小自乗法を適用して、各 A_k ($k=1 \sim KMAX$) を決定する。

まず、 D_j と R_j の差の相対値 S_j は、

$$S_j = \frac{R_j}{D_j} - 1 = \frac{\sum_{k=1}^{KMAX} A_k \cdot B_{jk}}{D_j} - 1 \quad (5.26)$$

のように表わせる。 S_j の自乗和 S^2 ($j=1 \sim JMAX$) は、

$$S^2 = \sum_{j=1}^{JMAX} S_j^2 \quad (5.27)$$

である。この S^2 が最小となるように A_k を求める。すなわち、

$$\frac{\partial S^2}{\partial A_k} = 0 \quad (k=1 \sim KMAX) \quad (5.28)$$

となる条件から次の正規方程式が導かれる。

$$\left. \begin{aligned} C_{11} A_1 + C_{12} A_2 + C_{13} A_3 + \cdots + C_{1k} A_k + H_1 &= 0 \\ C_{21} A_1 + C_{22} A_2 + C_{23} A_3 + \cdots + C_{2k} A_k + H_2 &= 0 \\ \vdots & \\ C_{\ell 1} A_1 + C_{\ell 2} A_2 + C_{\ell n} A_3 + \cdots + C_{\ell k} A_k + H_\ell &= 0 \\ \vdots & \\ C_{K1} A_1 + C_{K2} A_2 + C_{K3} A_3 + \cdots + C_{Kk} A_k + H_K &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (5.29)$$

上式の係数 $C_{\ell n}$ および H_ℓ を標準スペクトルデータおよび D_j を用いた計算により求める。

上式の k は、 $k=KMAX$ である。次に (5.29) 式の連立方程式を解き、各々の A_k ($k=1 \sim KMAX$) が求まる。 $A_1, A_2, \dots, A_{KMAX}$ を用いて (5.21) 式の $G(E)$ 関数が決定される。以上のように $G(E)$ 関数を求める計算を大型計算機の計算コードとして作成した。Fig. 5.2 にその FORTRAN プログラム流れ図を示す。本計算コードでは、 $G(E)$ 関数多様式の次数を順次 1

づつ増やして最小自乗法により A_k ($k = 1 \sim KMAX$) を求めている。そして (5.27) 式の S^2 の値が最も小さくなったときの次数の多項式を $G(E)$ 関数として採用している。

5.3.2 73 cm³ Closed-end 同軸型 Ge (Li) 検出器の $G(E)$ 関数

in-situ 測定に用いる 73 cm³ Closed-end 同軸型 Ge (Li) 検出器によって標準スペクトルの測定を行なった。Table 5.8 にはそのとき用いたガンマ線標準線源の核種および線源強度の値を示す。実験において 2 組 (A および B) の強度 ($\sim 10 \mu\text{Ci}$ および $\sim 100 \mu\text{Ci}$) の線源を用いた。核種は、²⁴¹Am, ⁵⁷Co, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn, ²²Na, ⁶⁰Co および ⁸⁸Y などである。Ge 検出器を地上 1 m の高さに保持し、真下の位置に線源を置いて測定を行なった。また、Ge 検出器の水平方向に 1 m 離れた点に線源を置いた測定も行なった。これは $G(E)$ 関数の形にガンマ線の入射角度が及ぼす影響を調べるために行なったものである。

Fig. 5.3 に 73 cm³ Closed-end 型 Ge (Li) 検出器に対して求めた $G(E)$ 関数を示す。図中の 2 本の曲線のうち A は線源強度が各々約 100 μCi の標準線源 9 種類を用いて求めた $G(E)$ 関数であり、B は線源強度約 10 μCi の標準線源 7 種類を用いて求めた $G(E)$ 関数である。計算条件として A では $KMAX = 16$, $m = 1$ のとき、B では $KMAX = 12$, $m = 1$ のときに夫々 S^2 の値が最小となっている。A および B の曲線を比較すると、ガンマ線エネルギーが 120 keV 以下および 2000 keV 以上において形が異なっている。高エネルギー側に差が生じる理由として次のことが考えられる。用いた標準スペクトルのうち最も高いピークエネルギーをもつのが ⁸⁸Y (1836 keV) であり、それ以上の範囲 (1836 ~ 3000 keV) の $G(E)$ は外挿計算値である。従って 3000 keV 近傍のガンマ線を放出する適当な標準線源、例えば ⁵⁶Co (最大 3273 keV) を用いることができれば良い値が求まると考えられる。また、低エネルギー側 (120 keV 以下) で一致しなかった理由として、B の線源の ²⁴¹Am (60 keV) および ⁵⁷Co (122 keV および 136 keV) などを用いて測定した標準スペクトルの統計精度が十分でないことが考えられる。したがって A および B の曲線のうち、A を $G(E)$ 関数として採用している。

Fig. 5.4 には、約 100 μCi の標準線源 A (Table 5.8) を検出器の直下および水平方向、距離 1 m に置いた 2 通りの標準スペクトルを用いて求めた 2 本の $G(E)$ 関数曲線を示す。図中の 350 keV 以下のエネルギーにおいて 2 本の $G(E)$ 曲線は大きく異なった形となっている。この原因の一つとして、検出器に入射するガンマ線の入射角度によって検出効率およびスペクトル形状が変化する現象、すなわち入射角度依存性が $G(E)$ 関数に影響を与えていると考えられる。特に Ge 検出器の場合、Ge 単結晶の形状から入射角度依存性が顕著に現われるのは避けられない。試作した Ge (Li) 検出器の検出効率入射角度依存性の測定結果 (Fig. 4.5 参照) から、356 keV から 60 keV にエネルギーが低くなるに従って角度依存性が強くなることがわかる。また、標準スペクトルの形状も低エネルギー側の連続部分に入射角度に依存した違いが出ている。Fig. 5.5 は ⁵⁷Co 線源 (122 keV, 136 keV) の例である。これは後方散乱の差による影響と考えられ、標準スペクトル測定の際の問題である。

土壌放射能に起因する環境ガンマ線は前節で述べた様に入射角度に分布が存在するので、 $G(E)$ 関数を用いて線量率を求める場合、補正が必要である。Ge 検出器の構造上、入射角度依存性を小さくする工夫も必要である。

5.3.3 G(E)関数による環境ガンマ線線量率の定量

前節のHASL方式による線量率の定量に用いた in-situ 測定環境ガンマ線スペクトル (Fig. 4.14) に G(E) 関数を適用して、線量率を求めた結果を Table 5.9 に示す。

Fig. 5.14 の 0° で示した G(E) 関数によって求めた線量率は $4.58 \mu\text{R}/\text{h}$ である。この値に対して 90° の G(E) 関数によって求めた線量率 $4.77 \mu\text{R}/\text{h}$ であり、差は $0.19 \mu\text{R}/\text{h}$ (4%) 程度にすぎない。同様に Fig. 5.13 の A および B の G(E) 関数によって求めた線量率の差は、 $0.11 \mu\text{R}/\text{h}$ (2%) とさらに小さい。前項では G(E) 関数の形状の違いを議論したが、実測した同一のスペクトルに作用させて線量率を求めた結果にはさほど大きな影響を与えていないことが分った。

5.4 G(E)関数法および HASL 法による線量率の比較検討

Ge 検出器を用いて in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルから求めた線量率の値と従来から一般的に用いられている電離箱および NaI (Tl) 検出器などを用いて測定した線量率の値とを比較評価するために、これら3種の検出器を野外環境の同一地点に設置して線量率の同時測定を行なった。実験における検出器の配置を Photo. 5.1 に示す。検出器は各々三脚や台などによって地上1mの高さに固定してある。Fig. 5.6 に測定地点の周辺状況を示す。使用した電離箱は非加圧型 20 l の空洞電離箱 (NESCO 社製, 808-MR20 型) である。また、NaI (Tl) 検出器は 3 インチ $\times$ 3 インチの円柱型 NaI (Tl) 単結晶を用いている。Ge 検出器は in-situ 測定用に試作した 73 cm^3 Closed-end 同軸型 Ge (Li) 検出器である。

Ge 検出器に取付けた前置増幅器の出力信号は長さ 30 m のケーブルを用いて、実験室内に設置した線型増幅器および波高分析装置に伝送した。Ge 検出器に対しては 4096 チャンネル波高分析装置 (Nuclear Data 社 ND-50/50), NaI (Tl) 検出器には 1024 チャンネルの波高分析装置 (Canberra 社 CI-8100) を接続してスペクトル測定を行なった。

NaI (Tl) 検出器の光電子増幅管部分には日射による温度上昇を避けるために日除けを用いた。また、電離箱に接続した電流計および記録は日射をさける木製の箱に納めた。線量率の比較評価に用いた測定データは、午後6時から4000秒間測定したガンマ線スペクトルである。Fig. 5.7 に Ge 検出器によって測定したガンマ線スペクトルを示す。同様に Fig. 5.8 のスペクトル図は NaI (Tl) 検出器によるものである。

5.4.2 各方法によって求めた線量率

上に述べた実験からこの場所のガンマ線線量率として合計4つの値が求まる。Ge 検出器スペクトルには HASL 法および G(E) 関数法の2つを適用し、NaI (Tl) 検出器スペクトルには森内らの G(E) 関数を適用した。Table 5.10 にこれらの結果を示す。

HASL 方式の解析においては 5.2 節で行なった Ge 検出器特性を用いている。また土壌中における ^{40}K , ^{238}U および ^{232}Th の分布は均一分布を仮定している。フォールアウト ^{137}Cs については深さ方向に $\exp\left(-\frac{\alpha}{\rho}Z\right)$ 分布 ($\alpha = 0.69 \text{ cm}^{-1}$, $\rho = 1.5 \text{ g}/\text{cm}^3$) と仮定している。これは 5.2 節で述べた原研構内の別の地点における実測値である。HASL 方式では、土壌中の上記の核種の線量率寄与を個々に求めることが可能である。

G(E) 関数法では Fig. 5.9 に示す 2 つの G(E) 関数を用いた。Ge 検出器に対する関数は 5.3 節で求めたものであり、NaI (Tℓ) 検出器に対する関数は森内らが求めたもの³⁾である。G(E) 関数法で環境ガンマ線線量率を求める場合、宇宙線の寄与も含まれてしまうので、3 MeV 以下の宇宙線寄与分として $0.23 \mu\text{R/h}$ ⁸⁾ を共通に引き去っている。また、NaI (Tℓ) 検出器の NaI 単結晶中および光電子増幅管ガラス中には ^{40}K を含んでおり、この ^{40}K 汚染寄与分として $0.18 \mu\text{R/h}$ を同様に引き去る必要がある。

電離箱によって測定した線量率には高エネルギー成分を含む宇宙線の影響が含まれるので、全宇宙線寄与分として測定値から $3.4 \mu\text{R/h}$ ⁹⁾ を引き去っている。

Table 5.10 に示した 4 つの値のうち、Ge 検出器と NaI (Tℓ) 検出器に対する G(E) 関数法による線量率の値は良く一致しており、その差は $0.16 \mu\text{R/h}$ であった。また、Ge 検出器によるスペクトルには、G(E) 関数法と HASL 方式との 2 通りの方法を適用して線量率が各々求まる。2 つの方法による線量率値の差は $0.61 \mu\text{R/h}$ であった。

電離箱による線量率の測定値が最も低い値となった。この電離箱は ^{226}Ra 線源を用いて較正值が値付けされたものである。従って何らかの誤差要因によって低い値となったと考えられる。一つの原因として、電離箱の支持台として用いたラワン材による減衰効果がある。支持台は $50 \text{ cm} \times 50 \text{ cm}$ 、厚さ 2.3 cm のラワン材であり、計算では土壤中放射能に起因するガンマ線で電離箱に入射するもの、うち約 50 % がラワン材部を通過することになる。例えば 662 keV (^{137}Cs) のガンマ線ではラワン材に 10 % が吸収されるので、上記支持台の減衰効果は 5 % 程度と見積ることができる。ガンマ線エネルギーが低くなればさらに大きな減衰効果の影響を受けるはずであり、線量率評価においてラワン材の支持台の減衰効果を見捨てることはできない。電離箱の測定実験において留意すべき点である。

以上のように 4 つの線量率の測定値は互に約 $1 \mu\text{R/h}$ の範囲内に分布している。

5.5 結 言

Ge 検出器を野外に持出し、環境ガンマ線を in-situ 測定して得たスペクトルデータから、土壤中に存在する ^{40}K 、 ^{137}Cs 、 ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列に属する放射性核種に起因する線量率を定量する方法について研究を行なった。そして、定量に必要な Ge 検出器の諸特性を較正する方法について明らかにすることができた。また、Ge 検出器 in-situ 測定による線量率の定量方法を検証するために、線量測定に從來から用いられている電離箱および NaI (Tℓ) 検出器を用いた同時刻同一地点の in-situ 測定を実施し、比較検討を行なった。以上の研究によって次のことが結論として得られた。

(1) Ge 検出器の検出効率角度依存性

通常 Ge 検出器には、ガンマ線の入射角度に依存して検出効率が変わる特性がある。このため HASL 方式の線量率定量法においては、 N_f/N_0 なる因子を較正実験から求め、角度依存性の補正を行なった。一方、G(E) 関数法においては、入射角度依存性を全く考慮していない。このため、Fig. 5.4 に示すように低エネルギーのガンマ線に対する G(E) 関数の値に大きな違いが生じており、線量率の値に誤差を生じる可能性がある。これを改善するために、

i) 入射角度依存性のない Ge 検出器を製作する。

ii) 通常の Ge 検出器では、Ge 単結晶前面から入射するガンマ線の検出効率を高くするためにエンドキャップ底部を薄くしており、入射角度依存特性を助長させる設計となっている。したがって、前面に適当な吸収材を置いて側面方向の吸収特性と同じ程度にすれば、入射角度依存性を小さくすることが可能である。

など検出器自体に対する製作上の工夫が必要である。

(2) HASL方式の定量方法について

土壌中の ^{40}K 、 ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列の核種は均一に分布しているものとして ϕ/ρ 因子の値を定め、線量率値を求めた。しかし、実際の土壌中の分布を測定してみると深さ方向にかなり複雑な分布をしており、均一分布ではない。また、in-situ 測定を実施した地点は、近くに建物や道路があり、理想的な場所ではない。このような計算モデルと実際の測定条件とが異なる影響が、どの程度の誤差となるかの検討が今後の課題である。このような場合、土壌中の核種の分布まで詳細に調べられており、広さも適当な標準場をまず設定することが不可欠である。

Beck らの検討では、HASL方式の定量解析の確度は15%程度と報告している⁴⁾。

(3) Ge 検出器の G(E) 関数について

G(E) 関数法は、先に述べたように線源の分布に関して何ら情報を必要とせずに検出器位置における線量率を求めることができる点が大きな利点である。しかし、(1)で述べたように Ge 検出器の場合、検出効率の入射角度依存性特性が低エネルギーガンマ線に対して顕著であるため、線量率の値に補正が必要となる。ただし、G(E) 関数に対する入射角度依存性の補正は、単純ではなく核種の土壌中分布に関する情報が必要となり、G(E) 関数法の利点を一つ損うことになってしまう。したがって、ここでは入射角度依存性の影響を無視している。しかしながら幸いなことに、環境ガンマ線スペクトルに G(E) 関数を適用した場合、5.3.2 節に述べたように入射角度依存性が線量率値に与える影響は余り大きくない。

今回求めた Ge 検出器の G(E) 関数の場合、2000 ~ 3000 keV の高エネルギー領域の関数値は、 ^{88}Y 線源の 1836 keV ガンマ線からの外挿値として定まった値である。したがって、この領域の関数値の確度を上げるためには、2598 keV および 3253 keV のガンマ線を放出する ^{56}Co 線源による標準スペクトルを用いることが有益である。また、比較的広いエネルギー範囲に多くのガンマ線を放出する ^{152}Eu 線源を用いるのも良い。

G(E) 関数法によって環境ガンマ線の線量率を求める場合、宇宙線の寄与を差し引かねばならない。今回この寄与として $0.23 \mu\text{R}/\text{h}$ と云う値を採用した。これは、3000 keV 以下の宇宙線寄与分で、東海村周辺の平均的値として用いられている値である⁸⁾。しかし、この宇宙線寄与分の変動挙動や確度については不明であり、この点が G(E) 関数法を環境ガンマ線線量率測定に用いる場合の問題点である。

同一地点における G(E) 関数法と HASL 法とによる線量率の値を比較すると、G(E) 関数法から求めた値は約 $0.6 \mu\text{R}/\text{h}$ 程度大きな値となることが分った。

(4) G(E)関数法およびHASL法の応用について

G(E)関数法およびHASL法の各々の較正を正確に行ない、両者の方法による環境ガンマ線線量率の値が現在よりさらに良い一致を見ることができるようになれば、次のように原子炉施設寄与分の線量率を分離して求めることに応用可能である。

すなわち、可搬型 Ge 検出器を用いた 1 回の環境ガンマ線スペクトル in-situ 測定の結果から、G(E)関数法により全線量率を求め、次に HASL法を用いてその場所の土壤中放射能に起因する線量率の総和を求め、次式のように差し引きする。

$$D_{\text{residual}} = D_{G(E)} - \sum_{i=1}^N D_{\text{HASL } i} \quad (5.30)$$

この D_{residual} が原子力施設から放出される放射性 Plumes など存在分布が不明の核種の線量率寄与である。また、in-situ 測定スペクトルの解析を行なうことにより、放射性 Plumes の核種を同定することもできる。

以上のように可搬型 Ge 検出器の in-situ 測定の応用によって、短時間のうちに原子力施設に起因する線量率および核種を求めることが可能である。

参考文献

- 1) 原子力安全研究協会：原子力施設周辺の放射線測定の基準化に関する調査研究、(1976)
同環境放射線測定専門委員会成果報告会予稿集 (1977)
- 2) Moriuchi, S. and Miyanaga, I. : Health Physics 12, 541 (1966)
- 3) 森内茂：スペクトル-線量変換演算子による線量評価とその演算子の決定,
JAERI 1209 (1971)
- 4) Beck, H.L., DeCampo, J.A. and Gegolok, C.V. : In-situ Ge(Li) and
NaI(Tl) gamma-ray spectrometry, HASL-258 (1972)
- 5) Terada, H., Sakai, E. and Katagiri, M. : Spectrum to exposure rate
conversion functions of a Ge(Li) in-situ environmental gamma-ray
spectrometer, IEEE Trans. NS-24(1) 647~651 (1977)
- 6) 寺田博海, 阪井茨次, 片桐政樹：Ge(Li)検出器のスペクトル・線量変換演算子値関数,
JAERI-M 6523 (1976)
- 7) Terada, H., Sakai, E. and Katagiri, M : Environmental gamma-ray
exposure rates measured by in-situ Ge(Li) spectrometry, J. Nucl.
Sci. Technol. Vol. 17(4) 281~290 (1980)
- 8) 森内茂, 小林秀雄：NaI(Tl)検出器の自己汚染と宇宙線の照射線量寄与の評価,
原子力学会 G45 P91 (1975)
- 9) 岡野真治：原子力工業, 21(3) 65~69 (1975)

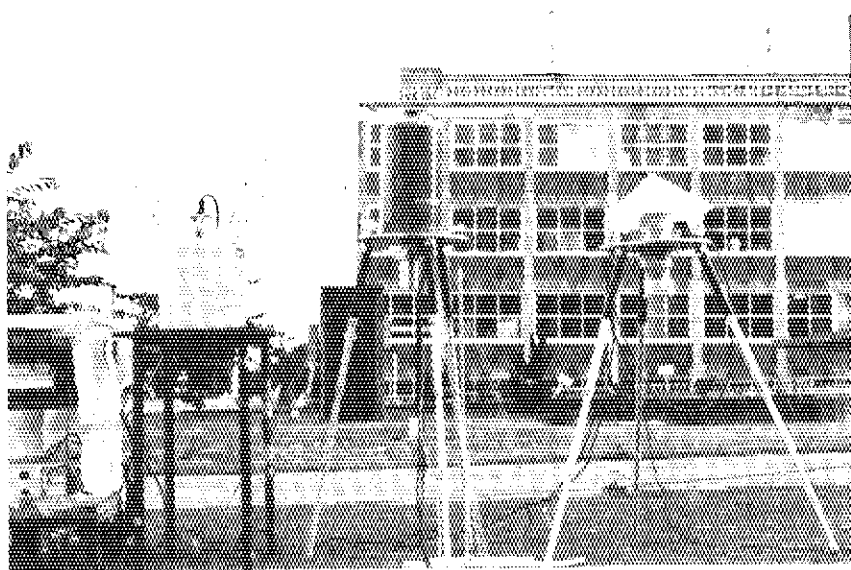


Photo 5.1 In-situ measurement of exposure rates in environment using 3 detectors showing, left to right, ionization chamber, Ge(Li) detector and 3" x 3" NaI(Tl) detector.

Table 5.1 Exposure rate ($\mu\text{R/h}$) at one meter above ground for exponentially distributed monoenergetic sources in the soil

Source Energy (keV)	$(\alpha/\rho)\text{-cm}^2/\text{g}$						
	0 (Uniform)	0.0625	0.206	0.312	0.625	6.25	" (Plane)
50	0.88	-	-	-	-	-	-
100	2.05	~0.095	0.185	0.215	0.270	0.400	0.438
150	3.39	0.140	0.285	0.335	0.418	0.620	0.700
200	4.88	0.200	0.390	0.460	0.570	0.845	0.960
250	6.37	0.258	0.491	0.583	0.731	1.08	1.25
364	10.2	0.404	0.771	0.896	1.11	1.63	1.91
500	14.4	0.558	1.03	1.23	1.52	2.27	2.60
662	19.6	0.738	1.37	1.60	1.97	2.95	3.39
750	22.6	0.837	1.54	1.80	2.21	3.32	3.80
1000	30.4	1.10	2.00	2.32	2.85	4.28	4.86
1173	36.2	1.28	2.31	2.63	3.27	4.87	5.52
1250	38.4	1.33	2.41	2.79	3.42	5.14	5.86
1333	41.8	1.42	2.56	2.95	3.62	5.35	6.16
1460	45.1	1.54	2.75	3.18	3.88	5.73	6.56
1765	54.6	1.78	3.25	3.75	4.40	6.45	7.78
2004	62.2	2.07	3.60	4.13	5.00	7.15	8.20
2250	69.5	-	-	-	-	-	-
2500	77.2	-	-	-	-	-	-
2750	85.0	-	-	-	-	-	-

*The activity at depth Z cm or ρZ g/cm³ is $S(\text{gammas emitted per gram soil per sec}) = \alpha/\rho S_A e^{-(\alpha/\rho)(\rho Z)}$ where $S_A = 1.0$ gamma/cm²-s is the total number of gammas emitted in a column of area 1 cm² and infinite depth (see equation 3). For $\alpha/\rho = 0$, $S_0/\rho = 1.0$ gammas emitted per gram of soil for all Z .

From H.L.Beck, et al; HASL-258 (1972)

Table 5.2 Values of ϕ/I -factor

Gamma-ray Energy (keV)	Unscattered flux* ϕ photons/cm ² ·sec per photons/g·sec	Total exposure* rate I μ R/h per photons/g·sec	ϕ/I photons/cm ² ·sec per μ R/h
50	1.4403	0.88	1.64
100	2.7744	2.05	1.35
150	3.3264	3.39	0.981
200	3.7056	4.88	0.759
250	4.0640	6.37	0.638
364	4.7184	10.2	0.466
500	5.3904	14.4	0.374
662	6.1456	19.6	0.314
750	6.5312	22.6	0.289
1000	7.5280	30.4	0.248
1173	8.1472	36.2	0.225
1250	8.4384	38.4	0.220
1333	8.7504	41.8	0.209
1460	9.1472	45.1	0.203
1765	10.091	54.6	0.185
2004	10.818	62.2	0.174
2250	11.397	69.5	0.164
2500	12.173	77.2	0.158

* From HASL-258 by H.L. Beck, et al.

Table 5.3 Φ/I - Ratio of gamma-ray flux density to exposure rate from natural emitters in the soil

Parent Isotope	E_γ (keV)	Φ/I ($\frac{\gamma/s/cm^2-s}{\mu R/h}$)	Parent Isotope	E_γ (keV)	Φ/I ($\frac{\gamma/s/cm^2-s}{\mu R/h}$)
Uranium Series, $I = 1.82 \frac{\mu R/h}{pCi/g}$			Thorium Series, $I = 2.82 \frac{\mu R/h}{pCi/g}$		
²²⁶ Ra	186	2.52(-3)	²²⁸ Ac	129	1.03(-3)
²¹⁴ Pb	242	5.71(-3)	²¹² Pb	210	2.06(-3)
	295	1.60(-2)	²¹² Pb	239	2.57(-2)
	352	3.30(-2)	²²⁸ Ra	241	
²¹⁴ Bi	609	5.18(-2)	²²⁸ Ac	270	3.62(-3)
	666	1.86(-3)	²⁰⁸ Tl	277	
	768	6.43(-3)	²²⁸ Ac	282	1.96(-3)
	934	4.45(-3)	²¹² Pb	301	
	1120	2.31(-2)	²²⁸ Ac	338	7.73(-3)
	1238	9.45(-3)	Mixed	328-340	1.03(-2)
	1378	8.19(-3)	²²⁸ Ac	463	3.26(-3)
1401-08	6.87(-3)	.0537	²⁰⁸ Tl	510	6.84(-3)
	1510		²⁰⁸ Tl	583	2.27(-2)
	1730	5.60(-3)	²¹² Bi, ²²⁸ Ac	727	6.60(-3)
	1765	2.96(-2)	²²⁸ Ac	755	9.57(-4)
	1845	4.35(-3)		772	1.45(-3)
	2205	1.07(-2)		795	4.25(-3)
	2448	3.66(-3)		830+835+840	3.33(-3)
Potassium, $I = 0.179 \frac{\mu R/h}{pCi/g}$			²⁰⁸ Tl	860	4.18(-3)
⁴⁰ K	1464	0.203	²²⁸ Ac	911	2.68(-2)
				965+969	2.17(-2)
				1588	4.16(-3)
			²⁰⁸ Tl	2615	5.92(-2)

From H.L.Beck, et al; HASL-258(1972)

Table 5.4 Φ/I - (one meter) for fallout emitters in the soil - (photons/cm² sec)/($\mu R/h$)

Isotope	E_γ (keV)	$(\alpha/\rho) - cm^2/g$					
		0.0625	0.206	0.312	0.625	6.25	∞ Plane
¹⁴⁴ Ce	134	1.04	1.19	1.31	1.48	1.97	2.14
¹⁴⁴ Ce- ¹⁴⁴ Pr	134	0.352	0.453	0.504	0.577	0.780	0.838
¹⁴¹ Ce	145	1.17	1.42	1.52	1.74	2.23	2.45
¹³¹ I	364	0.444	0.541	0.585	0.636	0.702	0.808
¹²⁶ Sb	428	0.149	0.177	0.193	0.203	0.245	0.259
¹⁴⁰ La	487	0.046	0.056	0.061	0.064	0.076	0.083
¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La	487	0.037	0.045	0.049	0.052	0.062	0.067
¹⁰³ Ru	497	0.416	0.503	0.528	0.574	0.687	0.715
¹⁰⁶ Ru- ¹⁰⁶ Rh	512	0.251	0.303	0.319	0.339	0.401	0.419
¹⁴⁰ Ba	537	0.296	0.352	0.370	0.400	0.465	0.496
¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La	537	0.0206	0.0253	0.0268	0.0282	0.0334	0.0362
¹²⁶ Sb	601	0.104	0.121	0.128	0.135	0.160	0.166
¹⁰³ Ru	610	0.0271	0.0322	0.0335	0.0359	0.0430	0.0440
¹⁰⁶ Ru	622	0.129	0.153	0.160	0.170	0.198	0.207
¹³⁷ Cs	662	0.377	0.440	0.465	0.499	0.582	0.606
⁹⁵ Zr	724	0.155	0.181	0.192	0.206	0.241	0.247
⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	724	0.0476	0.0557	0.0589	0.0634	0.0734	0.0758
⁹⁵ Zr	757	0.196	0.230	0.242	0.265	0.303	0.313
⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	757	0.0602	0.0709	0.0744	0.0815	0.0922	0.0961
⁹⁵ Nb	766	0.346	0.409	0.428	0.473	0.531	0.551
⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	766	0.239	0.282	0.297	0.328	0.371	0.381
¹⁴⁰ La	816	0.0287	0.0336	0.355	0.0374	0.0433	0.0457
¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La	816	0.0232	0.0270	0.0286	0.0302	0.0350	0.0368
⁵⁴ Mn	835	0.332	0.380	0.400	0.438	0.497	0.509
¹⁴⁰ La	1597	0.154	0.166	0.173	0.175	0.195	0.203
¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La	1597	0.124	0.134	0.140	0.142	0.158	0.163
⁶⁰ Co	1173	0.127	0.146	0.153	0.162	0.183	0.188
⁶⁰ Co	1333	0.134	0.151	0.159	0.168	0.187	0.191

From H.L.Beck, et al; HASL-258(1972)

Table 5.5 In-situ gamma-ray detection characteristics of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) spectrometer for naturally occurring radionuclides uniformly distributed in the soil

Nuclide	Gamma-ray energy (keV)	N_F/ϕ Cps (photon/cm ² sec)	N_F/N_0	ϕ/I (photon/cm ² sec) uR/h	N_F/I (Cps) uR/h
K-40	1461	1.76	0.976	2.03(-1)	3.49(-1)
U-238 series					
Ra-226	186	11.7	0.940	2.52(-3)	2.77(-2)
Pb-214	242	9.30	0.952	5.71(-3)	5.06(-2)
	295	7.90	0.960	1.60(-2)	1.21(-1)
	352	6.65	0.961	3.30(-2)	2.11(-1)
Bi-214	609	3.95	0.969	5.18(-2)	1.98(-1)
	666	3.65	0.970	1.86(-3)	6.59(-3)
	768	3.19	0.971	6.43(-3)	1.99(-2)
	934	2.68	0.972	4.45(-3)	1.16(-2)
	1120	2.24	0.972	2.31(-2)	5.03(-2)
	1238	2.05	0.972	9.45(-3)	1.88(-2)
	1378	1.86	0.974	8.19(-3)	1.48(-2)
	1401-08	1.80	0.975	6.87(-3)	1.21(-2)
	1510	1.69	0.976	3.91(-3)	2.55(-2)
	1730	1.48	0.978	5.60(-3)	8.11(-3)
	1765	1.46	0.978	2.96(-2)	4.23(-2)
	1845	1.40	0.979	4.35(-3)	5.96(-3)
	2205	1.18	0.979	1.07(-2)	1.24(-2)
	2448	1.06	0.979	3.66(-3)	3.80(-3)
Th-232 series					
Ac-228	129	13.0	0.894	1.03(-3)	1.20(-2)
"	210	10.2	0.948	2.06(-3)	1.99(-2)
Pb-212	239	9.40	0.952	2.57(-2)	2.30(-1)
Ra-224	241	9.39	0.952	2.57(-2)	2.30(-1)
Ac-228	270	8.50	0.958	3.62(-2)	2.95(-1)
Tl-208	277	8.30	0.958	3.62(-2)	2.88(-1)
Ac-228	282	8.15	0.959	3.62(-2)	2.83(-1)
Pb-212	301	7.75	0.960	1.96(-3)	1.46(-2)
Ac-228	338	7.70	0.961	7.73(-3)	5.72(-2)
Mixed	328-340	6.98	0.961	1.03(-2)	6.91(-2)
Ac-228	463	5.10	0.963	3.26(-3)	1.60(-2)
Tl-208	510	4.65	0.965	6.84(-3)	3.07(-2)
Tl-208	583	4.12	0.968	2.27(-2)	9.05(-2)
Bi-212 } Ac-228 } Ac-228 }	727	3.35	0.970	6.60(-3)	2.14(-2)
	755	3.25	0.971	9.57(-4)	3.02(-3)
"	772	3.18	0.971	1.45(-3)	4.48(-3)
"	795	3.10	0.971	4.25(-3)	1.28(-2)
"	830+835+840	2.90	0.971	3.33(-3)	9.38(-3)
Tl-208	860	2.88	0.971	4.18(-3)	1.17(-2)
Ac-228	911	2.71	0.971	2.68(-2)	7.05(-2)
"	965+969	2.58	0.971	2.17(-2)	5.44(-2)
"	1588	1.62	0.975	4.36(-2)	6.89(-3)
Tl-208	2615	1.01	0.979	5.92(-2)	5.85(-2)

Table 5.6 In-situ gamma-ray detection characteristics of 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) spectrometer for 662keV gamma-rays from Cs-137 exponentially distributed in the soil

α/ρ (cm ² /g)	0.0625	0.206	0.312	0.625	6.25	infinite
$\frac{N_0}{\Phi} \left(\frac{\text{cps}}{\text{photon/cm}^2\text{sec}} \right)$	3.64	3.64	3.64	3.64	3.64	3.64
$\frac{N_f}{N_0}$	0.956	0.953	0.952	0.950	0.946	0.944
$\frac{\Phi}{I} \left(\frac{\text{photons/cm}^2\text{sec}}{\mu\text{R/h}} \right)$	0.377	0.440	0.465	0.499	0.582	0.606
$\frac{N_f}{I} \left(\frac{\text{cps}}{\mu\text{R/h}} \right)$	1.31	1.52	1.61	1.72	2.00	2.08

Table 5.7 Total exposure rates obtained by in-situ Ge(Li) spectrometry and 3"×3" NaI(Tl) spectrometry on the lawn between Machine Shop and Storehouse, JAERI

Nuclide	In-situ Ge(Li) 14:00 ~ 16:00 October 26, 1975	In-situ 3"×3" NaI(Tl) 15:05 - 17:05 September 16, 1975
U-238+daughters	0.523 (μR/h)	S. Moriuchi's method of dose evaluation by spectrum-dose conversion operator (JAERI-1209(1971))
Th-232+daughters	1.405 (μR/h)	
K-40	1.677 (μR/h)	
Cs-137	0.391 (μR/h)*	
Total	3.996 (μR/h)	4.641 (μR/h)

* $\alpha/\rho = 0.461$ cm²/g

Table 5.8 Intensities of gamma-ray standard sources
Sets A and B

Set	A	B
Nuclide	μCi at March 13, 1976	μCi at October 9, 1975
Y-88	100	1.01
Co-57	100	4.17
Co-60	95.6	9.00
Se-75	97.8	—
Na-22	86.8(93.1*)	9.16
Am-241	98.5	12.02
Cs-137	96.6	10.9
Mn-54	97.4	4.77
Zn-65	98.8(89.1*)	—

Set A; Japan Radioisotope Association, Gamma-ray standard source
Type JDD-761

Set B; The Radiochemical Centre Amersham England, Gamma reference
source set QCR 2

* Assigned by the authors

Table 5.9 Exposure rates calculated by various
G(E) operators with same spectrum

Parameters of G(E) operator	Calculated exposure rates with same spectrum
Source position 0°	4.58 $\mu\text{R/h}$ (<3MeV)
90°	4.77 "
Source intensity $\sim 100\mu\text{Ci}$	4.58 $\mu\text{R/h}$ (<3MeV)
$\sim 10\mu\text{Ci}$	4.47 "

Table 5.10 Four exposure rates
due to environmental
 γ -rays determined by
four methods

No.	Method	Detector	Exposure rate($\mu\text{R/h}$)
1	G(E) function	73cm ³ Ge(Li)	4.51
2	HASL method	"	3.90
		⁴⁰ K1.95	
		²³⁸ U0.38	
		²³² Th1.32	
		¹³⁷ Cs0.25	
3	G(E) function	3"×3" NaI(Tl)	4.67
4	Ionization chamber method		3.50

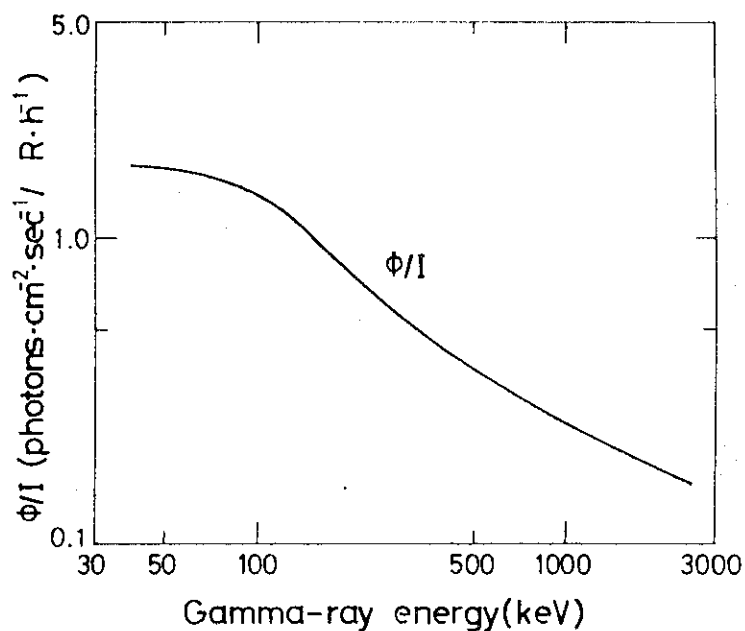


Fig. 5.1 Values of ϕ/I -factor as a function of gamma-ray energy

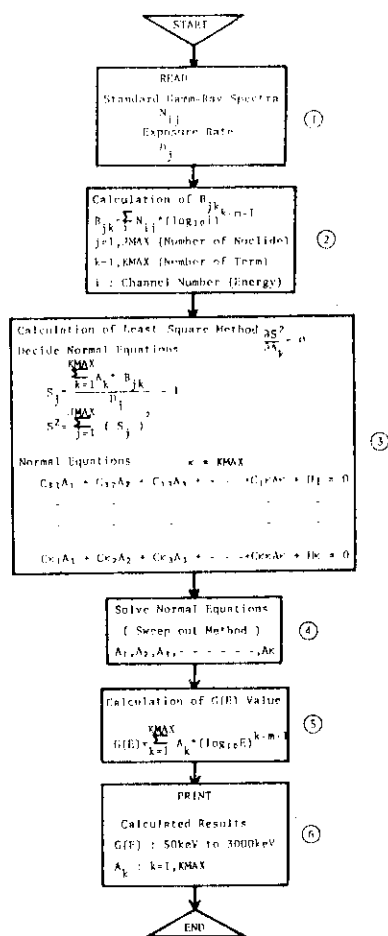


Fig. 5.2 Calculating procedure of spectrum-to-dose conversion operator value function $G(E)$ for Ge(Li) detector

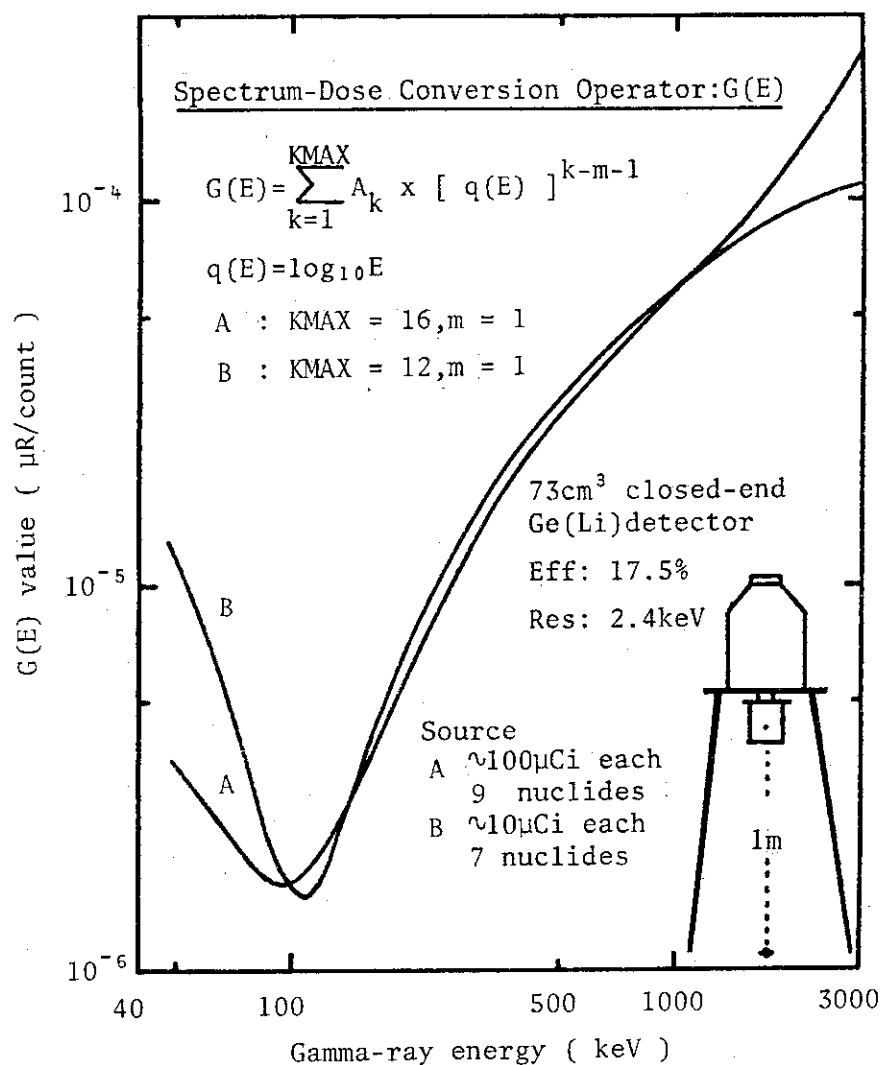


Fig. 5.3 Spectrum-to-dose conversion operator value function G(E) for 73cm³ closed-end coaxial Ge(Li) gamma-ray spectrometer (A; G(E) calculated from the measurement made using ~100μCi standard sources. B; G(E) calculated from the measurement made using ~10μCi standard sources.)

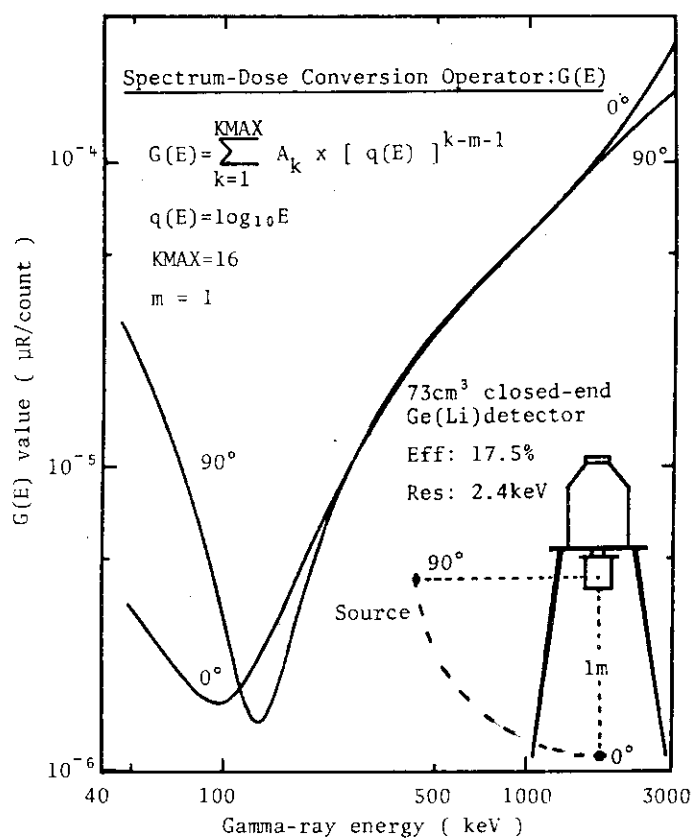


Fig. 5.4 Spectrum-to-dose conversion operator value function $G(E)$ for 73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) gamma-ray spectrometer obtained by the measurement made using $\sim 100\mu\text{Ci}$ standard sources placed at $\theta=0^\circ$ and $\theta=90^\circ$

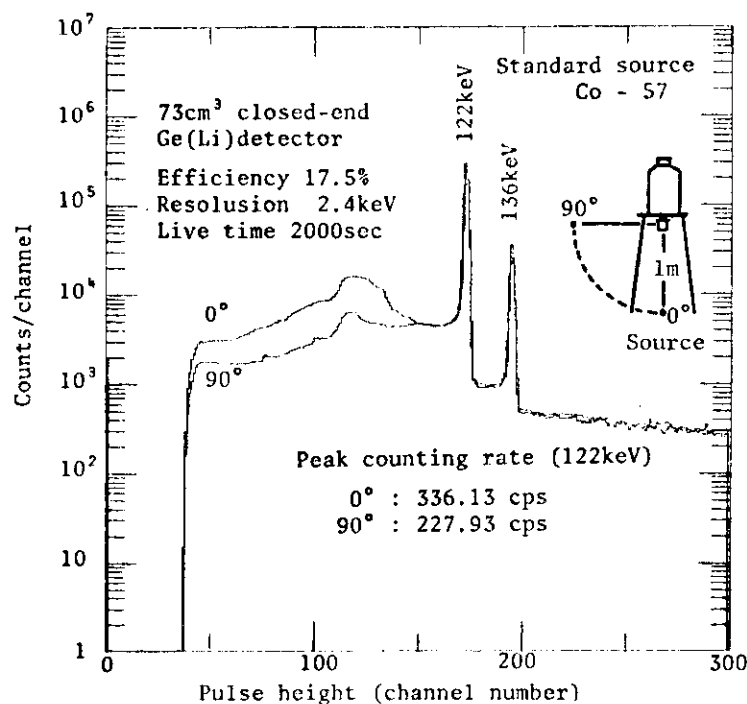


Fig. 5.5 Pulse height distributions of gamma-rays from Co-57 standard source placed at $\theta=0^\circ$ and at $\theta=90^\circ$, obtained by 73cm^3 closed-end coaxial Ge(Li) detector

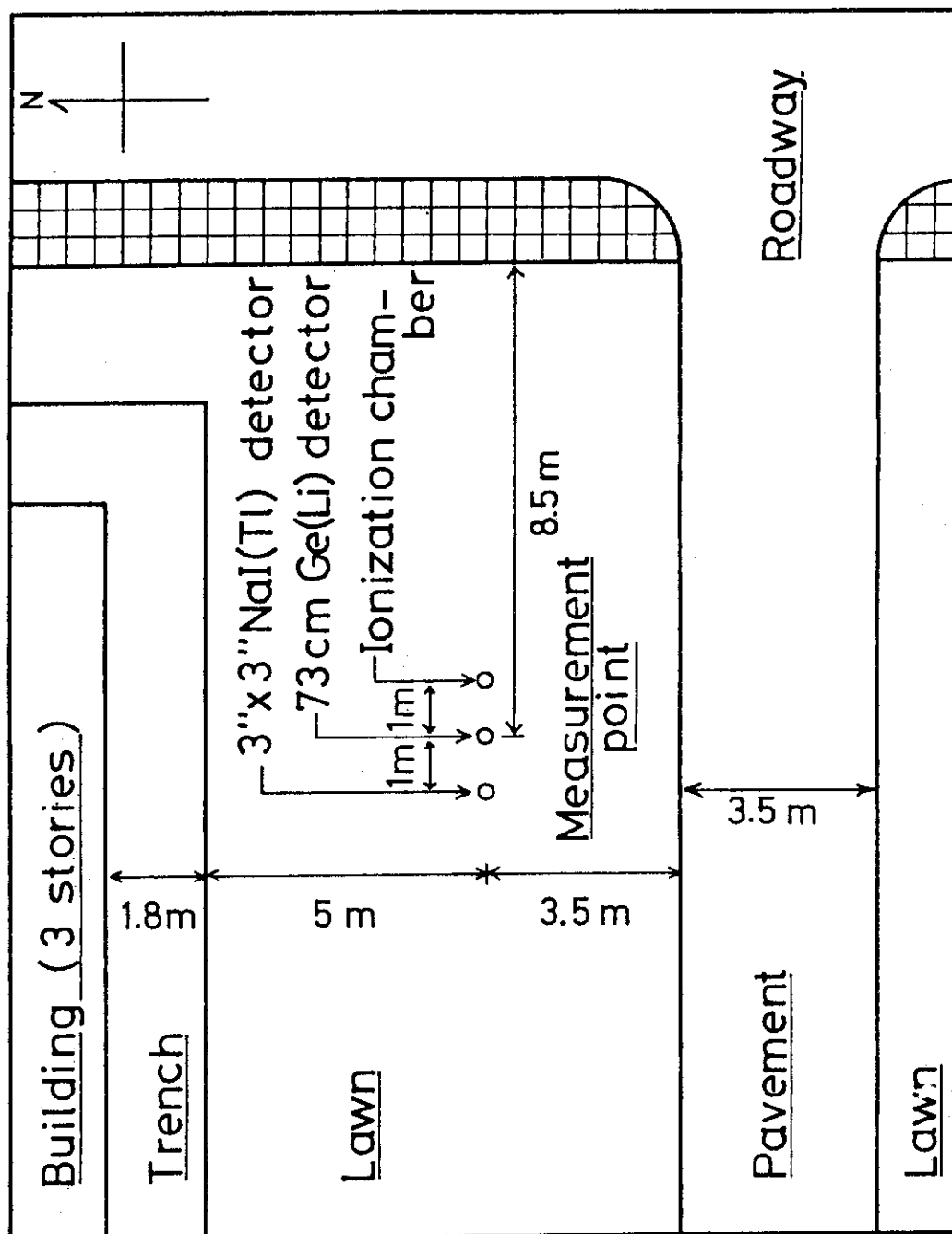


Fig. 5.6 Surrounding of the measurement point on the lawn near the laboratory building in JAERI

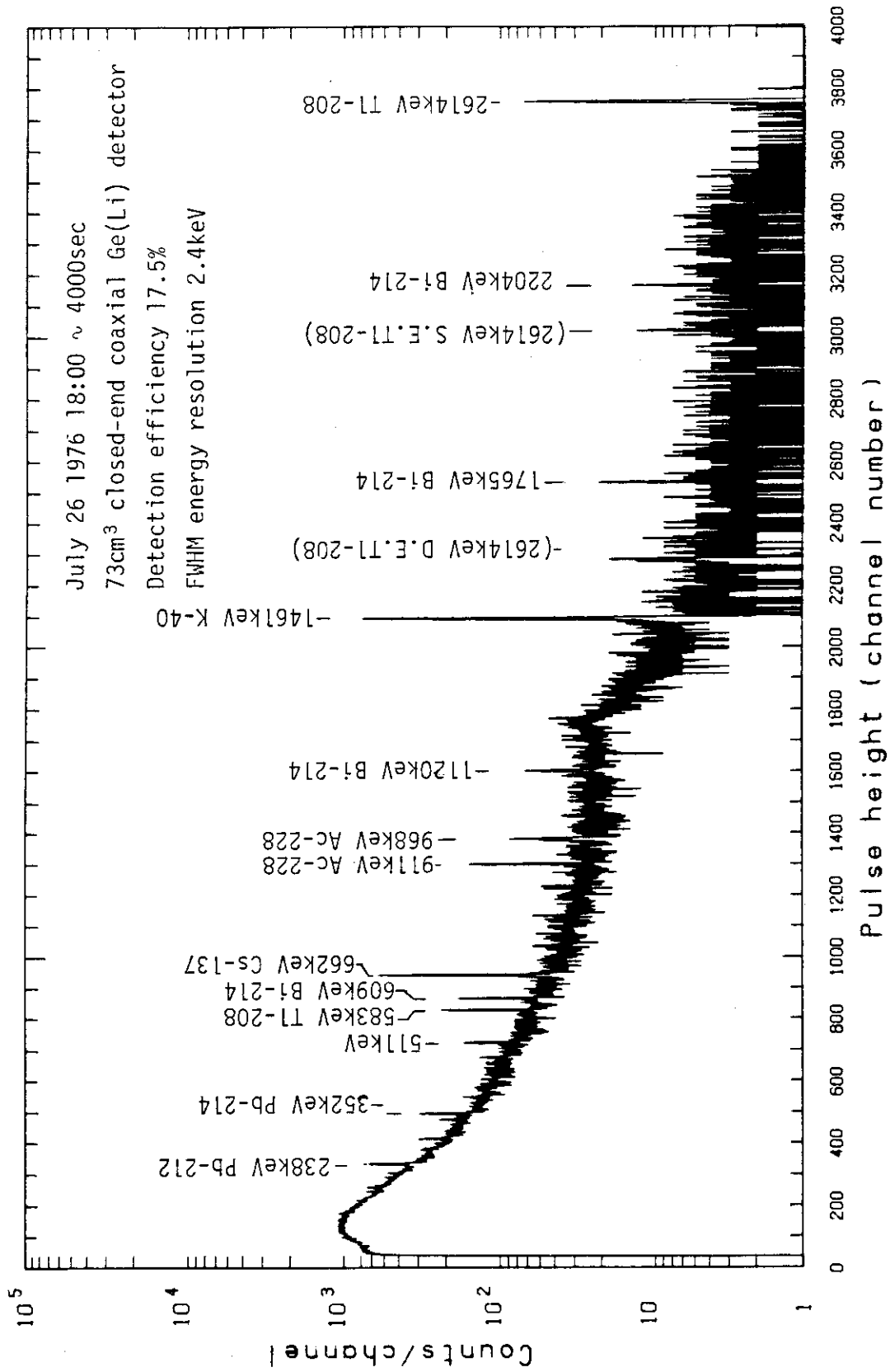


Fig. 5.7 In-situ gamma-ray spectrum measured on the lawn near the laboratory building in Japan Atomic Energy Research Institute on July 26, 1976

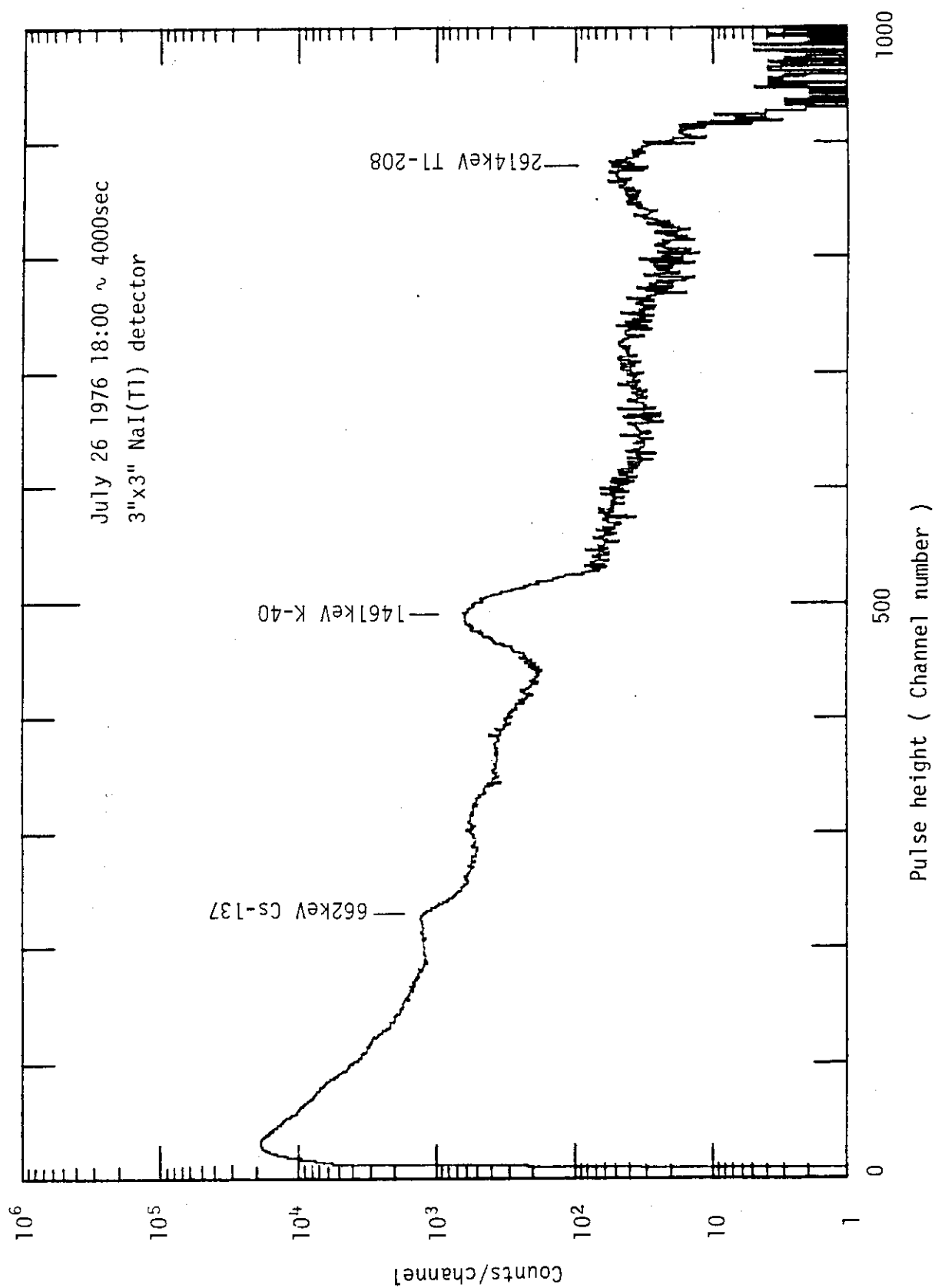


Fig. 5.8 In-situ gamma-ray spectrum measured by a 3"x3" NaI(Tl) detector at the same point and same time as Ge(Li) detector measurement

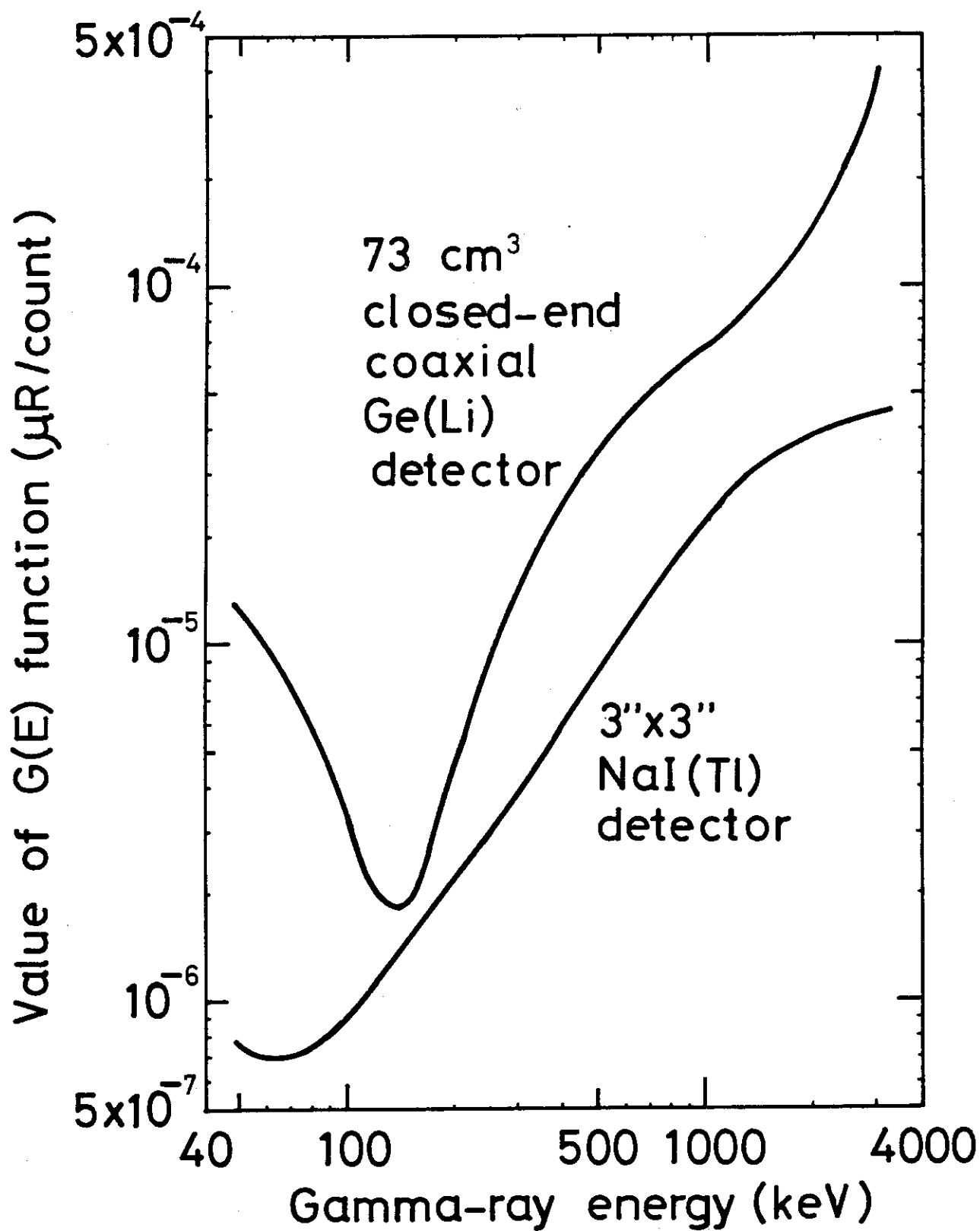


Fig. 5.9 $G(E)$ functions for the 73cm^3 Ge(Li) detector and a $3'' \times 3''$ NaI(Tl) detector

6. 1次系配管沈着FP放射能の非破壊測定

6.1 緒言

Ge検出器を用いた in-situ 測定法の原子炉施設への適用として、原子炉1次系配管および機器の内面に沈着（plateout：プレートアウト）したFP核種の非破壊定量測定法の開発研究を行った。

1次系FP沈着の問題は、軽水炉等の従来型の原子炉よりも、現在開発が進められている高温ガス炉において主に議論となっている。

原研において開発を進めている多目的高温ガス炉は、1次冷却材として用いるヘリウムを炉心で1000℃以上に昇温して取り出し、2次系以後の熱利用系に高温のガスを供給するための原子炉である。このため運転中の燃料最高温度は1350℃程度になる。したがって高温ガス炉の燃料は従来の金属被覆管型のものと異なりFig.6.1に示すような被覆粒子燃料（Coated Particle Fuel；CPF）を用いなければならない。被覆粒子燃料は直径約900μm程度の多重被覆層をもつ構造であり、これら被覆層が従来型燃料の被覆管の役割をし、核分裂により生成するFP核種が1次冷却材中に漏洩するのを防ぐための壁となっている。しかし、Fig.6.2に示すように燃料コンパクト1ヶ中には数万個の被覆燃料粒子を含み、この中には製造時にすでに被覆層に破損をもつ粒子を含むことが避けられない。また燃料核中で生成されたFP核種が健全な被覆層を拡散して1次冷却材に漏出することも起る。さらに被覆粒子燃料のウラン汚染および炉内構造物に用いるグラファイト中の不純物ウラン等の被覆されないウランも炉内には存在する。このようなことから多目的高温ガス炉では、運転中の1次冷却材ヘリウム中に微量のFP核種が含まれており、1次冷却系を循環する。この循環の過程において一次冷却系配管機器の内面には、固体状FP核種の大部分が沈着して蓄積する現象が起る。

1次系配管機器内面のFP沈着挙動を研究することは、多目的高温ガス炉の安全解析および遮蔽設計等を行なううえで極めて重要な意味をもっている。すでに高温ガス炉が稼動している米国および西独においては、FP沈着研究がGA社（General Atomic社）およびKFA（Kernforschungsanlage）Jülich研究所を中心に1975年頃から盛んに進められている^{1)～4)}。一方、わが国においても多目的高温ガス炉開発のために、FP沈着研究は不可欠のものであり、材料試験炉（JMTR）に設置された高温インパイルガスループ（OGL-1：Oarai Gas Loop-1）の1次系配管・機器に対するFP沈着測定実験を開始している^{5)～8)}。

FP沈着研究において沈着放射エネルギーをどのような方法で計測するかが、効率的に研究を進めるうえで最も重要な選択課題であった。従来行なわれている計測方法では、沈着研究用のFPループの途中に設けた試験配管部分を取り外して小試験片に切断成形し、Ge検出器を用いて放射エネルギーを求め、沈着量（μCi/cm²）を算出している。一方、OGL-1のように本来高温ガス炉用の燃料・材料に対する高温照射試験を主な目的とする施設の場合、1次系配管・機器を一部取り外して沈着量を測定することは極めて困難である。しかしながら、OGL-1は高温ガス炉の運転状

態に最も近いプラントであり、1次系配管・機器の種々の部位におけるFP沈着状態を連続的にモニターし記録しておくことは、我国のFP沈着研究にとって貴重なデータの蓄積となる。このような課題を解決するためにGe検出器を用いたin-situ測定によりOGL-11次系配管・機器内面のFP沈着量を非破壊定量測定する方法の開発を始めた。これは配管等の内面に沈着したFP核種が放出するガンマ線を配管の外側から測定し、沈着量を定量する基本原理である。すなわち、可搬型Ge検出器を用いたin-situ測定の応用問題の一つである。

FP沈着量の非破壊測定の場合、対象とする線源の形状は多重配管や複雑形状の機器であったりする。さらに着目点以外にも線源が存在し、バックグラウンドガンマ線レベルも高い。このような測定条件に適合するFP沈着測定方法として、Fig. 6.3に示すような鉛コリメータ付きGe検出器を用いたin-situ定量測定方式の開発を行なった。この方式では着目点における沈着FP核種の放出する正味のガンマ線を測定し、FP核種の同定を行なうと共に各ピーク計数率を求める。さらに換算係数を用いてピーク計数率から沈着量を算出する。したがって本測定法の最大のキーポイントは、沈着量定量のための換算係数をいかに正確に求めるかにある。

換算係数を求める方法は理論計算によるか或は詳細な実験によるかであるが、測定点は多種多様な形状をしているので実験によるのは困難である。そこで理論式と実験式とを組み合わせることによって、確度が高く且つ種々の測定点に適用できる換算係数計算方法を開発することとした。本章では、OGL-11次系配管・機器におけるFP沈着量のin-situ測定実験および測定結果、沈着量定量のための換算係数の決定、沈着模擬配管を用いた本測定方法の検証実験などについて述べる⁽⁹⁾。

6.2 OGL-11次系におけるFP沈着量のin-situ測定

6.2.1 検出器および測定系の構成

FP沈着量をin-situ定量測定するための検出器として、従来からin-situ測定に用いている可搬型Ge検出器に鉛コリメータを取り付けて用いた。Fig. 6.4に鉛コリメータ付き可搬型Ge(Li)検出器の詳細を示す。鉛コリメータの役割は、配管・機器の着目点以外から入射するガンマ線に対する遮蔽である。コリメータ窓の形状は、縦4cm、横1cmの矩形とした。Ge検出器および鉛コリメータの合計重量は約70kgあり、測定場所に固定する場合にはワイヤーロープを用いて吊り下げる方法などを採用した。

ガンマ線スペクトルを測定するシステムは、Fig. 6.5に示すようにNIMモジュール用の可搬型BIN電源にスペクトロスコープアンプ、Ge検出器用高圧電源、波高弁別器(SCA)および計数率計等を収納して測定現場の近傍に配置して用いた。ガンマ線スペクトルを測定するために多重波高分析装置(Canberra社8100型)を原子炉建屋内の1階に固定して設置した。接続には100mの長さの同軸ケーブルを用いた。スペクトルデータは紙テープに出力して収録し、後に小型計算機によってスペクトル解析を行なった。

6.2.2 FP沈着量のin-situ測定手順

FP沈着量を定量しようとする着目点の1次系配管機器の直近位置に鉛コリメータ付き可搬型

Ge 検出器および測定系を設置しガンマ線スペクトルの測定を行なう。その際に、コリメータ窓を開放した状態で1回、そして鉛プラグでコリメータ窓を閉じた状態で1回、合計2回のスペクトル測定を同一箇所で行なう。各々のガンマ線スペクトルを解析し、正味のピーク計数率を算出する。すなわち、鉛コリメータ窓を通過した正味のガンマ線が1次系配管・機器の着目点に沈着したFP核種に起因すると見做している。次いで各エネルギーのガンマ線ピーク計数率の値に、対応する換算係数を用いて着目点における沈着量を求める。換算係数は6.3節に後述するようにガンマ線エネルギーの関数であり、また測定点における配管機器の構造によって変る値である。以上の沈着量定量の過程をFig. 6.6に示す。

6.2.3 OGL-1の概要および1次系における測定点

OGL-1は材料試験炉(JMTR)に設置されている高温照射試験用インパイルガスループであり、昭和51年12月より稼動している。主に多目的高温ガス炉用の燃料開発試験のため、被覆粒子燃料試料を実際の高温ガス炉運転状態近似条件を作り出して照射試験を行なっている。炉心における燃料温度は1350℃、炉内管出口温度ヘリウム1000℃を達成維持している。Fig. 6.7にOGL-1炉内管部の概要を示す。

OGL-1 1次系はFig. 6.8に示すように、高温のヘリウムガスが循環しており、高温ガス炉1次冷却系の運転状態に極めて近い状態となっている。したがって、OGL-1 1次系配管・機器におけるFP沈着量および沈着挙動の測定が可能となれば、我国の多目的高温ガス炉研究開発において未着手の分野であったFP沈着研究の大きな前進が得られるものと期待できる。

FP沈着研究において理解されている沈着状態は、Fig. 6.9に微視的に示すように、配管の管壁部分ではFP核種の吸着および脱着過程であり、酸化膜を含めた管壁内にはFPの拡散侵入および昇華過程が起るとして、物質移動の方程式によって表わされる。沈着状態はヘリウムや配管の温度、流れの状態や配管形状などに複雑に関係している。OGL-1 1次系におけるFP沈着の測定点としてはこれらの興味ある因子が特徴的に現われると予想される点を選択したものである。Fig. 6.10はOGL-1 1次系の鳥瞰図であり、測定点①～⑥が書き込んでいる。各測定点の炉心からの距離および運転中の配管温度についてはFig. 6.11に示す。

FP沈着量の測定は、OGL-1の完成後、被覆粒子燃料試料の照射試験が開始されたJMTR第39運転サイクルから開始し、各運転サイクル毎に行なった。OGL-1の1サイクルの運転が終了し1次系ヘリウム中の希ガスFP核種が減衰した後に、各測定点に検出器を移動設置してガンマ線スペクトル測定を行なっている。

Fig. 6.12～Fig. 6.17には各測定点における着目点と鉛コリメータ付きGe検出器との位置関係を示す。

6.2.4 FP沈着量 in-situ 測定の結果

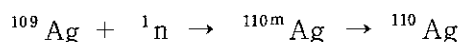
Photo. 6.1にはOGL-1再生熱交換器(測定点⑤)においてin-situ測定を実施している様子を示す。こゝでは鉛コリメータ付きGe検出器をチェンブロックで吊り上げて着目点に近づけ、配管に沈着した核種のガンマ線スペクトルの測定を行なっている。

Fig. 6.18はフィルタ部(測定点⑥)において測定したガンマ線スペクトルの例である。こゝ

では最も多くのガンマ線ピークが検出される。 ^{131}I , ^{95}Z , ^{95}Nb などのFP核種と ^{54}Mn , ^{51}Cr , ^{60}Co など炉内管部分の腐食生成物の放射化したものと考えられる核種の沈着が検出された。

Table 6.1には各測定点において測定した正味のピーク計数率の値を示す。これらの値から各測定点に対応する換算係数(6.3節に換算係数の詳細を述べる)を用いて沈着量を求めた結果をFig. 6.19に示す。これらの沈着分布は、配管経路に沿って上流側すなわち高温配管部分に多く沈着する核種、および逆に下流側に多く沈着する核種などに分類できる。第1回の照射運転を経たOGL-1 1次系配管機器における種々の核種の沈着量は $10^{-2} \sim 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ であった。また、FP沈着研究において興味の対象となっている ^{137}Cs , ^{131}I などの核種は殆んど検出限界以下のレベルであった。

$^{110\text{m}}\text{Ag}$ は核分裂によって直接的に生成される核種ではなく、下記のように ^{109}Ag の放射化によって生成される核種である。



この $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の沈着はOGL-1運転の初期の段階から検出されており、半減期が250.4日と比較的長く、運転履歴に伴う沈着挙動を注目すべき核種である。

OGL-1の照射運転履歴に伴う1次系配管機器のFP沈着挙動を継続的に測定監視が可能となれば、我国のFP沈着研究も飛躍的に進展するものと期待される。そこで同上の測定をOGL-1の4運転サイクルに亘って行なった。代表的な核種の沈着挙動についての測定結果および検討結果を以下に述べる。

(1) ^{137}Cs の沈着挙動

^{137}Cs の沈着分布をFig. 6.20に示す。横軸は測定点の番号を示す。OGL-1運転の初期のサイクル(No.39および40)では、わずかに測定⑤および⑥で微量の沈着が検出されたのみであった。しかし43サイクルに至って測定点②および③の高温配管において、 $10^{-3} \sim 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ 程度の ^{137}Cs の沈着が観測された。 ^{137}Cs のガンマ線は、662 keVの単一ピークである。一方、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の最も強いガンマ線は658 keVであり、万一 ^{137}Cs の沈着が少ない場合にはこのピークの影に隠れてしまう可能性がある。したがって、初期のサイクルでは $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の方が相対的に多く沈着していたと考えられる。しかし、運転サイクルを重ねるに従って、 ^{137}Cs の蓄積が顕著となったものと思われる。また、第43サイクルのOGL-1試料の燃料破損率が高いと云う推定も成り立つ。第43サイクルの傾向から推測すると ^{137}Cs は高温配管により多く沈着するものと考えられる。

(2) ^{131}I の沈着挙動

^{131}I は温度の低い測定点⑤および⑥に沈着する傾向が強い。Fig. 6.21に測定点⑤、⑥における沈着 ^{131}I の運転サイクル間変動の様子を示す。第42サイクルの測定値がピーク状に増加している傾向が両測定点で共通してとらえられている。また第42サイクルには、それまで検出されていなかった高温配管測定点②、③でも検出された。何らかの理由でこの運転サイクルに ^{131}I が多く放出されたと考えられる。

(3) $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の沈着挙動

先に述べた様に $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の発生源については多く議論があり、未だ結論が出ていない。しか

し、沈着量が多いと云う事実は OGL-1 1 次系においても明らかである。Fig. 6.22 に ^{110m}Ag の沈着分布を測定点の関数として示す。第 43 サイクルの測定結果を除いて右下りの傾向を示している。すなわち、高温側に多く、低温側に少く沈着する傾向をもつと考えられる。Fig. 6.23 は、各測定点における沈着量のサイクル間変動を示すものである。高温配管（測定点②、③）における ^{110m}Ag の沈着はほぼ一定に近い挙動を示しており、また低温側の測定点では極めて少ないか、検出されていない。しかし、42 サイクル以後低温側においても定常的に検出されるようになった。Fig. 6.23 は各運転サイクルに新しく生成沈着した増加分をプロットした図である。最初の運転サイクルから徐々に新しく沈着する量が減少して行き、第 43 サイクルでは負に転じている。これは ^{110m}Ag の発生が漸減傾向をもち、また一度高温配管に沈着したものが下流の低温側に移動する挙動をしていると考えられる。これらの結論は今後の FP 沈着研究によって明らかにされると考える。

6.3 FP 沈着定量のための換算係数

6.3.1 換算係数の定義

Fig. 6.3 に示した測定方式において、コリメータ窓を通過する正味のガンマ線のピーク計数率 x_j (CPS) の測定値に換算係数 K_j (CPS/ $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-2}$) を用いて、次式のように沈着量 Y_j ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$) を定量的に求めている。

$$Y_j = \frac{x_j}{r_j K_j} \quad (6.1)$$

ここで、

j : ある核種のスペクトル中のピーク番号

r_j : ピーク j のガンマ線の崩壊あたりの放出率

である。以下にこの換算係数について述べる。

1 次系配管内面に沈着した FP 線源とコリメータ付き Ge 検出器のジオメトリを Fig. 6.24 に示す。このようなモデルにおける座標系を (θ, ϕ) とする。ここで、

θ : 配管断面の円の中心と円周に沿った 2 点の作る角度

ϕ : 配管内面の微小面積 dS の高さ h と点 P および配管中心軸との距離 a によって定まる角度

$$\tan \phi = h/a \quad (6.2)$$

b_1 : FP 核種が沈着している配管の内径

b_2 : FP 核種が沈着している配管の外径

R : 微小面積 dS と点 P との距離であり (θ, ϕ) の関数

$$R(\theta, \phi) = \sqrt{a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2 + a^2 \tan^2 \phi} \quad (6.3)$$

である。微小面積 dS に沈着した FP 量 (FP 沈着量) を S_A ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$) とすると、これに起因する点 P におけるガンマ線束 $d\phi$ は、

$$d\phi = \frac{\gamma F_0 S_A dS}{4\pi R^2} \quad (6.4)$$

と表わすことができる。上式において、

$$F_0 = 3.7 \times 10^4$$

γ : 崩壊あたりのガンマ線放出率。以後の式の実扱いは簡単のために、 $\gamma = 1$ とする。

また、Fig. 6. 25 に示すように、

$$dh = \frac{a d\phi}{\cos^2 \phi} \quad (6.5)$$

$$dS = b b_1 d\theta dh = \frac{a b_1 d\theta d\phi}{\cos^2 \phi} \quad (6.6)$$

であるから、

$$d\theta = \frac{S_A a \cdot b_1}{4\pi R^2 \cos^2 \phi} d\theta d\phi \quad (6.7)$$

となる。上式を整理するために次式に書換える。

$$d\theta = S_A \cdot F(\theta, \phi) \cdot d\theta d\phi \quad (6.8)$$

こゝで、 $F(\theta, \phi)$ は次式となる。

$$F(\theta, \phi) = \frac{a \cdot b_1}{4\pi (a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2 + a^2 \tan^2 \phi) \cos^2 \phi} \quad (6.9)$$

以上の取扱いでは、配管の材質によるガンマ線の吸収効果を見しているのに、以下に吸収効果について考察する。1次系沈着FPの問題では、殆んどの場合、配管は同心の多重管構造である。Fig. 6. 26 には、2重管構造を例として配管材質の吸収効果に関する計算モデルを示す。図において、

$$y_1 = \sqrt{c_1^2 - a^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{b_1^2 - a^2 \sin^2 \alpha} \quad (6.10)$$

$$y_2 = \sqrt{c_2^2 - a^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{b_2^2 - a^2 \sin^2 \alpha} \quad (6.11)$$

である。さらに、 Y_1 および Y_2 は夫々、

$$Y_1 = \frac{y_1}{\cos \delta} = \frac{\sqrt{c_1^2 - a^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{b_1^2 - a^2 \sin^2 \alpha}}{\cos \delta} \quad (6.12)$$

$$Y_2 = \frac{y_2}{\cos \delta} = \frac{\sqrt{c_2^2 - a^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{b_2^2 - a^2 \sin^2 \alpha}}{\cos \delta} \quad (6.13)$$

である。以上の各式において、

c_1 : 2重管の外側配管の内径

c_2 : 2重管の外側配管の外径

$$\tan \alpha = \frac{b_1 \sin \theta}{a - b_1 \cos \theta} \quad (6.14)$$

$$\tan \delta = \frac{a \tan \phi}{\sqrt{a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2}} \quad (6.15)$$

である。 Y_1 および Y_2 を用いて吸収効果 A_b を表わすと、

$$A_b = \exp [- (\mu_1 Y_1 + \mu_2 Y_2)] \quad (6.16)$$

となる。ここで、

μ_1 : 2重管の内側配管のガンマ線吸収係数 (cm^{-1})

μ_2 : 2重管の外側配管のガンマ線吸収係数 (cm^{-1})

である。 n 重配管の場合の吸収効果は、

$$A_b = \exp \left(- \sum_{i=1}^n \mu_i Y_i \right) \quad (6.17)$$

となる。上式を (6.9) 式に掛けると吸収効果を考慮した $F(\theta, \phi)$ の一般式ができる。

$$F(\theta, \phi) = \frac{a \cdot b_1 \cdot \exp \left(- \sum_{i=1}^n \mu_i Y_i \right)}{4\pi (a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2 + a^2 \tan^2 \phi) \cos^2 \phi} \quad (6.18)$$

(6.8) 式の $d\phi$ を上式を用いて詳細に表わすと次式を得る。

$$d\phi = \frac{S_A \cdot a \cdot b_1 \cdot \exp \left(- \sum_{i=1}^n \mu_i Y_i \right) d\theta \cdot d\phi}{4\pi (a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2 + a^2 \tan^2 \phi) \cos^2 \phi} \quad (6.19)$$

着目した配管部分に沈着したFP核種が放出するガンマ線のみ起因する線束を ϕ とすると、

$$\phi = \int_{\phi_0}^{\phi_1} \int_0^{2\pi} S_A \cdot F(\theta, \phi) d\theta d\phi \quad (6.20)$$

のように表わすことができる。すなわち、Ge検出器の中心位置に目を置いたときに、コリメータ窓を通して見える配管部分が着目箇所であり、上式では $\phi_1 \geq \phi \geq \phi_0$ によって視野を制限している。

一方、(6.20) 式のようにガンマ線束がコリメータ付Ge検出に到来したときの、検出器応答特性について以下に考察する。

(6.20) 式の ϕ が1方向成分のみしかもたない平行ビームと見做し得る場合、FP沈着量 S_A に起因する計数率 C は、単位線束あたりの計数率 E_f ($\text{CPS}/\text{photon} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$) を用いて単に次式のように表わすことができる。

$$C = E_f \cdot \phi = E_f \cdot S_A \cdot \int_{\phi_0}^{\phi_1} \int_0^{2\pi} F(\theta, \phi) d\theta d\phi \quad (6.21)$$

しかし、実際の ϕ は種々の角度成分の合成であり、Ge検出器の応答特性として上記の E_f に対していくつかの補正を考えなければならない。

その1つの補正因子は、コリメータの不完全性に対する補正因子である。すなわち、1次系配管沈着FPのin-situ測定に用いている鉛コリメータ付きGe検出器の場合、コリメータの働きは、本来の平行ビームを作ると言うことよりも到来するガンマ線を制限する“絞り”である。しかし、あまり小さく絞ると計数率が低くなり過ぎるので、適当な大きさのコリメータ窓を開ける必要がある。このため、本コリメータを通過したガンマ線は、完全な平行ビームではなく入射角度の異なる成分を含んで検出器に到達する。(6.21)式に用いた E_f は、平行ビームとして入射するガンマ線の単位線束あたりの計数である。したがって、入射するガンマ線が角度成分をもっている場合、 E_f に対して入射角度依存性を考察した補正因子が必要となる。

Fig. 6.27 にコリメータ窓の形および入射角度(α , δ)のとり方を示す。コリメータ窓は縦4 cm × 横1 cmの矩形であり、本測定方式においては E_f に対する入射角度依存性補正因子 A_n として次式を仮定した。

$$A_n(\theta, \phi) = h(\alpha) \cdot v(\delta) \quad (6.22)$$

ここで、(θ , ϕ)と(α , δ)の関係は(6.15), (6.15)式である。

上式の $h(\alpha)$ および $v(\delta)$ の較正方法および特性測定結果については、後の6.3.2項で詳細に述べる。

E_f に対する2つ目の補正因子として考えなければならないのは、“非 $1/R^2$ 則因子”である。これは、本実験における検出器ジオメトリにおいて、線源と検出器との距離 R が近いため、点線源一点検出器ジオメトリが成り立たないことに起因している。本測定方式においては、非 $1/R^2$ 則因子 $L(\theta, \phi)$ を実験式として次式のように R の指数関数と仮定している。

$$L(\theta, \phi) = g_0 \exp(-g_1 R) + g_2 \quad (6.23)$$

ここで R は、(6.3)式である。上式を決定するための実験については、同様に後の6.3.2項で詳細に述べる。

以上のようにして定義した種々の因子を用いて、配管内面のFP沈着量を決定するための換算係数 K (CPS/ μ Ci $\cdot$ cm $^{-2}$)は、

$$K = \frac{C}{S_A} = \int_{\phi_0}^{\phi_1} \int_0^{2\pi} E_f \cdot F(\theta, \phi) \cdot A_n(\theta, \phi) \cdot L(\theta, \phi) d\theta \cdot d\phi \quad (6.24)$$

のように表わすことができる。

実際の換算係数 K は、ガンマ線エネルギーの関数であり、また、配管の構造に関するデータおよび測定点における検出器ジオメトリデータを用いて決定される。

6.3.2 コリメータ付き Ge 検出器の特性較正

(1) E_f (CPS/photon $\cdot$ cm $^{-2}$ $\cdot$ sec $^{-1}$) の測定

使用した可搬型 Ge(Li) 検出器は一般性能として、相対検出効率8%, 分解能2.5 keV であ

り、有感体積 44 cm^3 の同軸型 Ge 単結晶を内蔵している。コリメータは厚さ 5 cm の鉛製円筒形であり、側面に $4 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ の矩形状コリメータ窓をもつ。E_f の測定では、約 $100 \mu\text{Ci}$ の ^{152}Eu 標準線源を検出器中心からコリメータ中心軸上 20 cm の距離に置き、各々のピーク計数率を求めた。線束の値として、検出器中心点における値を算出し、各々のピーク計数率をこれで割った値が求めるべき E_f である。Fig. 6. 28 には、実験に使用した鉛コリメータ付き Ge (Li) 検出器の E_f の測定結果を示す。図中には鉛コリメータ中における Ge 単結晶体の位着および ^{152}Eu 線源の位置も示した。

(2) コリメータ特性因子 A_n の測定

コリメータ付き Ge 検出器の入射角度依存性を表わす因子は (6. 22) 式によって定義しており、測定は以下のように行なった。コリメータ窓は縦長の矩形であり、水平方向の角度 α に関する角度依存性測定では、 ^{152}Eu 線源を検出器中心との距離を一定に保ちながら 1° ずつ回転させ、ガンマ線スペクトルを測定し、各エネルギーのピーク計数率を求めた。これにより入射角度毎のピーク計数率が求められる。これが (6. 22) 式の $h(\alpha)$ であり、Fig. 6. 29 に測定結果を示す。図中の 121 keV の低いエネルギーのガンマ線に対しては、理想に近いコリメータ特性を示しているが、 1408 keV 程度の高いエネルギーのガンマ線に対しては、コリメータの効果が相当落ちることを示している。

一方、垂直方向の角度 δ に関する角度依存性 $v(\delta)$ の測定結果を Fig. 6. 30 に示す。水平方向に比較してコリメータ窓の開口は広いので、種々の角度成分を含むことが測定結果から推測できる。

以上のようにして求めた各種エネルギーのガンマ線に対する $h(\alpha)$ および $v(\delta)$ 特性の測定値を最小自乗法によって下式のような多項式に当てはめている。

$$h(\alpha) = \sum_{k=1}^{\ell} B_k \alpha^{k-1} \quad (6. 25)$$

$$v(\delta) = \sum_{k=1}^m D_k \delta^{k-1} \quad (6. 26)$$

これらを用いて (6. 22) 式により $A_n(\theta, \phi)$ を決定する。Fig. 6. 29 および 6. 30 の実線は当てはめ曲線の計算値である。

(3) 非 $1/R^2$ 則因子 $L(\theta, \phi)$ の測定

(1) に述べた E_f の測定では、 ^{152}Eu 標準線源の位置を検出器中心から 20 cm の距離に固定した。L(θ, ϕ) 因子の測定の場合、同様な測定を距離を変えて行なった。もし、点線源一点検出器ジオメトリが成り立てば、 $1/R^2$ 則に従って曲線は水平な直線となる。Fig. 6. 31 に測定結果を示す。特に線源と検出器の距離が近くなるのに従って、 $1/R^2$ 則からのズレが大きくなることが分る。

L(θ, ϕ) 因子の決定では、図中の各エネルギーの曲線を距離に関して、指数関数 (6. 23) 式に当てはめを行なった。すなわち、L(θ, ϕ) は各エネルギー毎に数式として求まり、線源と検出器中心との距離 R(θ, ϕ) を与えることにより値が決定できる。

(4) 換算係数 K の決定

以上の(1)~(3)により求めたコリメータ付き Ge 検出器の特性較正值を用いて、実際の測定点

に対する沈着量換算係数を(6.24)式により決定する。換算係数の計算は、(6.24)式を基礎とした大型計算機用計算プログラムを作成し、種々の測定点に適用できるものとした。

実際の OGL-1 における測定点(①～⑥)に対する換算係数を Fig. 6.32 に示す。

6.4 沈着模擬配管を用いた検証実験

6.3 節で定義したように理論式と実験式との組み合わせによって求まる換算係数が、沈着量測定に実用的なガンマ線エネルギー範囲(100 keV～2 MeV)において、また現実的な多重配管構造に対して、どの程度の確からしきで適用可能であるかを検証しておくことは極めて重要なことである。そこで、以下に述べるように、沈着模擬配管を作成し、本測定方式の検証実験を行った。

6.4.1 沈着線源の模擬

沈着量測定法の較正を行なうためには、沈着量($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)が正確に値付けされた円筒状面積線源を標準として用いるのが最も簡単な方法である。しかしながら、実際規模の寸法の配管内面に、均一でかつ正確な表面密度で放射性核種を塗布した沈着標準線源を製作することはかなり困難なことである。このため、通常の点状標準線源(約 70 μCi の ^{152}Eu)を利用して配管内面の沈着を模擬する装置を考案し製作した。模擬配管の構造は3重管とし、その寸法、厚さおよび材質などのデータを Table 6.2 に示す。

この装置では Fig. 6.33 に示すように、3重管構造の最も内側の管の内面に沿ってワイヤで吊った点状線源を一定速度で移動させて、縦方向の帯状沈着線源として模擬している。ワイヤの駆動にはパルスモータを用い、1 mm/パルスとし約2分間に1パルスの割合で移動させた。移動の1行程は40 cm(400 パルス)で所要時間は約50,000 秒であった。この移動時間中に鉛コリメータ付き Ge 検出器を用いてガンマ線スペクトルの測定を行なった。このようなガンマ線スペクトル測定を、配管の円周方向に沿って30°毎に繰り返し実施した。また、鉛コリメータの窓を開放した場合および閉じた場合の2回測定を各角度において実施し、差し引きした正味のガンマ線計数率を求めている。

Fig. 6.34 中の左図に示すように沈着模擬配管内面の微小面積 ΔS_{pq} の中央に点状標準線源を置き、均一な沈着状態を模擬している。この微小面積線源の、あるピークガンマ線に対応した鉛コリメータ付き Ge 検出器の正味の計数率を ΔC_{pq} とすると、

$$\Delta C_{pq} = P_0 \times \Delta S_{pq} \times K_{pq} \times r \quad (6.27)$$

で表わすことができる。こゝで、

p : 配管長手方向、1 mm ごとの分割を示す番号。

$$p = 1, 2, 3 \cdots 400$$

q : 配管円周方向、10° ごとの分割を示す番号。

$$q = 1, 2, 3 \cdots 36$$

P_0 : 沈着模擬配管の沈着量 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)

ΔS_{pq} : 微小面積 (cm^2)

K_{pq} : 微小沈着線源個々に対する沈着量換算係数 ($\text{CPS}/\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-2}$)

r : あるピークガンマ線の放出率

である。

Fig. 6. 34 の左図に示した微小沈着線源の連続である帯状の集合に対応するピーク計数率 C_q は、

$$C_q = \frac{\sum_{p=1}^{400} (\Delta C_{pq} \times \Delta t)}{400 \times \Delta t} \quad (6.28)$$

Δt : 微小沈着線源 1 個の計数時間

である。そして、さらに C_q を配管円周方向について積分したときのピーク計数率 C は

$$C = \sum_{q=1}^{36} C_q = \frac{P_0 \times r}{400} \cdot \sum_{q=1}^{36} \sum_{p=1}^{400} (\Delta S_{pq} \times K_{pq}) \quad (6.29)$$

のように表すことができる。この場合の微小面積 ΔS_{pq} は一定値 ($\Delta S_{pq} = \Delta S$) であり、

$$C = \frac{P_0 \times r \times \Delta S}{400} \sum_{q=1}^{36} \sum_{p=1}^{400} K_{pq} \quad (6.30)$$

となる。実験からはこのようにして沈着模擬配管からの各ピークガンマ線の計数率が求められる。

一方、沈着模擬配管に対する、あるエネルギーのガンマ線に対する沈着量換算係数は、先に述べた大型計算機計算コードに模擬配管のデータを入力して求められる。

実験に用いた ^{152}Eu 線源は種々のエネルギーのガンマ線を放出するので、この種の較正実験には極めて有用な標準線源である。実験においては、各エネルギーのガンマ線は別々の沈着核種が放出したものと見做す。したがって、これら架空の沈着核種の沈着量 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$) は皆等しく、 P_0 である。

6. 4. 2 検証実験の結果

沈着模擬配管 (Fig. 6. 33 参照) に対する沈着量換算係数の計算結果をガンマ線エネルギーの関数として Fig. 6. 35 に示す。配管構造は 3 重管である。材質は SUS 304 であり、ガンマ線吸収係数は Hubbel の鉄 ($Z = 26$) の値¹⁰⁾ を用いた。また ^{152}Eu 線源の各ピークガンマ線放出率の値には吉沢の値¹¹⁾ を用いた。Table 6. 3 には換算係数の各因子のバラツキをガンマ線エネルギーに関して示した。ガンマ線エネルギーは ^{152}Eu の放出するガンマ線のエネルギーに対応する。

この換算係数を用いて模擬配管の沈着量を求めた結果を Fig. 6. 36 に示す。本測定方法による実測値は、真値 (線源強度から計算した値) よりも系統的に 10 % 程度大きい値となった。

6. 4. 3 本測定方法において考えられる誤差の見積り

沈着模擬配管を用いた実験では、配管の径、厚さ、Ge 検出器との距離などのデータは実測によって正確に求めることができる。しかし、OGL-1 1 次系における実際の測定現場では、配管構造データおよび Ge 検出器の設置状態に関する情報に不正確さが生じ、換算係数の中の構造因子 $F(\theta, \phi)$ に少なからず誤差を生じる可能性がある。以下に実際の FP 沈着量非破壊定量測定法

を実施した場合予想できる換算係数の誤差について検討する。

(1) 距離 a (Ge 検出器と配管中心との距離)

実際の多重配管構造の FP 沈着を測定する場合、最も内側にある沈着配管の中心は外側の配管と同芯であると仮定している。しかし、高温配管の場合には内側にある配管が熱サイクルの影響により偏心していることも予想できる。そこで、模擬配管モデルにおいて距離 a ($= 24.82$ cm) に ± 1.0 cm の誤差を与えた場合、沈着量換算係数がどの程度変動するものかを計算により調べた。

結果を Table 6.4 の Distance ± 1 cm の欄に示す。122 keV のガンマ線については $\pm 2.5\%$ 、1408 keV のガンマ線については $\pm$ 約 4% の誤差を生じさせている。

(2) 沈着配管の半径 c_1

沈着模擬配管において $c_1 = 3.03$ cm である。この c_1 に ± 1 mm の誤差を予想した場合、同様にして影響を調べた。結果を Table 6.3 の Radius c_1 の欄に示す。この誤差の影響は小さく、122 keV のガンマ線に対して最大 0.4% 程度、1408 keV に対して 2.0% 程度である。

(3) 座標系 (θ, ϕ) のオフセット

実際の in-situ 測定では、着目した配管の測定点に鉛コリメータ付き Ge 検出器を据え付けなければならない。このとき、換算係数の計算で扱っている座標系 (θ, ϕ) と検出器・配管のジオメトリをいかに正確に合わせられるかが問題となる。また(1)の検討で述べたように内側管の偏心も有り得る。この種の誤差要因を、ここでは座標系 (θ, ϕ) の原点 $(0, 0)$ のオフセット $(\pm \Delta\theta, \pm \Delta\phi)$ として扱い、沈着換算係数の計算値に与える誤差の大きさを調べた。

沈着模擬実験の経験によれば、コリメータ付き Ge 検出器の据え付けの場合、定規などを用いてオフセット値 $\Delta\theta$ および $\Delta\phi$ を、夫々 3° および 5° 以内に抑えることは可能である。誤差の見積りとして $\Delta\theta = 3^\circ$ 、 $\Delta\phi = 5^\circ$ とした。

Table 6.4 の Offset- θ および Offset- ϕ の欄に換算計数の誤差の大きさを示す。

(1)、(2)項に述べた要因による誤差に比較して、オフセット誤差による誤差は相当大きくなることが分る。また θ に関するオフセット誤差は、 ϕ に関するよりも大きな誤差を与えている。

エネルギーの低い 122 keV に対する誤差は、1408 keV に対する誤差よりも大きい。さらにオフセット $\Delta\phi = -5^\circ$ を与えた場合の誤差は+側の誤差となっている。

以上の誤差の出方は、Fig. 6.29 および Fig. 6.30 の鉛コリメータ入射角度依存特性を考え合わせると妥当な結果である。

(4) 沈着配管の厚み t_i ($i = 1, 2, 3$)

実際の OGL-1 多重管の肉厚に関する工作精度は約 3% 以内が仕様となっている。ここでは配管の肉厚の誤差として $\pm 5\%$ を考える。

この誤差による換算係数の誤差の大きさを Table 6.5 に示す。3 重管構造の模擬配管の場合、最も肉厚の厚い配管の厚み誤差が、最大の誤差を与えることは明らかである。ただし、最も内側の管の厚さ t_1 の誤差の影響の重みは大きい。

また、この要因による誤差は低エネルギーガンマ線に対して大きい。

(5) 最大誤差の見積り

以上の(1)~(4)項に述べた誤差の要因は、実際の in-situ 測定において起り得る大きさを想定

した。したがって、最悪の条件が重なった場合の換算係数の誤差の大きさをこれらの誤差を基にして見積ることができる。

Table 6.6 に最大誤差を与える組み合わせの場合の誤差の大きさを示す。Estimated error の欄に示す + side とあるのは、換算係数を大きくするような組み合わせによる誤差の計算結果である。-side の欄は一侧オフセット誤差の組み合わせの結果である。

+側の誤差では、122 keV に対して 20.7 %，1408 keV に対して 8.7 % である。一方、一侧の誤差は+側に比較して大きく、122 keV に対して -34.5 %，1408 keV に対して -16.2 % である。

さらに Table 6.2 に示した換算係数の校正因子 (E_f , A_b , A_n , L) のバラツキに起因する誤差を公算誤差として求めた値を Table 6.6 の Probable error の欄に示す。この値と先の Estimated error の値とを加えた値を最大誤差として Maximum error の欄に示した。+側の誤差は、122 keV のガンマ線に対して 26.8 %，1408 keV に対して 11.5 % となった。また、-側の誤差は、122 keV に対して -40.6 %，1408 keV に -19.5 % となり、+側の誤差よりも大きい。ガンマ線エネルギーが高くなるのに従って誤差は小さくなる傾向がある。

Fig. 6.37 に沈着模擬配管に対して求めた換算係数と見積り最大誤差の関係を示す。

6.5 結 言

多目的高温ガス炉を開発する上で不可欠の研究課題とされる 1 次冷却系における FP 沈着に対して、Ge 検出器を用いた in-situ 測定法を応用した非破壊定量測定法を開発し、OGL-1 1 次系における FP 沈着測定に実用化することができた。これによって我国の FP 沈着研究をスタートさせることに成功すると共に、FP 沈着研究が今後大幅に進展するものと期待できる。

OGL-1 の第 1 回燃料照射試験から本測定方式による FP 沈着測定を 1 次系配管機器における各測定点に対して実施し、主要沈着 FP 核種の挙動に関して下記のことが明らかとなって来た。

^{137}Cs の沈着は OGL-1 の初期の運転サイクルでは極く微量で検出限界以下であったが、4 回目の運転サイクル以後、 $10^{-3} \sim 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ 程度の沈着が高温配管における測定点で観測されるようになった。

^{131}I は低温配管に多く沈着する傾向を観測できた。

$^{110\text{m}}\text{Ag}$ は OGL-1 の初期の運転サイクルに非常に多く沈着していることが測定によって明らかにされた。しかし、その後のサイクルを経るに従って減少する傾向が確認された。この傾向はさらに先まで見極める必要があるが、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の発生源を暗示するものである。OGL-1 の炉内構造物であるグラファイト中の不純物としての ^{109}Ag (天然存在比 45%) が (n, γ) 反応によって $^{110\text{m}}\text{Ag}$ となる生成過程である。

以上のように本測定方法を開発するために行なった予備測定においても、FP 沈着研究において極めて重要な事実が次々と明らかにされつつある。また、本開発による測定法を基にした実用大規模装置が現在はいられており、OGL-1 を用いた FP 沈着研究が継続している状態にある。

本測定方法によって求めた FP 沈着量がどの程度確からしいものかを検証するために、沈着模擬配管を用いた検証実験を実施した。3 重管構造の沈着模擬配管に対する本測定法による沈着定

量値は系統的に 10 % 程度 大き目の 値 となったが、現在要求されている確度としては十分な一致と考えられる。

沈着模擬配管に対する沈着量換算係数の計算コードを用いて、本測定方法の誤差要因の解析を行なった結果、下記のことが明らかとなった。

本測定方法を実施する場合、現場における鉛コリメータ付き Ge 検出器の据付けを可能な限り正確に行なう必要がある。換算係数を求める計算のために考慮したモデルとのズレがある場合、最も大きな誤差を与える。その他種々の要因を考慮した最悪の場合、122 keV のガンマ線に対して - 40 % 程度の誤差を生じることも明らかにした。したがって OGL-1 における各測定点に対しては、固定式の鉛コリメータを正確に据付けることによって、確度の向上をはかった。

参考文献

- 1) Dyer, F.F., et al. : Distribution of radionuclides in the Peach Bottom HTGR primary circuit during core 2 operation, ORNL-5188 (1977)
- 2) Selph, W.E. and Bryan, D.E. : Measurement of fission product activity in the Peach Bottom reactor primary coolant loop, GA-A 14059 (1976)
- 3) Hanson, D.L., Baldwin N.L. and Selph, W.E. : Gamma scanning the primary circuit of the Peach Bottom HTGR, GA-A 14161 (1976)
- 4) Iniotakis, N., Malinowski, J. and Münchow, K. : Initial results of investigations into fission product deposition in in-pile experiments, Nucl. Eng. Design 169~180 (1975)
- 5) Terada, H, et al. : In-situ measurement of fission product plateout in in-pile gas loop using portable Ge(Li) gamma-ray spectrometer, J. Nucl. Sci. Technol., 17 [3], 225~240 (1980)
- 6) Terada, H, et al. : Nondestructive measurment of fission product plateout using in-situ Ge(Li) gamma-ray spectrometer, Proc. 2nd U.S.-Japan Seminar on HTGR Safety Technology, Vol. 1 pp.151~161 (1978)
- 7) 片桐政樹, 寺田博海, 高橋秀武 : 可搬型 Ge(Li) 検出器を使用したFPプレートアウト測定
OGL-1 FP プレートアウト測定のための予備実験, JAERI-M 7579 (1978)
- 8) Baba, O. : FP plate-out study using in-pile loop OGL-1, IAEA Specialist's Meeting on Coolant Chemistry, Plateout and Decontamination in Gas-cooled Reactors, (1980)
- 9) 寺田博海, 片桐政樹, 若山直昭 : FPプレートアウト非破壊定量測定法の検証実験, 日本原子力学会誌 Vol. 23 No. 10, pp 762 ~ 771 (1981)
- 10) Hubbel, J.H. : Photon cross section, attenuation coefficients, and energy absorption coefficients from 10 keV to 100 GeV, NSRDS-NBS (1969)
- 11) Yoshizawa, Y., Horiguchi, T. and Yamada, M. : Chart of the Nuclides, Japanese Nucl. Data Comm. and Nucl. Data Center JAERI (1980)

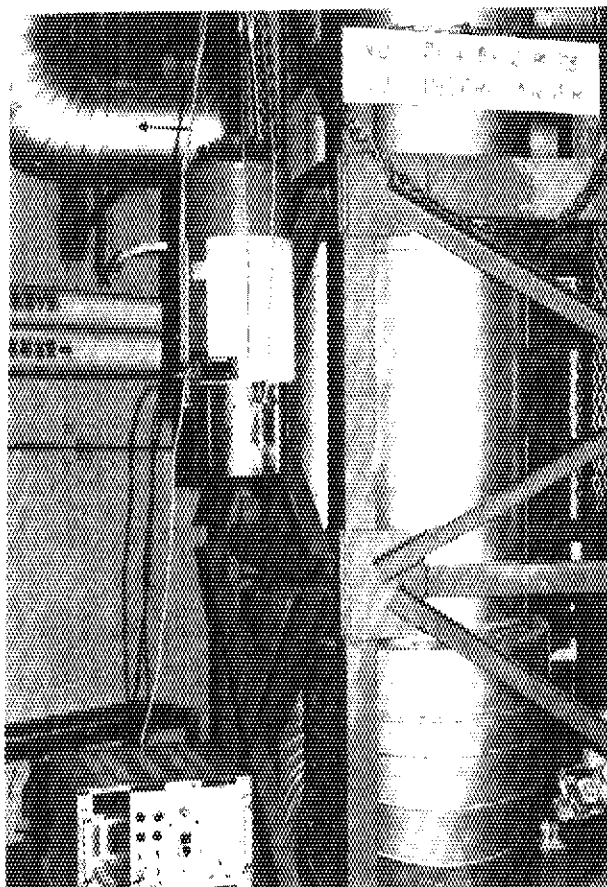


Photo 6.1 In-situ measurement of fission product plateout in OGL-1 using a portable Ge(Li) detector with a lead collimator

Table 6.1 Gamma-ray peak counting rates of plateout nuclides measured at various points in first irradiation cycle of OGL-1

Energy (keV)	Nuclide	Point 1	Point 2	Point 3	Point 4	Point 5	Point 6
132	¹⁸¹ Hf	—	—	—	—	—	0.0358
186		—	0.0149	—	—	—	—
283	¹³¹ I	—	—	—	—	—	0.0175
320	⁵¹ Cr	—	0.0239	—	—	0.0027	0.2334
346	¹⁸¹ Hf	—	—	—	—	—	0.0400
365	¹³¹ I	—	—	—	—	0.0270	0.2849
447	^{110m} Ag	—	0.0076	—	—	—	—
482	¹⁸¹ Hf	—	0.0039	—	0.0035	0.0250	0.1107
496	¹³² Ba	—	0.0047	—	—	—	—
529	¹³³ I	—	—	—	—	—	0.0097
564	¹²² Sb	—	0.0110	—	—	0.0090	—
603	¹²⁴ Sb	—	0.0184	—	—	0.0257	—
637	¹³¹ I	—	—	—	—	—	0.0192
658	^{110m} Ag	0.1403	0.1035	0.0487	0.0170	—	—
677	^{110m} Ag	—	0.0116	0.0053	—	—	—
686	^{110m} Ag	—	0.0086	—	—	—	—
707	^{110m} Ag	—	0.0204	—	—	—	—
724	⁹⁵ Zr	—	—	—	—	—	0.0273
739	⁹⁹ Mo	0.3613	0.0060	—	—	—	—
756	⁹⁵ Zr	—	—	—	—	—	0.0149
764	^{110m} Ag	—	0.0241	0.0088	—	—	—
766	⁹⁵ Nb	—	—	—	—	—	0.0161
778	⁹⁹ Mo	0.0273	—	—	—	—	—
810	⁵⁸ Co	—	0.0105	0.0041	—	—	0.0879
834	⁵⁴ Mn	0.2924	0.4566	0.2394	0.5767	0.2289	0.0419
885	^{110m} Ag	0.1480	0.0830	0.0426	0.0127	—	—
889	⁴⁶ Sc	—	—	—	—	—	0.0227
937	^{110m} Ag	0.1934	0.0386	0.021	0.0051	—	—
1,099	⁵⁹ Fe	—	—	—	—	—	0.0106
1,115	⁶⁵ Zn	—	0.0002	0.0034	0.0175	0.3316	0.0406
1,120	¹⁸² Ta	—	—	—	—	—	0.0253
1,173	⁶⁰ Co	3.4365	0.0346	0.0019	0.0834	0.1642	0.3051
1,189	¹⁸² Ta	—	—	—	—	—	0.0243
1,221	¹⁸² Ta	—	—	—	0.0034	—	0.0334
1,292	⁵⁹ Fe	—	—	—	—	—	0.0146
1,332	⁶⁰ Co	4.1001	0.0343	0.0036	0.1251	0.1663	0.3144
1,368	²⁴ Na	0.0582	—	—	—	0.0054	—
1,383	^{110m} Ag	0.0963	0.0330	0.0173	0.0054	—	—
1,408	¹⁵² Eu	—	0.0021	—	—	—	—
1,460	⁴⁰ K	—	0.0180	0.0194	0.0159	0.0181	0.0167
1,476	^{110m} Ag	0.0276	0.0045	0.0027	—	—	—
1,505	^{110m} Ag	0.0589	0.0160	0.0109	0.0032	—	—
1,562	^{110m} Ag	—	0.0003	—	—	—	—
1,597	¹⁴⁰ La	0.0147	0.0028	—	0.0038	0.0068	—
1,691	¹²⁴ Sb	—	0.0098	0.0047	0.0064	0.0055	—
1,728	²⁴ NaDE	0.0305	—	—	—	0.0017	—

Table 6.2 Dimension of plateout mock-up tubes

Number <i>i</i>	Outer radius c_i (cm)	Inner radius b_i (cm)	Thickness t_i (cm)	Material
1	3.03	2.86	0.165	Stainless steel
2	4.46	4.25	0.21	"
3	10.82	10.00	0.82	"

$a=24.82$ cm: Distance between detector center and tube center

Table 6.3 Standard deviation of plateout conversion coefficient K_{cal} .

Energy (keV)	Standard deviation (%)			
	ΔE_f	ΔA	ΔL	$\Delta K_{cal.}^\dagger$
122	2.13	8.62	1.34	8.98
245	2.91	3.70	2.07	5.14
344	2.20	4.48	1.35	5.17
444	3.33	5.08	3.62	7.07
779	2.57	7.10	2.13	7.85
867	3.81	8.62	4.04	10.3
964	2.57	5.96	1.98	6.79
1,112	2.63	5.04	2.22	6.10
1,408	2.48	3.47	1.81	4.63

$^\dagger \Delta K_{cal.} = \sqrt{(\Delta E_f)^2 + (\Delta A)^2 + (\Delta L)^2}$

Table 6.4 Error analysis with various valuables on plateout conversion coefficient

Energy (keV)	Conversion coefficient (cps/ μ Ci $\cdot$ cm $^{-2}$)	Error (%)							
		Distance †		Radius c_i **		Offset- θ ***		Offset- φ ***	
		-1cm	+1cm	+1mm	-1mm	+3°	-3°	+5°	-5°
122	71.0	2.5	-2.5	0.1	-0.4	-15.5	-6.3	-4.4	2.0
245	185.6	2.6	-2.6	0.4	-0.7	-14.5	-5.6	-2.5	1.0
344	162.7	2.9	-2.8	0.7	-0.9	-14.4	-5.2	-2.2	0.9
444	149.9	3.2	-3.1	1.0	-1.2	-14.7	-5.5	-2.1	0.8
779	122.3	3.8	-3.5	1.6	-1.7	-9.1	-5.9	-2.0	0.7
867	119.9	3.8	-3.5	1.6	-1.8	-9.1	-6.4	-1.8	0.8
964	115.4	3.9	-3.6	1.6	-1.9	-8.7	-6.4	-1.8	0.7
1,112	109.7	4.0	-3.7	1.8	-2.0	-8.4	-6.6	-1.7	0.6
1,408	97.8	4.2	-3.9	1.9	-2.0	-7.5	-7.3	-1.5	0.6

† Distance a between detector center and tube center, $a=24.82$ cm

** Radius c_i of mock-up tube, $c_i=3.03$ cm

*** Offset values $\Delta\theta$ and $\Delta\varphi$ on coordinate $(\theta, \varphi): (\theta + \Delta\theta, \varphi + \Delta\varphi)$

Table 6.5 Error analysis on plateout
conversion coefficient concerned
with thickness values of tubes

Energy (keV)	Conversion coefficient (cps/ μ Ci· cm ⁻²)	Error (%)					
		Thickness t_1		Thickness t_2		Thickness t_3	
		-5	+5	-5	+5	-5	+5
122	71.0	2.1	-2.1	2.5	-2.5	9.2	-8.5
245	185.6	1.0	-1.0	1.2	-1.2	4.2	-4.0
344	162.7	0.9	-0.8	1.0	-1.0	3.4	-3.3
444	149.9	0.8	-0.8	0.9	-0.9	3.0	-2.9
779	122.3	0.7	-0.7	0.7	-0.7	2.3	-2.2
867	119.9	0.8	-0.7	0.7	-0.6	2.2	-2.0
964	115.4	0.7	-0.7	0.6	-0.6	2.0	-2.0
1,112	109.7	0.6	-0.6	0.5	-0.5	1.9	-1.9
1,408	97.8	0.6	-0.6	0.5	-0.5	1.7	-1.6

$t_1=0.165$ cm, $t_2=0.21$ cm, $t_3=0.82$ cm

Table 6.6 Error estimation for nondestructive
measuring method of FP plateout in
a primary duct

Energy (keV)	Conversion coefficient (cps/ μ Ci· cm ⁻²)	Estimated error (%)		Probable error(%) 0.674 $\times \Delta K$	Maximum error (%)	
		+side	-side		+side	-side
122	71.0	20.7	-34.5	± 6.1	26.8	-40.6
245	185.6	11.1	-26.4	± 3.5	14.6	-29.9
344	162.7	10.0	-25.0	± 3.5	13.5	-28.5
444	149.9	9.5	-24.5	± 4.8	14.3	-29.3
779	122.3	8.8	-18.7	± 5.3	14.1	-24.0
867	119.9	8.8	-18.5	± 6.9	15.7	-25.4
964	115.4	8.6	-17.9	± 4.6	13.2	-22.5
1,112	109.7	8.5	-17.4	± 4.1	12.6	-21.5
1,408	97.8	8.2	-16.2	± 3.1	11.3	-19.3

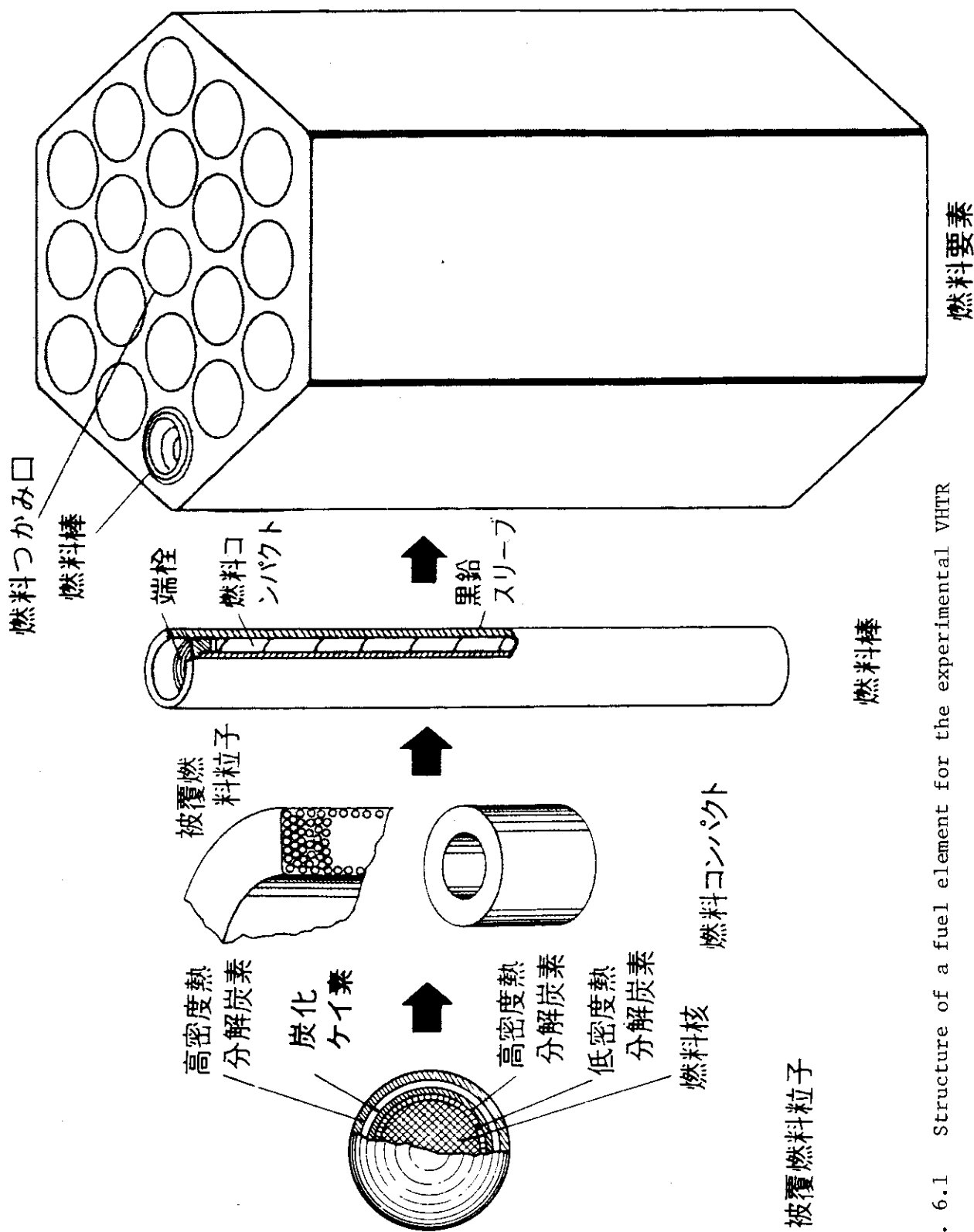


Fig. 6.1 Structure of a fuel element for the experimental VHTR

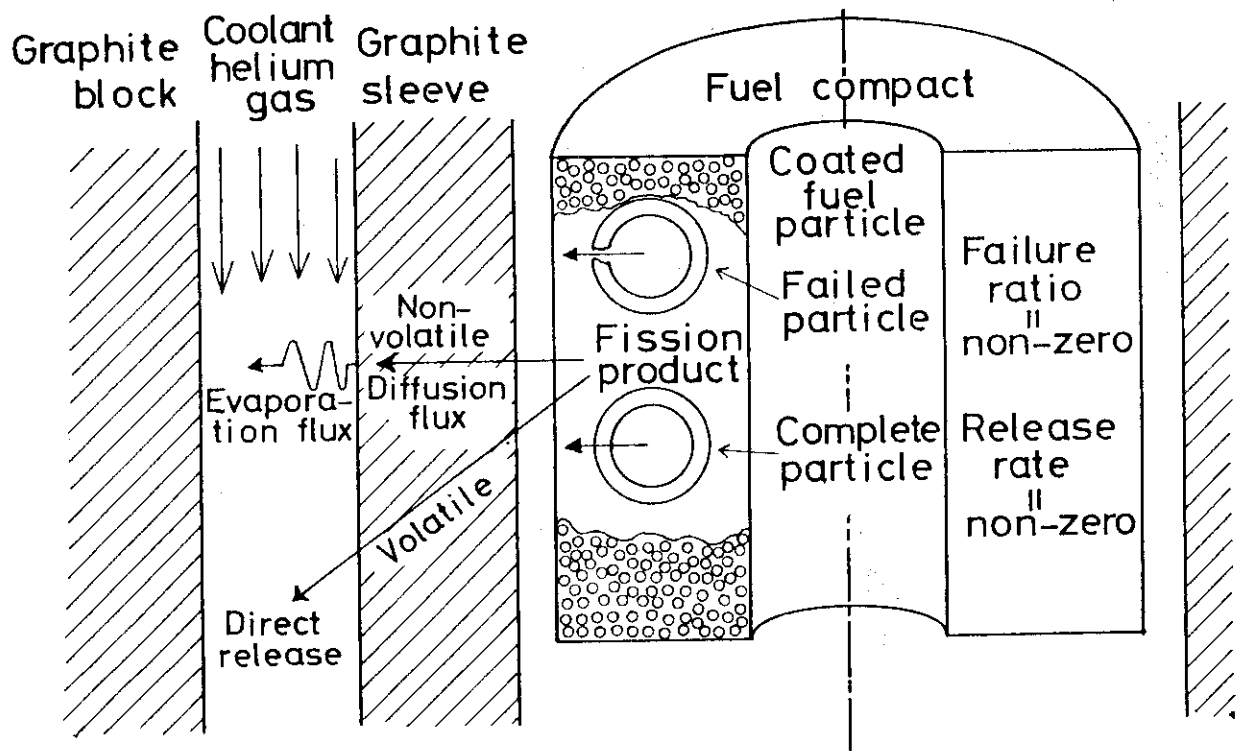


Fig. 6.2 Release mechanism of the fission products from coated fuel particles

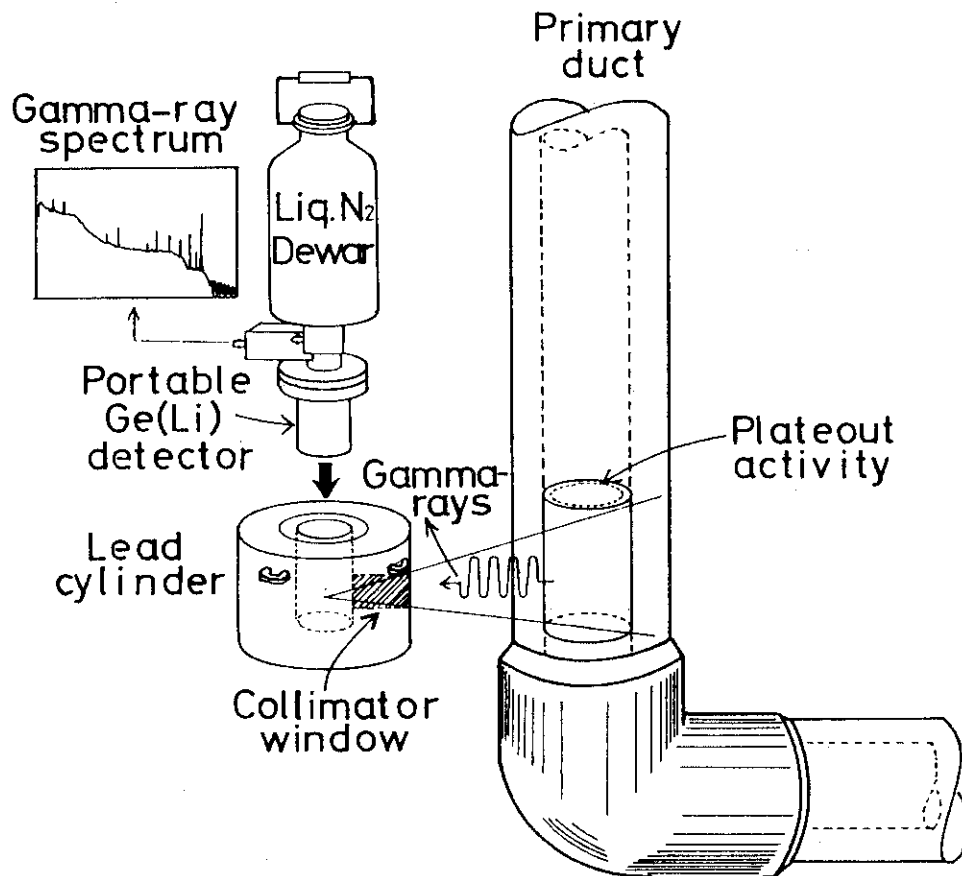
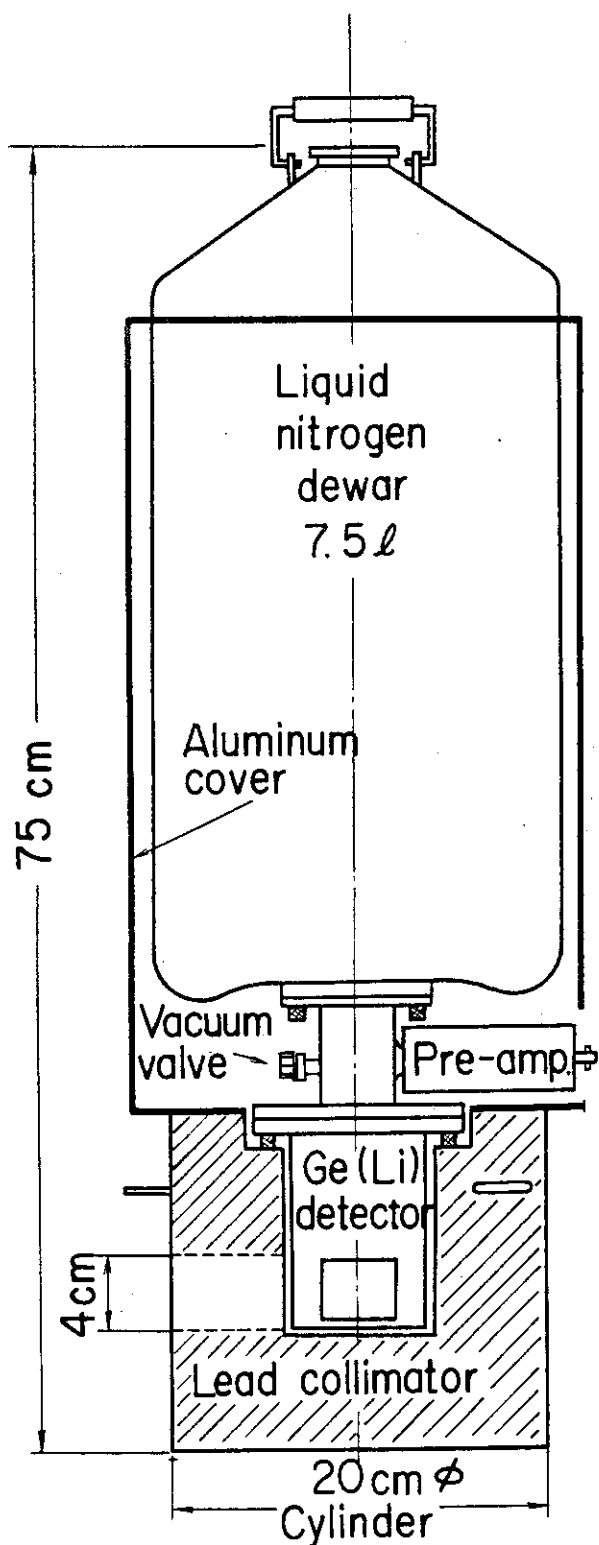


Fig. 6.3 A non-destructive measurement of the fission product plateout



Performance

of

Ge (Li) detector

Efficiency 8 %

Resolution 2.1 keV
(for 1333 keV of ^{60}Co)

Bias voltage 2500V

True coax. 44 cm³

Weight

Ge (Li) detector 15 kg
(with 7.5 l liq. N₂)

Lead collimator 52 kg

Total weight 67 kg

Lead collimator

Thickness 5cm

Rectangular window
(4cm x 1cm)

Fig. 6.4 Portable Ge(Li) detector with lead collimator

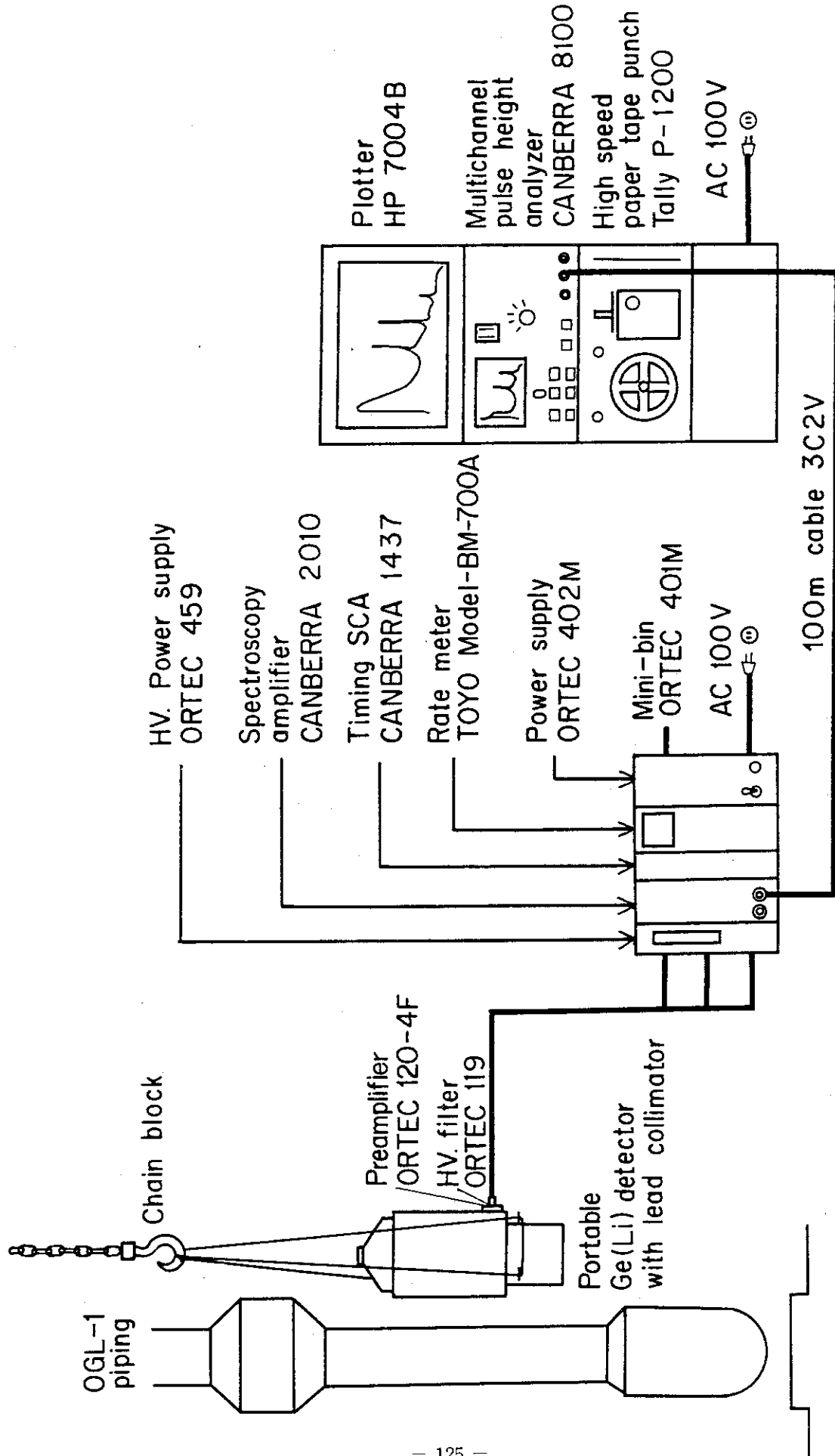


Fig. 6.5 Schematic diagram of portable Ge(Li) detector system

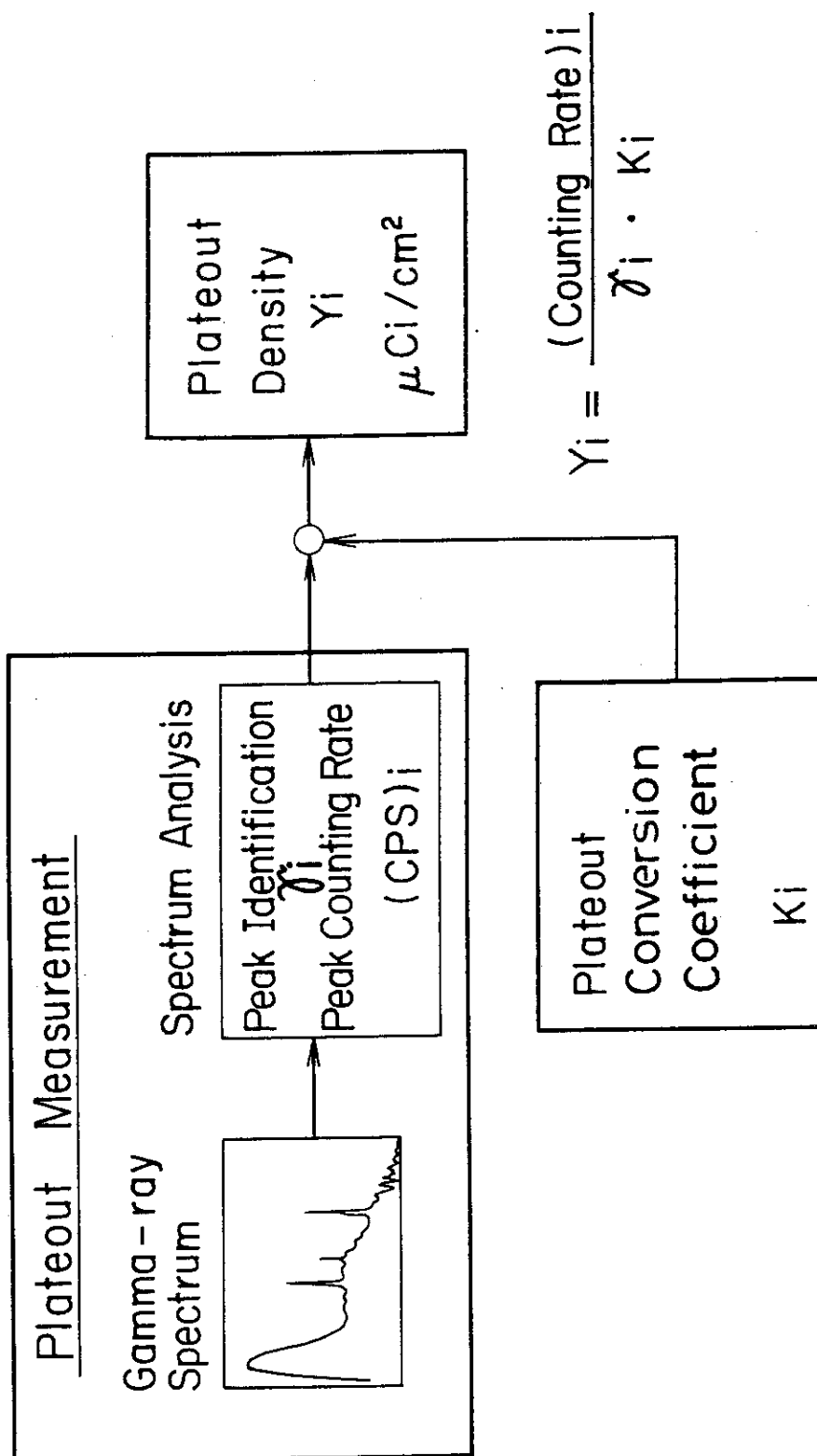


Fig. 6.6 Procedure of determining a plateout-density value from in-situ measurement

管	内径・	外径・
外套管	$\phi 137$	$\phi 146$
圧力管	$\phi 126$	$\phi 132$
内壁管	$\phi 92$	$\phi 96$
仕切管	$\phi 84$	$\phi 88$

・炉心部における寸法

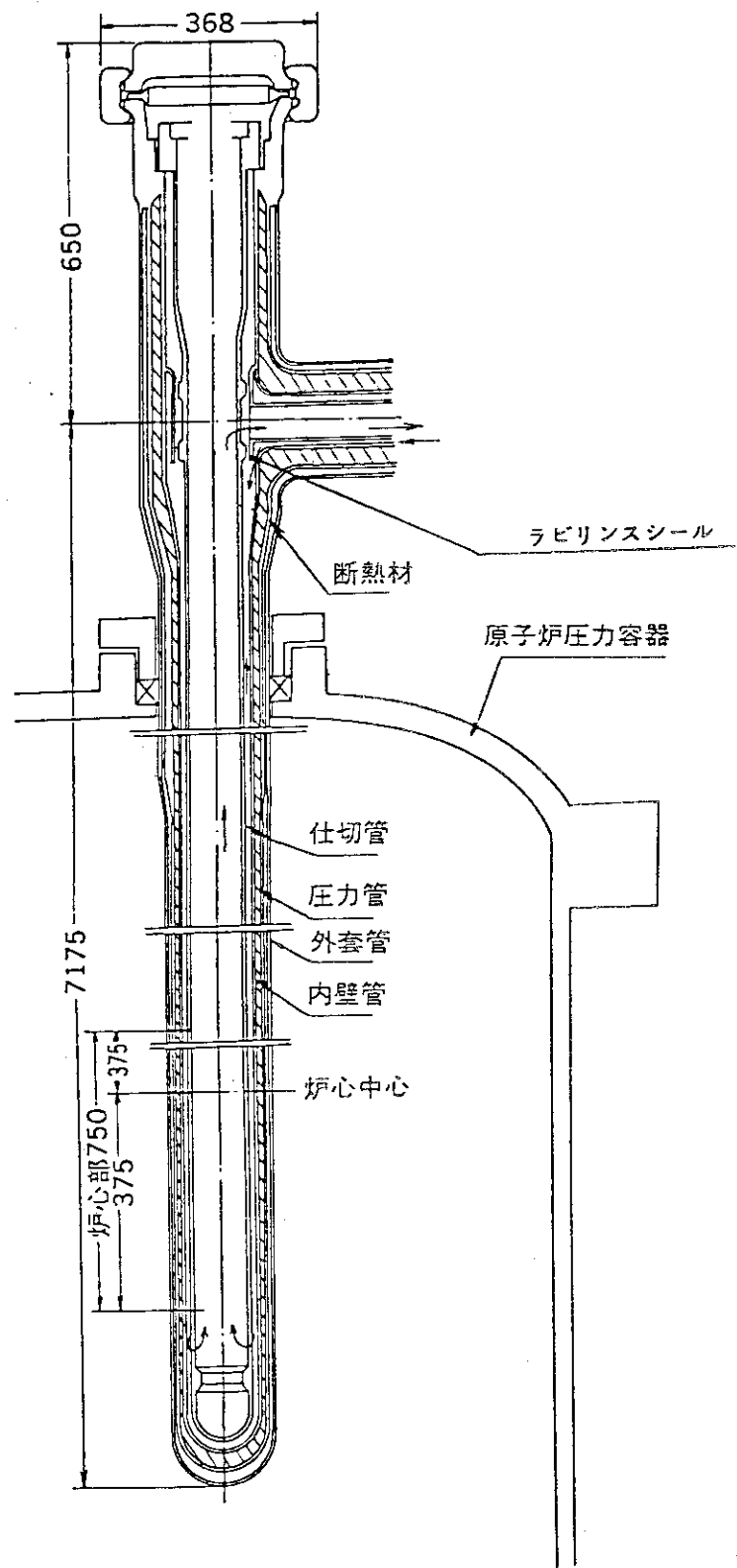


Fig. 6.7 Structure of in-pile tubes of OGL-1

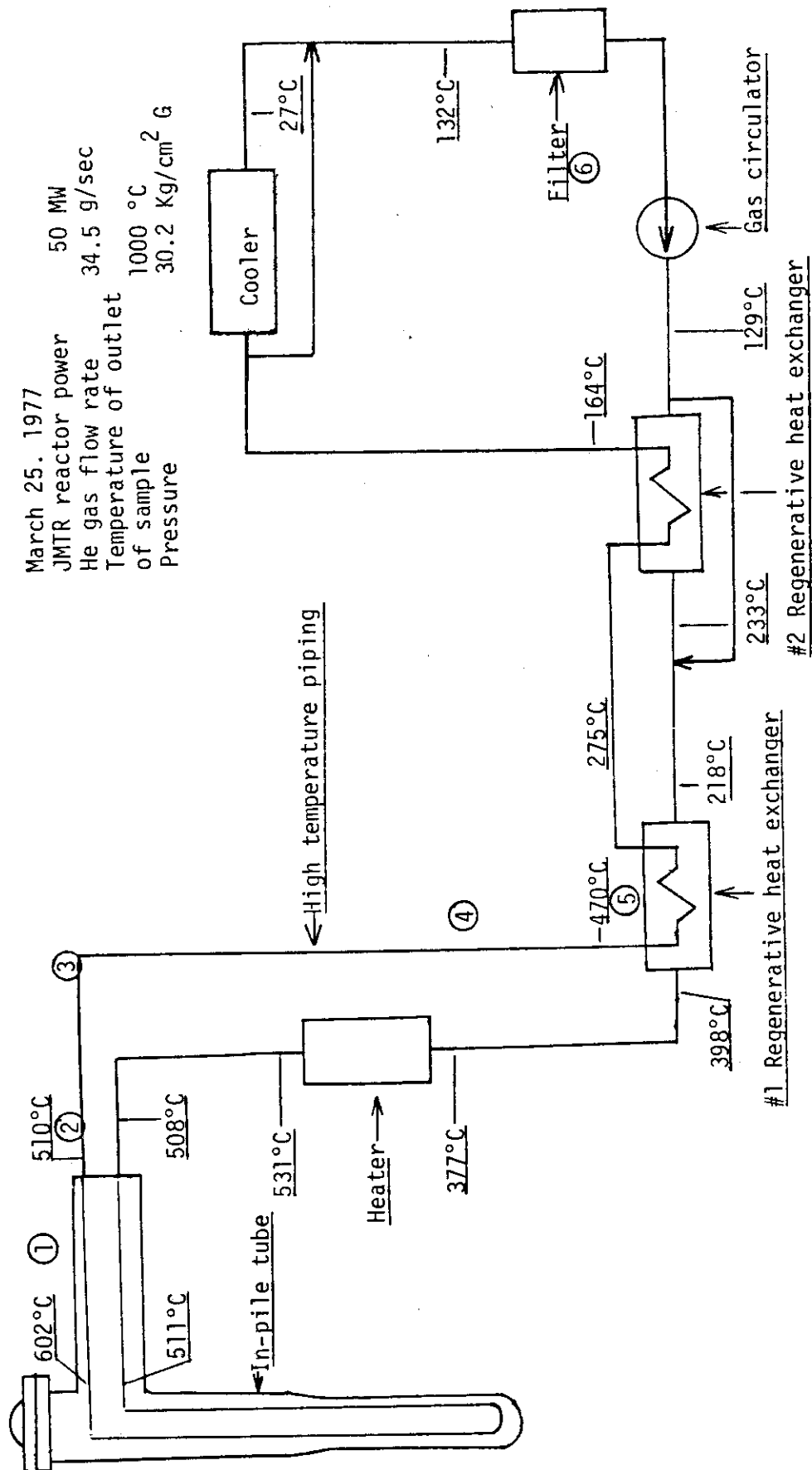


Fig. 6.8 Heat balance of OGL-1 gas loop in JMTR 39th cycle

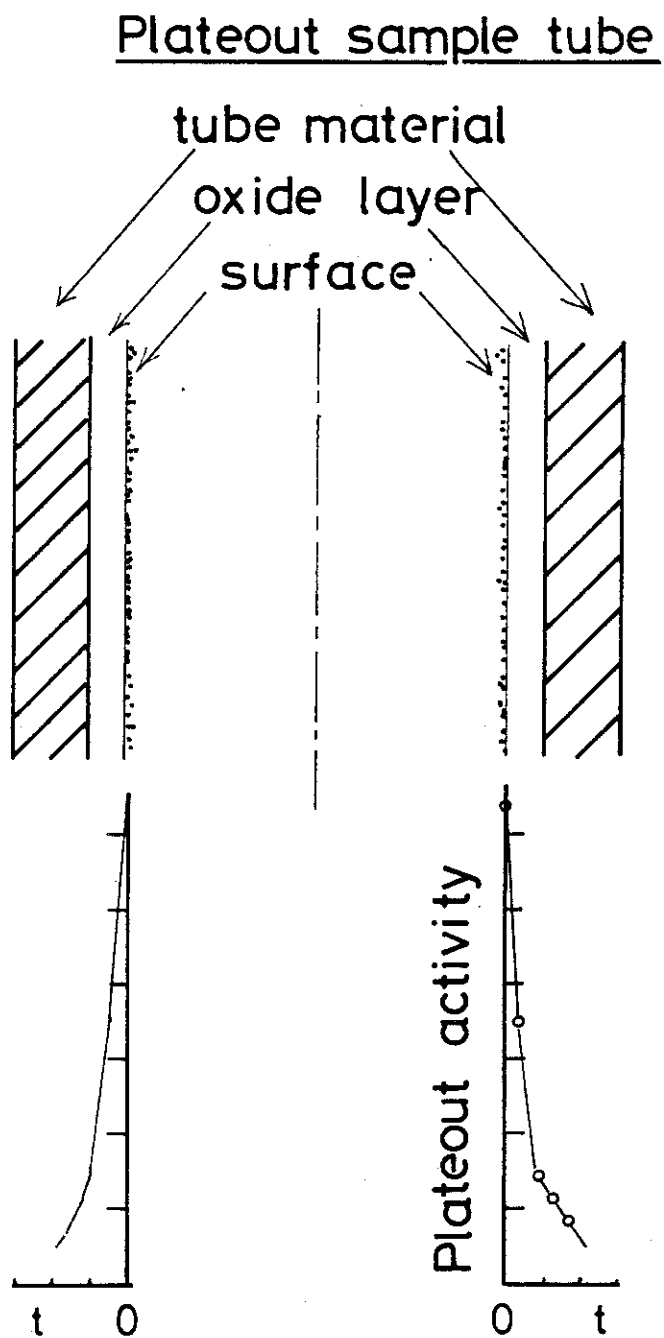
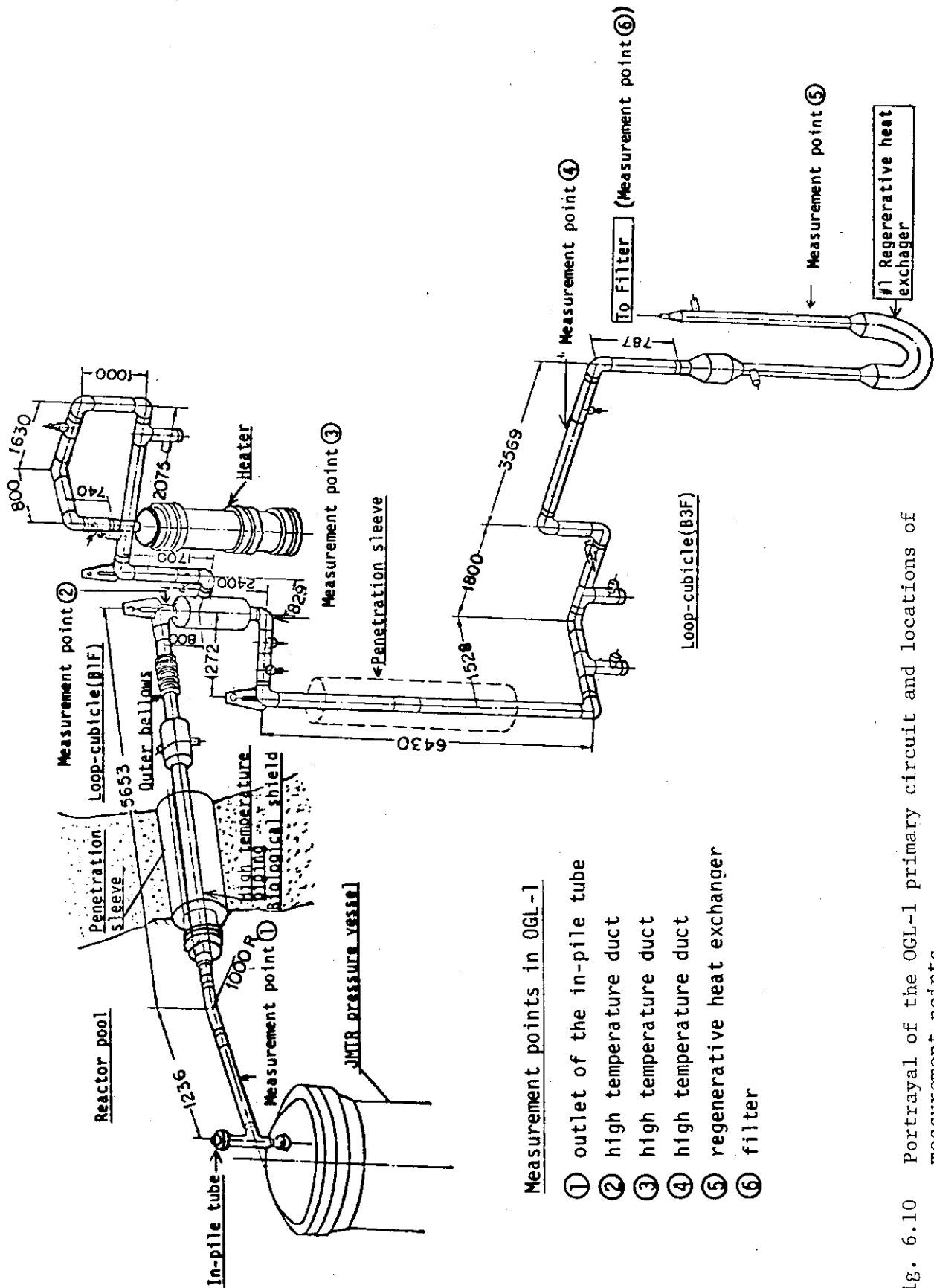


Fig. 6.9 Detail of plateout surface and profile of plateout activity



Measurement points in OGL-1

- ① outlet of the in-pile tube
- ② high temperature duct
- ③ high temperature duct
- ④ high temperature duct
- ⑤ regenerative heat exchanger
- ⑥ filter

Fig. 6.10 Portrayal of the OGL-1 primary circuit and locations of measurement points

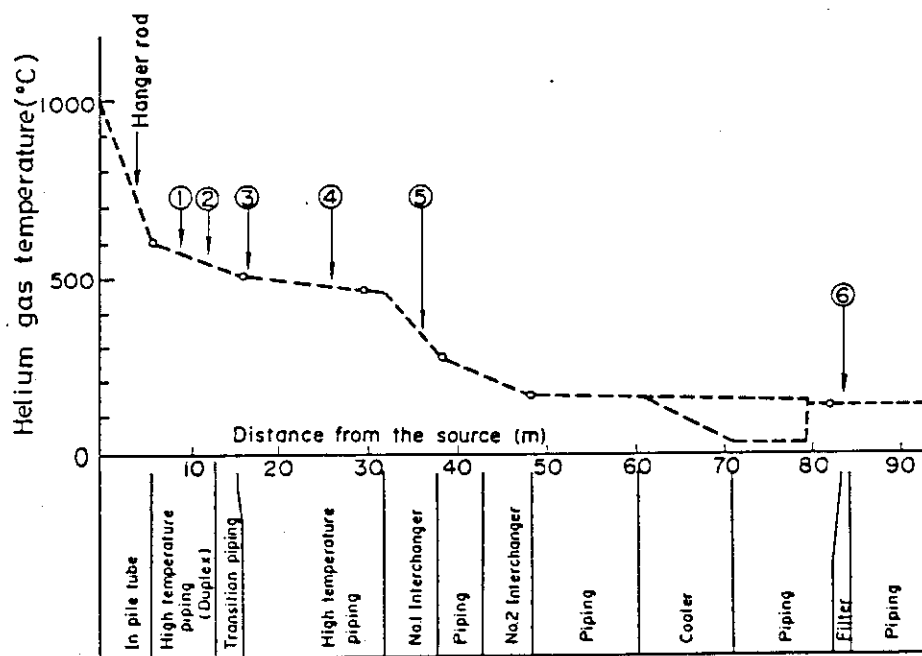


Fig. 6.11 Temperature of measurement points and distance between irradiation section and measurement point

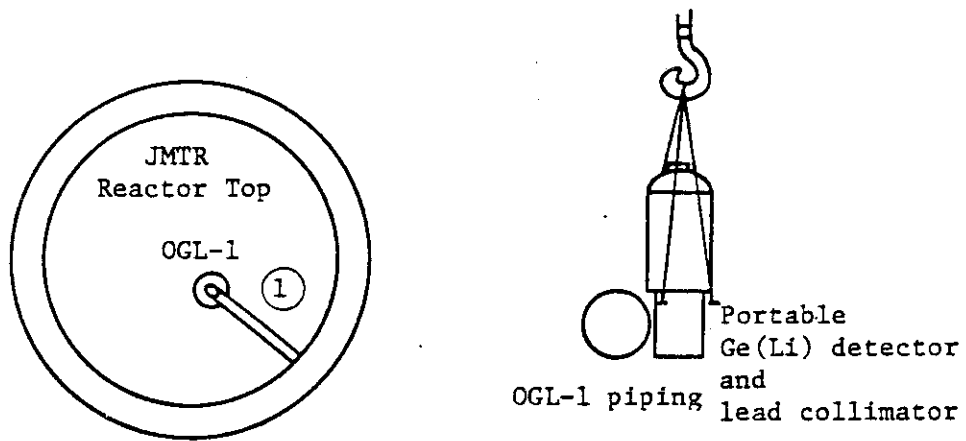


Fig. 6.12 Detector position at the measuring point 1

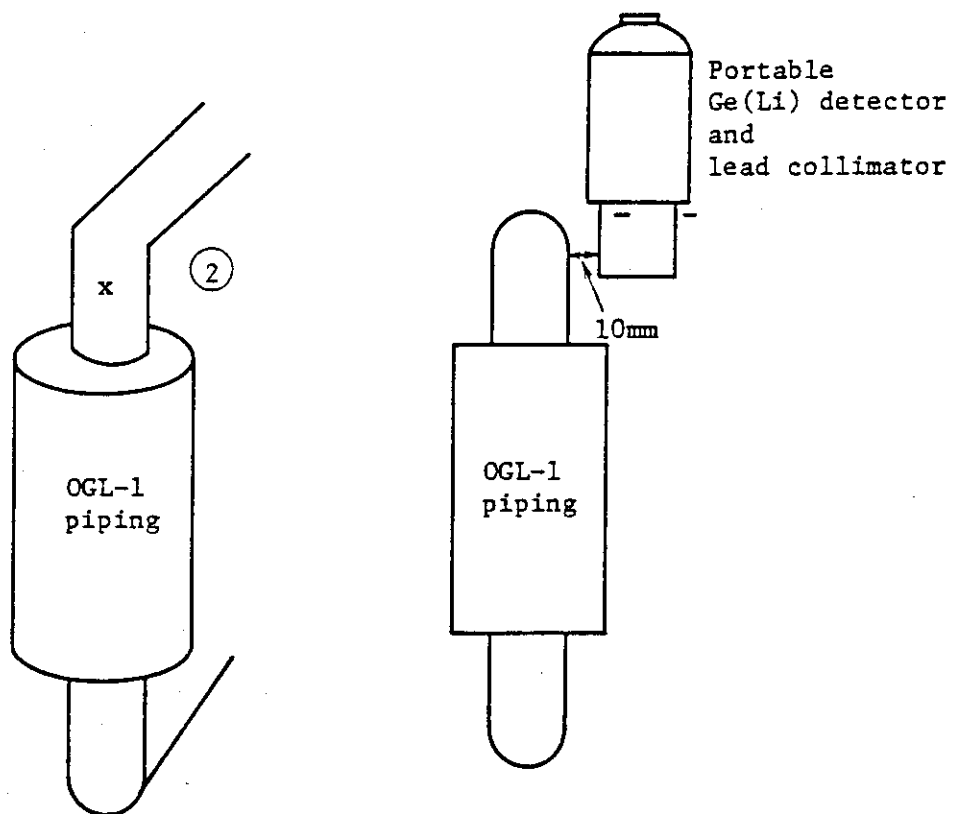


Fig. 6.13 Detector position at the measuring point 2

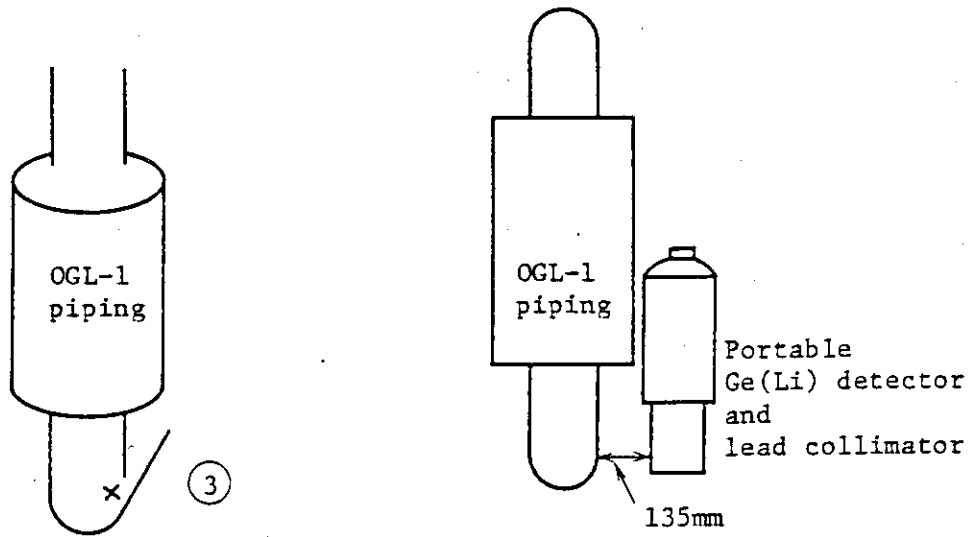


Fig. 6.14 Detector position at the measuring point 3

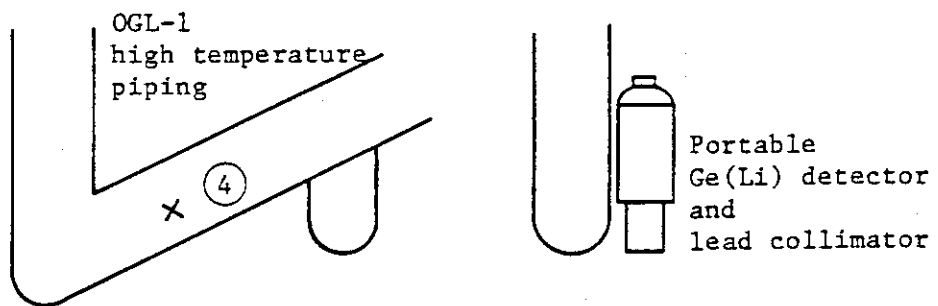


Fig. 6.15 Detector position at the measuring point 4

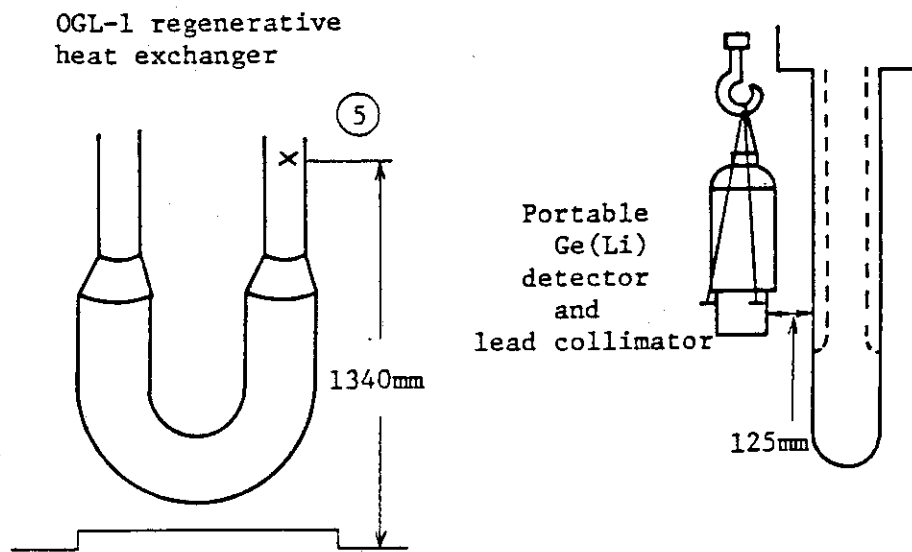


Fig. 6.16 Detector position at the measuring point 5

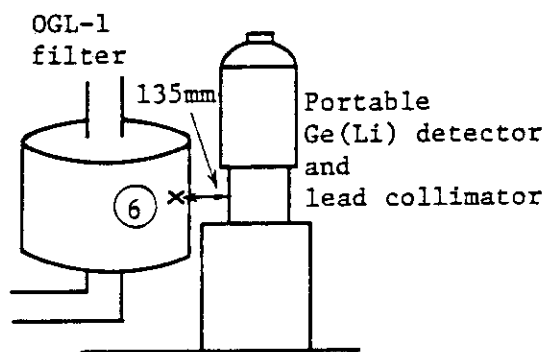


Fig. 6.17 Detector position at the measuring point 6

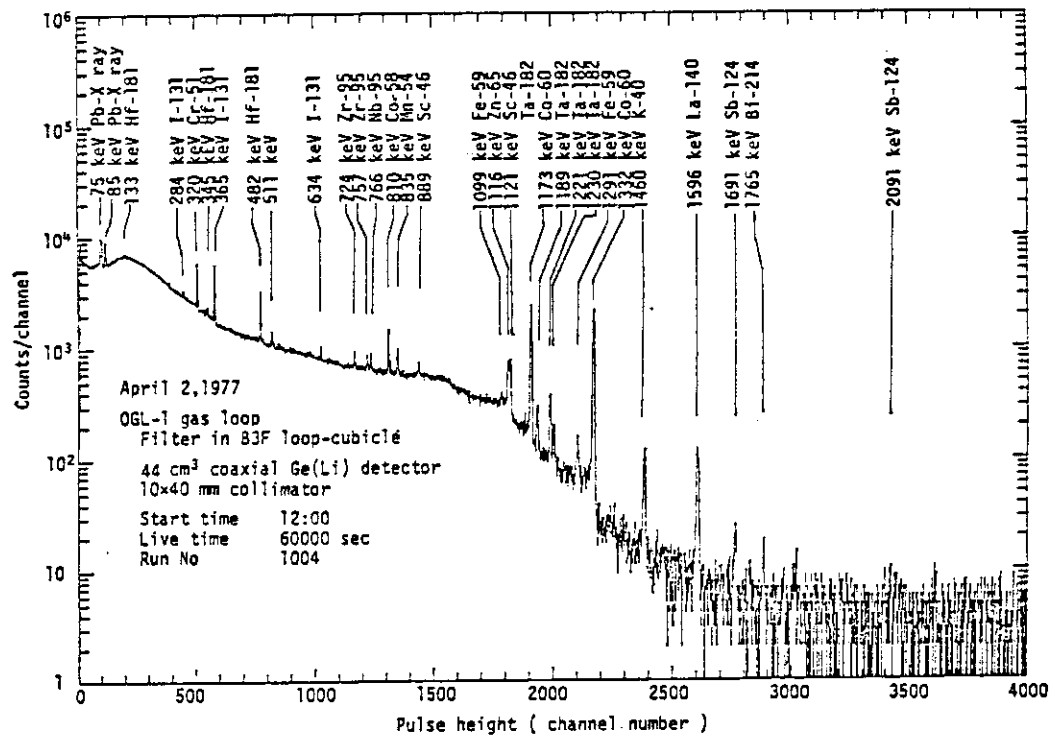


Fig. 6.18 Gamma-ray pulse height distribution measured at the OGL-1 filter in the first irradiation cycle

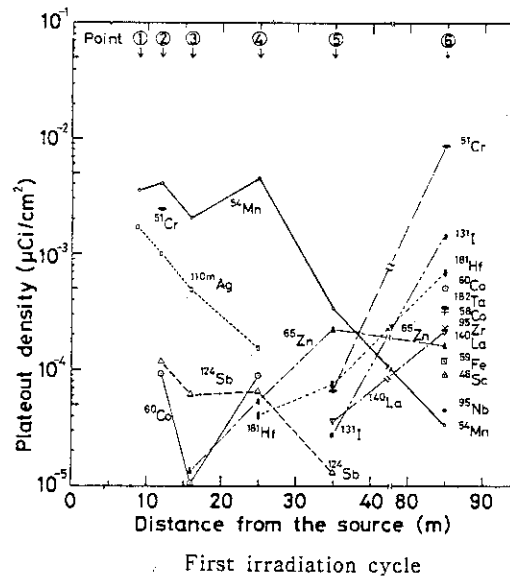


Fig. 6.19 Distributions of plateout densities measured at the OGL-1 primary system

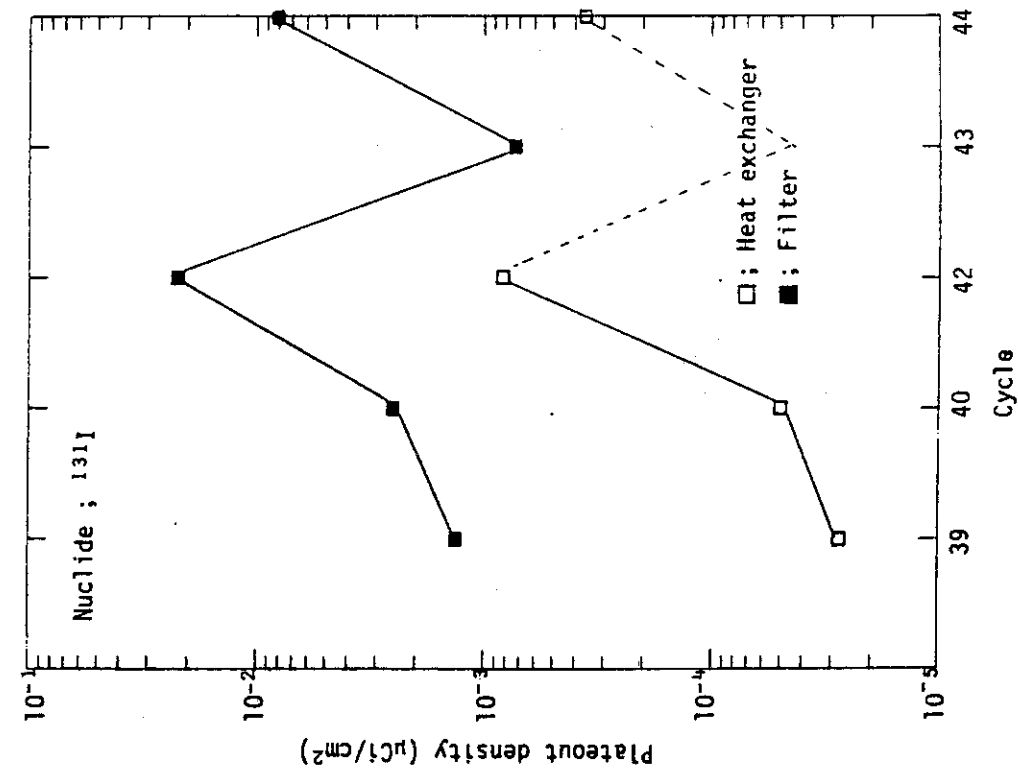


Fig. 6.21 Plateout density of I-131 measured at OGL-1 Heat exchanger and Filter as functions of JMTR operating cycle

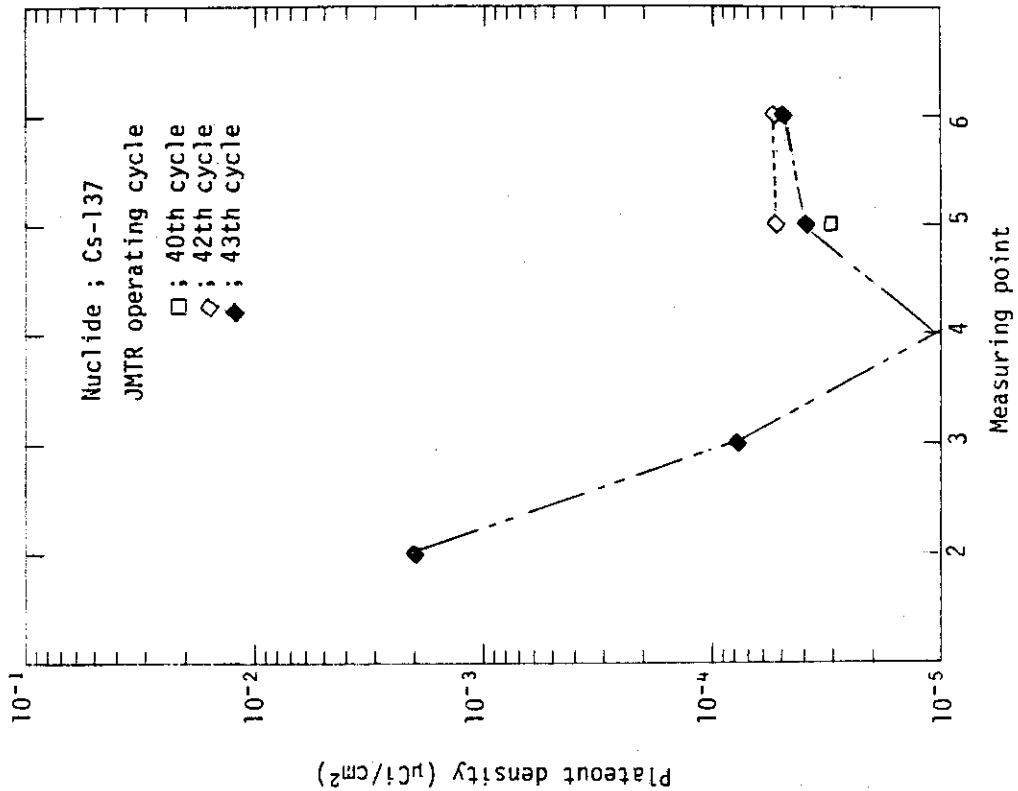


Fig. 6.20 Distributions of plateout densities of Cs-137 measured at OGL-1 primary system in JMTR 40th, 42th and 43th cycle

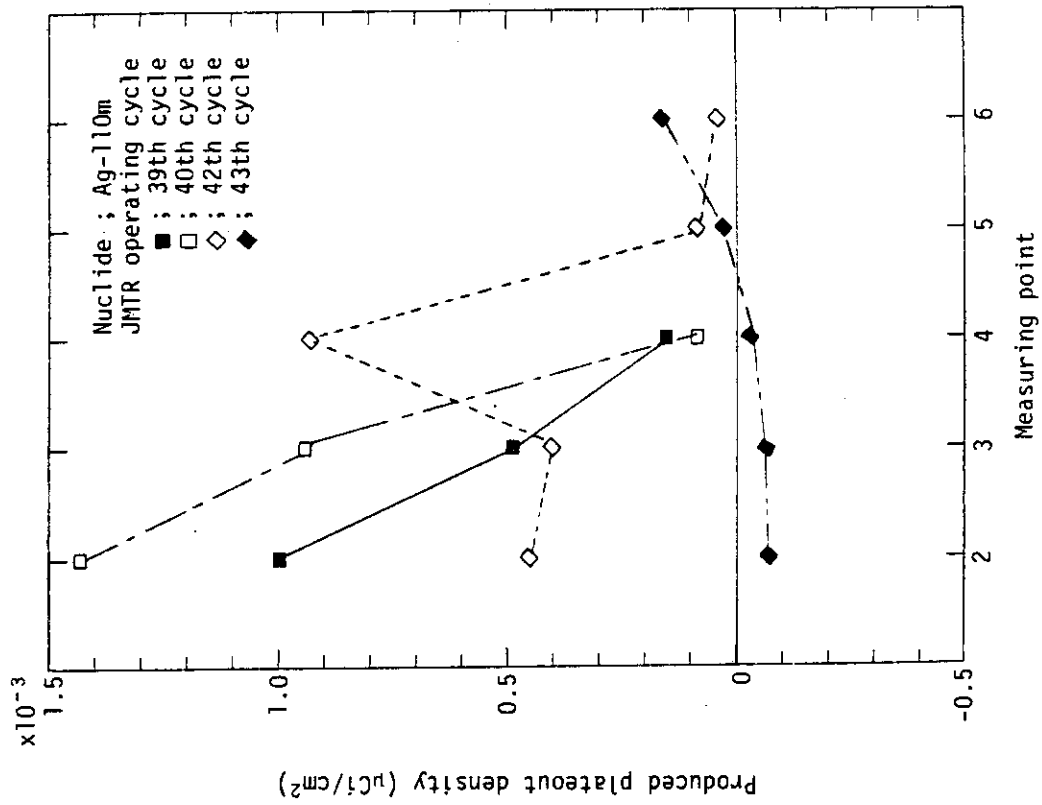


Fig. 6.23 Distributions of produced plateau densities of Ag-110m measured at OGL-1 primary system in JMTR 39th, 40th, 42th and 43th cycle

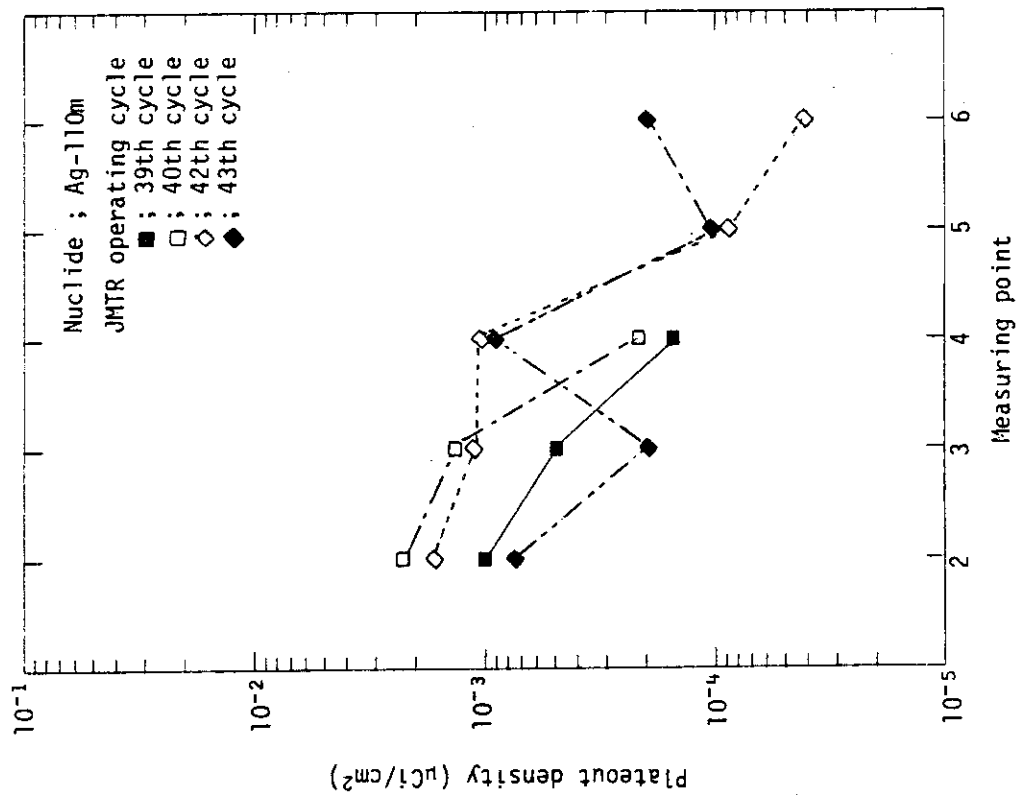
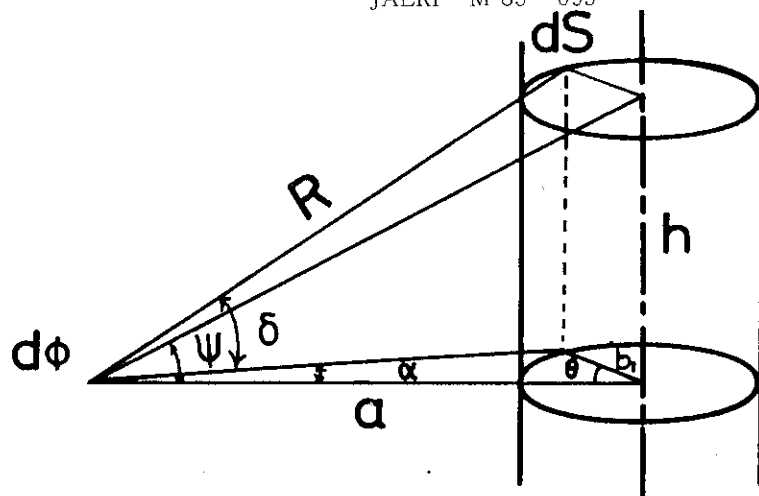


Fig. 6.22 Distributions of plateau densities of Ag-110m measured at OGL-1 primary system in JMTR 39th, 40th, 42th, 43th cycle



$$d\phi = \frac{S_A dS}{4\pi R^2} \quad ; \quad dS = b_1 d\theta dh, \quad dh = \frac{a d\psi}{\cos^2 \psi}$$

$$d\phi = \frac{S_A \cdot a \cdot b_1 d\theta \cdot d\psi}{4\pi R^2 \cos^2 \psi} = F(\theta, \psi) d\theta d\psi$$

$$R = \sqrt{a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2 + a^2 \tan^2 \psi}$$

$$F(\theta, \psi) = \frac{S_A \cdot a \cdot b_1}{4\pi (a^2 - 2ab_1 \cos \theta + b_1^2 + a^2 \tan^2 \psi) \cos^2 \psi}$$

Fig. 6.24 Derivation of gamma-ray flux due to unit surface activity on inner surface of cylinder

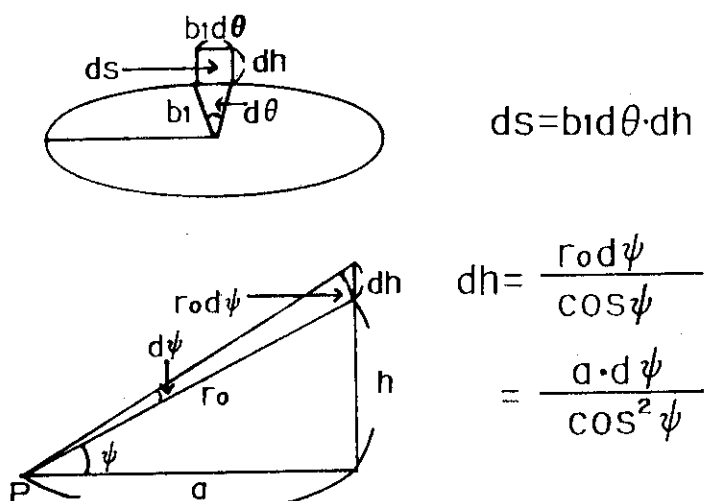
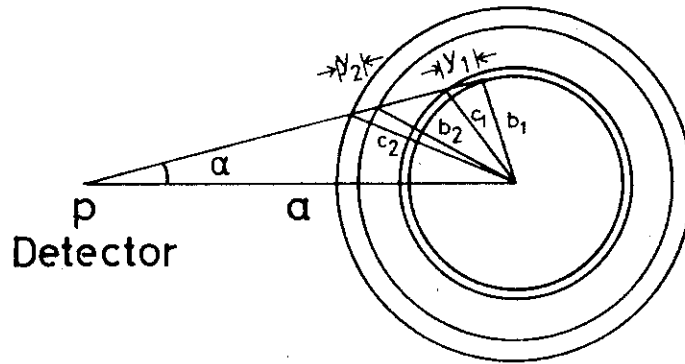


Fig. 6.25 Details of modelling



$$Y_1 = \frac{\sqrt{c_1^2 - a^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{b_1^2 - a^2 \sin^2 \alpha}}{\cos \delta}$$

$$Y_2 = \frac{\sqrt{c_2^2 - a^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{b_2^2 - a^2 \sin^2 \alpha}}{\cos \delta}$$

$$A_b = \text{EXP} \left(- \sum_{i=1}^n \mu_i Y_i \right)$$

Fig. 6.26 Derivation of absorption factor for double concentric cylinder

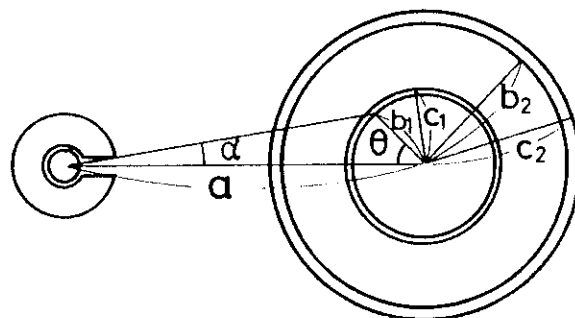
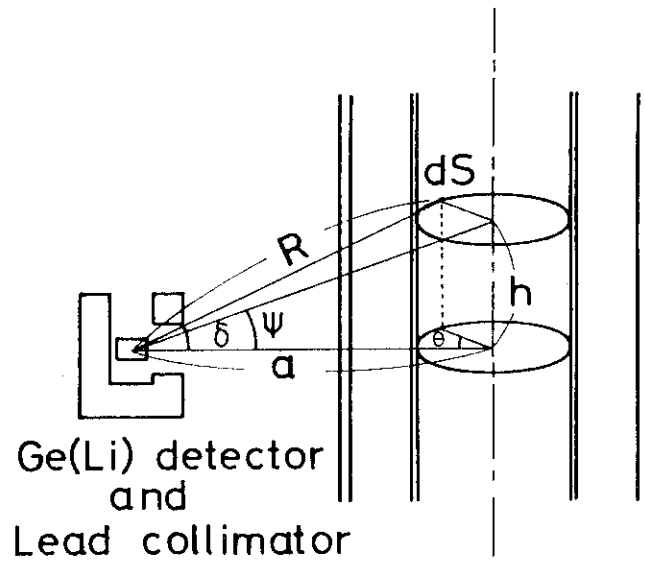


Fig. 6.27 A geometry with pipings and a Ge(Li) detector with a lead collimator

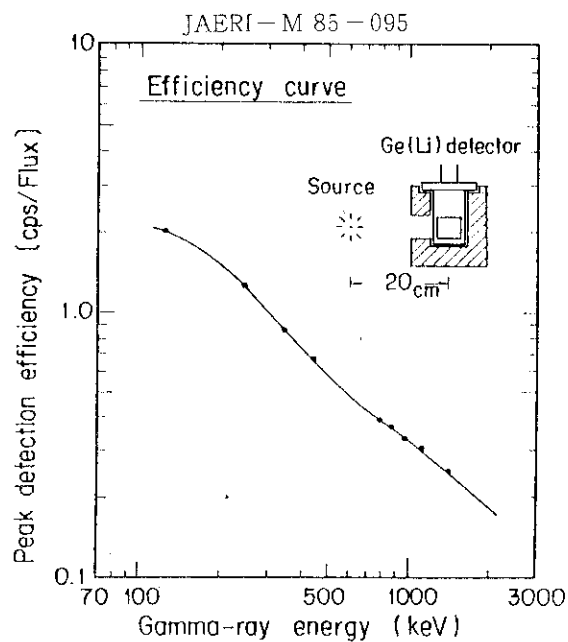


Fig. 6.28 Collimator characteristic of horizontal direction

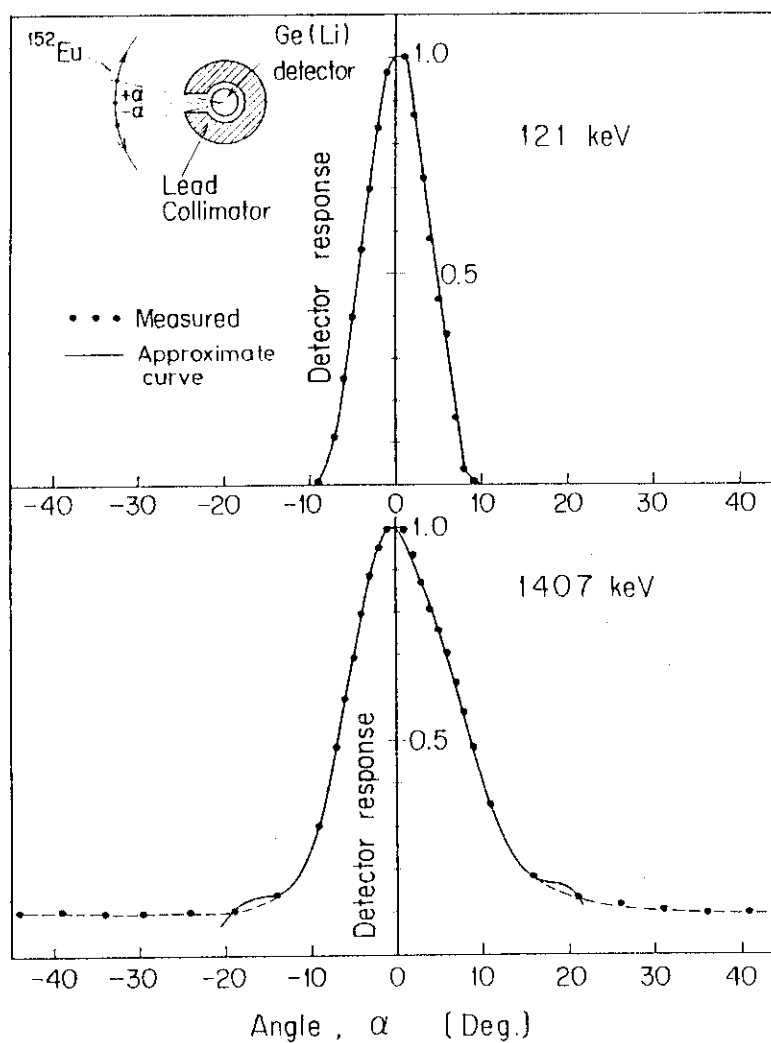


Fig. 6.29 Peak detection efficiency of the Ge(Li) detector with lead collimator

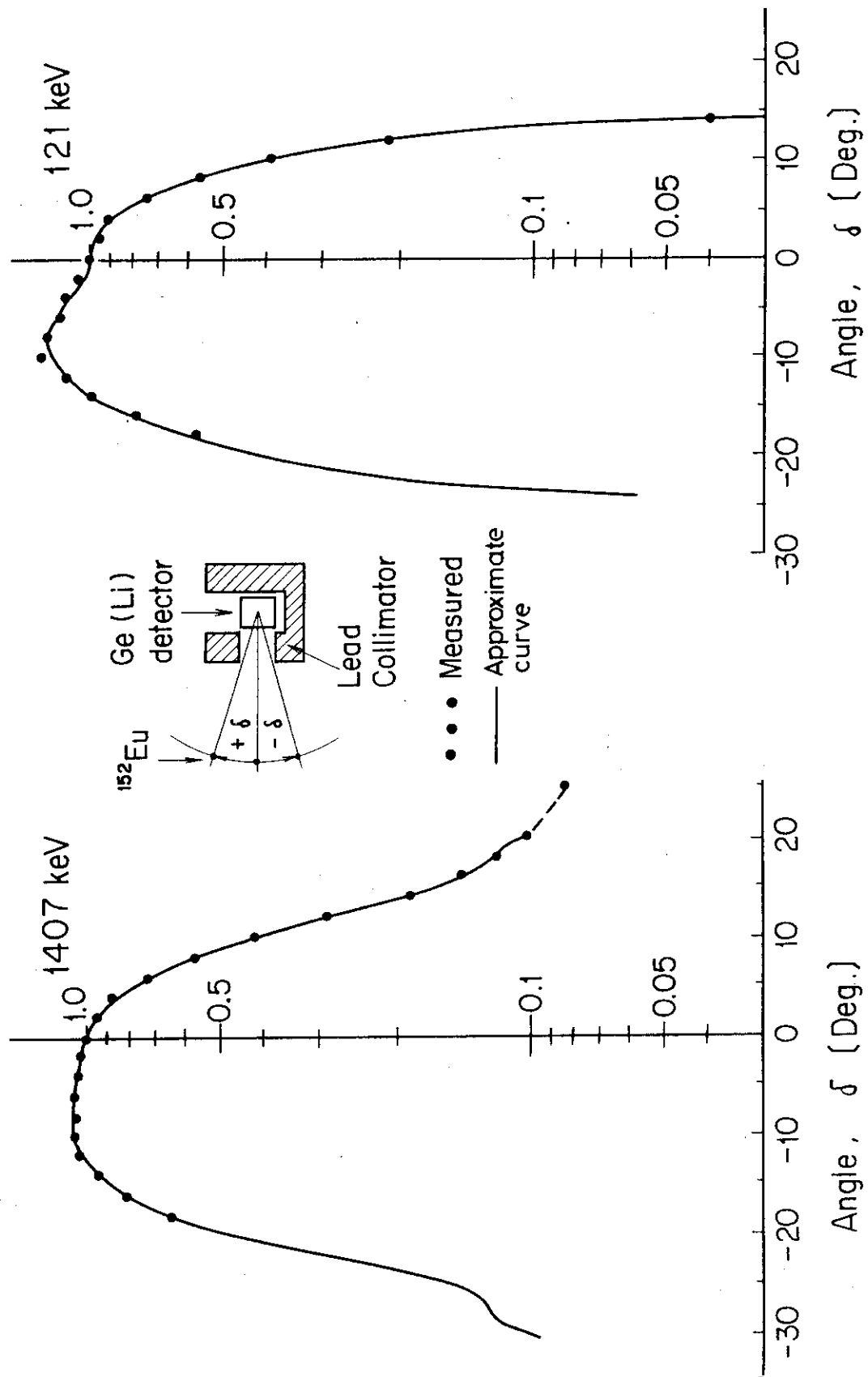


Fig. 6.30 Collimator characteristic of vertical direction

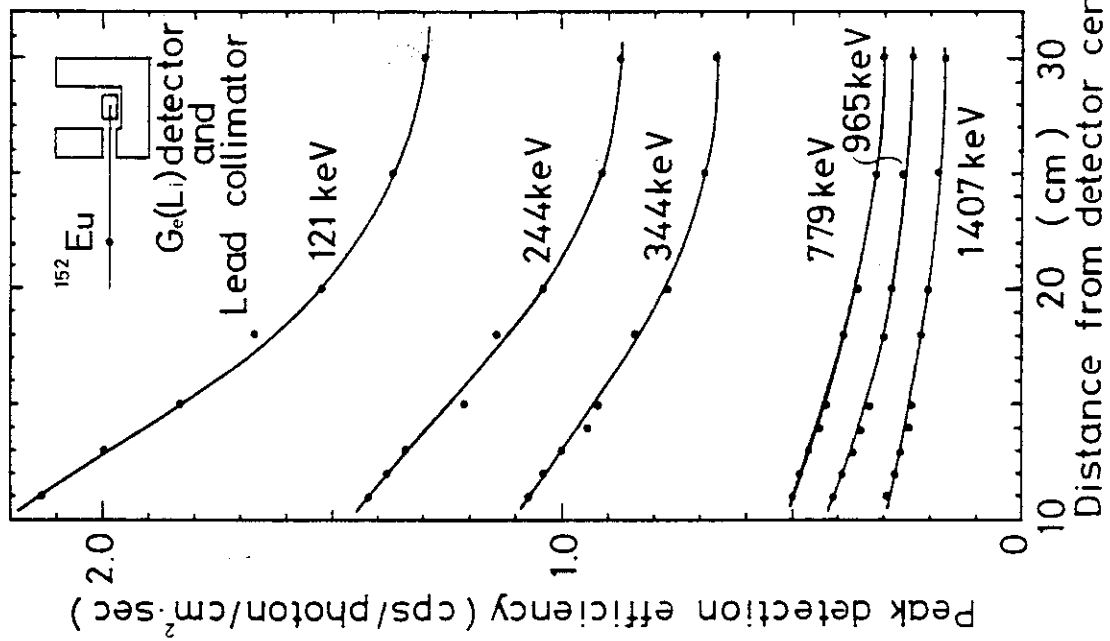


Fig. 6.31 Detection efficiency vs. distance from detector center to source position

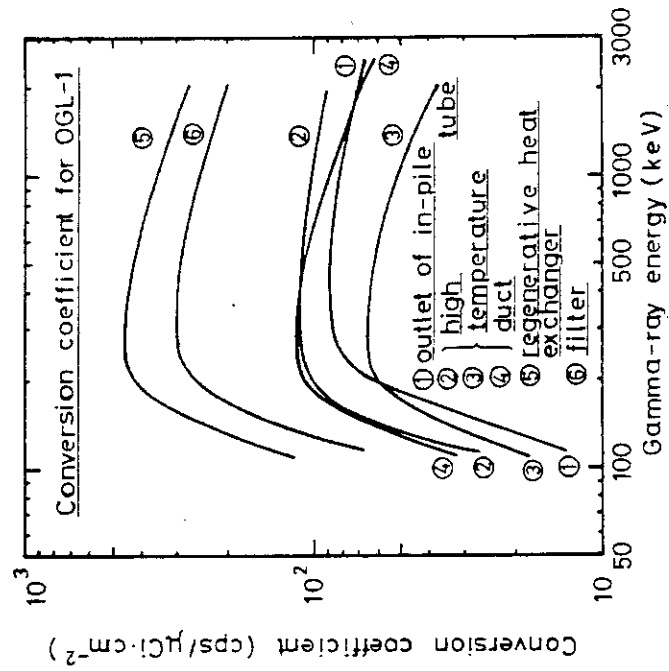


Fig. 6.32 Fission product plateau conversion coefficient for various measurement points in OGL-1

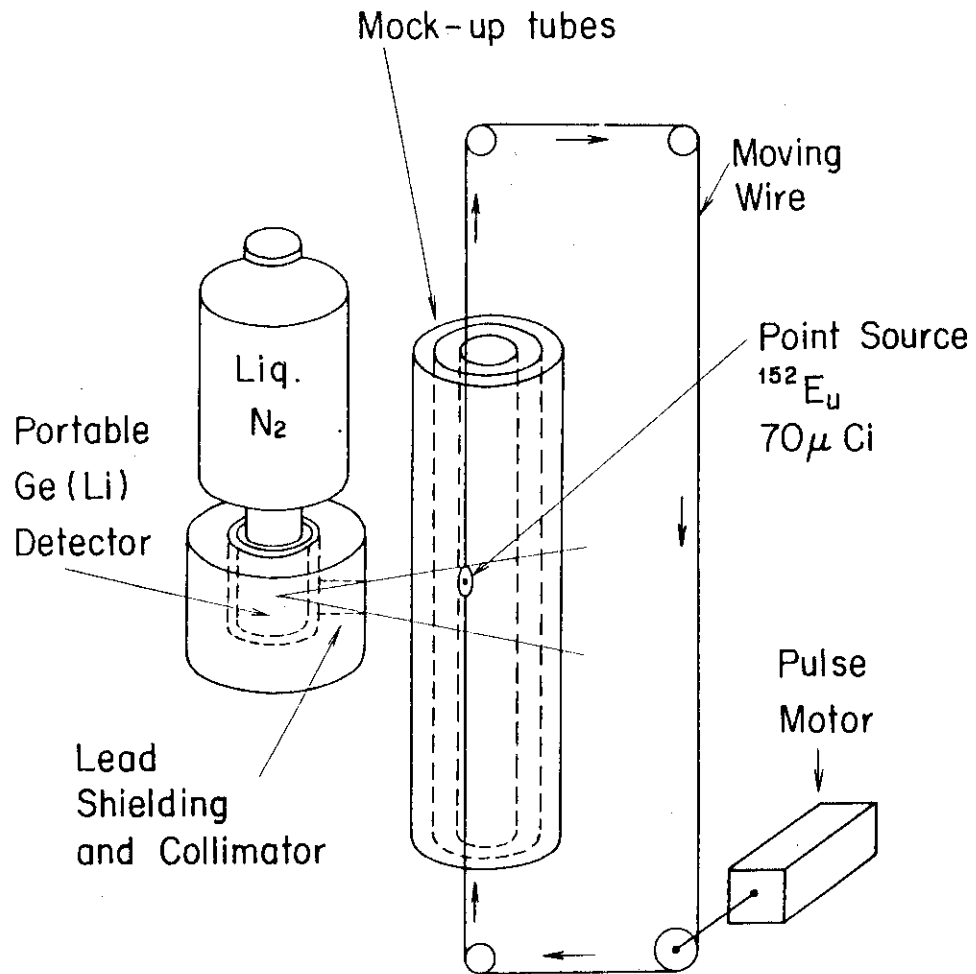


Fig. 6.33 Plateout mock-up apparatus

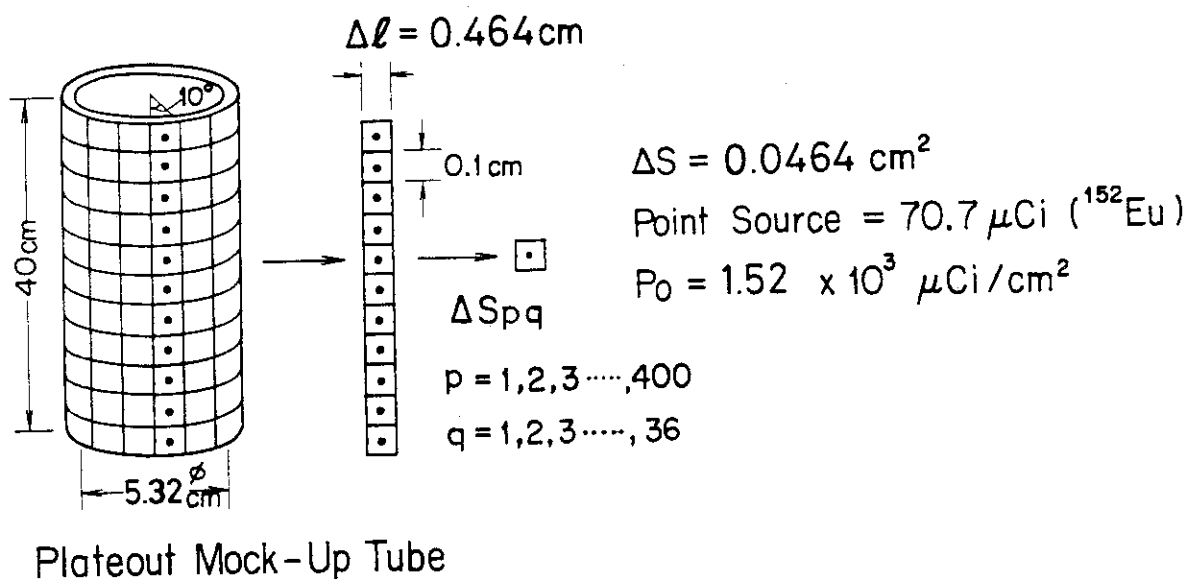


Fig. 6.34 Microscopic view of pseudo-plateout source in the mock-up experiment

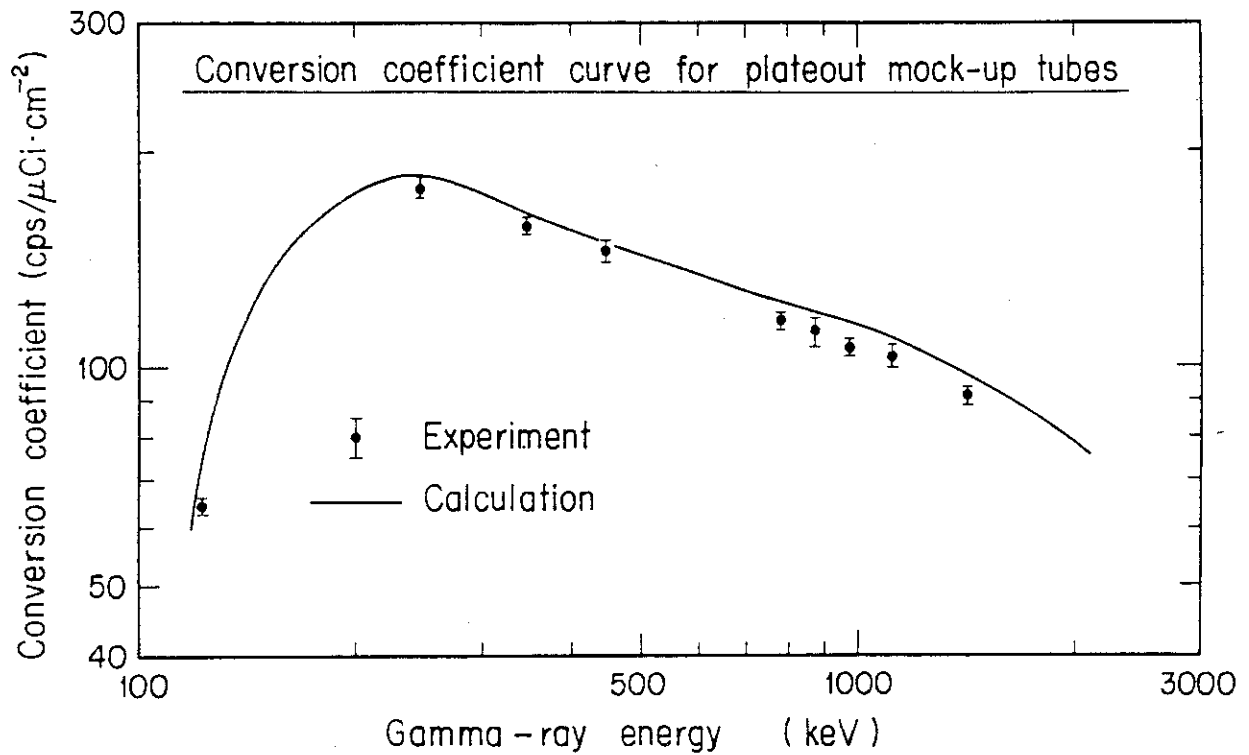


Fig. 6.35 Comparison with the plateout conversion coefficients between the experimental value and the calculated value for the plateout mock-up tubes

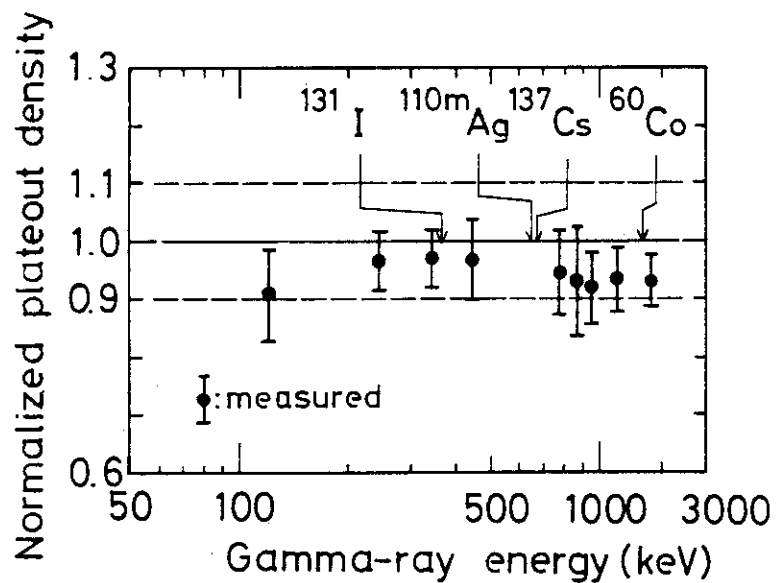


Fig. 6.36 A result of verification experiment for the non-destructive measuring method of FP-plateout

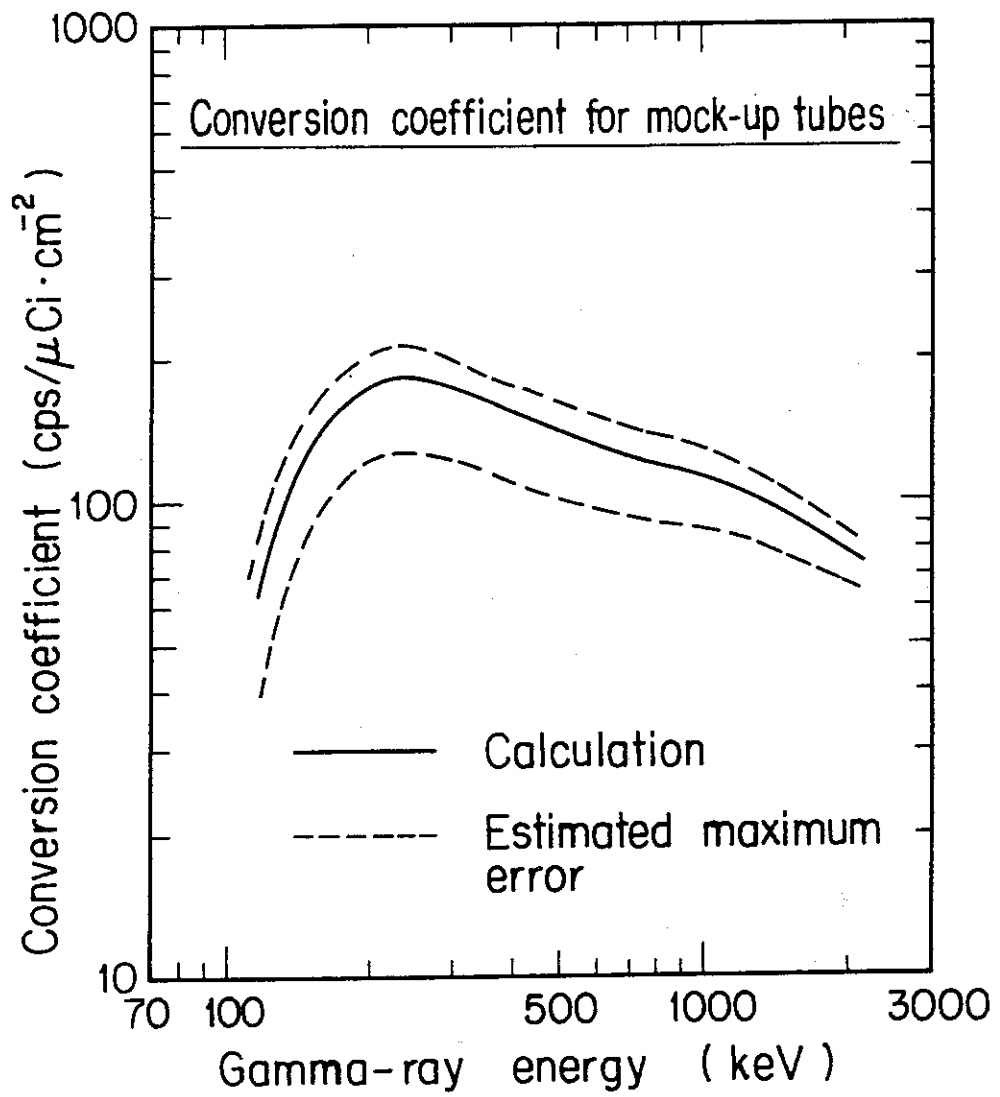


Fig. 6.37 Conversion coefficient for the plateout mock-up tubes, and the estimated maximum error

7. 結 論

半導体放射線検出器の開発と応用に関する研究の一環として、可搬型 Ge ガンマ線検出器を用いた in-situ 測定技術の研究開発を行なって来た。研究の第 1 段階においては、種々の測定現場に持ち出すことが可能でしかも安定に動作する可搬型 Ge(Li) 検出器の試作を行ない、その性能特性を調べた。次に、このような可搬型 Ge 検出器を用いた in-situ 測定では、大量のスペクトルデータの解析および記憶など迅速な処理が現場において必要となる。これに対処するために、最近目覚ましく普及しているパーソナルコンピュータを用いたスペクトル解析システムを作り上げた。研究の最終目的は、in-situ 測定したガンマ線スペクトルから、高い精度で放射能強度に関する定量値を求める手法の確立である。本研究では、環境ガンマ線および 1 次系配管内面に沈着した FP 核種に起因するガンマ線を対象として、試作した可搬型 Ge(Li) 検出器を用いた in-situ 測定により、各々の線源の放射能強度を定量するための実験を行なった。そして、検出器の較正方法、in-situ 測定技術および定量に伴う誤差解析などについて検討をおこなった。

以下に本研究において得られた知見をまとめる。

- (1) in-situ 測定用の可搬型 Ge(Li) 検出器の試作改良を重た経験から、可搬型とするためには、Ge 単結晶体の保持機構、伝熱棒の材質、高圧電源や信号のためのリード線の材質、および真空維持機構など細部についての考慮が必要であることが分かった。野外における環境ガンマ線測定では、1 点の測定あたり 2 時間以内に終了させることが望ましく、Ge 検出器の検出効率として 10 % (相対効率) 以上のものを用いる必要がある。また、エネルギー分解能としては、2.5 keV 以上であれば十分である。液体窒素の消費割合は、1 リットル/日程度であるならば、補給および保守上の問題はない。Ge 検出器および固定用の三脚、液体窒素 7.5 リットルなどの全重量は約 20 kg であり、さらに軽量化が必要である。
- (2) in-situ 測定したガンマ線スペクトルを現場において直ちに解析するためにはパーソナルコンピュータを用いたスペクトル解析システムが有効である。作成したプログラムシステムでは、スペクトル中のピーク計数率の決定および厳密な誤差分析のために、行列演算による最小二乗法計算をマシン語で処理している。これによって演算時間を著しく短縮できる。また、パーソナルコンピュータのグラフィック機能およびマン・マシンコミュニケーション性能を利用することで、従来にない便利で機動性に富んだスペクトル解析システムを作り上げることができた。
- (3) 試作した可搬型 Ge(Li) 検出器を用いて in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルから土壌中の放射能濃度の定量値を求める方法として、HASL 方式は適用可能である。この場合、土壌中の核種濃度分布を均一、深さ方向に指数関数、或は表面分布と仮定して定量式を導出している。実際の測定点における分布を調べると、地表付近の浅い部分では、このような理想的分布状態とは異なったものである。しかしながら、in-situ 測定によって求めた土壌中放射能濃度の値を土壌試料分析値と比較すると、深さ 10 cm からほぼ均一となっている濃度とよく一致している。HASL 方式の定量方法では、土壌中の濃度分布に関するデータが必要不

可欠とされるが、それほど厳密に分布関数が一致していなくても、かなり良い定量値を得られることが分かった。

- (4) 可搬型 Ge 検出器によって in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルから線量率を定量する方法として、HASL 方式とスペクトル・線量変換関数法が適用可能である。HASL 方式によれば、土壤中放射能 (^{40}K , ^{238}U 系列, ^{232}Th 系列および ^{137}Cs) の核種毎に線量率寄与が定量できる。一方、Ge 検出器に対するスペクトル・線量変換関数法は、本研究において初めて実施されたものであり、Ge 検出器に入射したガンマ線の全線量を求めることができる。同一の環境ガンマ線スペクトルに対して両方法を適用した場合、現在ではスペクトル・線量変換関数法により求めた線量率の値が HASL 方式から求めた値より系統的に 15 % 程度大きい値となることが分かった。この原因の一つとして、スペクトル・線量変換関数法における宇宙線寄与分差し引きの問題、Ge 検出器の入射角度依存性補正の問題などがあるものと考えられる。しかし、両方法の一致が今後の研究により実現するならば、次のことが可能となる。すなわち、同一の環境ガンマ線スペクトルに対して両方法を適用し、スペクトル・線量変換関数法により求めた線量率値から HASL 法による線量率値を差し引くことにより、分布の分からない放射性 Plumes などの線量率寄与を定量することが可能となる。これは、環境放射線モニタリングの課題である原子力施設線量率寄与分の高精度分離計測の有力な方法の一つとなりうるものである。

- (5) 1 次系配管沈着 FP 量の定量方法として、可搬型 Ge 検出器を用いた in-situ 測定法は極めて有効である。従来の方法は、1 次系配管の一部を取り外して試料成形し、分析するものである。これに対して in-situ 測定による方法は非破壊方式であるため、既設の装置の 1 次系配管を直接測定することが可能であり、FP 沈着分布の貴重なデータを容易に蓄積することができる。これによって、未だ始まったばかりのわが国の FP 沈着研究が飛躍的に進展するものと期待できる。

また、今後このような in-situ 測定方法による放射能定量技術の原子力施設における用途は、さらに広がって行くと考えられる。

謝 辞

可搬型 Ge 検出器を用いた in-situ 定量測定法の研究を始めたのは、筆者が属する原子炉計測研究室の阪井英次氏（当時の室長）の御指導によるものである。Ge(Li) 検出器の製作および校正方法、スペクトル解析の基礎的手法などは、同じ研究室の片桐政樹氏の持つ技術から吸収して得たものである。さらに、ガンマ線スペクトル解析に用いた非線形最小自乗法プログラムの作成にあたり研究室の先輩である五藤博氏に御指導を頂いた。ここに記して感謝の意を表します。

また、1 次系沈着 FP 量の非破壊定量測定法開発の仕事は、現室長の若山直昭氏が筆者らに勧めて下さったものであり、仕事の遂行にあたって適切な御指導と変らぬ励ましを頂きました。心より感謝致します。

可欠とされるが、それほど厳密に分布関数が一致していなくても、かなり良い定量値を得られることが分かった。

- (4) 可搬型 Ge 検出器によって in-situ 測定した環境ガンマ線スペクトルから線量率を定量する方法として、HASL 方式とスペクトル・線量変換関数法が適用可能である。HASL 方式によれば、土壤中放射能 (^{40}K , ^{238}U 系列, ^{232}Th 系列および ^{137}Cs) の核種毎に線量率寄与が定量できる。一方、Ge 検出器に対するスペクトル・線量変換関数法は、本研究において初めて実施されたものであり、Ge 検出器に入射したガンマ線の全線量を求めることができる。同一の環境ガンマ線スペクトルに対して両方法を適用した場合、現在ではスペクトル・線量変換関数法により求めた線量率の値が HASL 方式から求めた値より系統的に 15 % 程度大きい値となることが分かった。この原因の一つとして、スペクトル・線量変換関数法における宇宙線寄与分差し引きの問題、Ge 検出器の入射角度依存性補正の問題などがあるものと考えられる。しかし、両方法の一致が今後の研究により実現するならば、次のことが可能となる。すなわち、同一の環境ガンマ線スペクトルに対して両方法を適用し、スペクトル・線量変換関数法により求めた線量率値から HASL 法による線量率値を差し引くことにより、分布の分からない放射性 Plumes などの線量率寄与を定量することが可能となる。これは、環境放射線モニタリングの課題である原子力施設線量率寄与分の高精度分離計測の有力な方法の一つとなりうるものである。

- (5) 1 次系配管沈着 FP 量の定量方法として、可搬型 Ge 検出器を用いた in-situ 測定法は極めて有効である。従来の方法は、1 次系配管の一部を取り外して試料成形し、分析するものである。これに対して in-situ 測定による方法は非破壊方式であるため、既設の装置の 1 次系配管を直接測定することが可能であり、FP 沈着分布の貴重なデータを容易に蓄積することができる。これによって、未だ始まったばかりのわが国の FP 沈着研究が飛躍的に進展するものと期待できる。

また、今後このような in-situ 測定方法による放射能定量技術の原子力施設における用途は、さらに広がって行くと考えられる。

謝 辞

可搬型 Ge 検出器を用いた in-situ 定量測定法の研究を始めたのは、筆者が属する原子炉計測研究室の阪井英次氏（当時の室長）の御指導によるものである。Ge(Li) 検出器の製作および校正方法、スペクトル解析の基礎的手法などは、同じ研究室の片桐政樹氏の持つ技術から吸収して得たものである。さらに、ガンマ線スペクトル解析に用いた非線形最小自乗法プログラムの作成にあたり研究室の先輩である五藤博氏に御指導を頂いた。ここに記して感謝の意を表します。

また、1 次系沈着 FP 量の非破壊定量測定法開発の仕事は、現室長の若山直昭氏が筆者らに勧めて下さったものであり、仕事の遂行にあたって適切な御指導と変らぬ励ましを頂きました。心より感謝致します。

Appendix：線形・非線形最小自乗法に用いる行列演算マシン語 サブルーチン (PC-9801・8087付き用)

A-1. は じ め に

測定したデータの解析を行なう場合、最小自乗法を用いることが極めて多い。そして、その誤差を厳密に扱おうとする場合には、必ず誤差の伝播法則や共分散行列についての知識が要求される。このとき問題となるのが行列演算である。大型計算機では、般用の行列演算プログラムパッケージが用意されているので問題はない。しかし、小型計算機やマイクロコンピュータでは十分なサポートがなされている状況にはない。最近目覚ましく普及したマイコン内蔵の“Desk Top Computer”(通称パーソナルコンピュータ；パソコン)は確かに極めて便利に出ており、かなり複雑なデータ処理も簡単にやってのけてしまう。しかもGraphic表示機能については、大型計算機も及ばない程高性能しかも手軽で便利と云った利点をもっている。したがって、一寸したデータ処理にこのパソコンは極めて便利に使える。しかしながら、先に述べたように共通のプログラム言語(例えばFORTRAN)による般用演算プログラムと云う点では、未だ統一的に評価されて普及しているものはない。

そこで、線形・非線形最小自乗法によるデータ解析で必要となる行列演算処理用サブルーチンプログラムを現在最も普及しているパーソナルコンピュータPC-9801(8087付)のマシン語で作成した。行列演算の方法については数多くの参考書が刊行されているが、本報告書では文献1)を主として参考にしてしている。作成したプログラムの特徴として、高速演算プロセッサ8087を駆使しているので、複雑な浮動小数点の行列演算が極めて高速で実行できる。また、どのサブルーチンもBASIC言語のCALL文によって起動することができ、数多くの引数の使用が容易であると共に計算全体を制御するメインプログラムは使い易いBASIC言語で書ける利点がある。BASICは逐次翻訳型プログラム言語(インタプリタ)で、複雑な繰返し演算などの実行には時間がかゝり過ると云う欠点がある。本プログラムでは、BASIC言語にとって不利な演算処理は8087を用いたマシン語プログラムが担当しており、使い易さと高速演算性能の両方を兼ね備えている。

作成したプログラムの設計条件および各サブルーチンの詳細について述べる。

A-2. マシン語サブルーチンの設計

A-2.1 引数の処理の仕方

BASIC言語でサブプログラムを起動する方法は、GOSUB文、USR関数およびCALL文等を使う方法のいずれかである。行列演算の場合、複数の配列変数の各要素を四則演算するのが主であり、BASIC言語のプログラムから行列演算用マシン語サブルーチンを起動する際には、これらの配列変数は何らかの方法で双方のプログラムから参照できる必要がある。サブルーチンに起動をかけるBASIC文で、変数の参照つまり引数をとることができ、しかも複数の引数をとることができるのは、CALL文だけである。このことから、作成したサブルーチンは全て、引数付きのCALL文によって起動される形式とした。BASICのCALL文はFORTRANのCALL文と殆ど同じ機能であるが、配列変数の引数の表し方に若干異なる点がある。

例えば、 m 行 ℓ 列の行列 A と ℓ 行 n 列の行列の積を m 行 n 列の行列 R に得るサブルーチンの場合、①FORTRANの書式と②N88-BASIC(86)の書式によるCALL文は各々次のようになる。

① CALL MTXMLT(A, B, R, M, L, N)

② CALL MTXMLT(A(0), B(0), R(0), M%, L%, N%)

N88(86)-BASICにおける引数の指定の場合、配列変数ではその最初の値、すなわち、 $A(0)$, $B(0)$, $R(0)$ を与えなければならない。これは、マシン語のサブルーチンに引数を渡すときに、実際の動きとして、引数である変数のメモリ上のアドレスのみが伝達され、変数の型についての情報は何も伝わらないため、このような指定をする必要がある。また、BASIC言語の場合、整数宣言をしない限り $I \sim N$ で始まる名前の変数でも整数ではないため、N88-BASIC(86)の整数型宣言文字 $\%$ を付けて、 $M\%$, $L\%$, $N\%$ のように書く。従って、マシン語サブルーチンを作成する際には、引数の型について矛盾のない様に気を付けなければならない。

作成した行列演算サブルーチンにおいて、まず最初に行なっているのがこの引数の処理である。N88-BASIC(86)のCALL文を実行すると引数として指定した変数のアドレステーブルのアドレスが次のように与えられる。すなわち、PC-9801の〔DS〕レジスタにはアドレステーブルのベースアドレス（つまり、セグメント値）が格納され、〔BX〕レジスタにはそのセグメント内のオフセットアドレスが格納されている²⁾。引数のアドレステーブルの構成を図2.1に示す²⁾。図から明らかなように、〔DS〕および〔BX〕レジスタで指定されるアドレスは、最後尾の引数のベースアドレスおよびオフセットアドレスである。このアドレスを基にして、各引数の処理を次の様に実行している。配列変数については、各サブルーチンが共通に参照できる変数領域に、オフセットアドレス、ベースアドレスの順に格納する。配列以外の引数については、その変数の値を共通変数領域に再格納する。このような処理を最後尾の引数から順々に溯って最初の引数まで実施している。引数の処理の部分の詳細フロー図を図2.2に示す。また、本プログラムで用いる共通の変数領域の割り振りを図2.3に示す。

A-2.2 配列変数のとり方

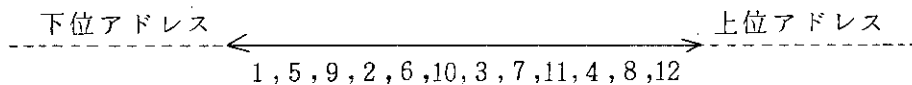
通常の行列の記法で、 m 行 n 列（以下 $m \times n$ と表す）の行列 A を表わすと

$$A = \begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} & \cdots & a_{1n} \\ a_{21} & a_{22} & \cdots & a_{2n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{m1} & a_{m2} & \cdots & a_{mn} \end{pmatrix}$$

であり、配列を宣言する場合、 $A(m, n)$ と 2次元で表すことが普通である。しかし、本プログラムにおいては、 $(m \times n)$ の行列 A を 1行 $m \times n$ 列の 1次元配列として定義する¹⁾。従って、要素 a_{ij} は、配列 $A(m \times n)$ の最初から数えて $(i-1) \times n + j$ 番目に位置する数となる。但しこの場合 $i=1, \dots, m, j=1, \dots, n$ であるとする。この様に配列の 1次元化をして用いる理由としては、計算機のメモリアドレッシングの方式と要素番号の付け方とを一致させて、演算の効率化および高速化を図ろうとしているためである。例えば、2次元配列 A として次式がある。

$$A = \begin{pmatrix} 1 & 2 & 3 & 4 \\ 5 & 6 & 7 & 8 \\ 9 & 10 & 11 & 12 \end{pmatrix}$$

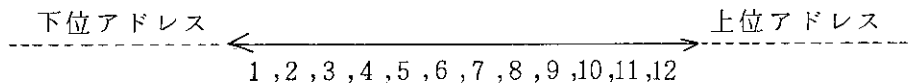
これをメモリ上の配置として見ると次の並びとなる。



次に 1次元の場合、

$$A = \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \\ \vdots \\ 12 \end{pmatrix}$$

である。これを同様にしてメモリ上の配置として見ると、



となる。つまり、1次元配列の場合、メモリアドレスの順序に従って、配列要素が並んで配置されていることになり、マシン語によって各配列要素を参照する方法が簡単となる利点を持っている。

また、本プログラムでは、配列要素の番号は 0 から始まっているので注意を要する。N88-BASIC(86)のシステムをスタートさせると、通常では、配列要素番号の下限は 0 に設定されており、OPTION BASE 1 と実行するとそれ以後のプログラムでは、下限は 1 になる。

A-2.3 高速演算プロセッサ 8087 の利用

PC-9801 には、インテル社の 8087 数値演算プロセッサ（NEC 製は μ PD8087）を取り付けて浮動小数点演算を高速で処理するオプションがある。これを取り付けることによって、指

数・対数関数および三角関数等の演算が飛躍的に高速化される。また、単なる四則演算も高速である。しかしながら、BASICでの四則演算には、この8087を使用しないで、PC-9801のROM内ルーチンで処理している。これは、PC-9801と8087の数値フォーマットが異なるため、その都度フォーマット変換が必要となり、実効的な実行速度が低下してしまうためである³⁾。しかし、行列演算の様に極めて頻繁に連続的四則演算を繰返し実行する場合、8087の高速性が効果的に生かされる。本プログラムでは、このため変数の四則演算全てに8087を使用している。そこで問題となるのがPC-9801と8087のデータの受授に際して必要なフォーマット変換である。8087内部の数値フォーマットはテンポラリ・リアルひと通りであるが、³⁾本プログラムで扱う変数のPC-9801の内部フォーマットは整数(2バイト)と単精度実数(4バイト)の2通りである。PC-9801 $\leftrightarrow$ 8087の両方向のフォーマット変換サブルーチンをCALLする前に、[CL]レジスタに2又は4をセットする。2をセットすると整数、4は単精度実数を意味する。また、[DS]および[BX]レジスタには配列変数のアドレスを格納しておく。このアドレスの変数を8087にロードしたり、このアドレスに8087の値をストアするのが本フォーマット変換サブルーチンの機能である。本サブルーチンは文献3)に例示されたものを骨子として作成してある。PC-9801 $\rightarrow$ 8087のフォーマット変換サブルーチンの詳細フロー図を図2.4に示す。8087 $\rightarrow$ PC-9801の詳細フロー図を図2.5に、また、8087の四則演算や内部のスタックレジスタの入れ換え等を実行するマシン語命令のリストを表2.1に示す。

A-2.4 プログラミングに用いたマシン語モニタ

今回作成した行列演算マシン語サブルーチンおよび8087フォーマット変換サブルーチンは、全てPC-9801が標準装備しているマシン語モニターのみを用いて作成したものである。マシン語プログラムを作成する道具としては、CP/M-86やMS-DOSの下で働らくアセンブラが市販されているが、いずれの場合も作成したマシン語プログラムをN88-BASIC(86)の下で働かせようとするファイル変換プログラムを使用する必要があり、なかなか面倒な手続きである。そこでPC-9801内蔵のマシン語モニタを使用して、プログラムの作成を行なった。プログラムのデバッグも全てこのインラインモニタを使用して行なった。

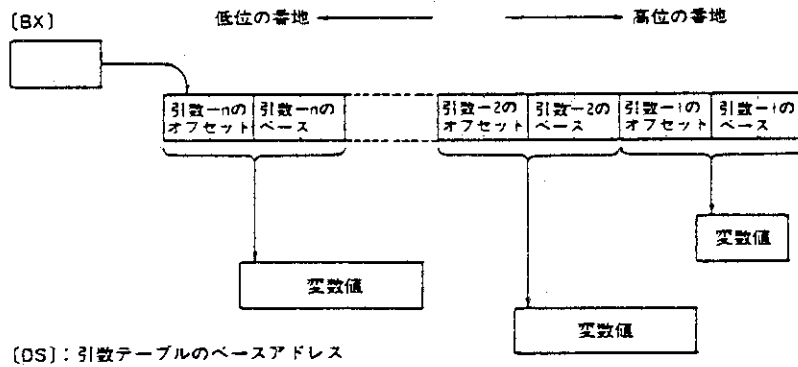


図 2.1 PC-9801のCALL文における引数の扱い

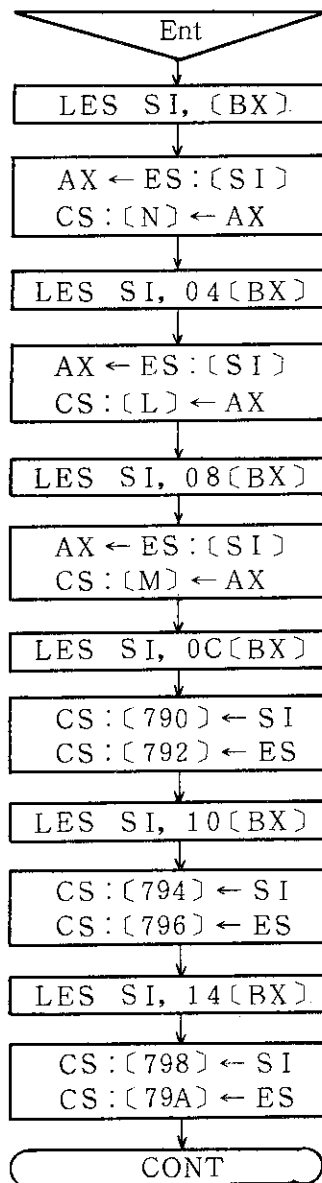


図 2.2 引数処理プログラムフロー図

変 数 テ ー ブ ル

Seg=&H9000			
記 号	番 地	I 2	7 6 8
I	7 3 8	I 1 MAX	7 6 A
J	7 3 A	K MAX	7 6 C
K	7 3 C	F S W	7 6 E ~ 7 6 F
L	7 3 E	A MAX	7 7 0 ~ 7 7 3
M	7 4 0	K 1	7 7 4 , 7 7 5
N	7 4 2		
NSTEP	7 4 4	S	7 8 0
KR	7 4 6		1
KA	7 4 8		7 8 7
KB	7 4 A	R (0)	7 9 0 ~ 7 9 1 O F S
I J	7 4 C		7 9 2 ~ 7 9 3 S E G
I K	7 4 E		
I I	7 5 0	B (0)	7 9 4 ~ 7 9 5 O F S
K J	7 5 2		7 9 6 ~ 7 9 7 S E G
K K	7 5 4		
N N	7 5 6	A (0)	7 9 8 ~ 7 9 9 O F S
N J	7 5 8		7 9 A ~ 7 9 B S E G
I L	7 5 A		
L J	7 5 C		
J 1	7 5 E		
J 2	7 6 0		
J 3	7 6 2		
J 4	7 6 4		
I 1	7 6 6		

図 2.3 変数領域の詳細（記号とアドレス）

CL: 変数の型 2 Integer
 4 Single Real
 BX: 変数の番地 (オフセット)
 DS: " (セグメント)

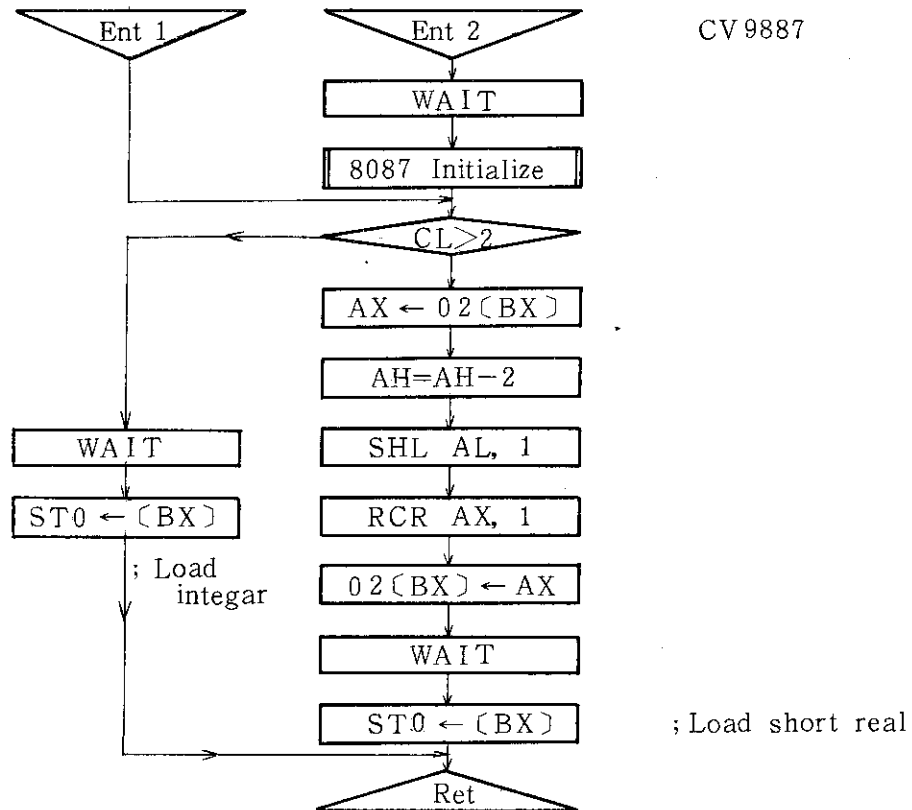


図 2.4 PC-9801 から 8087 へデータを転送するプログラム (CV9887) のフロー図

CL: 変数の型 02 Integer
 04 Single Real
 BX: 変数の番地 (オフセット)
 DS: " (セグメント)

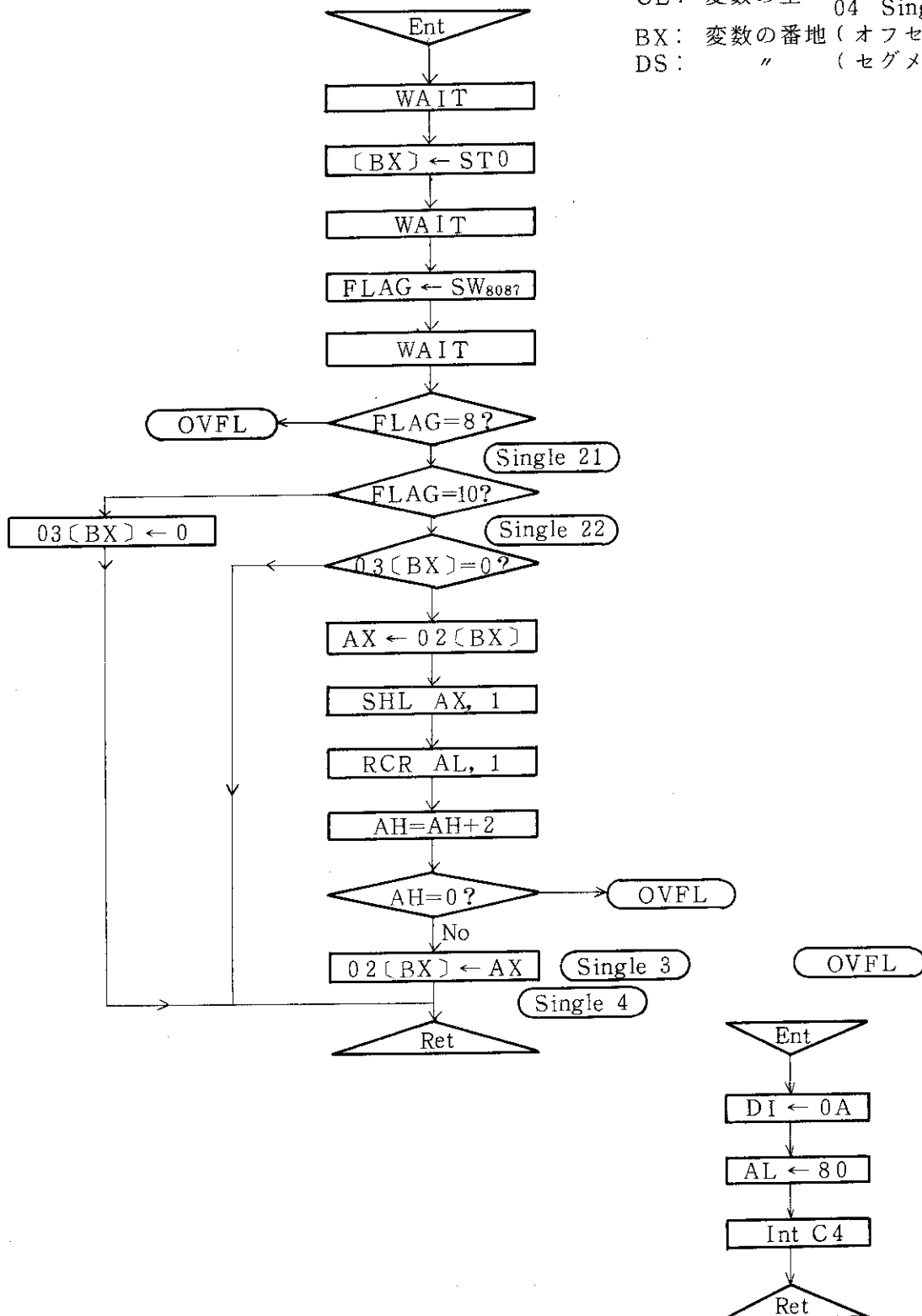


図 2.5 8087からPC-9801へデータを転送するプログラム (CV8798)のフロー図

表 2.1 高速演算プロセッサ 8087 の主なコマンド

No.	Hex code	マシン語 code	演算内容
1	D8E3	ESC 1C, BX	initialize
2	D8C1	ESC 00, CX	$ST0 = ST0 + ST1$
3	D8E1	ESC 04, CX	$ST0 = ST0 - ST1$
4	D8C9	ESC 01, CX	$ST0 = ST0 * ST1$
5	D8F1	ESC 06, CX	$ST0 = ST0 / ST1$
6	D9EE	ESC 0D, SI	$ST0 = 0.0$
7	D9E8	ESC 0D, AX	$ST0 = 1.0$
8	D9C0	ESC 08, AX	$ST0 = ST0$
9	D9E1	ESC 0C, CX	$ST0 = \text{FABS}(ST0)$
10	D8D1	ESC 02, CX	FCOMP ST1
11	D9C1	ESC 08, CX	$ST0 = ST1$
12	D9C2	ESC 08, DX	$ST0 = ST2$
13	D9E9	ESC 0D, CX	$ST0 = \log_2 10$
14	D9F1	ESC 0E, CX	$ST0 = ST1 * \log_e(ST0)$

A-3. 行列演算マシン語サブルーチンの詳細

こゝに述べるマシン語サブルーチン群で用いている行列演算方式は、特異なものでも新しいものでもなく行列演算公式に従ったものであるが、文献1)に記載してあるFORTRANプログラムを参考にして、前節の設計方針に従ってPC-9801のマシン語プログラムに作り上げたものである。したがって、マシン語サブルーチンの名前は文献1)のものをそのまま採用している。以下に作成した行列演算マシン語サブルーチンの詳細について述べる。

A-3.1 行列の転送：行列 $A(m \times n) \rightarrow$ 行列 $R(m \times n)$

CALL MTXTRA(A(0), R(0), M%, N%)

このサブルーチンで実施している行列演算処理は以下のBASICプログラムで示すように、単に行列要素の複写である。

```
100  *MTXTRA
110  FOR I=0 TO M%*N%-1
120  R(I)=A(I)
130  NEXT I
140  RETURN
```

これをマシン語化した詳細フロー図を図3.1に示す。

A-3.2 行列 A と値 S のスカラー積：行列 $R(m \times n) = S \times A(m \times n)$

CALL MTXMSC(A(0), R(0), S, M%, N%)

このサブルーチンの行列演算内容を以下のBASICプログラムで示す。

```
100  *MTXMSC
110  FOR I=0 TO M%*N%-1
120  R(I)=S*A(I)
130  NEXT I
140  RETURN
```

これをマシン語化した詳細フロー図を図3.2に示す。

A-3.3 n 次の単位行列を行列 R に作る：行列 $R(n \times n) = I$

CALL MTXUNT(R(0), N%)

同様にして本サブルーチンの行列演算内容を以下の BASIC プログラムで示す。

```

100  *MTXUNT
110  FOR I=0 TO N%-1
120  FOR J=0 TO N%-1
130  K=I*N%+J
140  IF J=I THEN 160
150  R(K)=0:GO TO 170
160  R(K)=1.0
170  NEXT J
180  NEXT I
190  RETURN

```

これをマシン語化した詳細フロー図を図 3.3 に示す。

A-3.4 行列 A の転置を行列 R に作る： $R(n \times m) = A^T(m \times n)$

CALL MTXTRA(A(0), R(0), M%, N%)

同様に本サブルーチンの行列演算内容を以下に BASIC プログラムで示す。

```

100  *MTXTRA
110  FOR I=0 TO M%-1
120  FOR J=0 TO M%-1
130  KA=I*N%+J
140  KR=J*M%+I
150  R(KR)=A(KA)
160  NEXT J
170  NEXT I
180  RETURN

```

これをマシン語化した詳細フロー図を図 3.4 に示す。

A-3.5 行列 A と行列 B の加算： $R(m \times n) = A(m \times n) + B(m \times n)$

CALL MTXADD(A(0), B(0), R(0), M%, N%)

本サブルーチンの行列演算内容を以下の BASIC プログラムで示す。

```

100  *MTXADD
110  NSTEP=M%*N%-1
120  FOR I=0 TO NSTEP
130  R(I)=A(I)+B(I)
140  NEXT I
150  RETURN

```

これをマシン語化した詳細フロー図を図 3.5 に示す。

A-3.6 行列 A と行列 B の減算: $R(m \times n) = A(m \times n) - B(m \times n)$

CALL MTXSUB(A(0), B(0), M%, N%)

本サブルーチンの行列演算内容を BASIC プログラムで表した場合, 上記 3.5 の加算の BASIC プログラム中 130 行が次の様になるだけである。

```
100  *MTXSUB
130  R(I)=A(I)-B(I)
150  RETURN
```

これをマシン語化した詳細フロー図も一部分変るだけであり, 図 3.5 内に点線の囲でこれを示した。

A-3.7 行列 A と行列 B の乗算: $R(m \times n) = A(m \times \ell) \times B(\ell \times n)$

CALL MTXMLT(A(0), B(0), R(0), M%, N%, L%)

```
100  *MTXMLT
110  FOR I=0 TO M%-1
120  FOR J=0 TO N%-1
130  KR=I*N%+J
140  R(KR)=0
150  FOR II=0 TO L%-1
160  KA=I*L%+II
170  KB=II*N%+J
180  R(KR)=R(KR)+A(KA)*B(KB)
190  NEXT II
200  NEXT J
210  NEXT I
220  RETURN
```

これをマシン語化したプログラムの詳細フロー図を図 3.6 に示す。

A-3.8 行列 A と行列 B の転置の乗算: $R(m \times n) = A(m \times \ell) \times B^T(n \times \ell)$

CALL MTXMBT(A(0), B(0), R(0), M%, N%, L%)

本サブルーチンの行列演算内容は、3.7 MTXMLT サブルーチンの演算内容のうち、160行および170行が次の様に変化しただけで、他は全く同じである。

```

100  *MTXMBT
    |
160  KA=I*L%+I I
170  KB=J*L%+I I
    |
220  RETURN

```

マシン語化したプログラムの詳細フロー図の図3.6の実線図の中にこの変更箇所のみを示してある。

A-3.9 行列Aの転置と行列Bの乗算： $R(m \times n) = A^T(\ell \times m) \times B(\ell \times n)$

```
CALL MTXMAT(A(0), B(0), R(0), M%, L%, N%)
```

本サブルーチンの行列演算内容は、3.8の場合と同様に、3.7 MTXMLT サブルーチンを一部分変更したものである。すなわち、160行および170行を次の様に変更したものである。

```

100  *MTXMAT
    |
160  KA=I I*M%+I
170  KB=I I*N%+J
    |
220  RETURN

```

マシン語化したプログラムの変更箇所は同様に、図3.6の右側の実線図の中に示してある。

A-3.10 行列方程式の解法： $A(n \times n) \times X(n \times m) = B(n \times m)$

```
CALL MTX EQU(A(0), B(0), N%, M%)
```

本サブルーチンで行っている行列演算は、行の入れかえを含むGaussの消去法によって方程式の解を求めている。解すなわち行列Xは、行列Bの位置に求められる。この演算内容はBASICプログラムで書いても今までのものよりかなり長い、マシン語プログラムの長さも(450)₁₆バイトと大変に長い。以下には本サブルーチンの演算内容をBASICプログラムによって示す。

```

100  *MTX EQU
110  'REDUCTION OF MATRIX A
120  'STEPS OF REDUCTION ARE COUNTED BY K
130  KMAX=N%-1
140  FOR K=0 TO KMAX-1
150  'SEARCH FOR LARGEST COEFFICIENT OF A(DENOTED BY
    AMAX) IN FIRST COLUMN OF REDUCED SYSTEM

```

```

160  AMAX=0.0
170  FOR J1=K TO N%-1
180  IK=J1*N%+K
190  IF ABS(AMAX)<ABS(A(IK)) THEN 200 ELSE 210
200  AMAX=A(IK)
210  NEXT J1
220  'EXCHANGE ROW NUMBER K WITH ROW NUMBER J2, IF NECESSARY
230  IF J2=K THEN 380
240  FOR J=K TO N%-1
250  J3=K*N%+J
260  J4=J2*N%+J
270  SAVE=A(J3)
280  A(J3)=A(J4)
290  A(J4)=SAVE
300  NEXT J
310  FOR J=0 TO M%-1
320  J3=K*M%+J
330  J4=J2*M%+J
340  SAVE=B(J3)
350  B(J3)=B(J4)
360  B(J4)=SAVE
370  NEXT J
380  K1=K+1
390  KK=K*N%+K
400  FOR I=K1 TO N%-1
410  IK=I*N%+K
420  FOR J=K1 TO N%-1
430  IG=I*N%+J
440  KJ=K*N%+J
450  A(IJ)=A(IJ)-A(KJ)*A(IK)/A(KK)
460  NEXT J
470  FOR J=0 TO M%-1
480  IJ=I*M%+J
490  KJ=K*M%+J
500  B(IJ)=B(IJ)-B(KJ)*A(IK)/A(KK)
510  NEXT J
520  NEXT I
530  NEXT K

```

```

540  'BACKSUBSTITUTION
550  NN=N%/2-1
560  FOR J=0 TO M%-1
570  NJ=(N%-1)*M%+J
580  B(NJ)=B(NJ)/A(NN)
590  I1MAX=N%-2
600  IF I1MAX<=0 THEN 730
610  FOR I1=1 TO I1MAX
620  I=N%-I1
630  IJ=(I-1)*M%+J
640  II=(I-1)*N%+I-1
650  I2=I+1
660  FOR L=I2 TO N%-1
670  IL=(I-1)*M%+L-1
680  LJ=(L-1)*M%+J
690  B(IJ)=B(IJ)-A(IL)*B(LJ)
700  NEXT L
710  B(IJ)=B(IJ)/A(II)
720  NEXT I1
730  NEXT J
740  RETURN

```

以上をマシン語化したプログラムの詳細フロー図を図 3.7 に示す。

A-3.11 行列 A の逆行列を行列 R に作る : $R(n \times n) = A^{-1}(n \times n)$

本サブルーチンプログラムは、MTXUNT と MTX EQU とを用いて次の様にして実行する。

```

100  *MTXINV
110  CALL MTXUNT(R(0), N%)
120  CALL MTX EQU(A(0), R(0), N%, N%)
130  RETURN

```

以上に示した行列演算サブルーチンの一覧表を表 3.1 に示す。

MTXTRA(A(0), R(0), M%, N%)

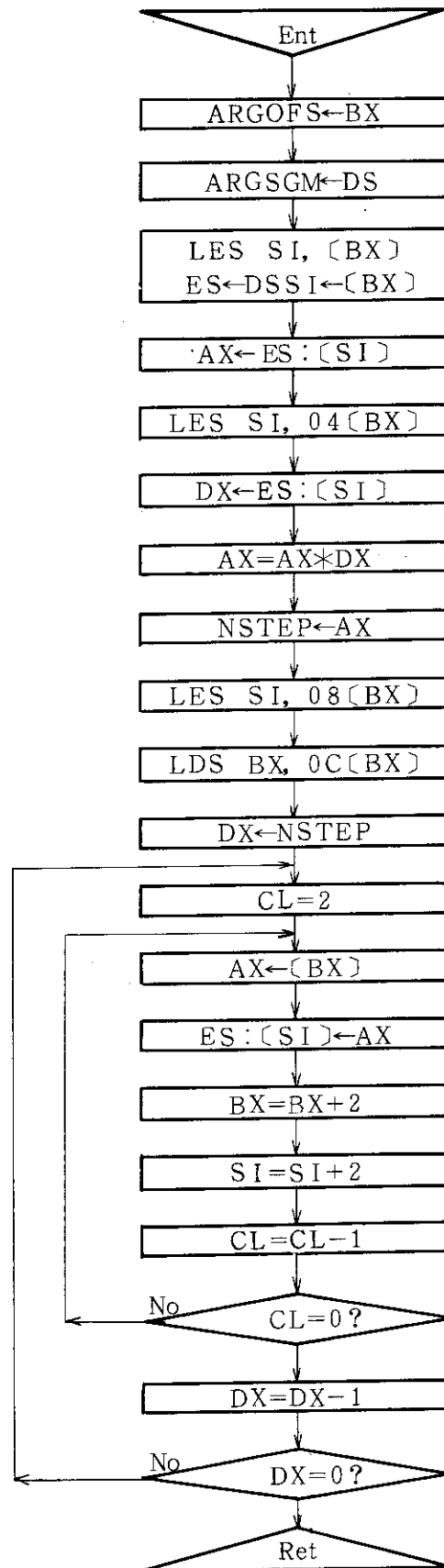


図 3.1 行列の転送プログラムのフロー図

MTXMSC(A(0), R(0), S, M%, N%)

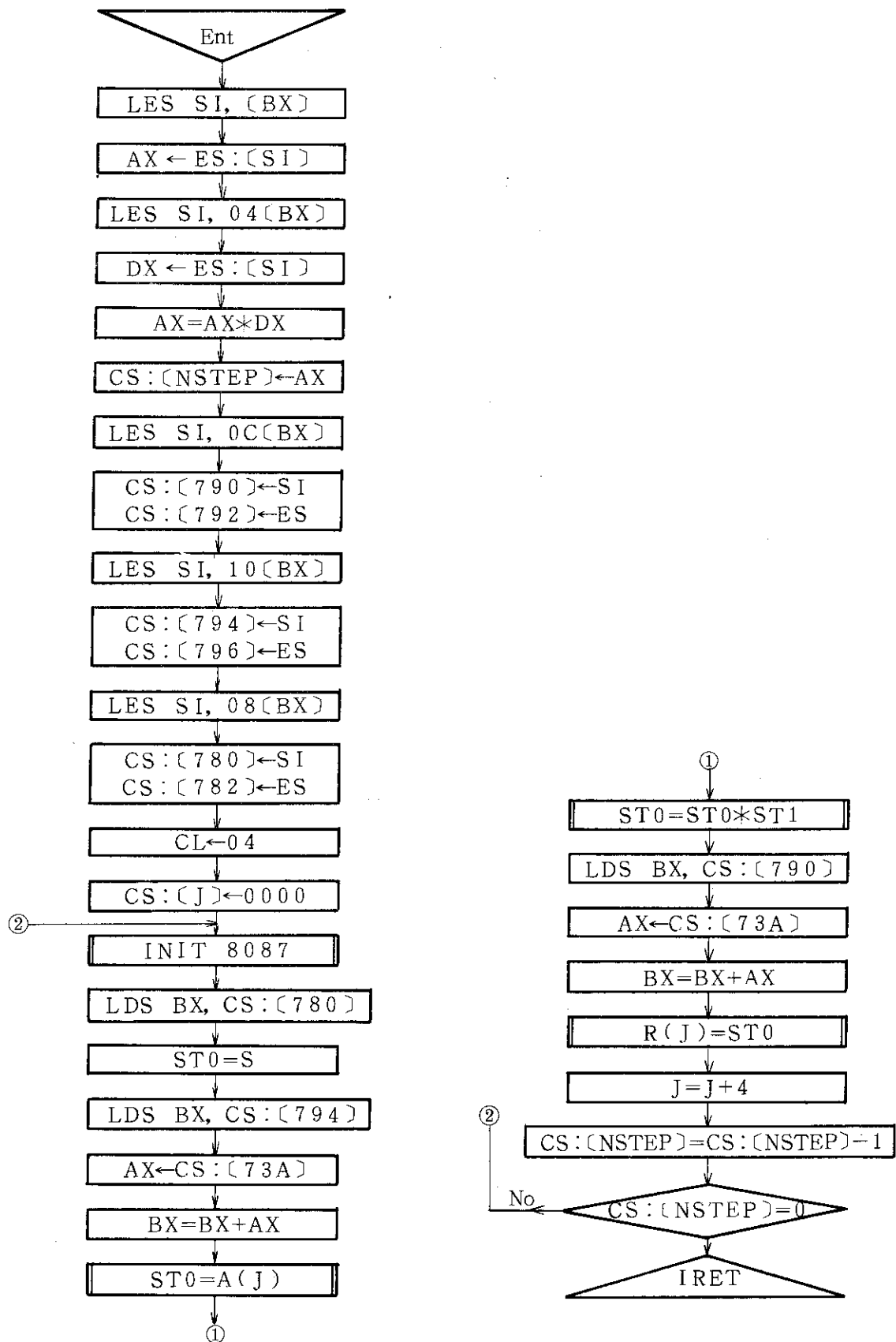


図 3.2 行列 A と値 S のスカラー積プログラムのフロー図

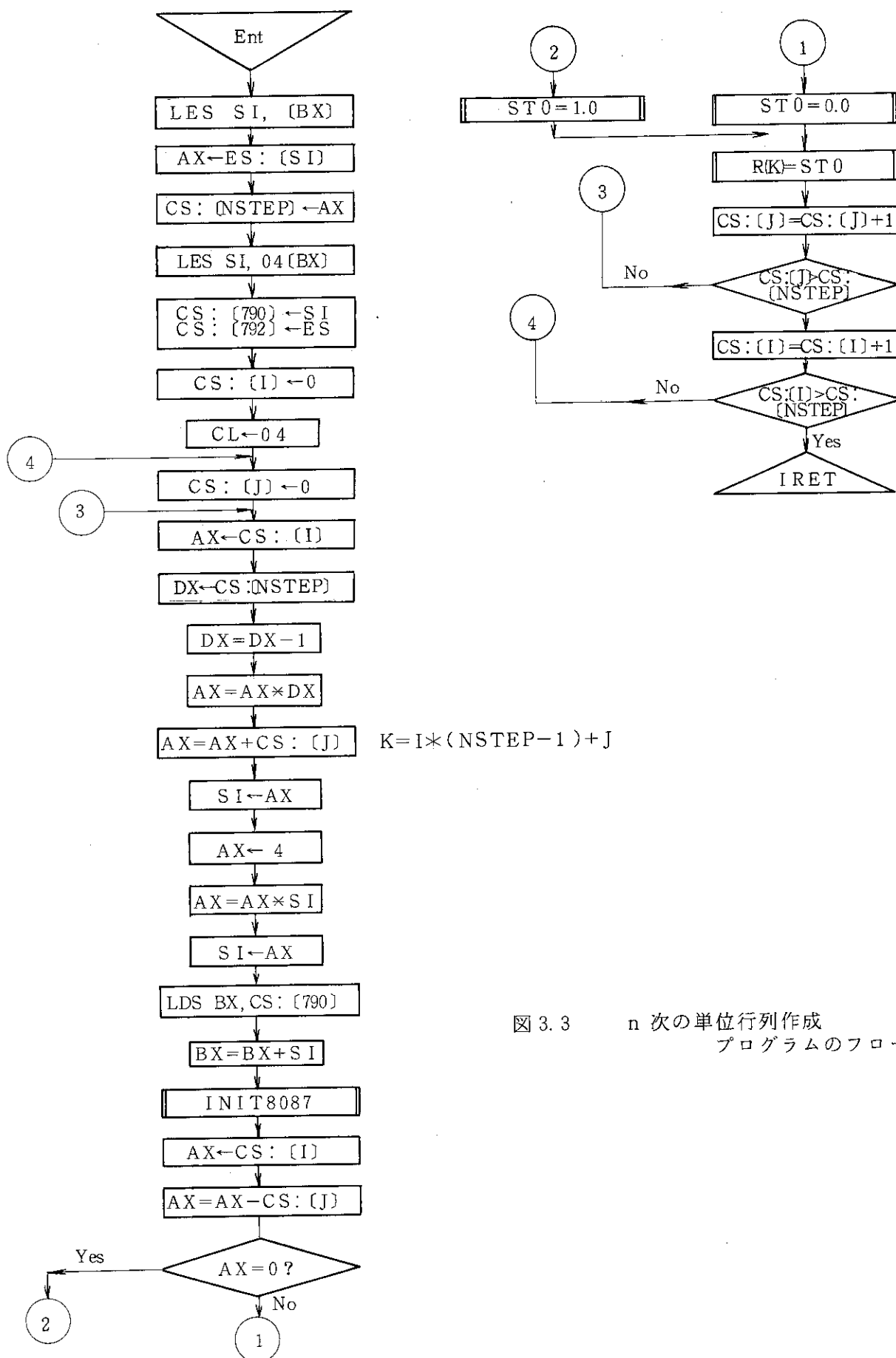


図 3.3 n 次の単位行列作成
プログラムのフロー図

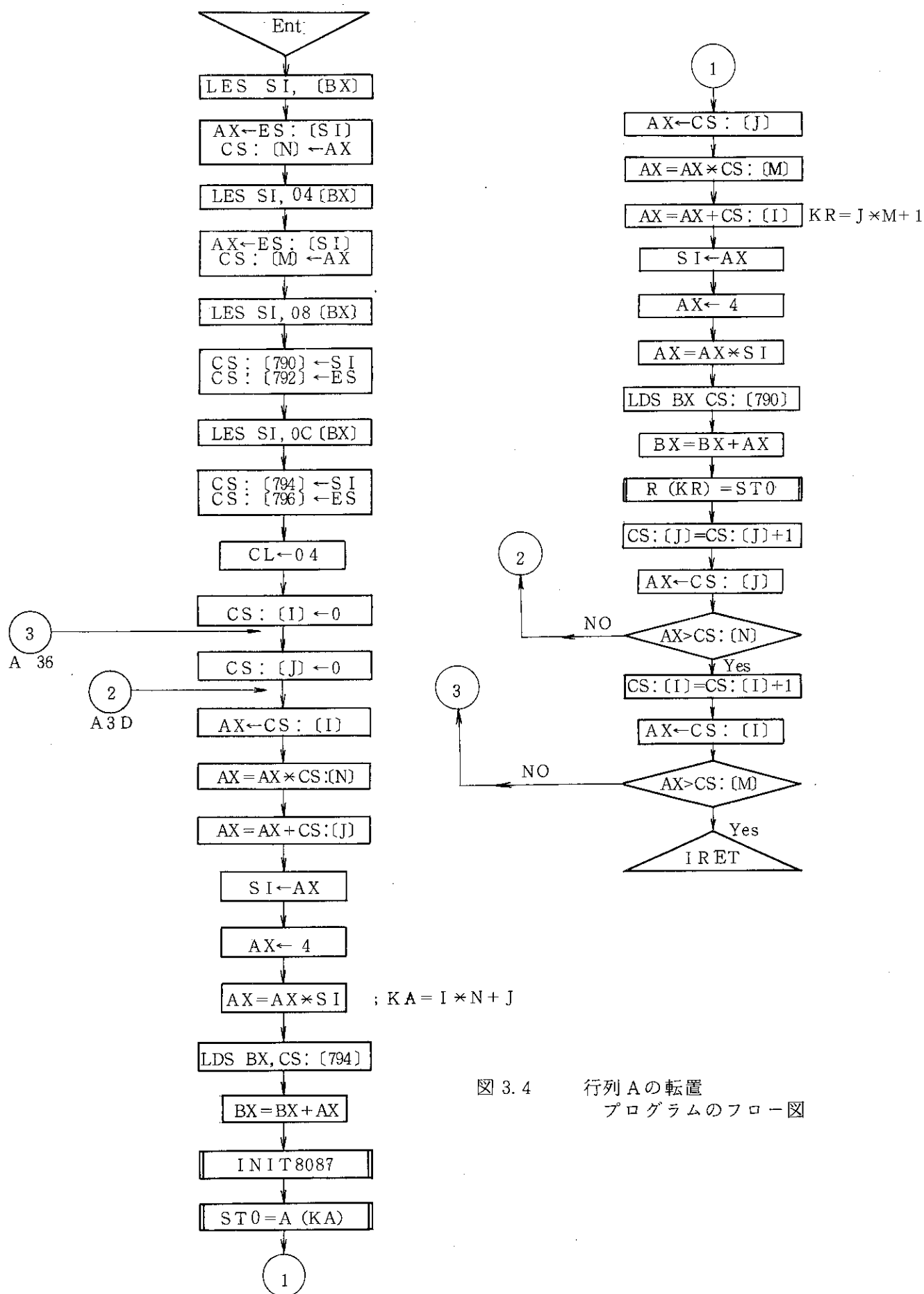


図 3.4 行列 A の転置
プログラムのフロー図

MTXADD(A(0), B(0), R(0), M%, N%)
 MTXSUB(" ")

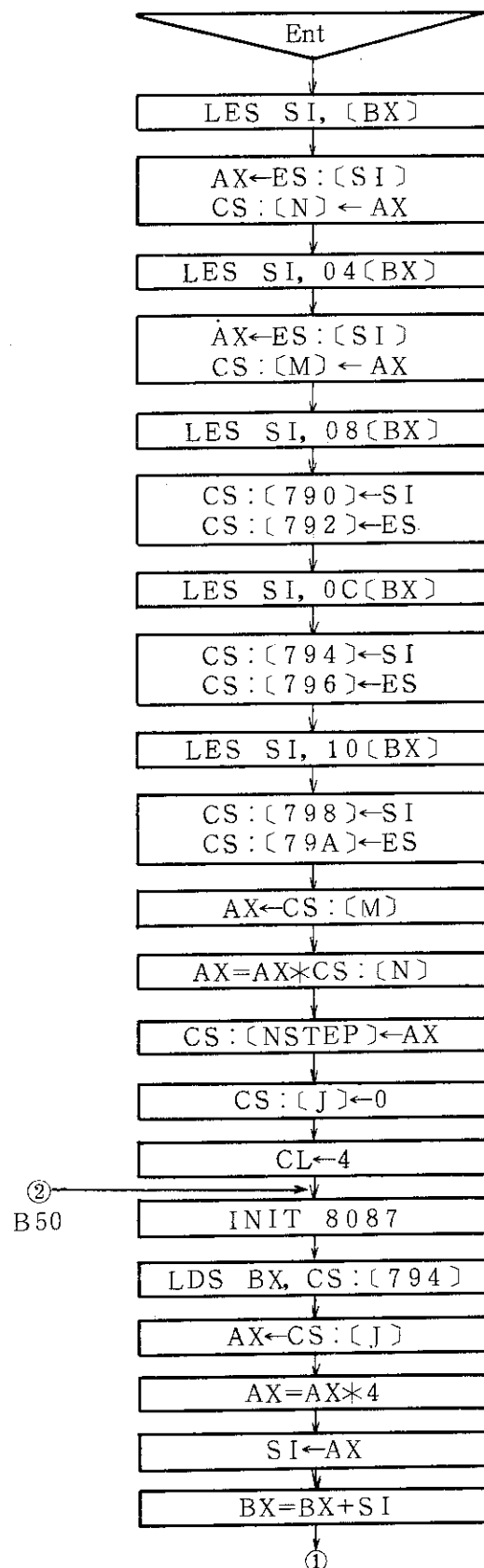


図 3.5 行列Aと行列Bの加算(減算)プログラムのフロー図

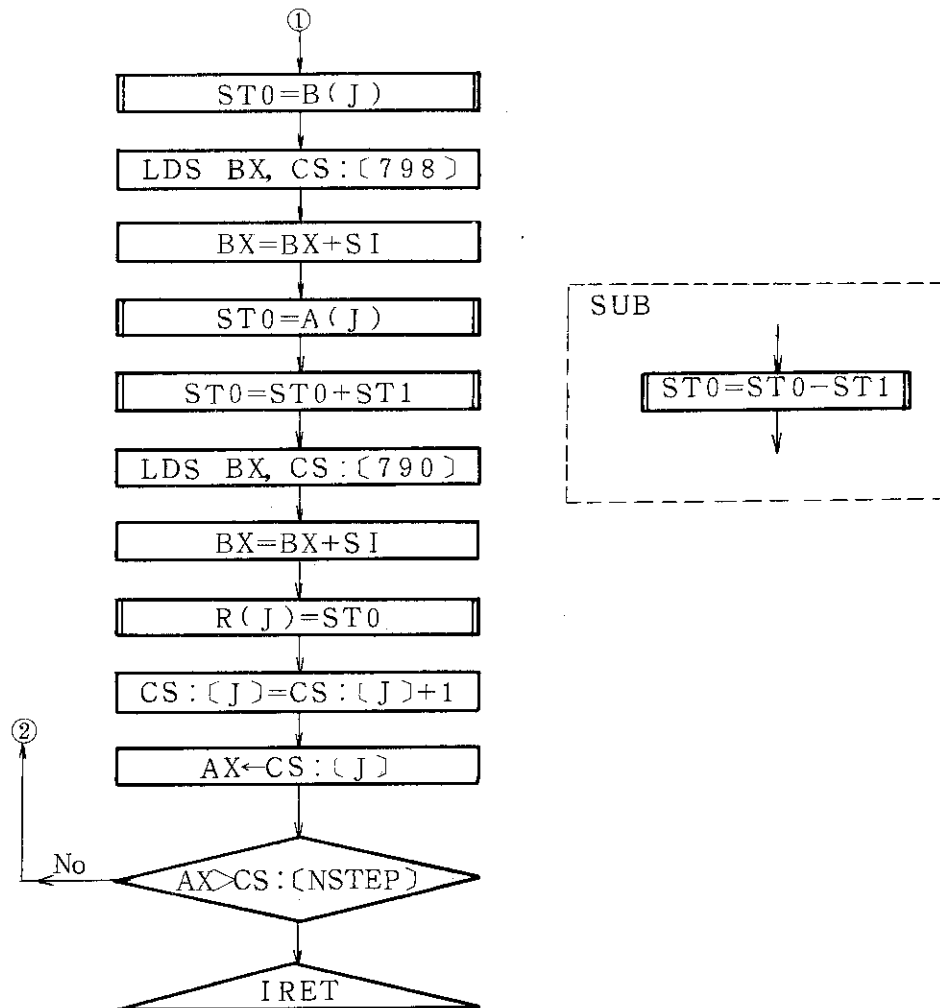


図 3.5 行列 A と行列 B の加算 (減算) プログラムのフロー図 (続き)

$$\text{MTXMLT}(A(0), B(0), R(0), M\%, L\%, N\%)$$

" MBT

" MAT

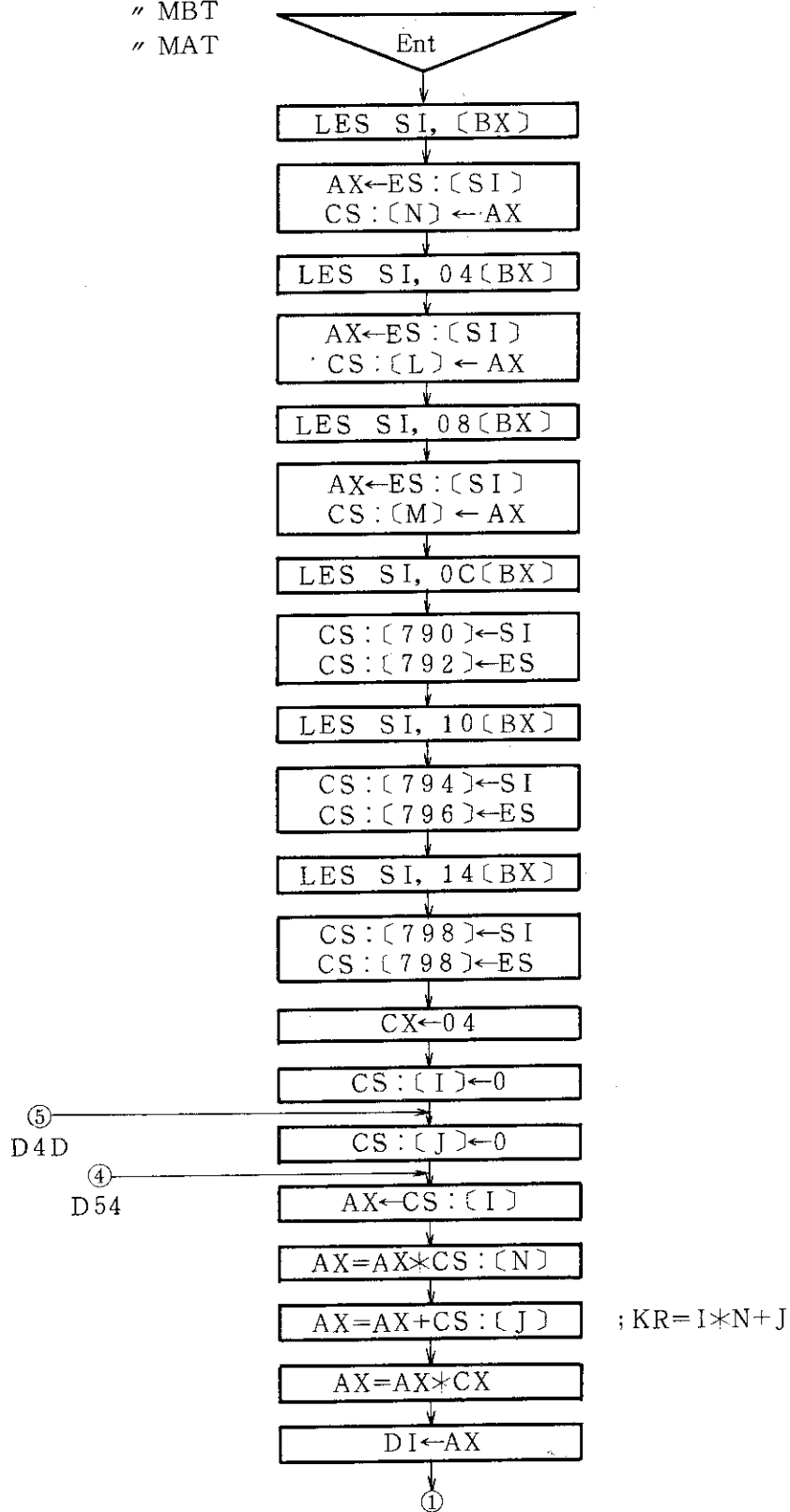


図 3.6 行列 A と行列 B の乗算プログラムフロー図 (その 1)
 行列 A と行列 B の転置の乗算プログラム "
 行列 A の転置と行列 B の " "

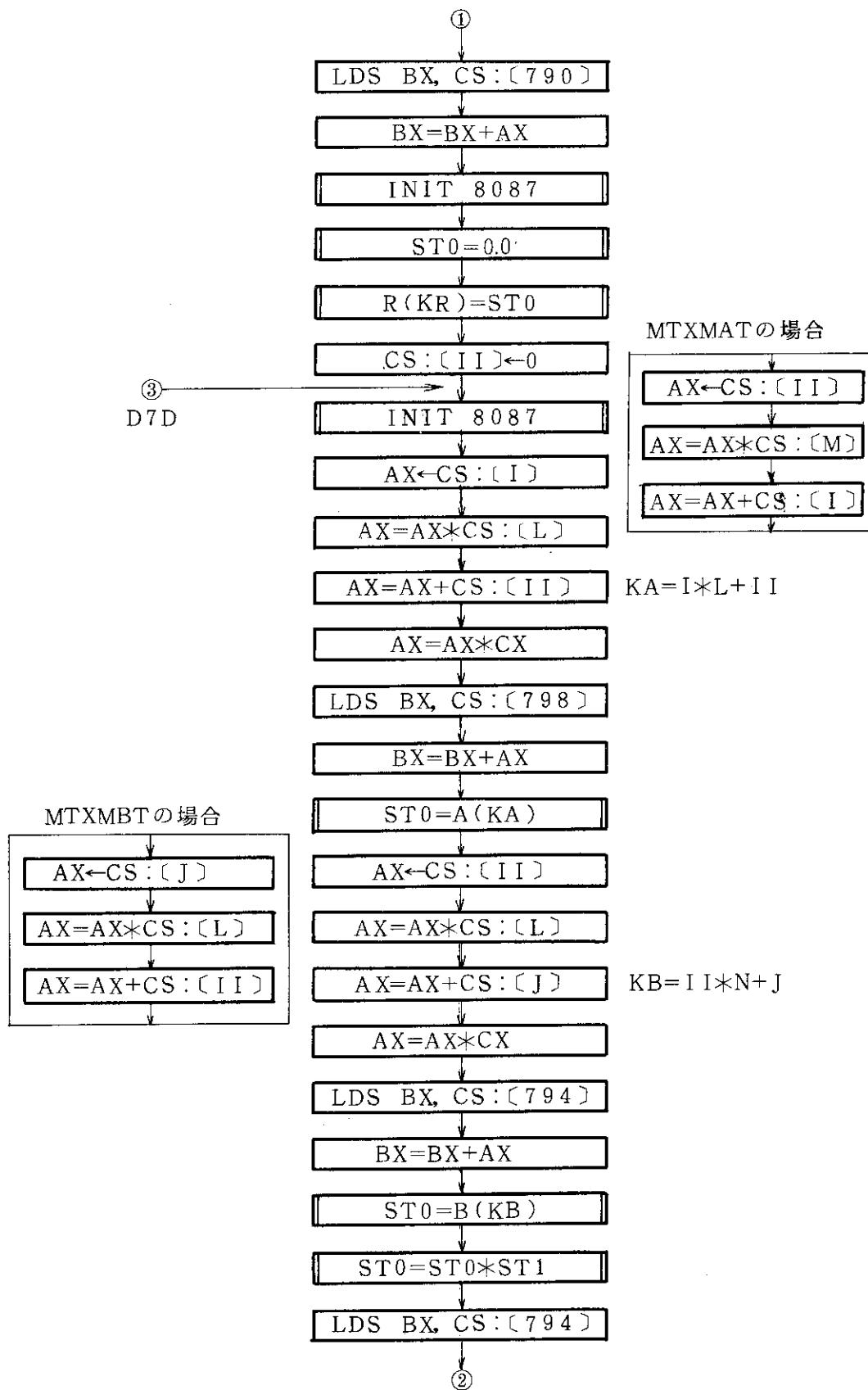


図 3.6 続き(その2)

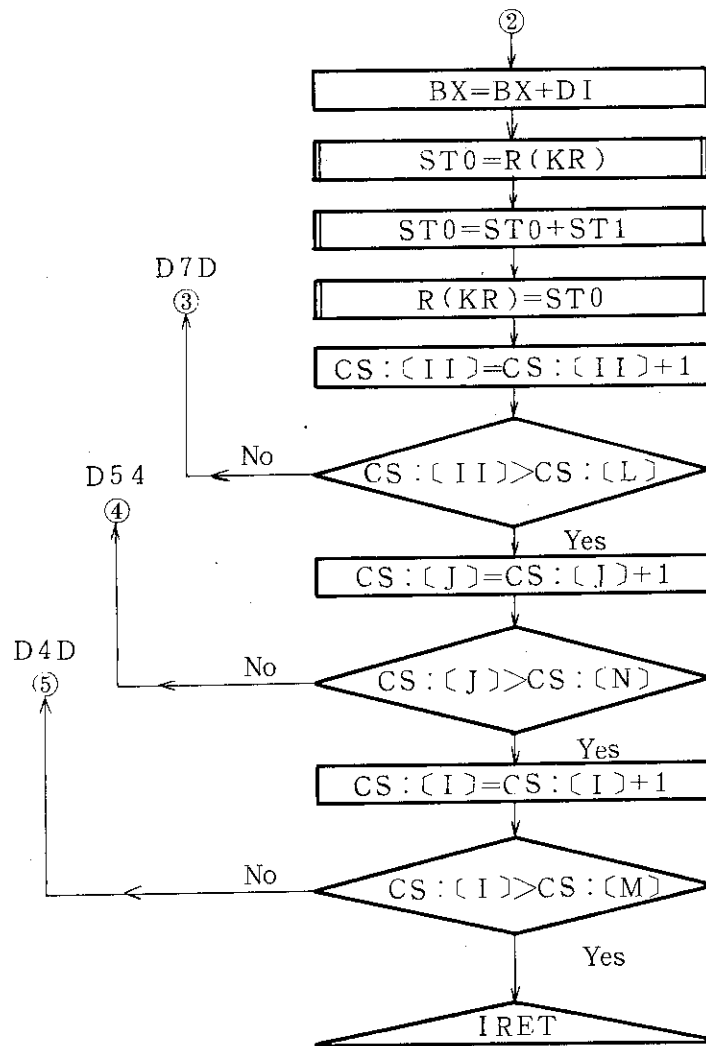


図 3.6 続き (その 3)

MTXEQU(A(0), B(0), N%, M%)

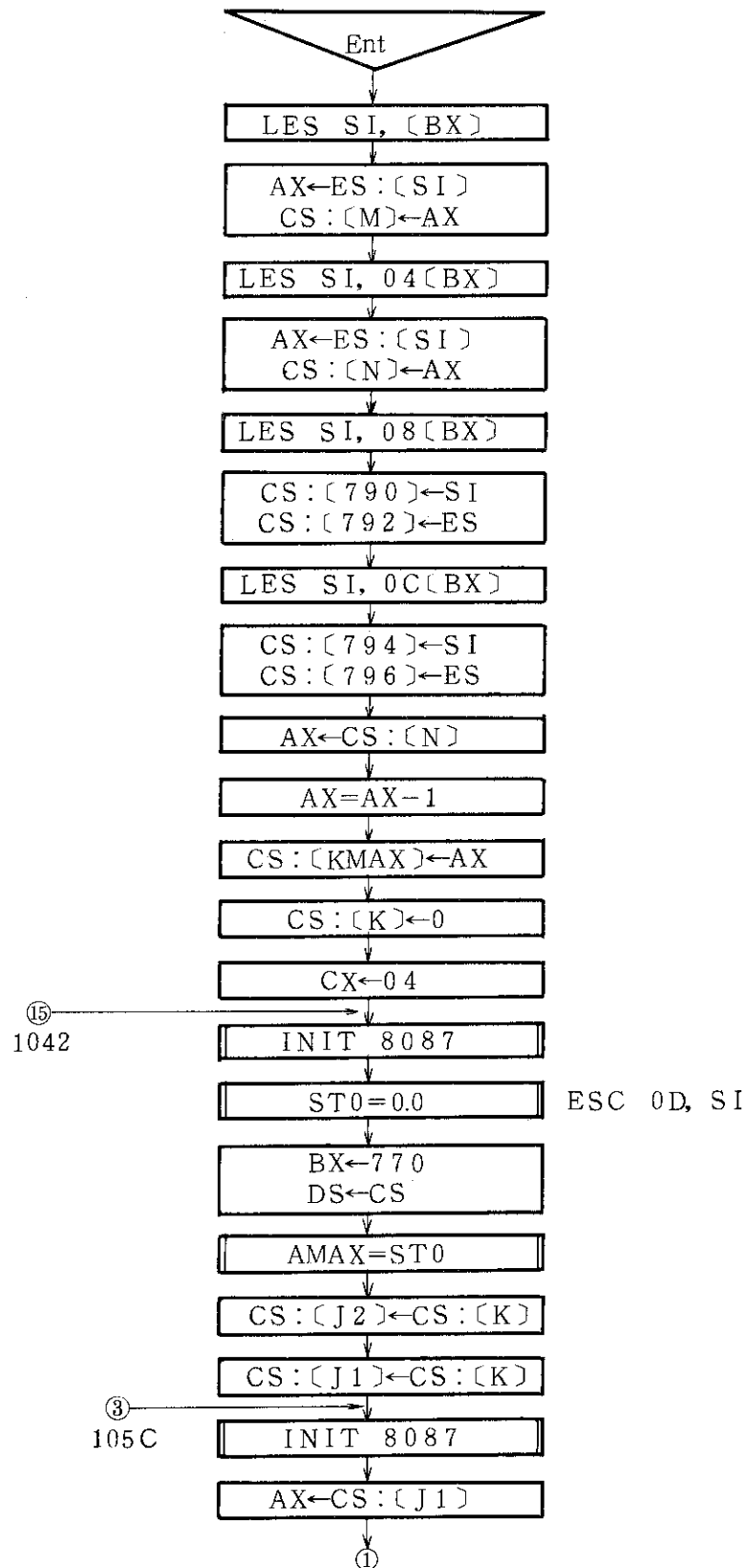


図 3.7 行列方程式の解法プログラムフロー図 (その 1)

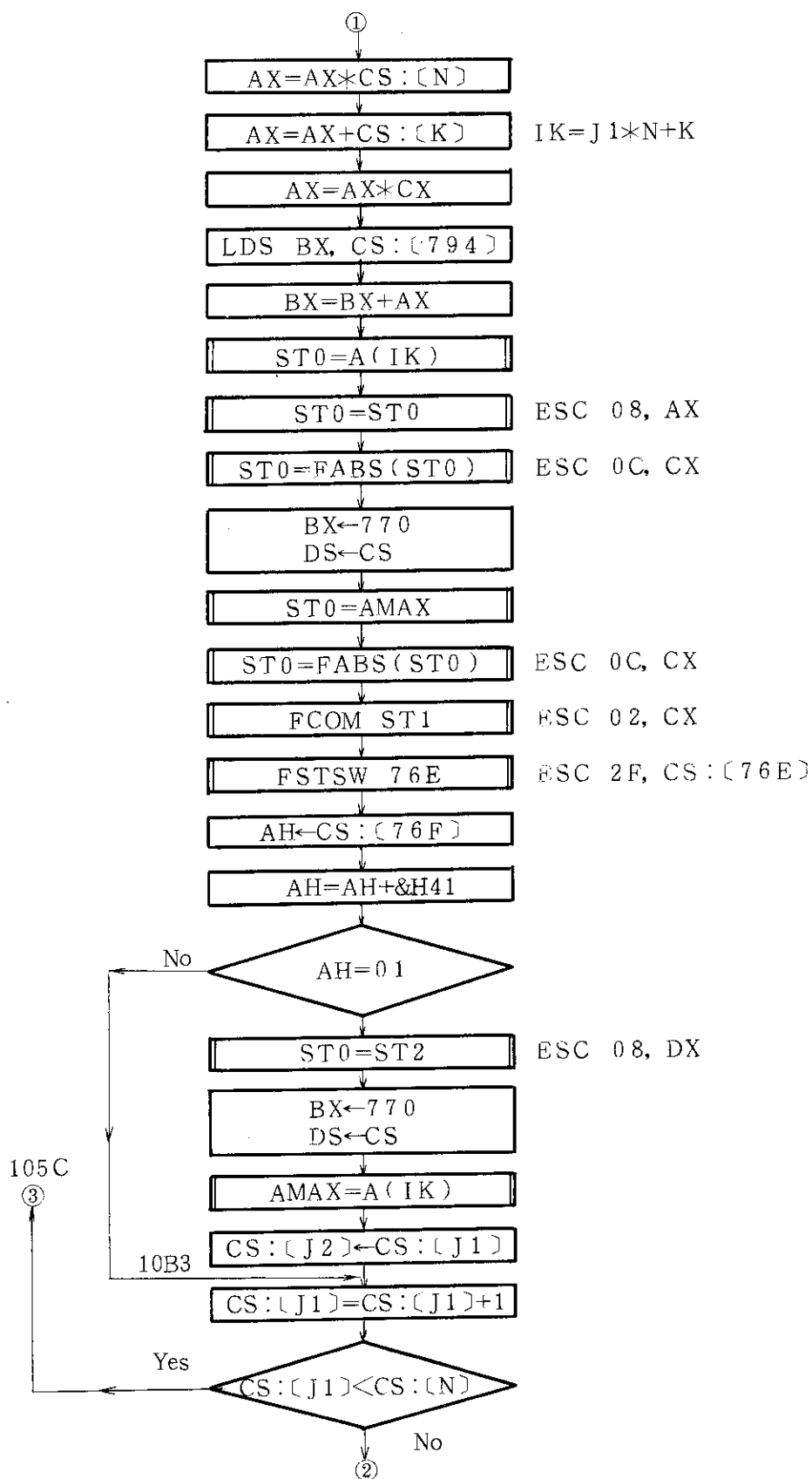


図 3.7 続き(その2)

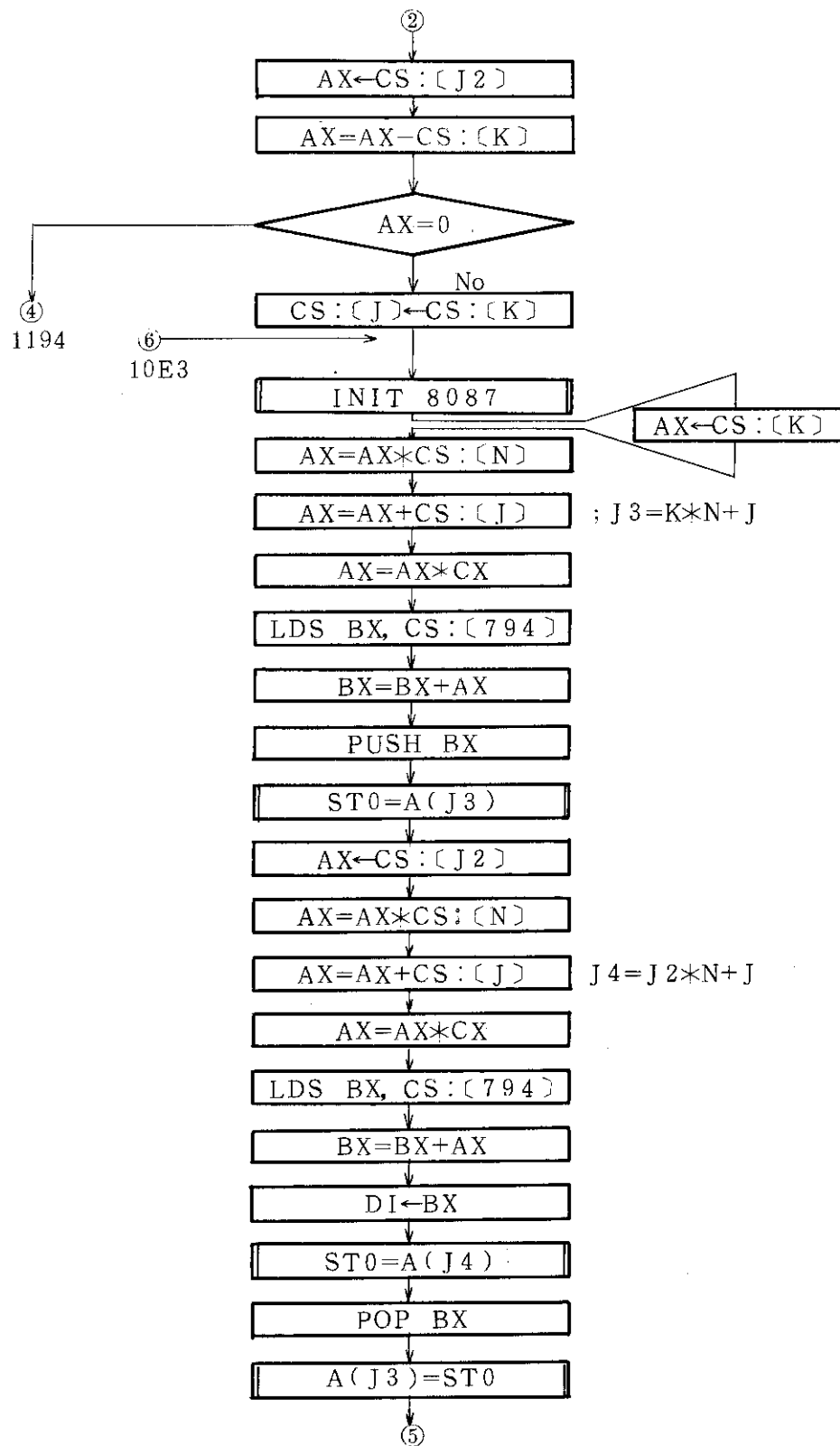


図 3.7 続き (その 3)

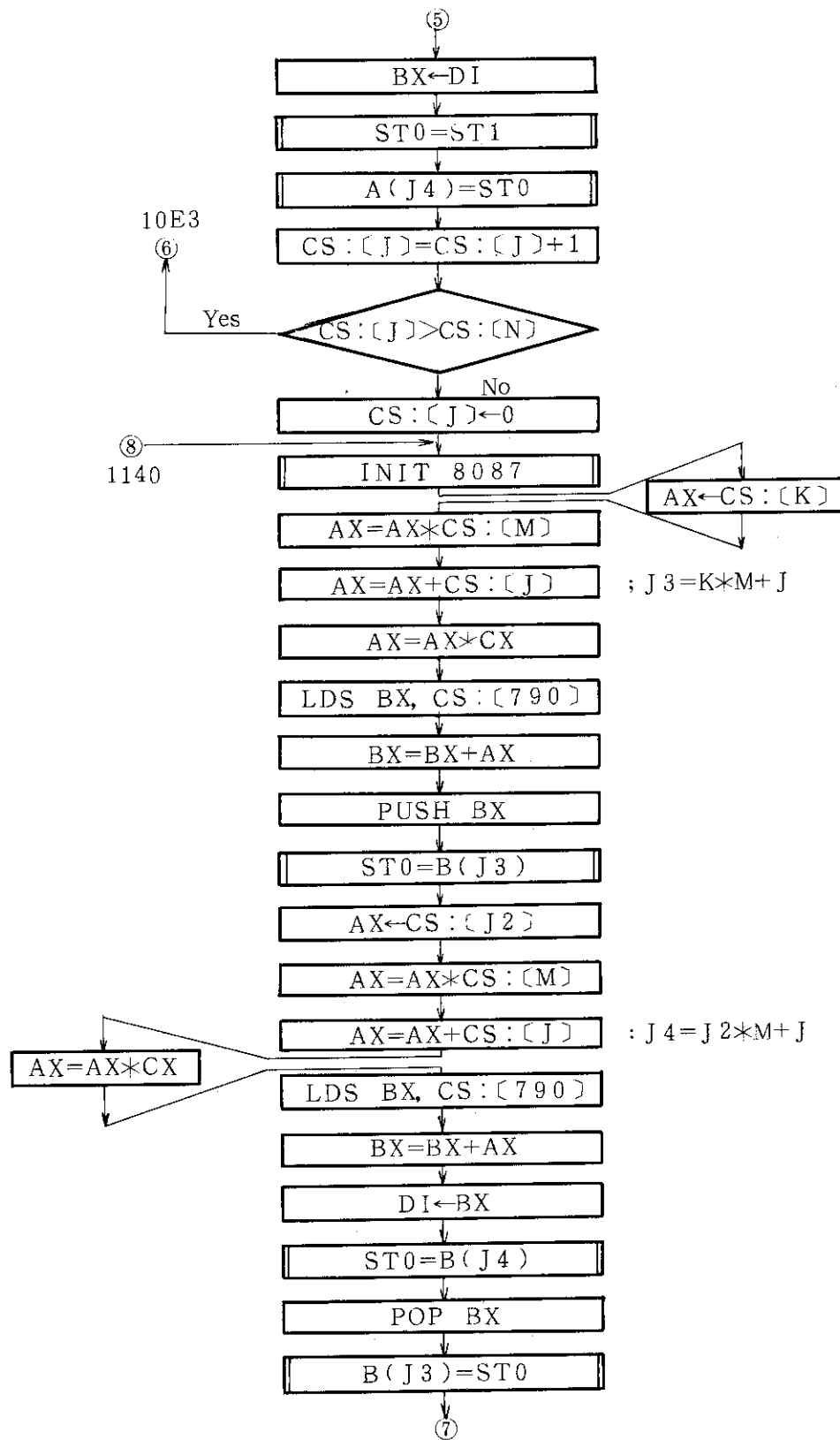


図 3.7 続き(その4)

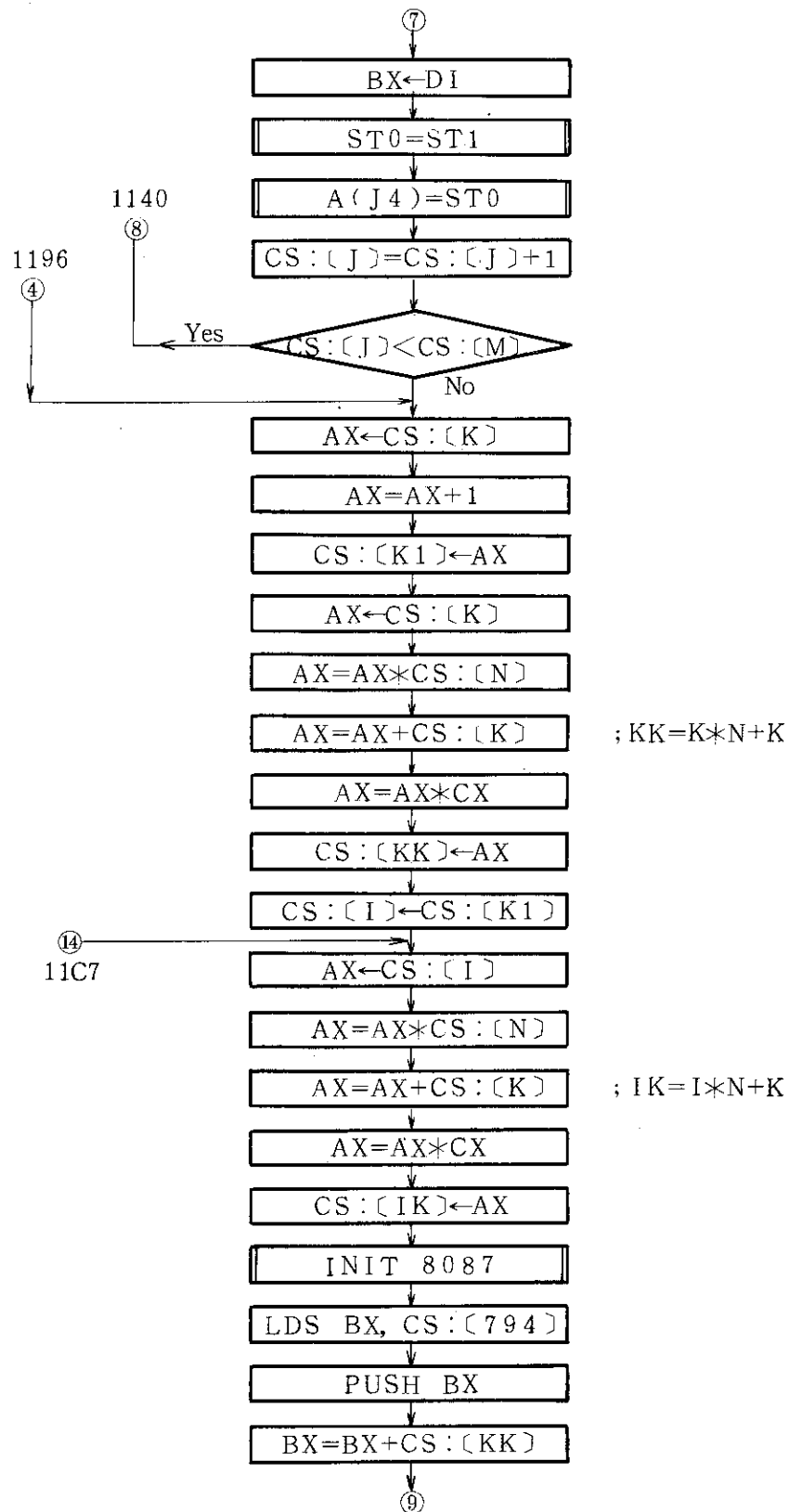


図 3.7 続き (その 5)

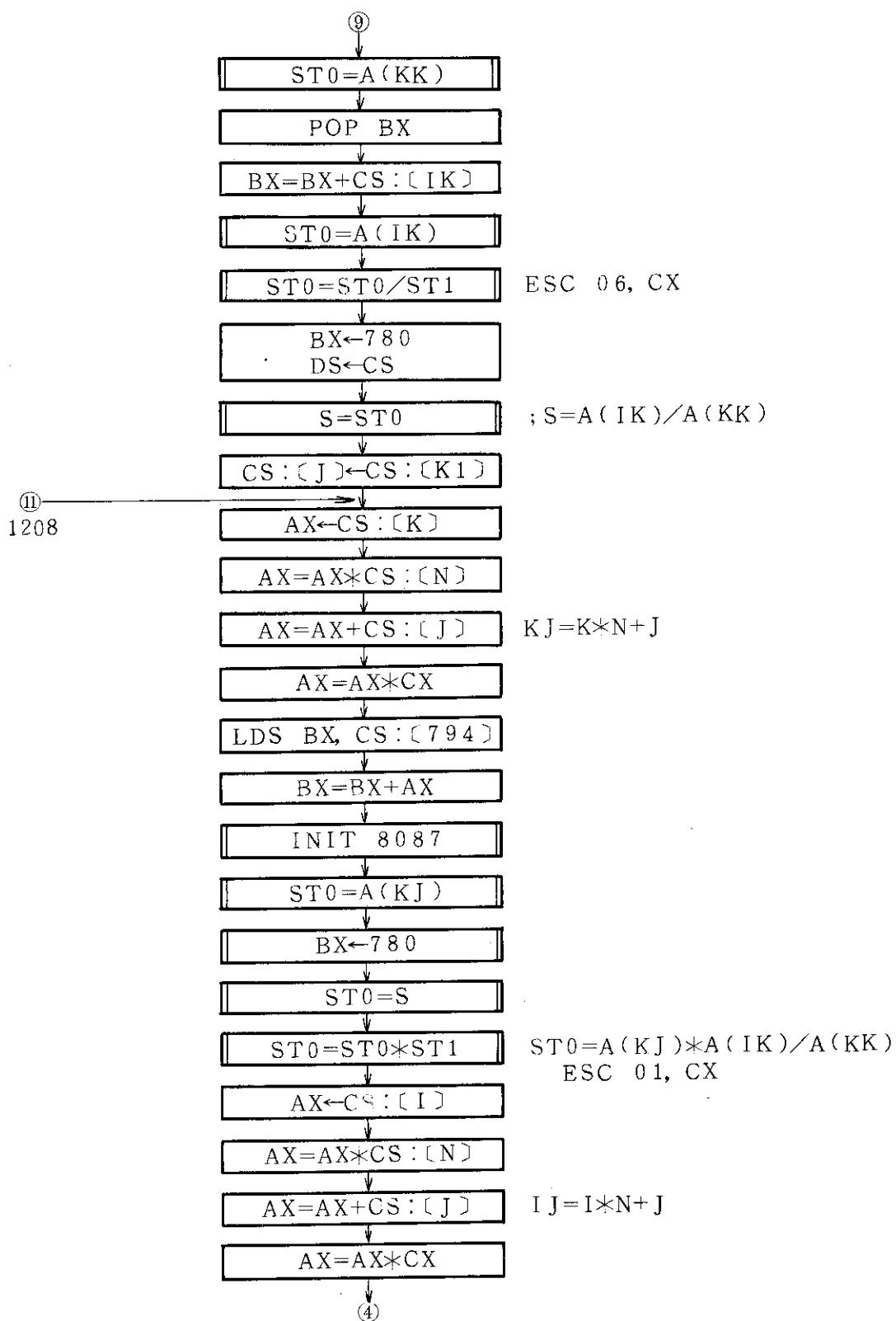


図 3.7 続き (その 6)

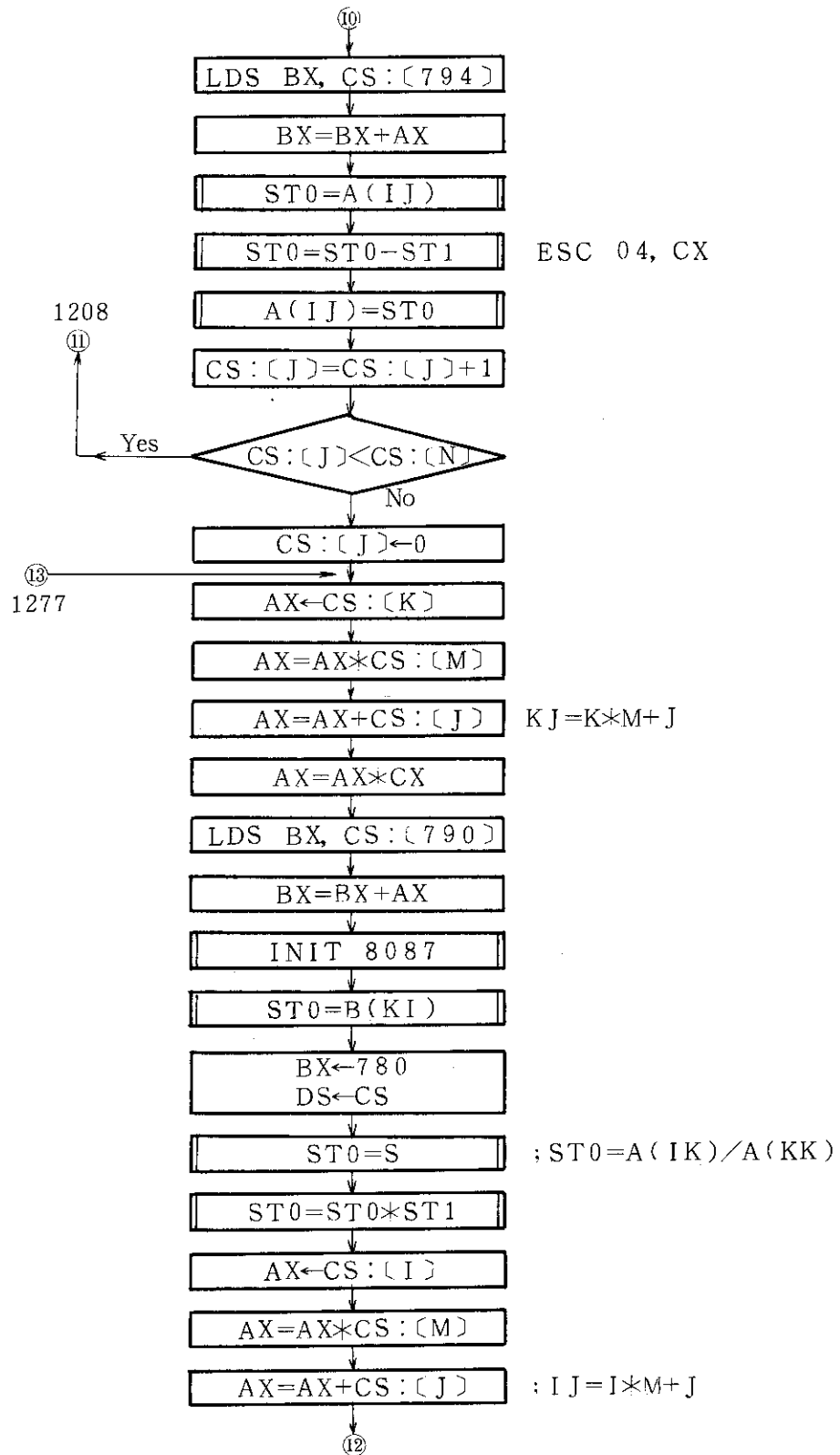


図 3.7 続き(その7)

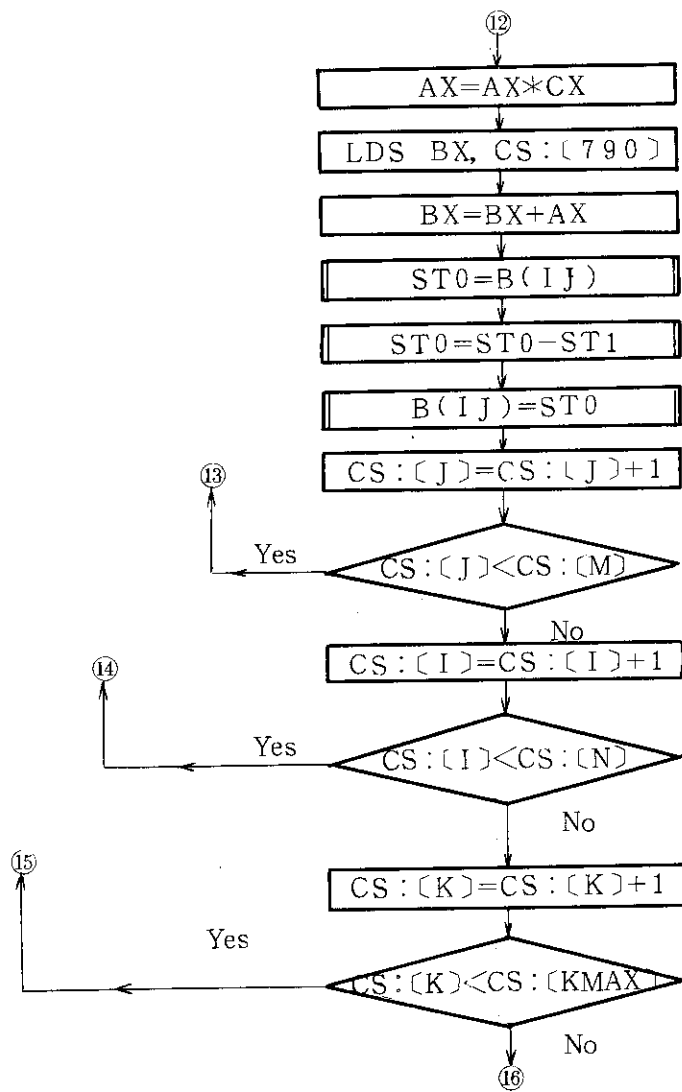


図 3.7 続き (その 8)

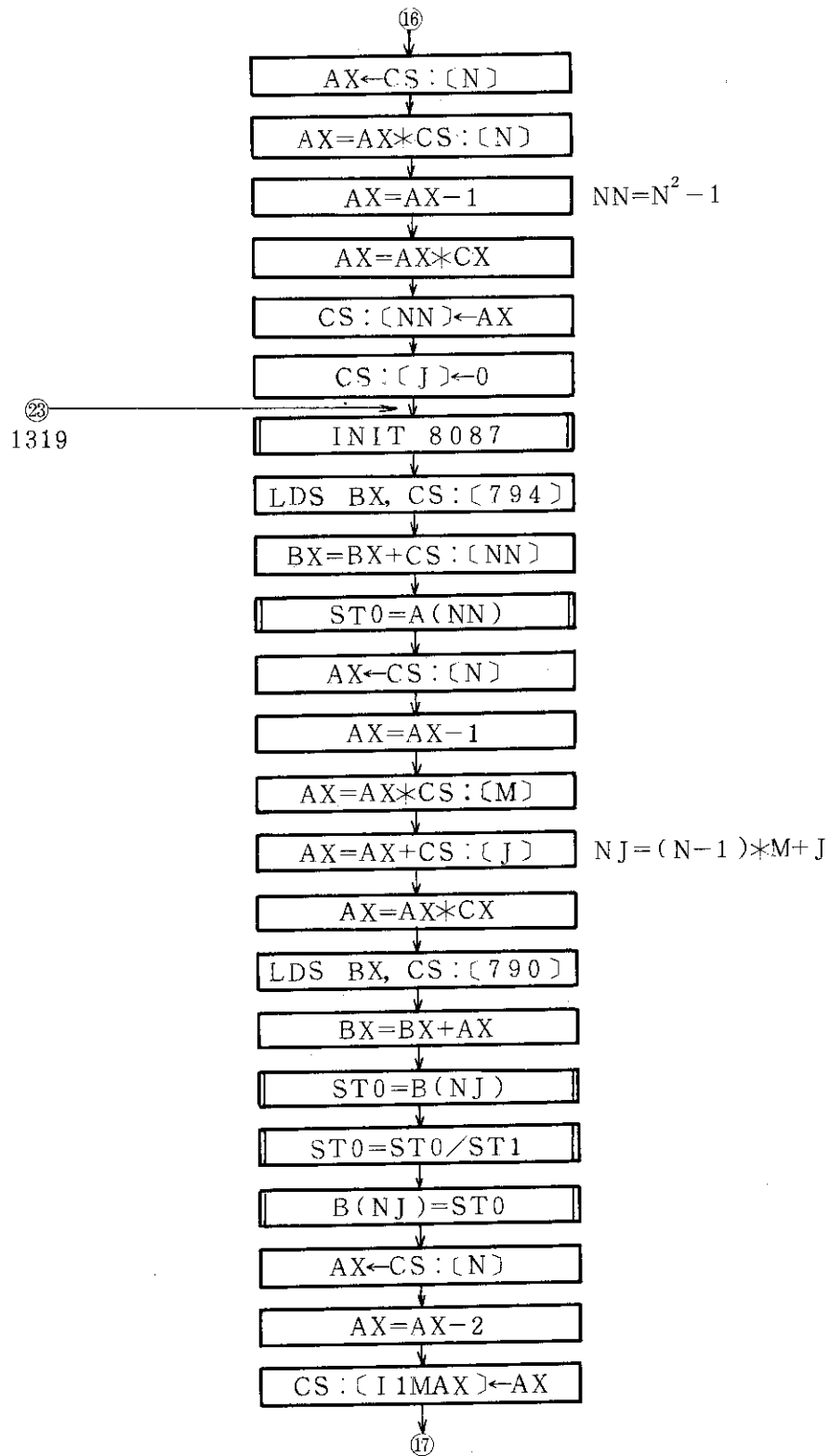


図 3.7 続き(その9)

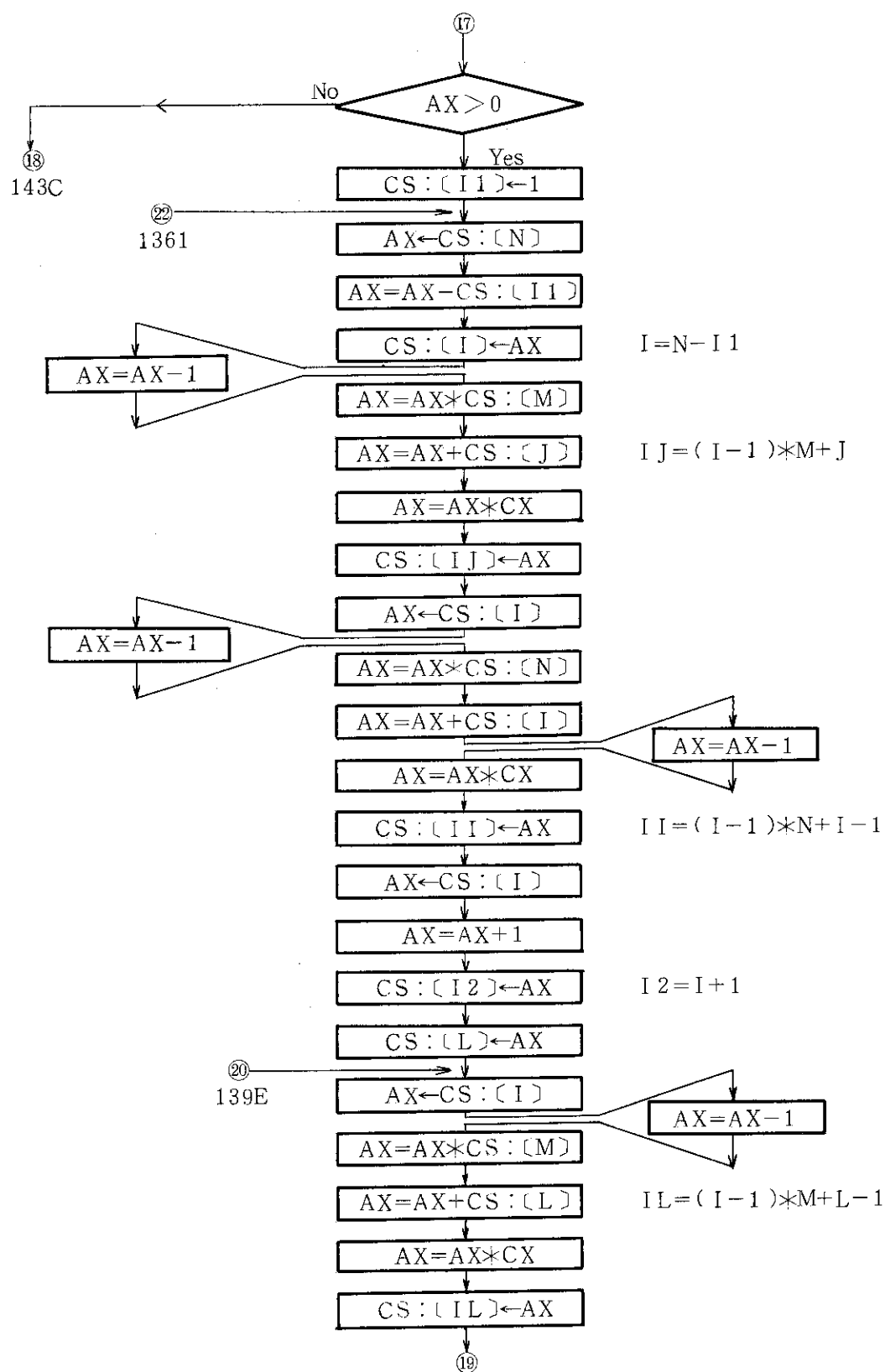


図 3.7 続き (その10)

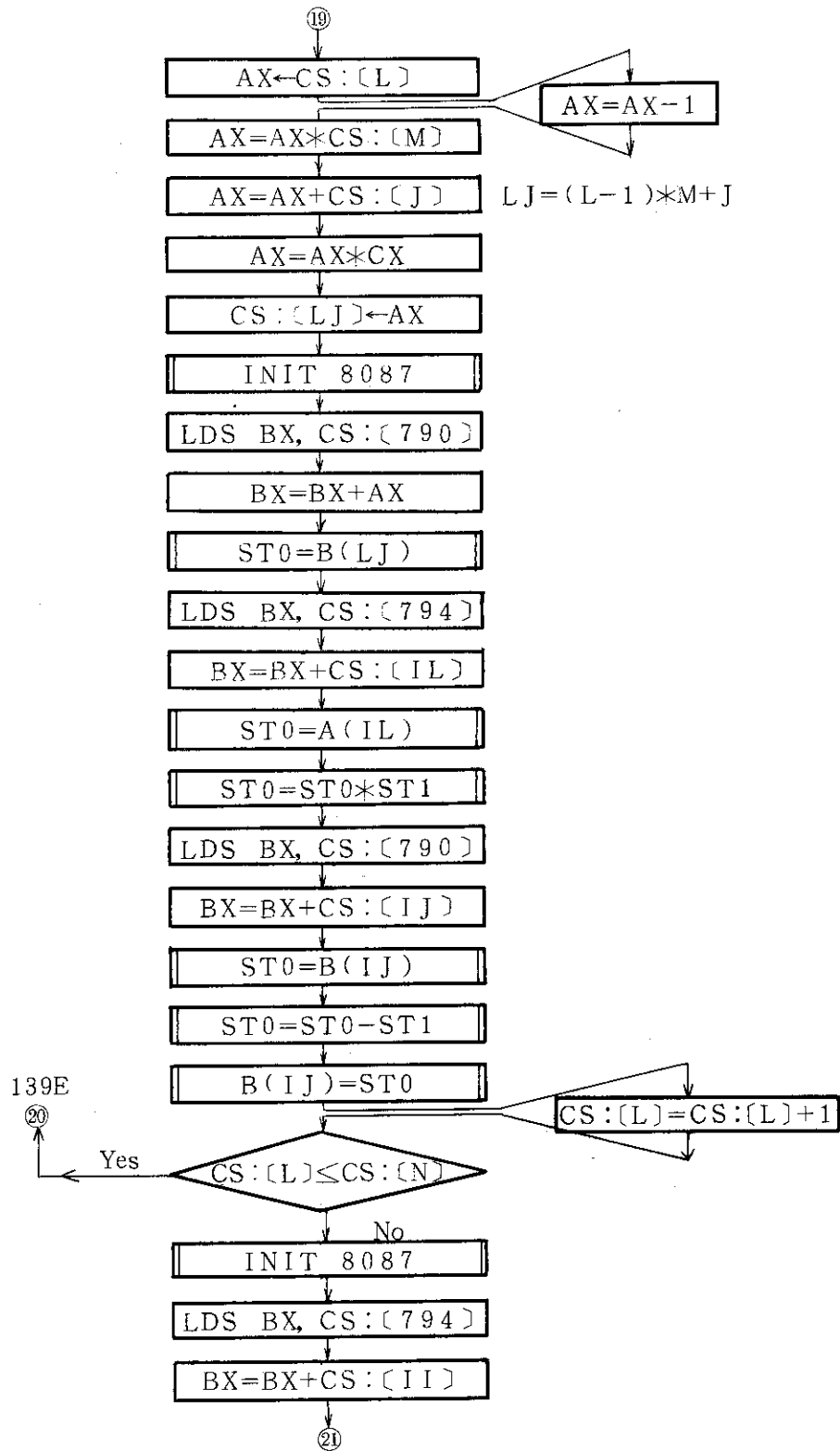


図 3.7 続き (その11)

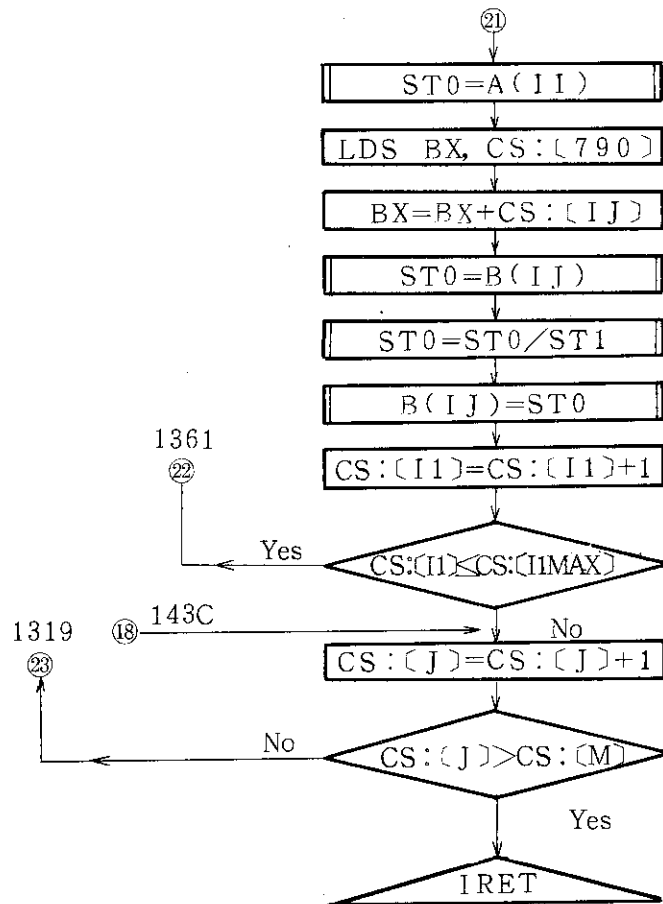


図 3.7 続き (その12)

表 3.1 PC-9801 (8087 付き) 用行列演算マシン語サブルーチン

			Seg=&H9000
①	MTXTRA	(A(0), R(0), M%, N%)	&H700
②	MTXMSC	(A(0), R(0), S, M%, N%)	&H800
③	MTXUNT	(A(0), N%)	&H900
④	MTXTRP	(A(0), R(0), M%, N%)	&HA00
⑤	MTXADD	(A(0), B(0), R(0), M%, N%)	&HB00
⑥	MTXSUB	(A(0), B(0), R(0), M%, N%)	&HC00
⑦	MTXMLT	(A(0), B(0), R(0), M%, L%, N%)	&HD00
⑧	MTXMBT	(A(0), B(0), R(0), M%, L%, N%)	&HE00
⑨	MTXMAT	(A(0), B(0), R(0), M%, L%, N%)	&HF00
⑩	MTXFQU	(A(0), B(0), N%, M%)	&H1000
⑪	CV9887	Reg. (CL, BX, DS) 指定	&H405
⑫	CV8798	Reg. (CL, BX, DS) 指定	&H430

A-4. お わ り に

パーソナル計算機PC-9801(8087付)において、N₈₈-BASIC(86)上で動作する行列演算用マシン語サブルーチン群を完成した。そして、本サブルーチン群の性能テストとして、線形・非線形の最小自乗法を用いた当てはめ計算を行なった。この結果、本サブルーチン群では高速数値演算プロセッサ8087をマシン語で制御して用いるため、複雑な行列演算が極めて高速で実施できることが確認され、本サブルーチン群の有効性が実証できた。

参考文献

- 1) S.ブランド著, 吉城肇, 高橋秀知, 小柳義夫訳「データ解析の方法」数理統計学とコンピュータ:みすず書房(1976年12月)
- 2) 日本電気株式会社「PC-9801 BASIC REFERENCE MANUAL」N₈₈-BASIC(86) N-BASIC(86) PC-9801-RM
- 3) 浅野泰之, 壁谷正洋, 金磯善博, 桑野雅彦 共著
「PC-9801システム解析(下)」アスキー・テクニカルバンク:アスキー出版局 (1983年9月)