

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. - 6

[技術情報室]

NaI / CsI 検出器による肺モニタの校正

Calibration procedures for lung counter using NaI / CsI detector

(人体等価ファントムによる校正と、Pu同位体組成比、
胸部軟組織厚さ、および²⁴¹Amの影響)

Calibration technique using tissue equivalent human phantom,
effects of Pu isotope ratio, chest soft tissue thickness and ²⁴¹Am

1979年11月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

この資料は、社内における検討、周

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

T N 8 4 1 - 7 9 - 5 2

1 9 7 9 年 1 1 月



NaI/CsI検出器による肺モニタの校正

(人体等価ファントムによる校正と、Pu同位体組成比、
胸部軟組織厚さ、および²⁴¹Amの影響)

Calibration technique using tissue equivalent human phantom, effects of Pu isotope ratio, chest soft tissue thickness and ²⁴¹Am

実施責任者 加藤 仁三*

報告者 小泉 勝三* 高塩 一教*

石黒 秀治*

期間 1978年10月2日～1979年9月14日

目的 吸入攝取などによって肺に沈着したPuおよび²⁴¹Amを体外から計測するため、NaI/CsI二重結晶を検出器を持つ肺モニタを校正する。

要旨 肺に吸入攝取したPuおよび²⁴¹Amを体外から計測するため、NaI/CsI二重結晶を検出器を持つ肺モニタを校正した。校正用線源には²⁴¹Amを分離したPuと²⁴¹Am線源を用い、ファントムには“ランド”を使用した。

ファントム実験から得た結果をヒトに適用する際に問題となるPu同位体組成比、胸部軟組織厚さ、および²⁴¹Amの影響について検討した。Puの同位体組成比に対する補正方法としてX/α比を用いる方法を提案した。実用的に使用されているPuについてX/α比を計算した結果、²³⁹Puが97%のものと48%のものではX/α比は約2倍異なる。

胸部軟組織厚さは、断層超音波装置を用いて成人男子60名について実測した。Puの17KeVエネルギー領域のLX線を用いて解析する場合、胸部軟組織厚さの影響は大きい。極端にやせたヒトと極端に太ったヒトとでは、肺中に同じ放射能のPuがあっても、肺モニタの計数率は約4倍変化する。

²⁴¹Amが存在する時には、まず²⁴¹Amを60KeVから定量し、別に求めたPu/²⁴¹Am比を用いて間接的にPuを定量する方法が現実的である。

ヒトを測定した時の実際の検出限界を検討した結果、原子炉級のPu(²³⁹Puが78%)について、50分計測で7nCiの値を得た。²⁴¹Amの60KeVに対する検出限界は、50分計測で0.3₃nCiの値を得た。

* 安全管理部 安全対策課

目 次

緒 言	1
1. 検出器および電子回路	2
1.1 検出器系の設計	2
1.2 電子回路の構成	7
2. 検出器系の特性	8
2.1 回路設定条件と S^2/N 比	8
2.2 バックグラウンド	9
3. 校 正	11
3.1 校正用線源	11
3.2 校正用ファントム	16
3.3 測定のジオメトリ	19
4. ファントムによる校正結果	21
4.1 ^{239}Pu および ^{241}Am のファントムによる校正結果	21
4.2 ^{40}K および ^{137}Cs の影響	27
5. 校正定数のヒトへの適用	30
5.1 Pu 同位体組成比の影響	30
5.2 胸部軟組織厚さの影響	36
5.2.1 LX 線および γ 線の軟組織に対する吸収率測定	36
5.2.2 ヒトの胸部軟組織厚さ測定	36
5.3 ^{241}Am の影響	42
6. 結果の総合検討	47
6.1 誤差評価	47
6.2 検出限界	49
7. 結 論	61
8. 今後の検討課題	62
9. 謝 辞	63
参考文献	64

緒 言

吸入摂取によって肺に取込まれた酸化Puの生物学的半減期は、肺モデル¹⁾によれば500日と長く、代謝によって除々に骨に移行する。²³⁹Puの非可搬性化合物(Class Y)については年摂取限度(ALI)は 5×10^2 Bq (13nCi)²⁾と厳しく、Pu吸入汚染時、肺に取込まれたPuを定量することは、肺の被曝線量のみでなく、骨の被曝線量を評価する上でも重要である。

非可搬性のPu化合物については、初期糞中のPu排泄量から肺モデルを使って、肺残留量を大ざっぱに評価することができる。しかし、体内に残留したPuを直接外部計測法によって定量することは、その個人のより正確な被曝線量を求めるという点から重要な意味をもっている。

このような肺に取込まれたPuを外部から直接測定する方法として肺モニタがある。肺モニタの研究開発は、国内においては、日本原子力研究所、放射線医学総合研究所を中心に行なわれてきた。開発の初期には大面積の比例計数管も試作された³⁾が、薄型のNaI検出器が感度の点で優れているため、この検出器が肺モニタ用検出器に主として利用されてきた^{4~6)}。一方、1974年頃からNaI結晶とCsI結晶を組み合わせた二重結晶構造の“ホスウィッチ型”検出器が、バックグラウンドを低くすることができ、その結果として検出限界が向上する利点があるため、肺モニタ用検出器として多く利用されるようになった^{7~14)}。

動燃・東海事業所においては、1970年に日本原子力研究所の協力により大型鉄室¹⁵⁾と、大面積比例計数管¹⁶⁾およびNaI検出器¹⁷⁾の肺モニタを各1台製作し、このうちNaI検出器を用いてPu取扱作業者の内部被曝モニタリングに使用してきた¹⁸⁾。

しかし、このNaI検出器は、経年変化によるTlの析出と、温度変化によると思われるひび割れのため分解能が低下し、使用できなくなった。そこで検出器の更新にあたり、文献調査を行なった結果、上に述べた“ホスウィッチ型”的検出器が、現時点において最も肺モニタ用検出器に適しているとの判断から、この“ホスウィッチ型”検出器について仕様検討を行ない、米国ハーシュ社から検出器一式を購入した。

本報告書は、この“ホスウィッチ型”検出器の特性試験と、Pu、²⁴¹Am線源を用いて行なった校正結果についてまとめたものである。また、肺モニタのデータから沈着量を評価する上で問題となるPuの同位体存在比、ヒトの胸部軟組織厚さ、および²⁴¹Amの影響などについても検討した。

1. 検出器および電子回路

1.1 検出器系の設計

“ホスウィッチ型”検出器系の仕様検討上留意した点は以下のとおりである。

- (1) 検出器の直径
- (2) NaI結晶とCsI結晶の厚さ
- (3) NaI結晶とCsI結晶からの信号分離回路
- (4) 検出器の配置

(1)の結晶の直径は、より高い感度を得るという点では面積の大きなものが良い。しかし、肺モニタの使用目的に照らして考えると、胸部の真上に20cm直径の検出器を1個おくよりも、10cm直径の検出器2台を左右の肺にそれぞれ配置した方が良いと考えられ、欧米諸国の肺モニタの比較検討結果もそのことをうらぎけている¹⁹⁾。また、1台の検出器が不良になった時にも、他の1台を使用することによって、Puの吸入汚染時に対処できるので、小型の検出器が2台あった方が良いと言える。

以上の理由から、検出器の直径は125cm直径に決定した。

(2)のNaI結晶の厚さは“ホスウィッチ型”検出器の仕様上最も重要なものである。Fig. 1にPuの放出する17 keVの特性X線および、²⁴¹Amの放出する59.5 keVのγ線に対する、NaI(Tl)結晶の吸収効率を示す。Fig. 1からPuの17 keVの特性X線は約0.4mmの厚さで100%吸収されることがわかる。また、²⁴¹Amの59.5 keVのγ線は約2mmで100%吸収されることがわかる。したがって²⁴¹Amの59.5 keVまでのγ線を測定する場合には、約2mmで良いことになる。一方、結晶の機械的強度の点からは、5mm厚さで20cm直径の結晶は、2年以内でひび割れのため使用不能になるという経験から、今回は(1)で述べた様に、検出器の直径のみを小さくし、NaIの厚さは従来通りの5mmとすることにした。また、CsIの結晶厚さは、¹³⁷Csのγ線で代表されるエネルギー領域を測定するため、厚さは50mmと決定した。検出器の入射窓には、低エネルギーX線の吸収を小さくするため、ベリリウム箔の250μmのものを使用した。また、光電子増倍管には⁴⁰Kが少なく、かつ、暗電流の特に少ない種類を各社のカタログ仕様から選択しRCA 4525を使用することにした。

(3)のNaIからの信号とCsIからの信号を弁別する回路は、長期間安定した性能が得られることと、回路の調整が容易に行ない得る点を考慮し、特に“ホスウィッチ型”検出器用として開発された米国ハーショウ社製のものを使用することにした。

(4)の検出器の配置は、検出器を左右の肺の真上に設定し、できるだけ体表面との間隔を小さくできる様に、上下移動と角度づけが容易に行なえる支持アームを製作することにした。

以上の設計仕様をもとに、米国ハーショウ社に製作を依頼した。その検出器の断面図を Fig. 2 に示す。

また、鉄室内の支持アームに取付けた 2 台の検出器の写真を Photo. 1 と Photo. 2 に示す。

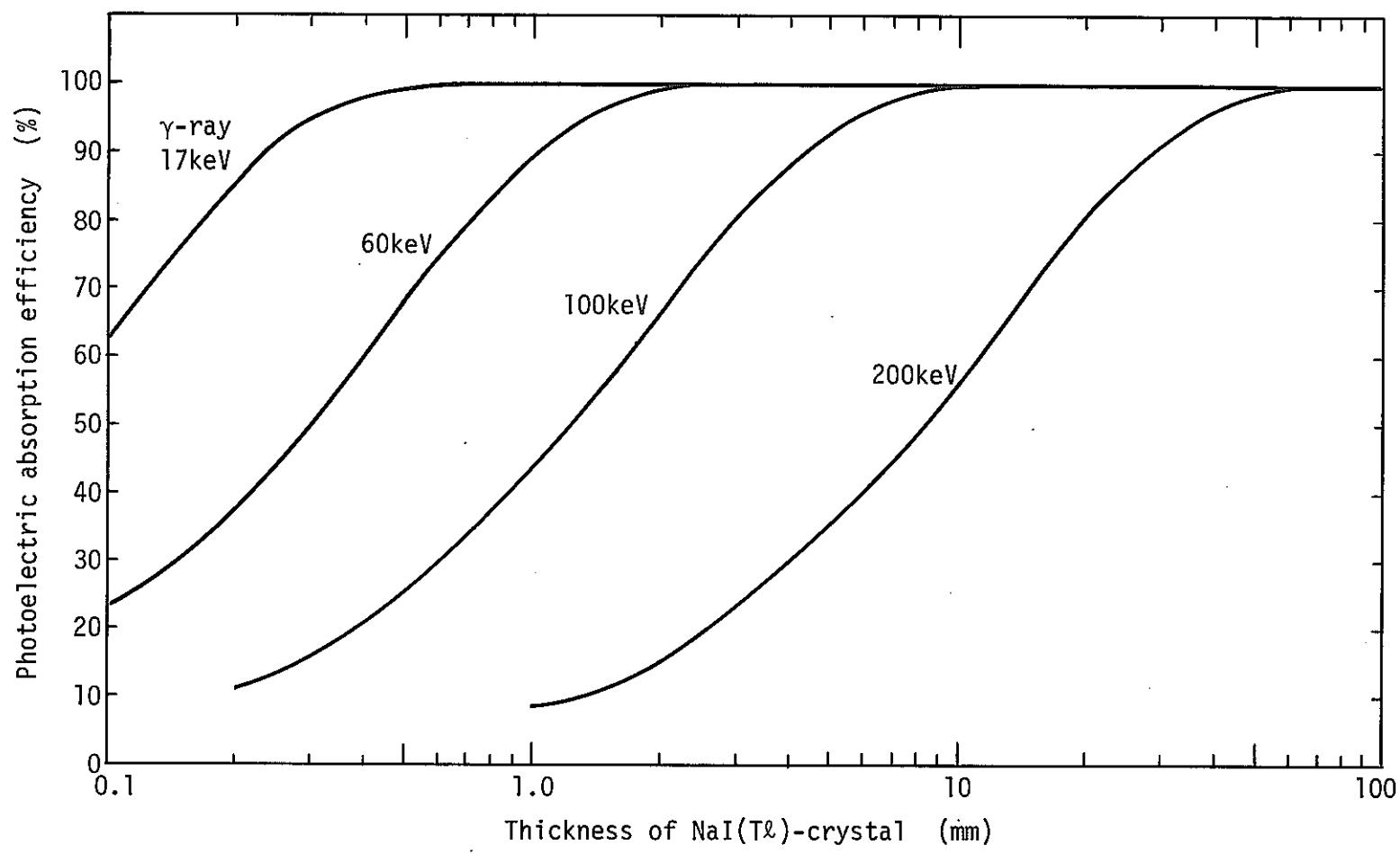


Fig. 1 Photoelectric absorption efficiency of NaI(Tl) crystal for narrow beam

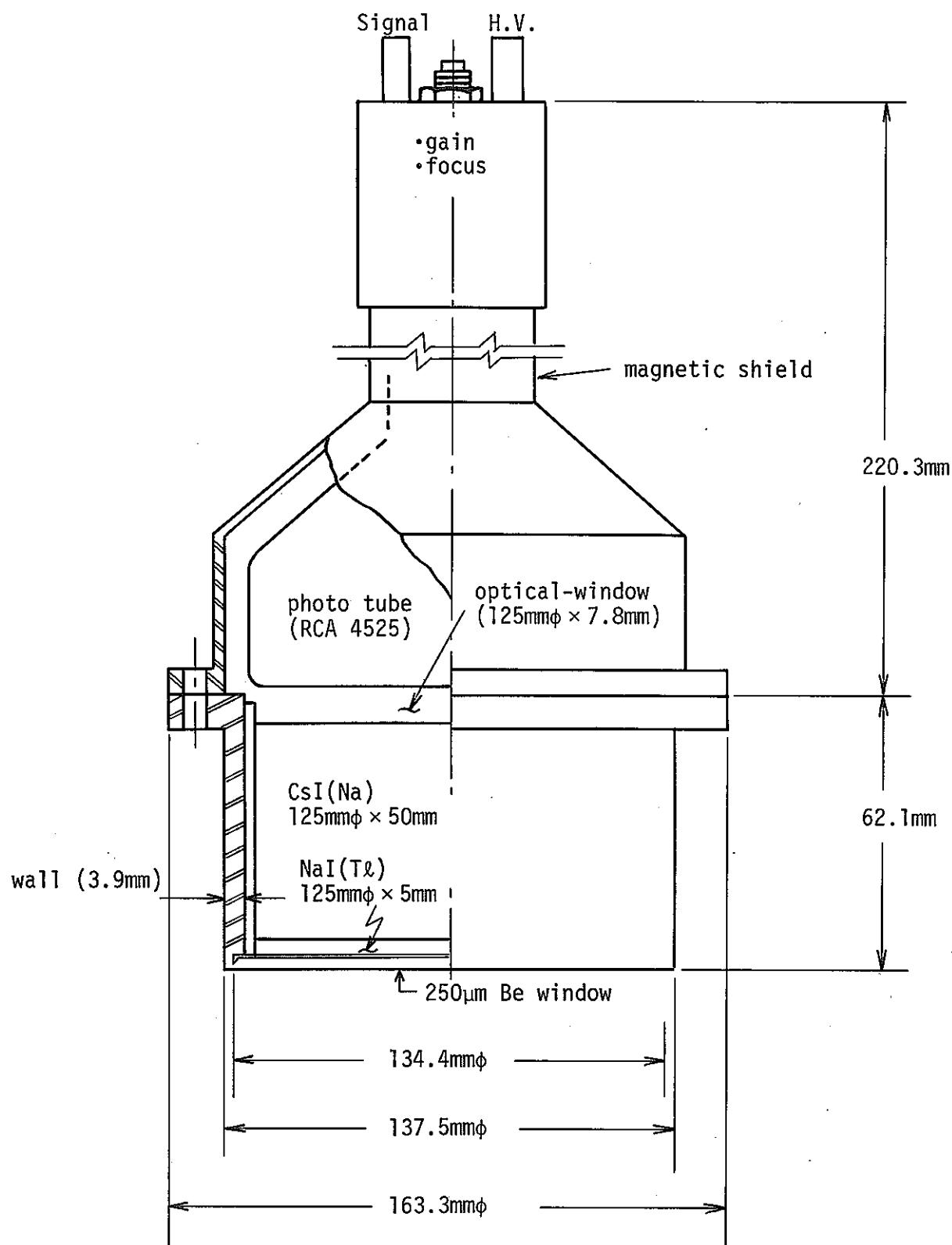


Fig. 2 Schematic configuration of NaI/CsI detector

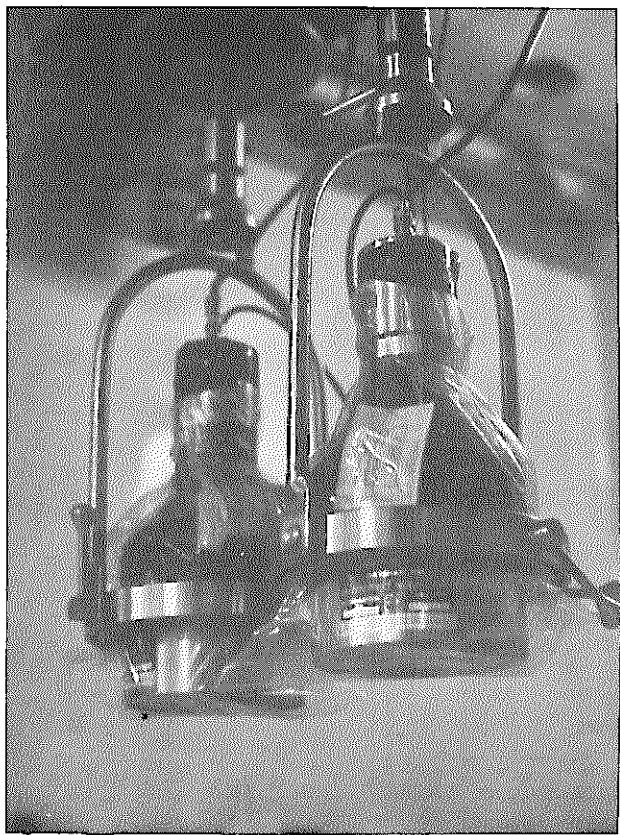


Photo. 1 Detectors of Lung counter

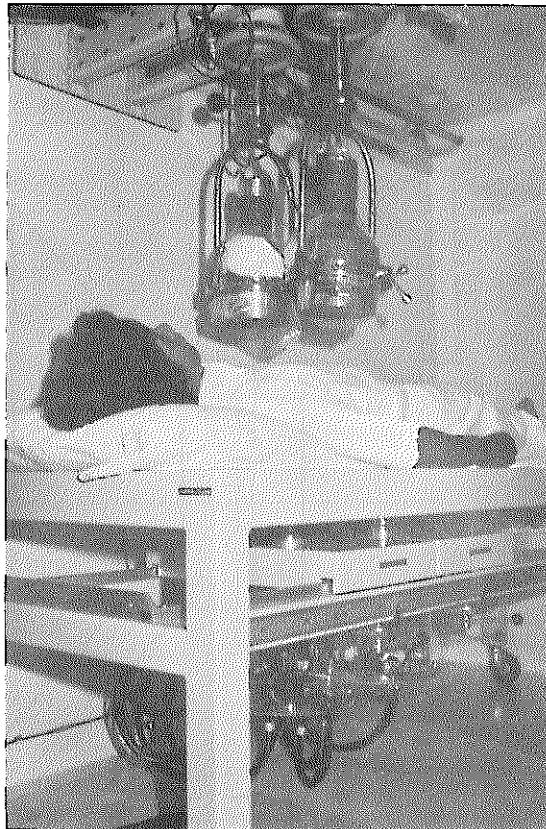


Photo. 2 Lung counter arrangement with subject

1.2 電子回路の構成

測定系は、前置増幅器、NaIとCsI信号の波形弁別回路、シングルチャンネル、リニアゲート、ディレイアンプ、低圧電源、および、高圧電源から構成されている。測定系の構成図をFig. 3に示す。

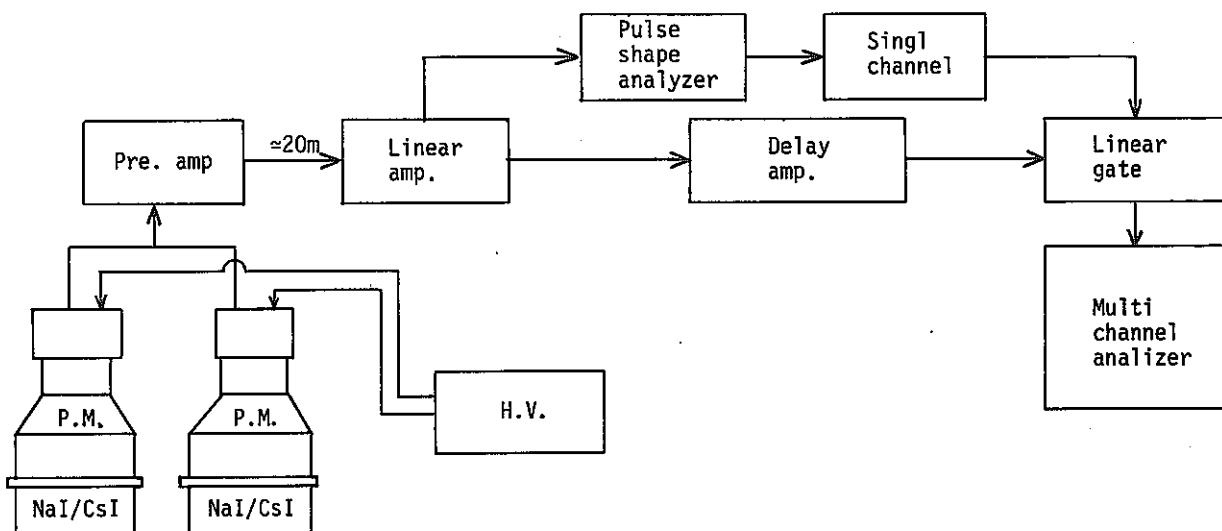


Fig. 3 Circuit block diagram

まず、2台の検出器の出力は、T字型コネクターで結合し、1台の前置増幅器に入る。この前置増幅器は電荷比例型である。前置増幅器でインピーダンス変換し、その出力は約20mのケーブルを経て直線増幅器に入る。この出力はFig. 3に示すように2本に分枝され、1本は波形弁別回路に入る。もう一本は、ディレイアンプを経てリニアーゲートに入る。この後者の信号を以下「元の信号」と呼ぶ。

波形弁別回路では、NaIとCsIの発光の減衰時間差が、それぞれのパルスの立ち上り時間の差となって現われることを利用し、この波形の違いを弁別する。ライズタイムの違いは、パルスハイトに変換され、NaIで発光したパルスと、CsIで発光したパルスは、この波形選別回路の出力では、異なったパルスハイトとして取出すことができる。つぎに、このNaIとCsIのいずれかの信号をシングルチャンネルで弁別し、その信号をゲート信号として、先に述べた元の信号に、同時または逆同時として作用させる。元の信号は、リニアゲートの位置でゲート信号と同期するように、波形弁別回路とシングルチャンネル分だけ遅延させる。

2. 検出器系の特性

2.1 回路の設定条件と S^2/N 比

Fig. 3 に示す回路において、ゲートの設定条件を決定するため、以下に示す 3 つの条件において S^2/N 比を測定した。

Pu および ^{241}Am の LX 線の解析エネルギー領域は、 ^{241}Am の点線源を用いて別に測定したエネルギー領域と S^2/N のデータから、LX 線に対しては 11.5 ~ 23 keV (以下「17 keV エネルギー領域」という。) とし、 ^{241}Am の 60 keV に対しては、50 ~ 68 keV (以下「60 keV エネルギー領域」という。) とした。

- (1) ゲートを常に開けた状態の場合
- (2) NaI 信号と元の信号の同時計数をとる場合
- (3) CsI 信号と元の信号の逆同時計数をとる場合

信号には、 ^{241}Am 線源の出力をとり、雑音には鉄室のバックグラウンドを用いた。

以上の設定条件において測定した S^2/N 比の結果を、Table.1 に示す。

Table 1. Comparison with S^2/N and gate conditions

Gate condition	S^2/N ratio		Background (cpm)	
	Pu-ch (11.5 ~ 23keV)	Am-ch(50 ~ 68keV)	Pu-ch (11.5 ~ 23keV)	Am-ch (50 ~ 68keV)
Gate on NaI (Tl) Coincidence	293 (10.2)	1551 (11.2)	8.0	9.5
Gate on CsI (Na) Anti. coincidence	182 (4.7)	966 (7.0)	16.3	17.3
Gate off	39 (1.0)	139 (1.0)	61.9	100

Table 1 から、ゲートを常に開けた状態の場合の S^2/N 比の値を 1.0 とすると、CsI 信号と元の信号の逆同時計数を取った時の S^2/N 比は、4.7 になり、また NaI 信号と元の信号の同時計数を取った時の S^2/N 比は 10.2 となる。

したがって、 S^2/N 比の点では、NaI 信号と元の信号の同時計数、すなわち、NaI 信号が来た時、ゲートを開ける条件が良いと言える。

以上の結果から以後の測定は全て、このNaI信号と元の信号の同時計数をとる設定条件で行なうこととした。

2.2 バックグラウンド

2.1節で述べた回路の設定条件で測定したバックグラウンドスペクトルをFig.4に示す。

(A)は鉄室のバックグラウンドスペクトル、(B)は汚染していない人の人体バックグラウンドスペクトルである。

17 keVエネルギー領域の人体バックグラウンドは、13 cpmであり、鉄室のバックグラウンドの1.3倍である。60 keVエネルギー領域の人体バックグラウンドは、41 cpmで鉄室のバックグラウンドの4.1倍である。

これは、ヒトの体内に含まれている約100 nCiの⁴⁰Kと約1 nCiの¹³⁷Csの影響によるものである。

Fig.4の鉄室のバックグラウンドスペクトルに認められる75 keVのピークは、鉄室を構成している鉛の娘核種(²¹⁴Bi)の放出する特性X線によるものである。

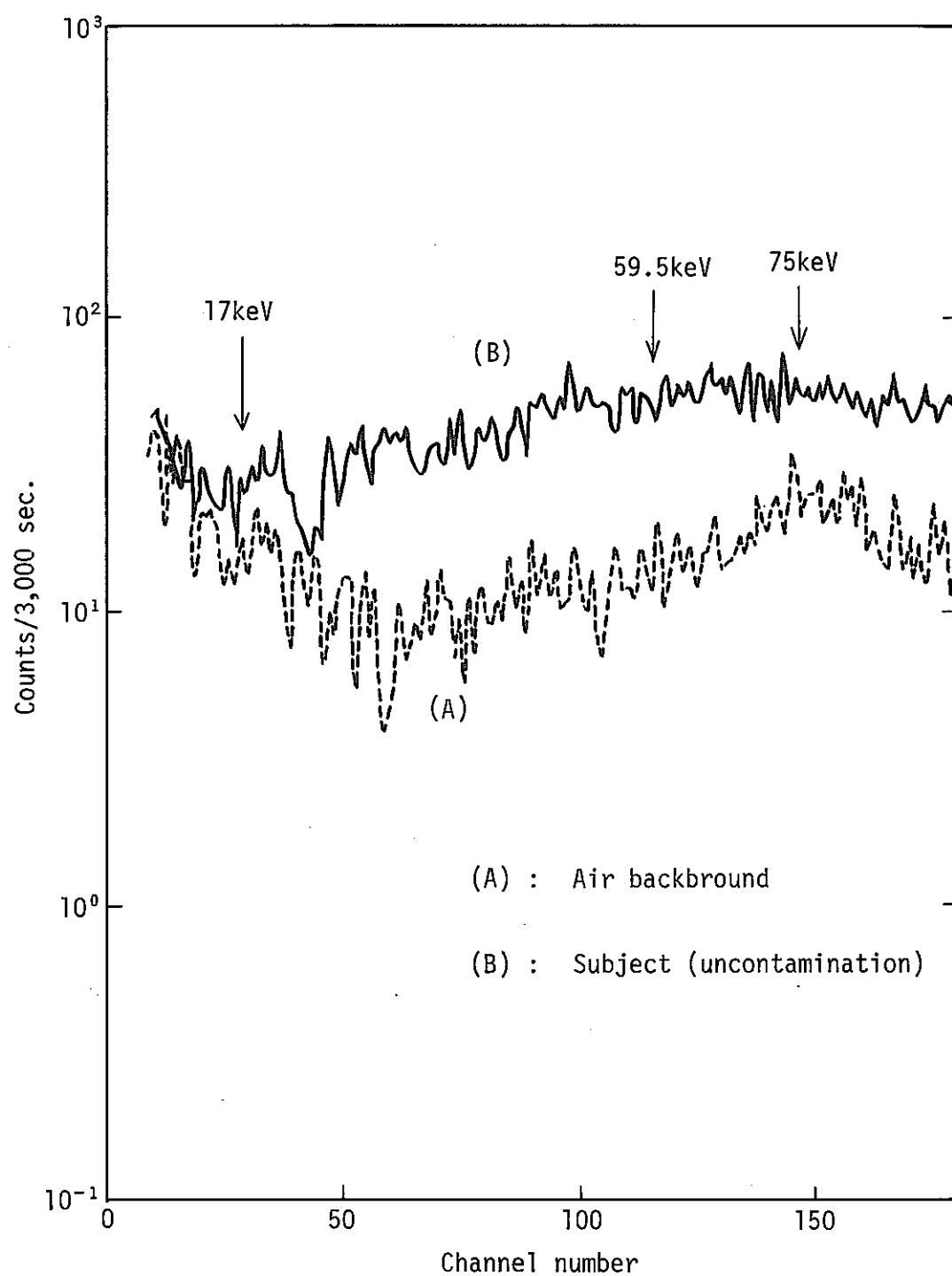


Fig. 4 Background spectrum with phoswich detector

3. 校 正

肺モニタの校正方法には、大別すると¹⁰³PdなどのPuの特性X線に近いエネルギーのγ線を放出する放射性物質をヒトに直接吸入させて行なう直接法²⁰⁾と、ヒトの生体組織と等価な密度の材質で作った人体模擬ファントムとPu線源を用いて行なう間接法^{21), 22)}がある。日本においてはヒトに放射性物質を医療行為以外の目的で投与することは殆んど不可能である。そこで、人体模擬ファントムとPu線源を用いて検出器系を校正することにした。

人体模擬ファントムを用いて校正する場合にも、いくつかの問題がある。

1つは校正に使用する線源の問題で、もう一つは校正に使用するファントムの問題と測定のジオメトリの問題である。以下にその詳細について述べる。

3.1 校正用線源

肺モニタを校正する場合、Puに対する校正と²⁴¹Amに対する校正が必要となる。²³⁹Puについて校正する場合には²³⁸Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu、²⁴²Puが極力少い同位体比のPuが必要となる。²⁴¹Puが崩壊してできる²⁴¹Amは、17 keVエネルギー領域に、²³⁹Puよりも1桁高い放出割合で特性X線を放出する。したがって、Puとともに²⁴¹Amが含まれている場合には、²⁴¹Amを分離することが必要となり、また、²⁴¹Amが²⁴¹Puから生成する量を少くするため²⁴¹Puの存在比の少ないものを選ぶ必要がある。

さらに、Puに対する校正定数を求めるためには、先に述べたPuの同位体存在比が明らかでなければならない。

この様な条件を満足するPuを調べ、その結果として、NBS-949Cを用いることにした。このNBS-949Cの同位体存在比をTable 2.に示す。また、このPu溶液は²⁴¹Amを含んでいたため、イオン交換法によって²⁴¹Amを分離した。イオン交換の後、²⁴¹Amが分離できていることを確認するため、Ge半導体検出器を用いてγ線スペクトルを測定した。そのスペクトルをFig. 5に示す。

Fig. 5から、²⁴¹Amの放出する59.5 keVのγ線は全く検出されず、Puの放出する13.6 keV 17.2 keV、20.2 keVのL X線および、38.7 keVと51.7 keVのγ線のみが検出されているところから、²⁴¹Amの分離は完全に行なわれていると言える。

つぎに、この溶液状のPuを肺モニタ用の線源にするため、Photo. 3とFig. 6に示すカプセル線源を作成した。カプセルは、塩化ビニール製のチューブで、肉厚は1.0 mmである。このチューブの中に短冊型のろ紙を入れ、このろ紙に、20 μlのPu硝酸溶液(0.1 N)を滴下し、水分を蒸発させた後、チューブの端を接着剤を用いて密封した。このようなカプセルを200

個製作した。

このPu硝酸溶液 $20\mu\ell$ 中の α 放射能を定量するため、カプセル線源の作成過程において、40個毎に、1回につき $20\mu\ell$ を液体シンチレーション用のバイアルビンに分取し、合計5個について、液体シンチレーションカウンタを用いて α 放射能を測定した。

この結果から塩化ビニールチューブカプセル1個当りのPuの α 放射能は $5.9 \pm 0.07\text{ nCi}$ と決定した。

したがって、カプセル200個の α 放射能は $1.2 \times 10^3\text{ nCi}$ となる。

また ^{241}Am についても日本アイソトープ協会から購入した $^{241}\text{Am}(\text{NO}_3)_3$ 溶液を使用し、Puと同じ方法を用いて塩化ビニールチューブカプセル線源を作成した。 ^{241}Am のカプセル1個当りの α 放射能は、Puと同様に液体シンチレーションカウンタを用いて α 放射能を測定し、その結果カプセル1個当りの ^{241}Am の α 放射能は $0.26\text{ nCi} \pm 0.004\text{ nCi}$ と決定した。

したがって、カプセル200個の α 放射能は 52 nCi となる。

Table 2. Isotope ratio of NBS-949C Pu source

Isotope	Weight percent (w/o)
^{238}Pu	0.00343
^{239}Pu	97.358
^{240}Pu	2.579
^{241}Pu	0.0564
^{242}Pu	0.00291

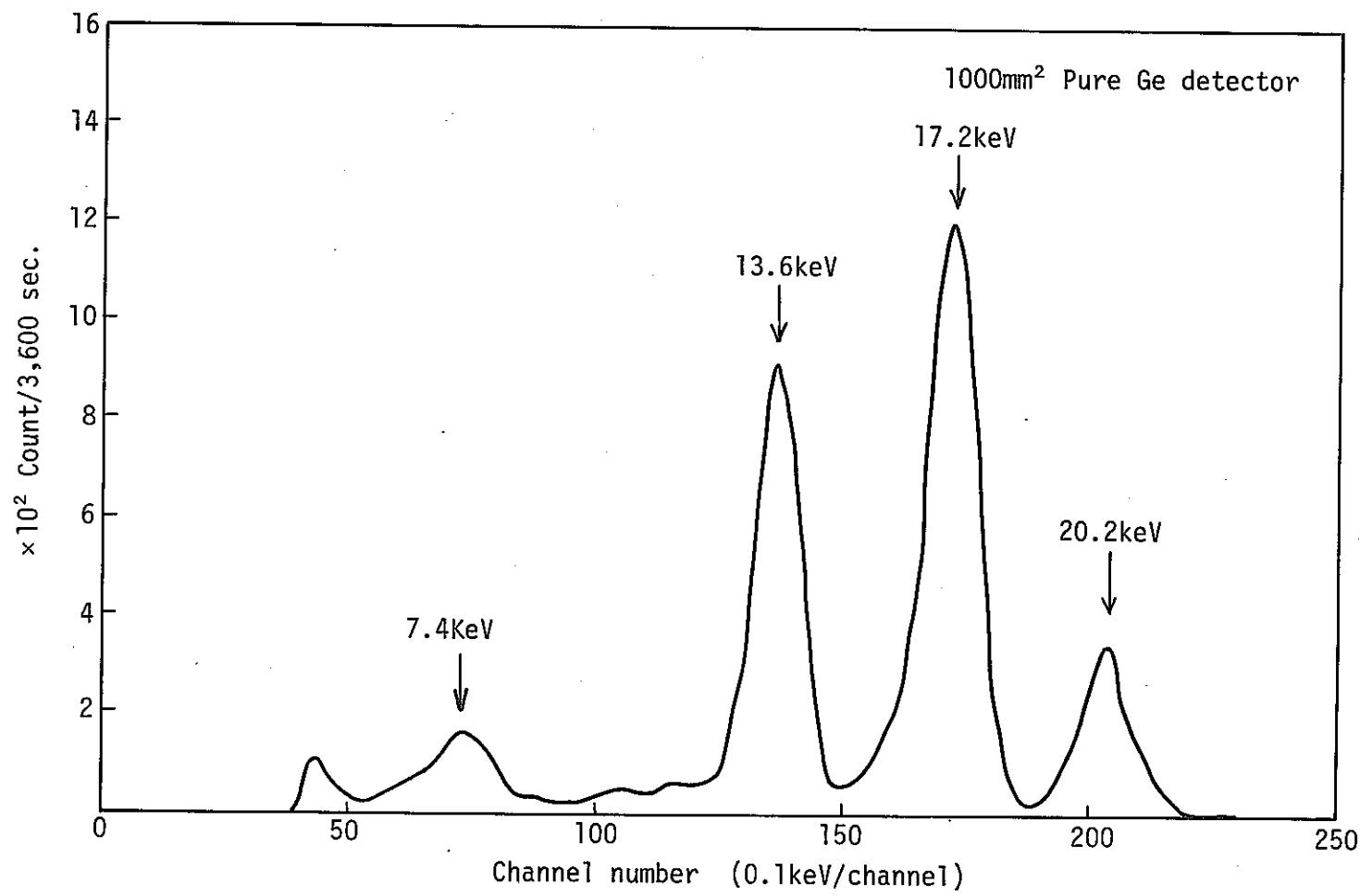


Fig. 5 LX-rays and γ -rays spectrum of Pu source obtained from pure Ge Detector

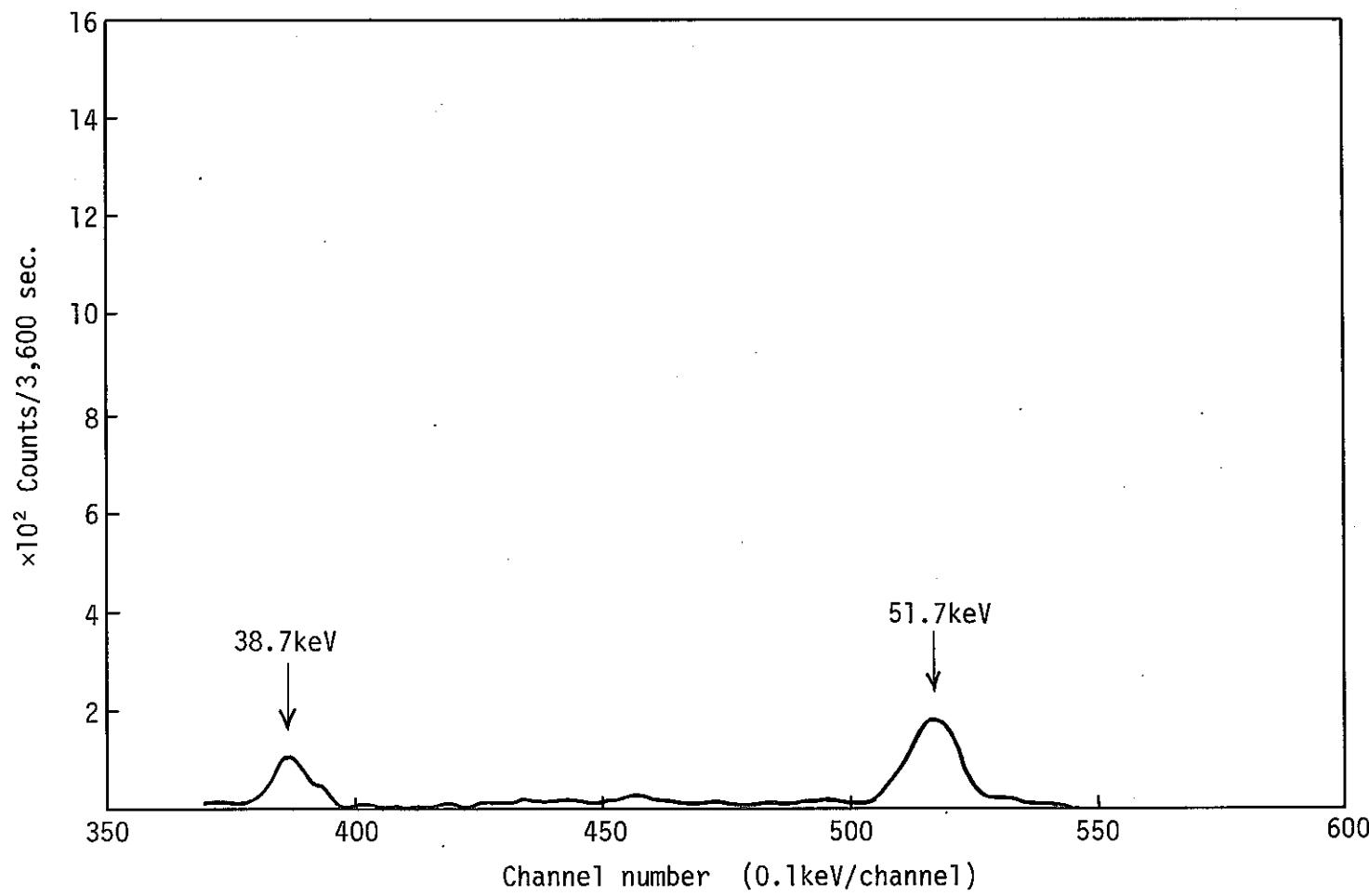


Fig. 5 (Continue) LX-rays and γ -rays spectrum of Pu source obtained from pure Ge detector

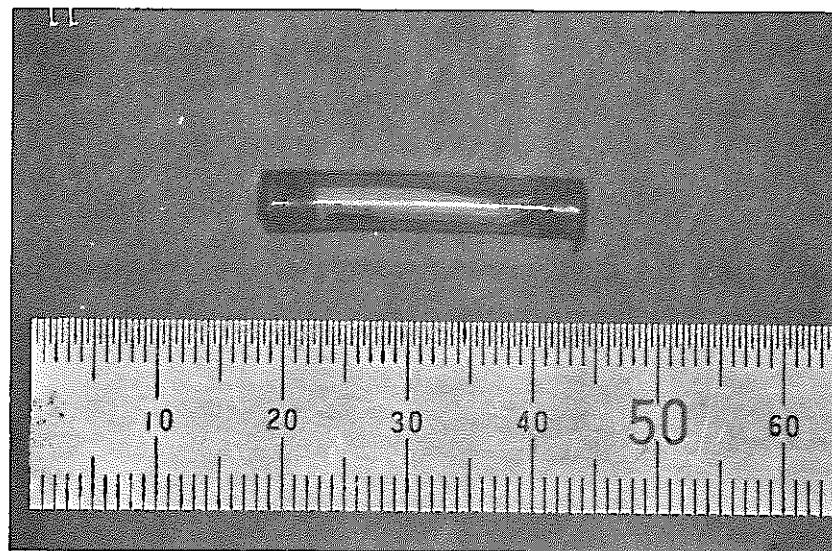


Photo. 3 Capsule source for calibration of lung counter

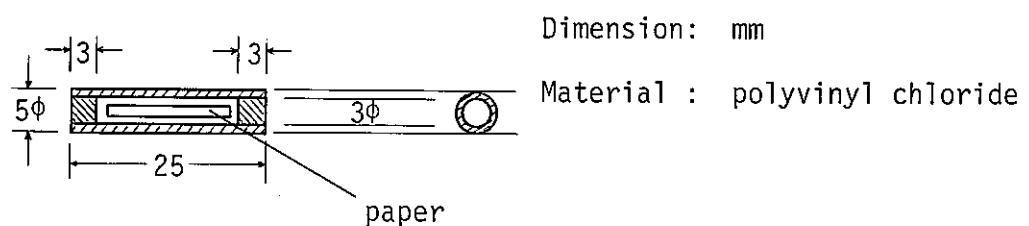


Fig. 6 Capsule source for calibration of lung counter

3.2 校正用ファントム

校正用ファントムにはアルダーソン社の“ランドファントム”を使用した。このファントムはX線に対する吸収が人体と等価になる様に使られている。胸部には、実際のヒトの胸椎、肋骨、胸骨、肩胛骨、および鎖骨を使用し、肺は密度 $0.32\text{ (g/cm}^3)$ になっている。このファントムの仕様をTable 3. に示す。また、このファントムの外観写真と、スライス面の写真をそれぞれPhoto. 4 と Photo. 5 に示す。

胸部は、10枚のスライス面からなっており、1枚のスライス厚さは25mmで、線源を挿入する穴の直径は6 mm、穴と穴は3 cm間隔に格子状に開けられている。このファントムの正面X線写真と、各スライス横断面X写真から肺の位置を確認し、肺と気管支の部分に対応する穴に3.1節に述べた塩ビチューブのカプセル線源を挿入した。肺を含む各スライスに挿入したカプセル線源の数は合計200個である。各スライスに挿入したカプセル数をTable 4. に示す。

Table 3. Specification of Rando phantom

	Material	Body build
Rando (Alderson)	Radioequivalent to corresponding human material $Z : 7.30$ $\rho : 0.985$	Height: 175cm, Weight: 73.5kg Effective atomic number: 7.30 Mass density of lung: 0.32 With human skeleton

Table 4. Number of capsule source in each slice of Rundo phantom

Slice No.	Number of capsule source		
	Pulmonary	Branch	Pulmonary + Branch
9	0	5	5
10	0	6	6
11	5	7	12
12	12	8	20
13	22	0	22
14	27	0	27
15	21	0	21
16	26	0	26
17	25	0	25
18	19	0	19
19	13	0	13
20	4	0	4
Total	174	26	200

N841-79-52

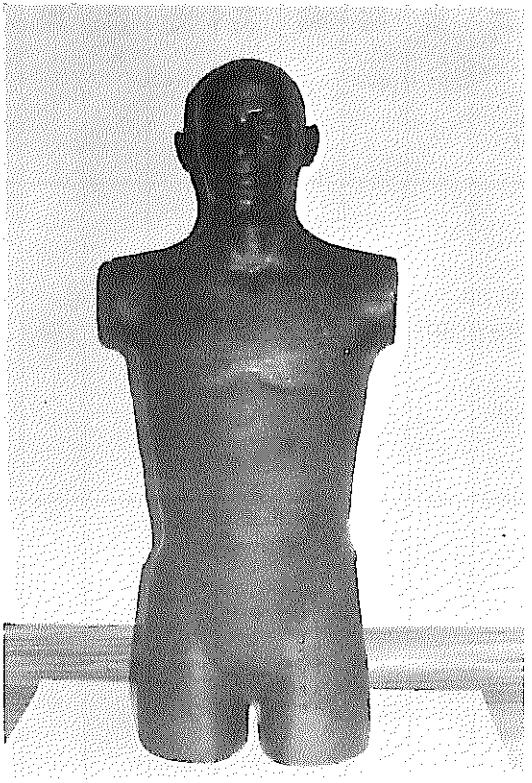


Photo. 4 Rando phantom for calibration

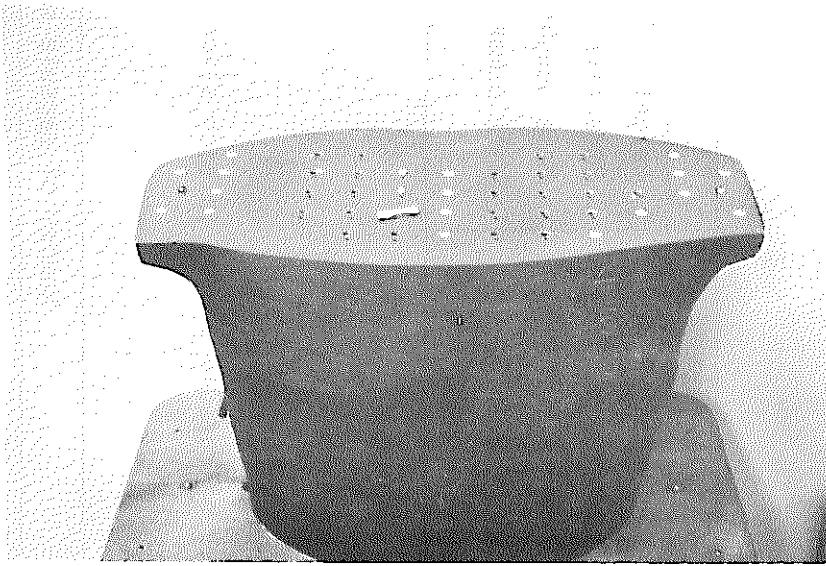


Photo. 5 Cross section of Rando phantom

3.3 測定のジオメトリ

肺モニタの校正にあたっては、肺中に線源をどの様に分布させて行うか、また、肺と検出器の配置をどの様に設定するかによって、計数効率が変化する。ICRP Pub. 26²³⁾においては、肺に吸入した放射性粉塵の分布は、被曝線量計算の立場からは、均一分布を仮定した場合の方が不均一分布を仮定した場合より過大評価側になるとしている。計数効率を求める場合も、均一分布の場合の方が不均一分布の場合より、計数効率は小さくなるので、沈着量を評価する上からは過大評価側になる。そこで、ファントムの肺中Puの分布は、均一分布の状態で行なうこととした。

Table.4 に示した数のカプセル線源をファントムの肺および気管支につめ、ファントムと検出器間距離を 5 mm に保ち、検出器を体軸方向に 5 cm 間隔で移動させ、その時の計数効率の変化を求めた。

スペクトル解析は 17 keV エネルギー領域と、60 keV エネルギー領域について行なった。その解析結果を Fig.7 に示す。Fig.7 から、17 keV エネルギー領域の計数率は、検出器中心が、ファントムのセクション No.15 の上有る時に最も高い計数率が得られることがわかった。この位置は解剖学的には胸骨の下端に対応している。

検出器中心がこの位置から 10 cm 頭部側になると、計数率は、最高位置の計数率の 15% に減少する。このことから 17 keV エネルギー領域の解析においては、検出器の位置設定が測定結果に大きく影響することがわかる。

60 keV エネルギー領域の場合は、検出器中心がファントムのセクション No.15 の時に最も高い計数率が得られ、この位置から検出器中心が 10 cm 頭部側になると、計数率は最高位置の計数率の 74% になり、位置の違いによる計数率の変化は、17 keV エネルギー領域の計数率の変化に比べて少ない。

以上の結果から、検出器の位置は、検出器の中心が、胸骨の下端に来る様に設定することに決定した。

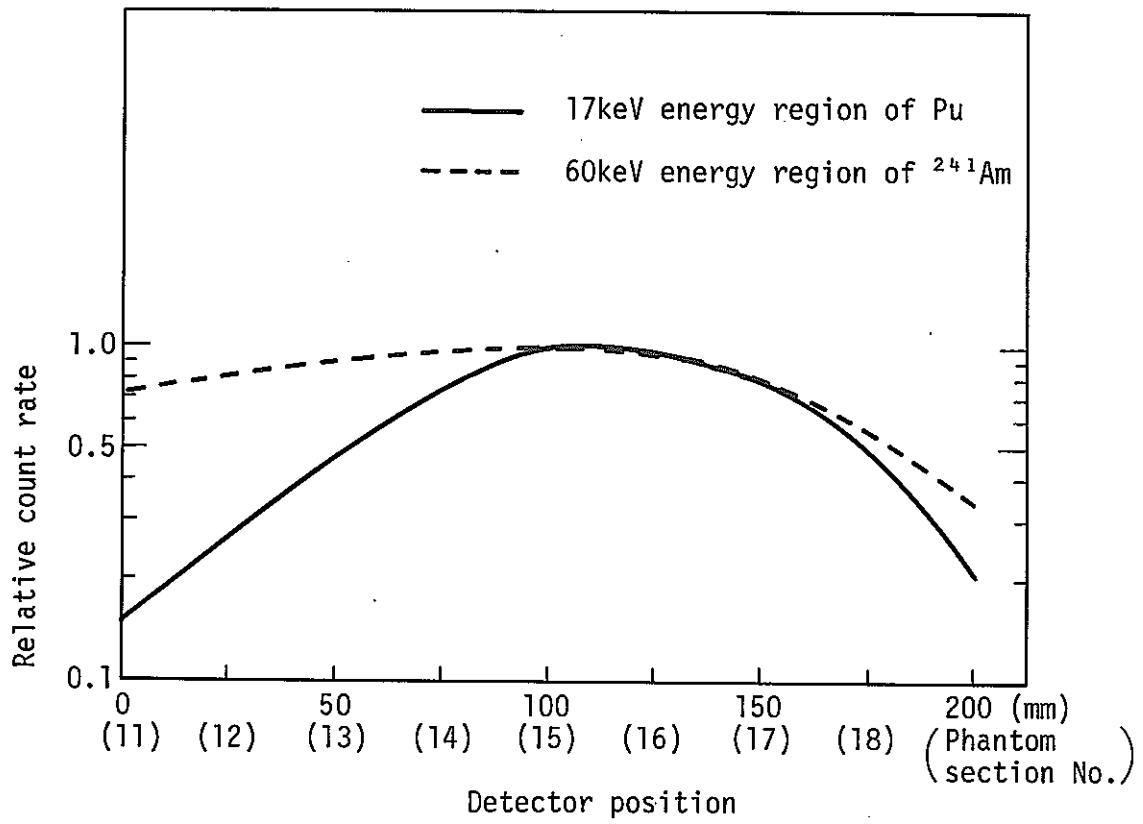


Fig. 7 Relative counting efficiencies in different detector position

4. ファントムによる校正結果

4.1 Puおよび²⁴¹Amのファントムによる校正結果

3.1節で述べた線源と、3.2節で述べたファントムを用いて、Puと²⁴¹Amに対する計数効率を求めた。検出器の位置は、3.3節で述べた検出器中心がファントムのセクションNo 15に来る位置である。

検出器の分解能、バックグラウンドおよび計数効率をまとめてTable 5に示す。Table 5には、比較のために従来用いてきた20cm直径のNaI(Tl) 単一結晶の検出器から得られるデータを共に示した。

Table 5.からわかる様に、NaI/CsI "ホスウィッチ型" 検出器は、分解能、バックグラウンドとも、20cm直径単一結晶の検出器に比べて、分解能は向上し、バックグラウンドは、17 keV エネルギー領域で $\frac{1}{3}$ に、60 keV エネルギー領域で $\frac{1}{2.5}$ になった。計数効率は、測定のジオメトリが異なるので、20cm直径のNaI 単一結晶検出器とNaI / CsI "ホスウィッチ型" 検出器について比較はできない。

NaI / CsI "ホスウィッチ型" 検出器の"ランドファントム"についてTable 2に示す同位体組成比のPu線源を用いて得られたPuの17 keVエネルギー領域に対する計数効率は0.16 cpm/nCiであった。また、²⁴¹Amの17 keVエネルギー領域に対する計数効率は3.4 cpm/nCiであり60 keVエネルギー領域に対する計数効率は27 cpm/nCiであった。

²⁴¹Amの点線源(RCC製; 1.04 μCi)を検出器直下80cmの所において測定した時に得られる、L X線およびγ線スペクトルをFig.8に示す。

"ホスウィッチ型" 検出器は50mm厚さのCsI(Na)結晶を持っているので、主増幅器と波形処理回路の条件をCsI信号を取り出す条件に設定し、この出力信号と元の信号についてリニアゲートの位置でコインシデンスをとれば、CsIの出力のみをとりだすことができる。この設定条件で測定した¹³⁷Csのγ線スペクトルをFig.9に示す。この時の¹³⁷Csの662 keVに対する分解能は11%であった。

²⁴¹Amカプセル線源200個を空气中に置いて測定した時と、同じ線源をランドファントムの肺に入れて測定した時のX線およびγ線スペクトルをFig.10に示す。

Fig.10において、²⁴¹Amの60 keVエネルギー領域の計数率は、"ランドファントム"中に線源を入れた場合、空气中において測定した時の計数率の約 $\frac{1}{3}$ に減少する。また、²⁴¹Amの17 keVエネルギー領域の計数率は、ランドファントム中に線源を入れた場合、空气中において測定した時の計数率の $\frac{1}{10}$ に減少する。

Fig.11に、²⁴¹Amを分離したPuカプセル線源200個を空气中に置いて測定した時と、同じ

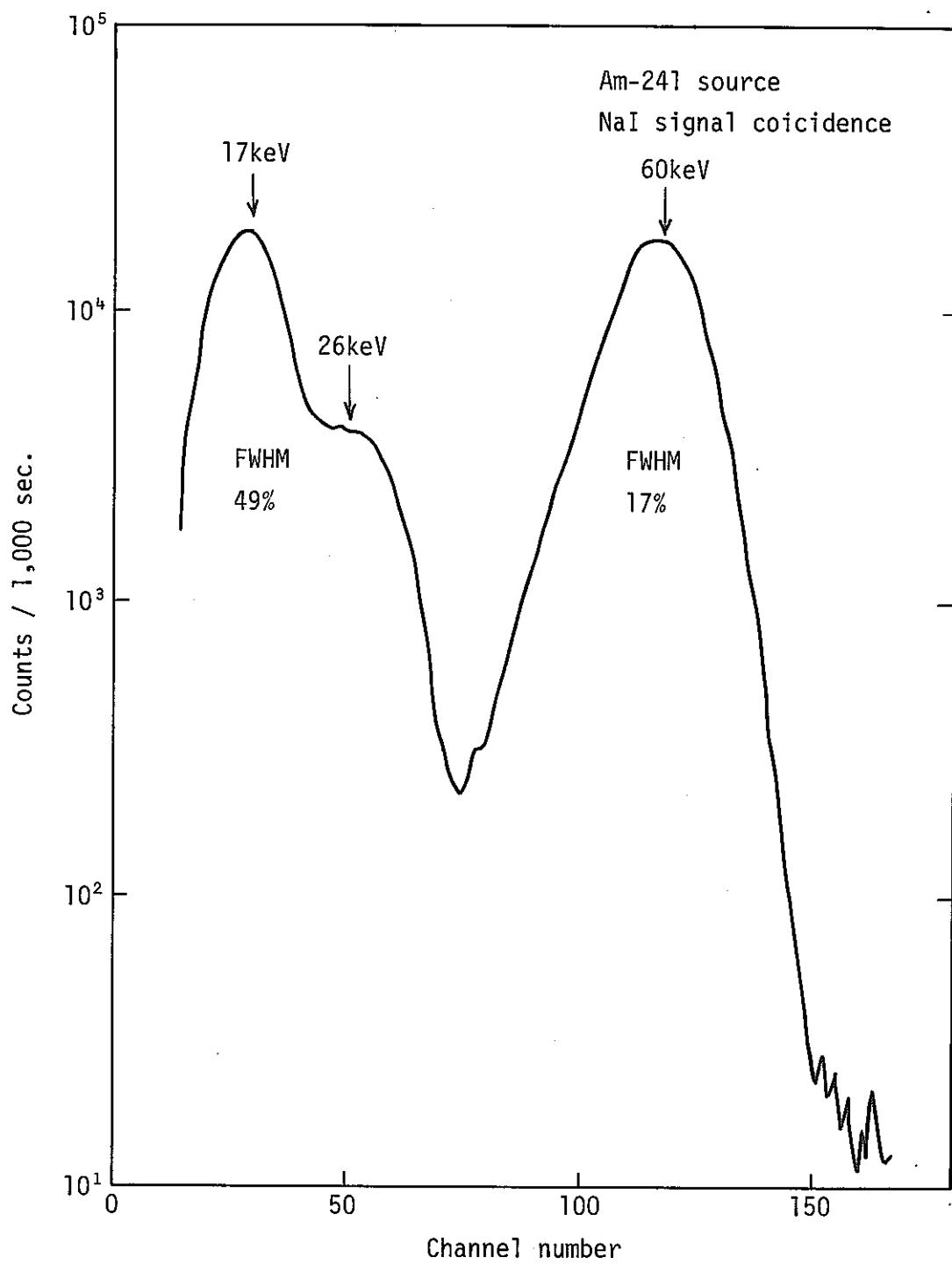
数のPuカプセル線源をランドファントムの肺に入れて測定した時のX線および γ 線スペクトルを示す。Fig.11において、Puの17keVエネルギー領域の計数率は、ランドファントム中に線源を入れた場合、線源を空气中において測定した時の計数率の約 $1/30$ に減少する。

^{241}Am 線源の17 keVエネルギー領域のL X線がファントムによって受ける吸収割合が、 ^{241}Am を分離したPu線源の17 keVエネルギー領域のL X線がファントムによって受ける吸収割合より小さな値を示す理由は、Fig.10からわかるように ^{241}Am 線源の場合、26keVの γ 線によるコンプトン成分が17 keV解析エネルギー領域に寄与するためである。

Fig.11において52 keVのピークは、 ^{239}Pu の放出する γ 線である。

Table 5. Comparison with the data for 8" ϕ NaI single detector
and 5" ϕ phoswich detector

		Type of the detector	
		5" ϕ NaI/CsI phoswich $\times 2$	8" $\phi \times 1/5"$ NaI crystal
Energy resolution Am-241 (%)	17keV	49	57
	60keV	17	24
Background (cpm/cm ³)	11.5 ~ 23keV	0.07	0.22
	50 ~ 68keV	0.10	0.25
Detection efficiency (cpm/nCi)	$^{241}\text{Am}(60\text{keV})$ ($^{241}\text{Am}(17\text{keV})$)	27 (3.4)	15
	Pu(17keV)	0.16	—

Fig. 8 Energy spectrum of ^{241}Am source

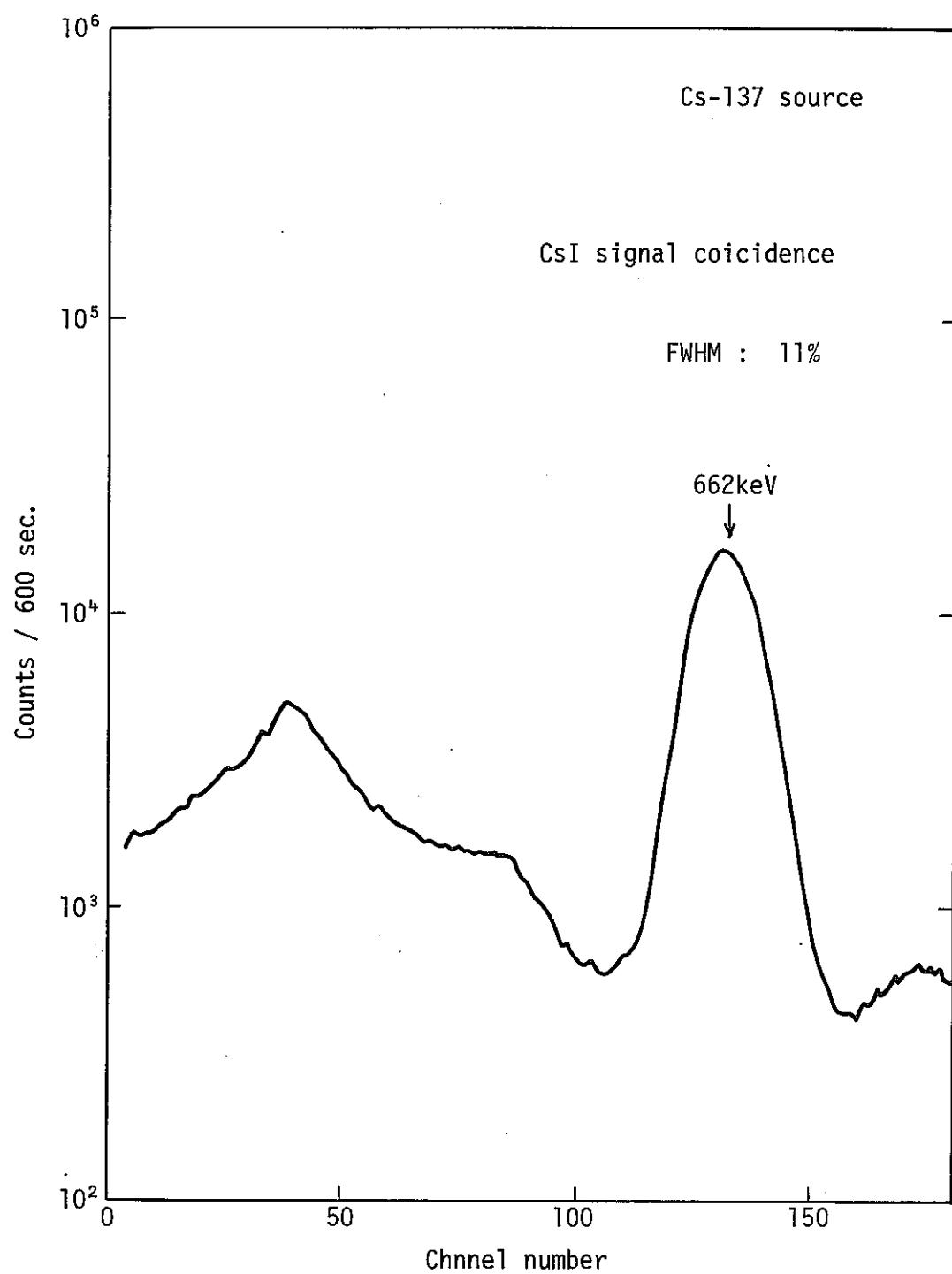
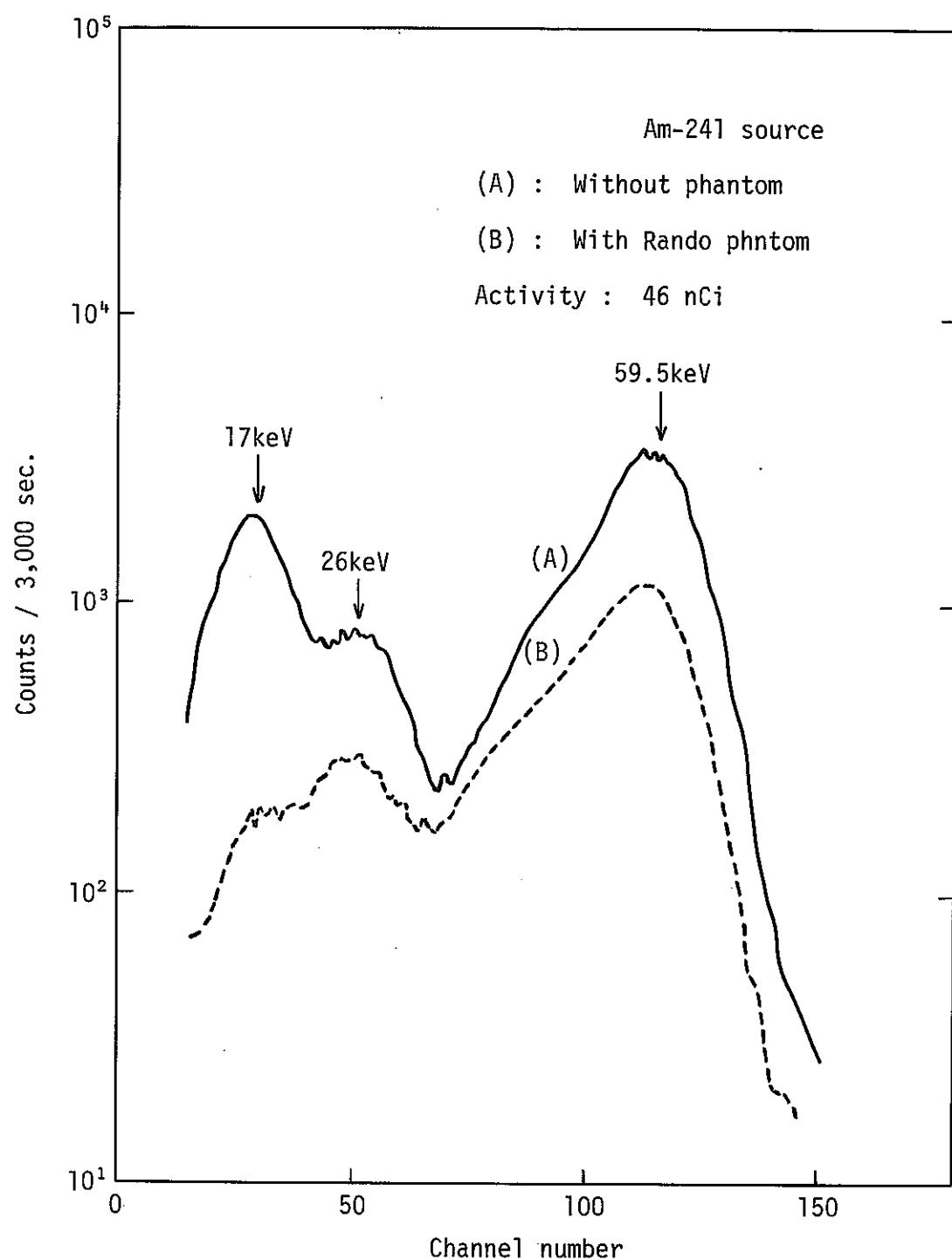


Fig. 9 Energy spectrum of ^{137}Cs source

Fig. 10 Energy spectrum from ^{241}Am source

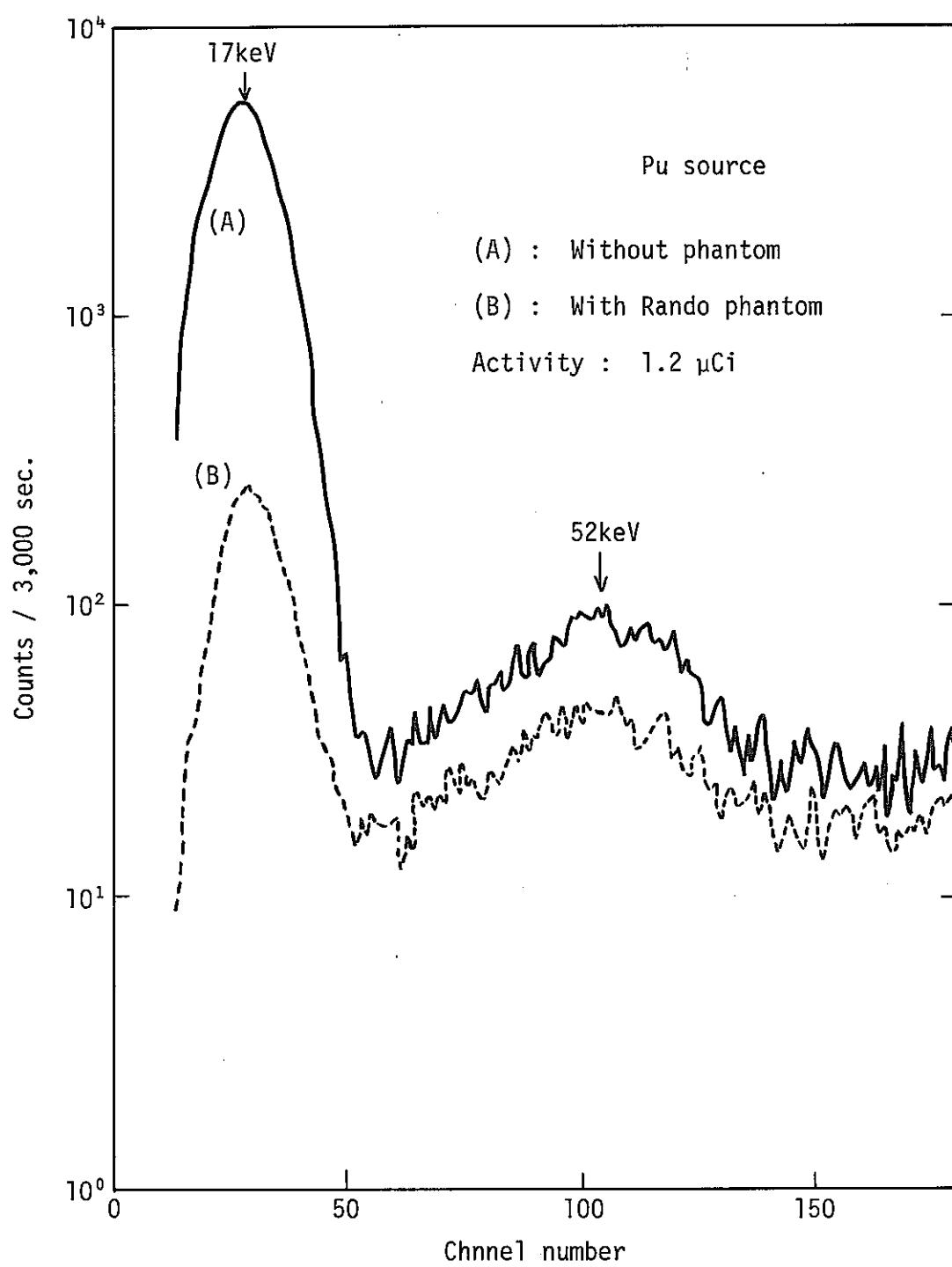


Fig. 11 Energy spectrum from Pu source

4.2 ^{137}Cs および ^{40}K の寄与

ヒトの体内の Pu および ^{241}Am を評価する場合には、ヒトの体内に存在する ^{40}K と ^{137}Cs が、Pu および ^{241}Am の解析エネルギー バンドに、どの様に影響するかを把握しておくことが必要である。そこで、 ^{40}K と ^{137}Cs の箱型胸部ファントムを用いて、これらの線源が、Pu の L X 線エネルギー領域および ^{241}Am のエネルギー領域におよぼす寄与率を求めた。

その結果、箱型胸部ファントム内に ^{137}Cs が 1 nCi 存在すると Pu の 17 keV エネルギー領域は 0.91 cpm 増加することがわかった。一方、ヒトの体内の ^{137}Cs 量は 1979 年現在で約 1 nCi である。

また、 ^{40}K が箱型胸部ファントム内に 1 nCi 存在すると Pu の 17 keV エネルギー領域は 0.06 cpm 増加し、 ^{241}Am の 60 keV エネルギー領域は 0.6 cpm 増加することがわかった。

ヒトの胸部には ^{40}K が約 30 nCi あるので、 ^{40}K の影響は、17 keV エネルギー領域で 1.8 cpm、60 keV エネルギー領域で約 18 cpm 寄与することになる。

^{137}Cs および ^{40}K を含む箱型胸部ファントムから得られる 10～150 keV のエネルギー領域の γ 線スペクトルを Fig.12 と Fig.13 にそれぞれ示す。Fig.12 に見られる 32 keV のピークは ^{133}Ba の K α 線である。

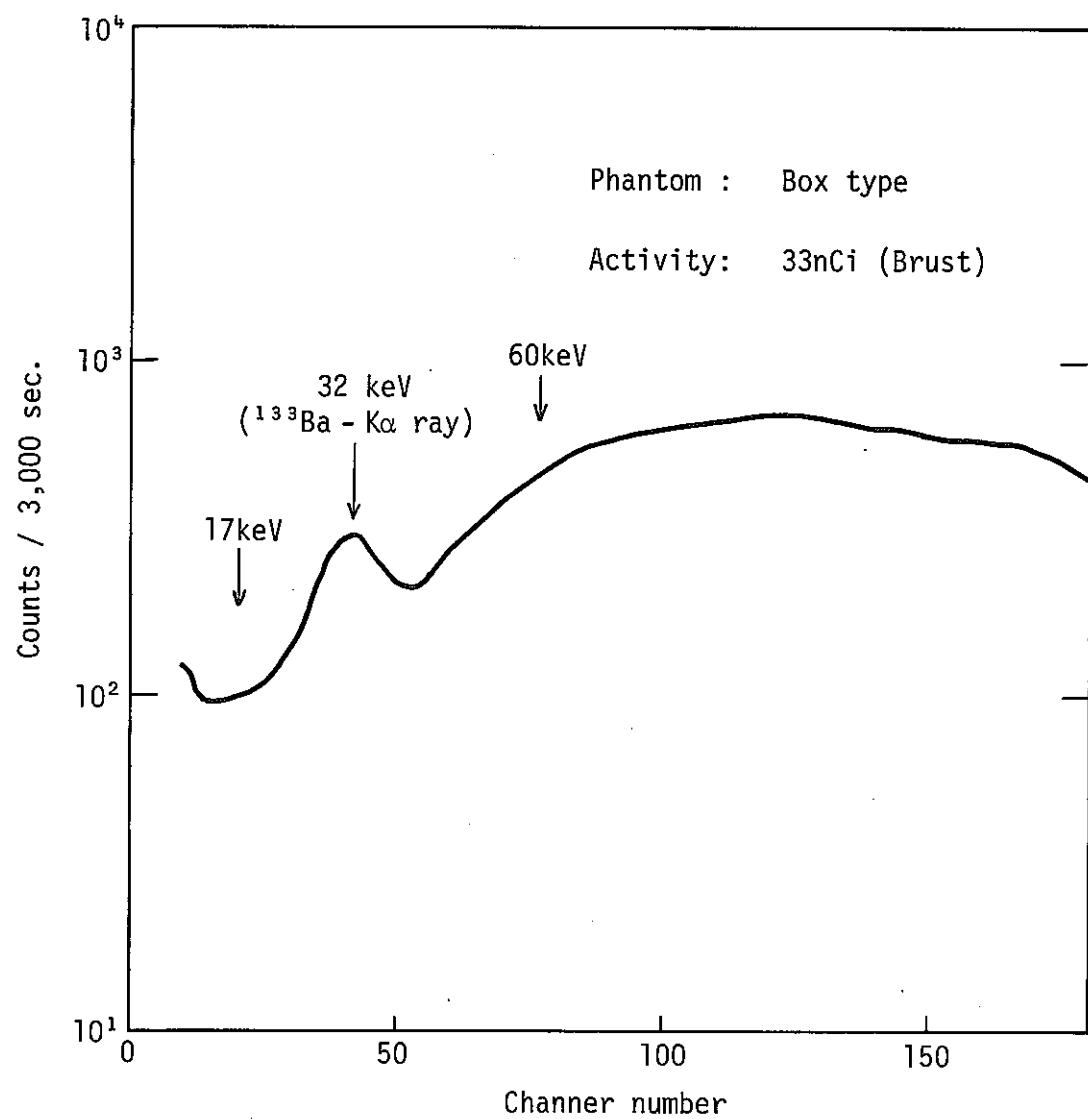


Fig. 12 Energy spectrum from ^{137}Cs source

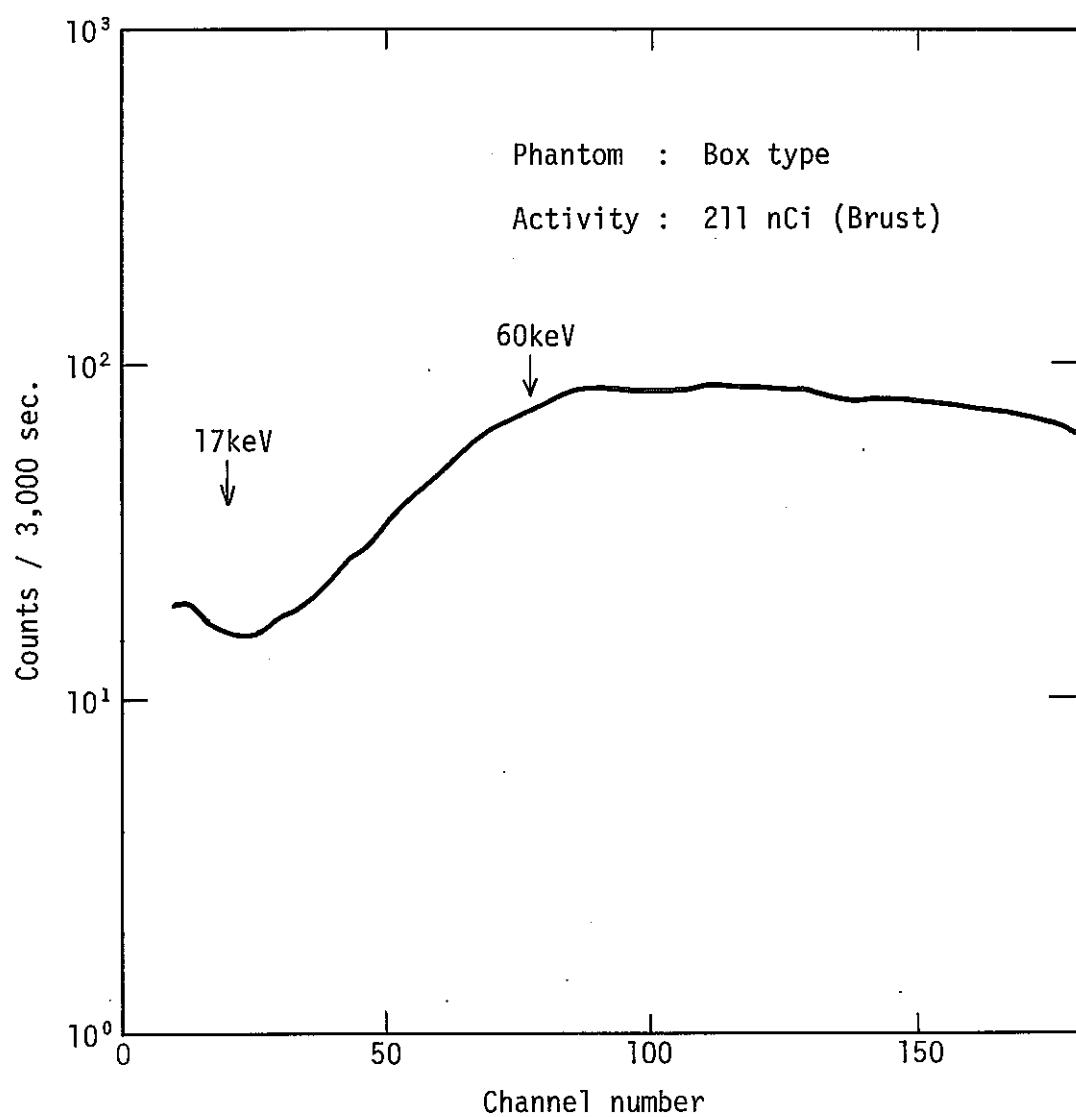


Fig. 13 Energy spectrum from ^{40}K source

5. 校正定数のヒトへの適用

ランドファントムから得られた校正定数をヒトに適用する場合、校正に使用した Pu の同位体組成比と、ヒトが吸入した Pu の同位体組成比の違いや、ヒトとファントムの軟組織厚さの違いを補正して肺中の Pu 量を評価することが必要である。

ヒトの正味計数値と、ヒトの肺中 Pu 量の関係を式で示すと以下のようになる。

$$n_s = \frac{k'}{k} \times e^{-\mu(t \pm \Delta t)} \times \chi \times \eta \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここに、 n_s ; ヒトの正味計数率 (cpm)

k ; ファントム実験に用いた Pu の同位体組成比の Pu 1 α 崩壊当りの 17 keV エネルギー領域の X 線放出割合

k' ; ヒトの吸入した Pu の同位体組成比の Pu 1 α 崩壊当りの 17 keV エネルギー領域の X 線放出割合

t ; ファントムの胸部軟組織厚さ (cm)

Δt ; ヒトとファントムの胸部軟組織厚さの差 (cm)

μ ; 軟組織に対する着目している放射線のエネルギーに対する線吸収係数 (cm^{-1})

χ ; 肺中 Pu 量 (α 放射能; dpm)

η ; 肺測定時の幾何学的効率

以下に、Pu の同位体組成比の違いによる X 線放出比の変化と、軟組織厚さの違いによる計数効率の変化および ^{241}Am の影響について詳細に述べる。

5.1 Pu 同位体組成比の影響

Pu の内部被曝評価上重要な Pu の同位体は α 崩壊する ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu および ^{242}Pu である。 ^{241}Pu は β 崩壊核種であるため、肺に対する有効吸収エネルギー(ϵ)が、他の Pu の同位体より 3 衍小さく、肺の内部被曝線量への寄与という点ではその他の Pu の同位体に比べて小さい。 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu は α 崩壊に伴って、U の LX 線を放出する。この LX 線のうち 11.5~20.2 keV のエネルギー範囲のものが肺モニタの測定対象エネルギーとなる。U の LX 線の放出割合は、古い文献では 2.9%²⁴⁾, 3.9%²⁵⁾, および 6.6%²⁶⁾ と 2 倍以上差がある。17 keV の様に低エネルギーの LX 線の放出割合を実験から精度良く求めることは極めて難しく、古い文献に見られる放出割合の差は、測定方法に帰因するものと思われる。また、文献によっては引

用の際に誤って転記されているものもあり注意する必要がある^{27)*1, 28)*2}。

一方、最近Ge半導体検出器を用いて測定したデータとして4.63%という値がORN Lの文献²⁹⁾に報告されている。この4.63%という値は最近の肺モニタ関係の文献^{19), 30)}にも用いられている。そこで、L X線のエネルギーと、その放出割合のデータはこのORN Lの文献の数値を用いることにした。

ORN Lの文献に示されているPuおよび²⁴¹Amの放出するL X線のエネルギーと、各同位体のL X線放出割合を、それぞれTable 6. とTable 7.に示した。

* 1 この文献に引用されている出典の「ARTNA-COHEN, Nucle Data, B6 (1971), 577」では、1桁高い値となっている。

* 2 この文献に記載されている20.5 keVの放出割合の3.3%は、17.4 keVの放出割合1.4%および13.6 keVの1.2%よりも高く、文献26), 27) の値と著しく異なっている。文献28) のL X線のエネルギーと13.6 keVおよび17.4 keVの放出割合は、文献25) と全く等しい。20.5 keVの放出割合のみが、文献28) では3.3%であるのに対し、文献25) では、0.3%になっている。以上のことから判断して、文献28) に記載されているデータの出典は文献25) でこれを引用する際に、文献28) で転記ミスがあったものと推測できる。

Table 6. Energy in keV of prominent L-series X-ray lines for the element U-Np

Element	Z	Line designation (keV)			
		L _L	L _{α1}	L _{β1}	L _{γ1}
U (Pu)	92	11.618	13.615	17.220	20.167
Np (Am)	93	11.890	13.944	17.750	20.785

Table 7. Absolute L-X ray intensities in the decay of Pu isotopes and ^{241}Am

L-X ray energy (keV) \ Nuclide	% per disintegration				
	11.618	13.615	17.220	20.167	Σ 11.5 ~ 23
Pu-238	0.26	4.15	5.61	1.36	11.38
Pu-239	0.113	1.82	2.16	0.53	4.63
Pu-240	0.24	3.78	4.82	1.20	10.06
Pu-242	0.21	3.10	4.15	1.08	8.54

L-X ray energy (keV) \ Nuclide	% per disintegration				
	11.890	13.944	17.750	20.785	Σ 11.5 ~ 23
Am-241 *	0.86	13.2	19.25	4.85	38.2

* γ -ray (59.543keV): 35.9 %/dis.

(CONF 760202-20 Oak Ridge National Lab.)

NaI 検出器は分解能が悪いため、Table 5. に示した 11.6 keV, 13.6 keV, 17.2 keV および 20.2 keV の U の L X 線を分離して測定することはできない。そこで、11.6 keV から 20.2 keV までの L X 線をまとめて取扱い、L X 線放出割合も本報告書において統一するため 11.5 keV から 23 keV までの各エネルギーの放出割合を合計した値を用いて検討することにする。その合計の放出割合を ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , および ^{242}Pu について比較すると、その値は、Table 6 に示す様にそれぞれ、11.38%, 4.63%, 10.06%, および 8.54% となる。

したがって、Pu の同位体組成比が異なる Pu 試料では、Pu の 1 α 崩壊当りの 11.5 keV から 23 keV のエネルギーの L X 線の放出割合は変化する。これらのデータを使って、ある同位体組成比の Pu の L X 線と α 線の比を (X/α) とし、これと同位体組成比および比放射能の関係を式で示すと、

$$(X/\alpha) = \frac{1}{s} \left\{ (\alpha R_{238} \cdot X R_{238}) + (\alpha R_{239} \cdot X R_{239}) + (\alpha R_{240} \cdot X R_{240}) + (\alpha R_{242} \cdot X R_{242}) \right\} \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここに $\alpha R_{238} = (IR_{238} \cdot SA_{238})$
 $\alpha R_{242} = (IR_{242} \cdot SA_{242})$
 IR_{238} ; ^{238}Pu の同位体組成比 (%)
 IR_{242} ; ^{242}Pu の " "
 SA_{238} ; ^{238}Pu の α 線の比放射能 ($\alpha\text{Ci/g}$)
 SA_{242} ; ^{242}Pu の " "
 $s = (\alpha R_{238} + \alpha R_{239} + \alpha R_{240} + \alpha R_{242})$
 $X R_{238}$; ^{238}Pu の 17 keV エネルギー領域の L X 線の放出割合
 $X R_{242}$; ^{242}Pu の " "

を得る。この計算に必要な Pu と ^{241}Am に関するデータと Pu 同位体および ^{241}Am の核特性をまとめて Table 8. に示す。

(1) 式を用いて、 ^{239}Pu の割合が極端に異なる 3 種類の同位体組成比の Pu について計算した X/α 比を Table 9. に示す。

Table 9. から、1 つの特徴として、 ^{239}Pu の割合が少くなるに従って X/α 比は大きくなることがわかる。すなわち、 ^{239}Pu の割合の少いものの方が 1 α 崩壊当りの L X 線の数は大きくなることを示している。スタンダードグレードの Pu の X/α 比を 1.0 とした時、最も高次化した Pu (^{239}Pu が 48%) では X/α 比は 1.75 となる。

肺モニタから得られる情報は、L X の計数率 (cpm) であり、これから肺中の Pu の α 放射能を求める。Table 9. は、またファントム校正に用いた Pu 同位体組成比と、実際にヒトが吸入した Pu の同位体組成比が異なる場合には、 X/α 比の比率を用いて補正する必要があること

Table 8. Nuclear data of Pu isotopes and ^{241}Am

Isotope	Half-life ⁽¹⁾ (years)	Type of radiation	Energy ⁽²⁾	Abundance ⁽³⁾ (%)	Specific activity (Ci/g)
Pu-238	86	α	5.499 MeV	72	17.4
			5.456 MeV	28	
		LX-rays	11.5 ~ 23 keV	11.4	
		γ	43.49 keV	0.039	
Pu-239	2.44×10^4	α	5.156 MeV	73.3	0.062
			5.143 MeV	15.1	
			5.105 MeV	11.5	
		LX-rays	11.5 ~ 23 keV	4.63	
			38.69 keV	0.0059	
			51.63 keV	0.021	
Pu-240	6.580×10^4	α	5.168 MeV	76	0.23
			5.123 MeV	24	
		LX-rays	11.5 ~ 23 keV	10.1	
			45.24 keV	0.045	
Pu-241	13.2	β	20.8 keV	100	$1.13 \times 10^2 (\beta)$
			4.896 MeV	0.0025*	
		α	4.853 MeV		
			K α_1 X-rays	19	
		γ	148.6 keV	7	
Pu-242	3.79×10^5	α	4.903 MeV	76	3.9×10^{-3}
			4.863 MeV	24	
		LX-rays	11.5 ~ 23 keV	8.54	
			γ	44	
Am-241	4.58×10^2	α	5.486 MeV	86	3.24
			5.443 MeV	12.7	
			5.389 MeV	1.3	
		LX-rays	11.9 ~ 20.8 keV	38.2	
			26.36 keV	2.5	
		γ	43.4 keV	0.09	
			59.54 keV	35.9	

(1), Table of Isotope (6th Edition)

(2) (3) α : Table of Isotope (6th Edition)

LX-ray: CONF-760202-20 (ORNL)

 γ : UCRL-51087 (Lawence Radiation Laboratory)* α : UCRL-51087 (Lawence Radiation Laboratory)

を示している。これが(1)式に示した k と k' の補正の意味である。

Pu線源の X/α 比は、Puの同位体組成比が明らかな場合には(1)式を用いて計算することができる。

しかし、実際の吸入汚染直後に Puの同位体組成比の情報を得ることは難しい。この様な場合には、吸入したヒトの鼻スミア試料や、バイオアッセイ試料を用いて、Pu電着試料を作成し、この試料の X/α 比を $X - \alpha$ 同時計数装置を用いて測定するなどの方法がある。

Table 9. X/α ratio obtained from Pu of different isotope ratio

Grade	Isotope ratio (w/o)					X/α ratio	Correction factor (k'/k)
	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241*	Pu-242		
Standard grade	0.0034	97.36	2.58	0.056	0.0029	0.059 ₅	1.0
Reactor grade-Pu-I	0.09	77.7	18.6	3.17	0.51	0.078 ₀	1.3 ₁
Reactor grade-Pu-II	1.2	48.0	28.5	14.0	8.3	0.10 ₄	1.7 ₅

* β -decay

5.2 胸部軟組織厚さの影響

肺に吸入したPuをヒトの体外から測定する際、測定の対象となるLX線のエネルギーが11.5 keVから20.2 keVと低いことから、軟組織厚さの違いによって吸収率が大きく変化する。したがって、ファントムの胸部の軟組織厚さとヒトの胸部の軟組織厚さを知り、吸収率の違いを補正する必要がある²²⁾。

そこで、軟組織を模擬してビーフステーキを用いて、LX線の吸収率の測定を行なった。またヒトの軟組織厚さは、診断用走査型超音波断層装置を用いて測定した。以下にその詳細について記す。

5.2.1 LX線およびγ線の軟組織に対する吸収率測定

軟組織の模擬としてビーフステーキを使用し、²⁴¹Amの60 keV、17 keVエネルギー領域およびPuの17 keVエネルギー領域について吸収特性を求めた。ビーフステーキは厚さ約10mmのものを順次重ね、厚さが10mm、20mm、33mmおよび45mmの時の吸収率をそれぞれ求めた。

この測定結果をFig.14に示す。測定結果は吸収体が無い時の計数率を1.0に規格化して示した。

Fig.14において、²⁴¹Amの60 keVのγ線に対する半価層は約50mm、²⁴¹Amの17 keVエネルギー領域のLX線に対しては6.5mm、Puの17 keVエネルギー領域のLX線に対しては、5.5mmである。

同じ17 keVエネルギー領域でも²⁴¹AmとPuのLX線について比較すると、²⁴¹Amの方が吸収割合が小さいのは、²⁴¹Amが26 keVにγ線を放出し、このコンプトン成分が、17 keVエネルギー領域に影響することによる。

また、Puの17 keVエネルギー領域に対する吸収特性が吸収体の厚さが増すにつれて、一項の指數関数で示される直線よりゆるやかになる傾向を示すのは、17 keV解析エネルギー帯に、²³⁹Puの放出する52 keV（Fig.5.参照）のγ線のコンプトン成分が影響していることによるものと考えられる。

5.2.2 ヒトの胸部軟組織厚さ測定

Puの放出する17 keVエネルギー領域のLX線の、軟組織に対する半価層は5.2.1節で述べたように5.5mmと小さな値であり、また、肋骨によって程んど完全に吸収される。

欧米諸国では、胸部軟組織厚さの実測データがいくつか報告されているが^{31)～34)}、日本人の胸部軟組織厚さの実測データの報告はない。一方、肺中のPuを定量する際には、この胸部軟組織厚さの情報が必要不可欠であるため、以下に述べる方法を用いてヒトの胸部の軟組織厚さを測定した。

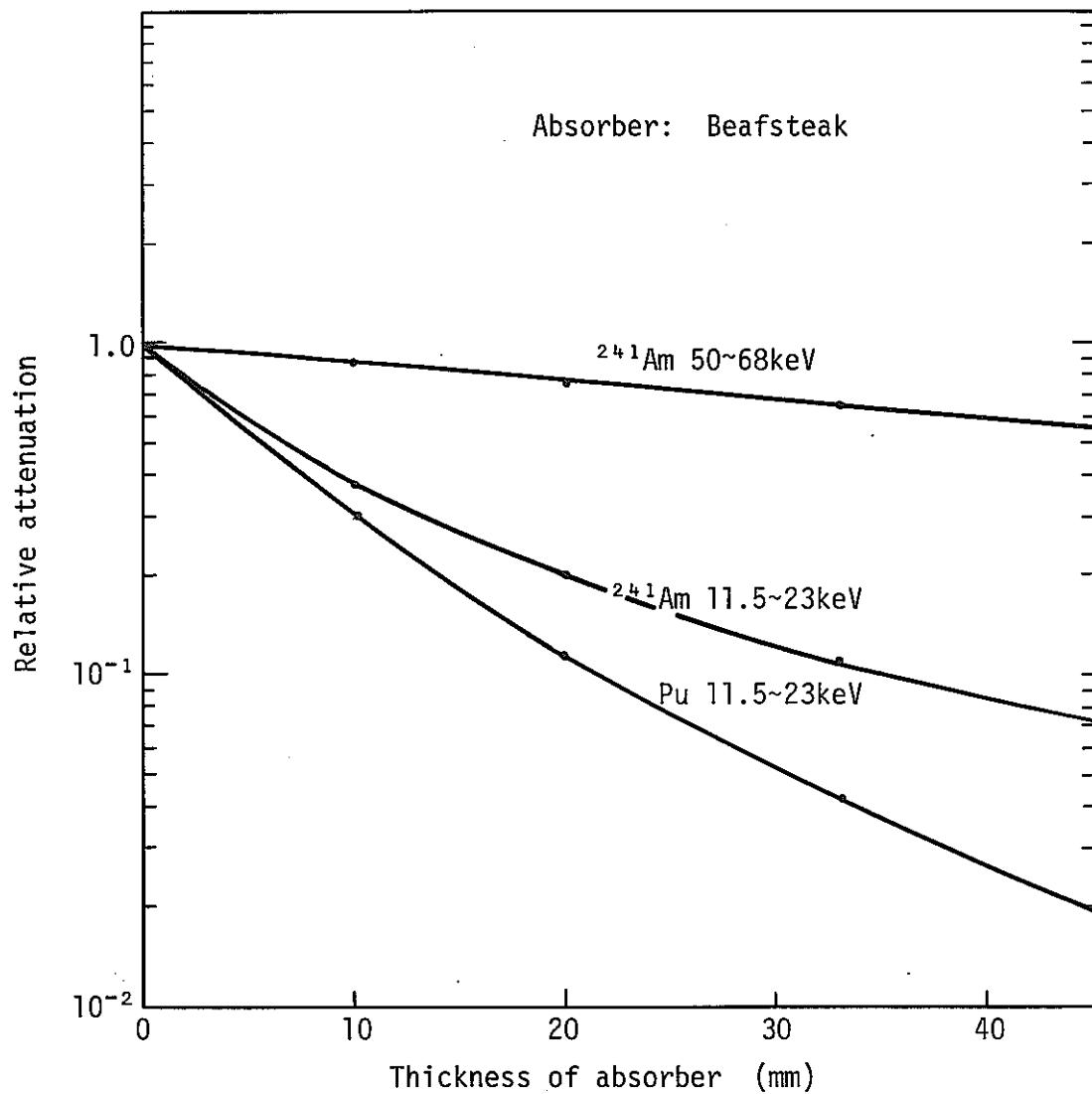


Fig. 14 X-ray and γ -ray attenuation curves showing attenuated X-ray and γ -ray fraction versus thickness of absorber (Beafsteak).

測定器は、Photo.6に示す診断用走査型超音波装置（機 日立メディコ社製、E-21型、センサー；3MHz）を使用し、測定部位は3.3節に述べた検出器の位置に対応させて胸部の乳首の位置にセンサーの中心がくる様にした。測定対象人数は成人男子60名である。測定値は、左右の胸の平均値をとった。測定結果の写真の1例をPhoto.7に示す。

この軟組織の測定結果と、ヒトの体格との相関および体格との近似値を求めた。体格のパラメータとして、身長、体重、体重／身長、胸囲、胸厚、および胸幅をとった。

Table 10.にその近似式と相関係数を示す。

Table 10. Correlation between soft tissue thickness and body build parameters

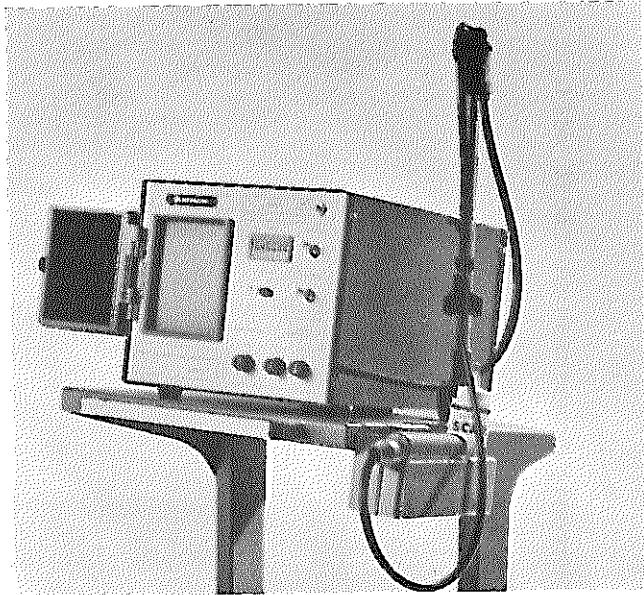
Equation of least square fitting	Correlation coefficient (γ)
Soft tissue thickness(S.T.T.) = $8.72 \times \text{Weight}/\text{Height} - 1.11$	0.84
S.T.T. = $-0.016 \times \text{Height} + 23.0$	-0.240
S.T.T. = $0.438 \times \text{Weight} - 5.91$	0.77
S.T.T. = $0.634 \times \text{Brust surface} - 35.7$	0.72
S.T.T. = $1.24 \times \text{Brust width} - 15.1$	0.63
S.T.T. = $1.39 \times \text{Brust thickness} - 9.11$	0.59

Dimension (Soft tissue thickness: cm; Weight: Kg; Height: cm)
 Brust surface, Brust width, Brust thickness: cm

Table 10.から軟組織厚さと体重／身長が一番相関係数の高いことがわかる。この実験式から体重／身長の値を用いて、個人個人の軟組織厚さを推定することができる。体重／身長と軟組織厚さの相関をグラフに表わしたものFig.15に示す。成人男子60名の胸部軟組織厚さは、平均2.03cm、標準偏差0.365cm、最低1.5cm、最高3.2cmであった。

一方、校正に用いたランドファントムの軟組織を超音波装置を用いて測定を試みたが、人体等価物質として用いている材料が、気泡を含んでいるため超音波が伝播せず、測定できなかった。

そこで、ファントムの実効的な胸部軟組織厚さを推定するため、ファントムの胸部X線写真撮影を行ない、軟組織のわかっているヒトの撮影条件と軟組織厚さの近似式に、ファントムの撮影条件を代入しファントムの実効的な軟組織厚さを推定した。その結果、ファントムの胸部の吸収率は、ヒトの軟組織厚さ3.4cmと等価であることがわかった。



(a) Display unit



(b) Sencer

Photo. 6 Real time linear array ultrasonic tomograph

N841-79-52

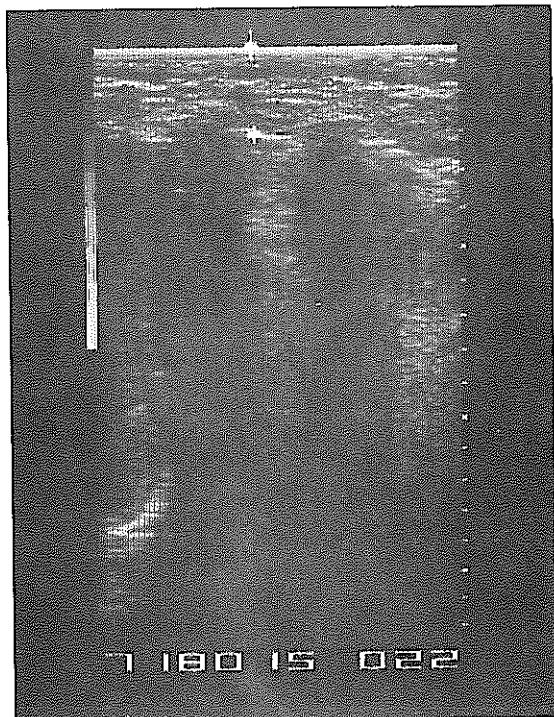


Photo. 7 Ultrasonic tomograph of chest wall

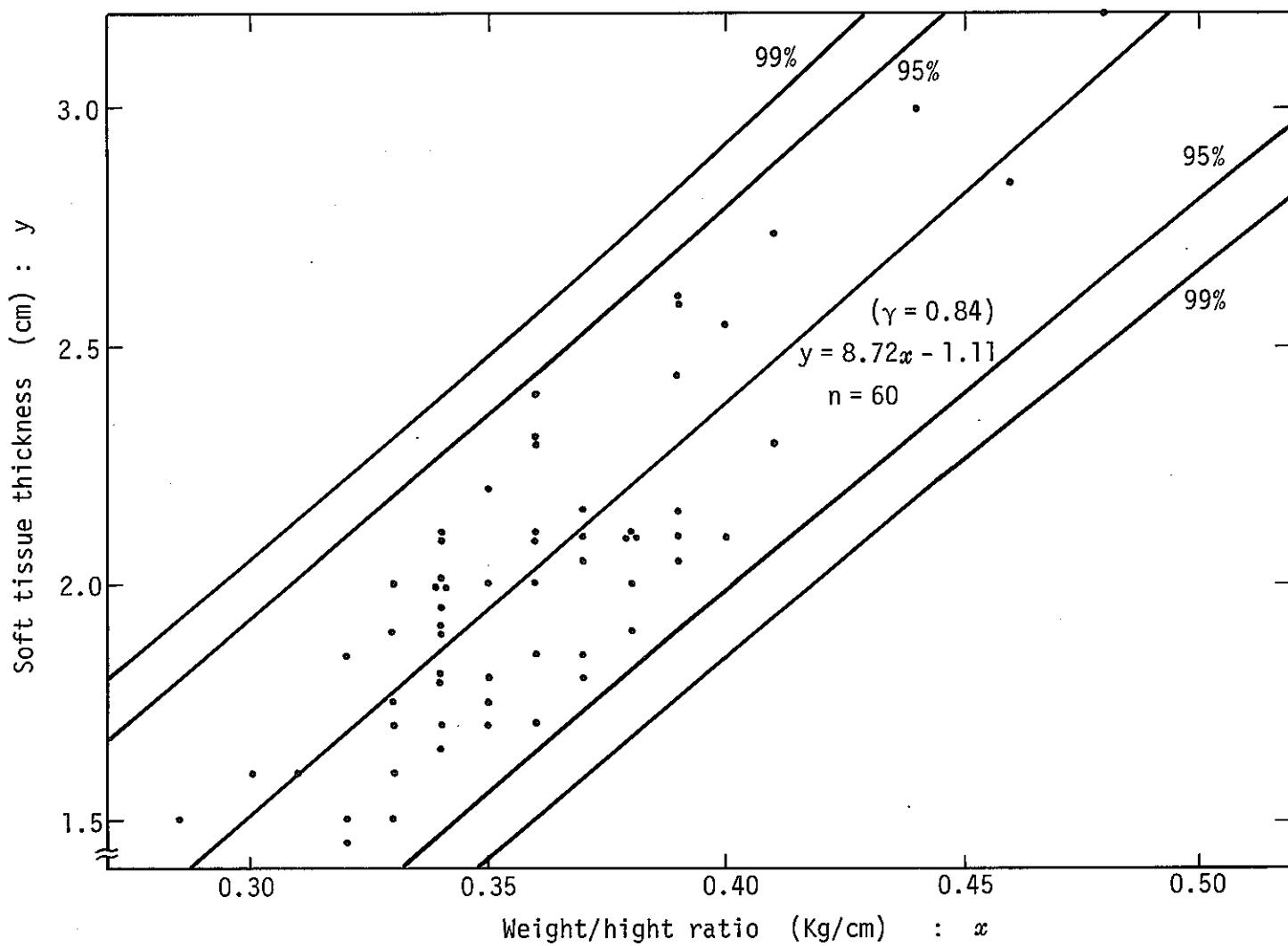


Fig. 15 Correlation between weight/height ratio and soft tissue thickness

一方、Fig.18からわかるように、 ^{239}Pu の割合が少さくなり ^{241}Pu の割合が増加すると、 ^{241}Am の放出するL X線は ^{241}Am の分離後1,600日でPuの放出するL X線より多くなる。

先に述べたように直接Puを定量しようとする場合には ^{241}Am の存在は防害となるため、 ^{241}Am のL X線がPuのL X線より多くなる場合には、Puを17 keVエネルギー領域の解析から求める方法は誤差が多くなる。したがって、17 keVのエネルギー領域の解析からPuを定量する方法は、 ^{241}Am が全くないか、あってもPuに比べて少い場合に限られる。

一方、 ^{241}Am が存在する場合、汚染したPuについて、Puと ^{241}Am の比を、化学分析などから得ることができれば、肺モニタを用いて ^{241}Am だけを定量し、Puの量は、この ^{241}Am の値とPu/ ^{241}Am 比を用いて求めることができる。

この場合には、Pu/ ^{241}Am 比が小さい程、すなわち ^{241}Am がPuに比べて多いほど、肺モニタから間接的にPuを定量するときの、Puに対する検出限界は小さくなる。

以上のことから、 ^{241}Am が全くないか、または少い場合には17 keVエネルギー領域を解析してPuを定量し、一方、 ^{241}Am が多い場合には、 ^{241}Am の60 keVの γ 線を用いて ^{241}Am を解析し、Puは、化学分析によって求めたPu/ ^{241}Am 比を用いて、間接的に求める方法が現実的であると言える。

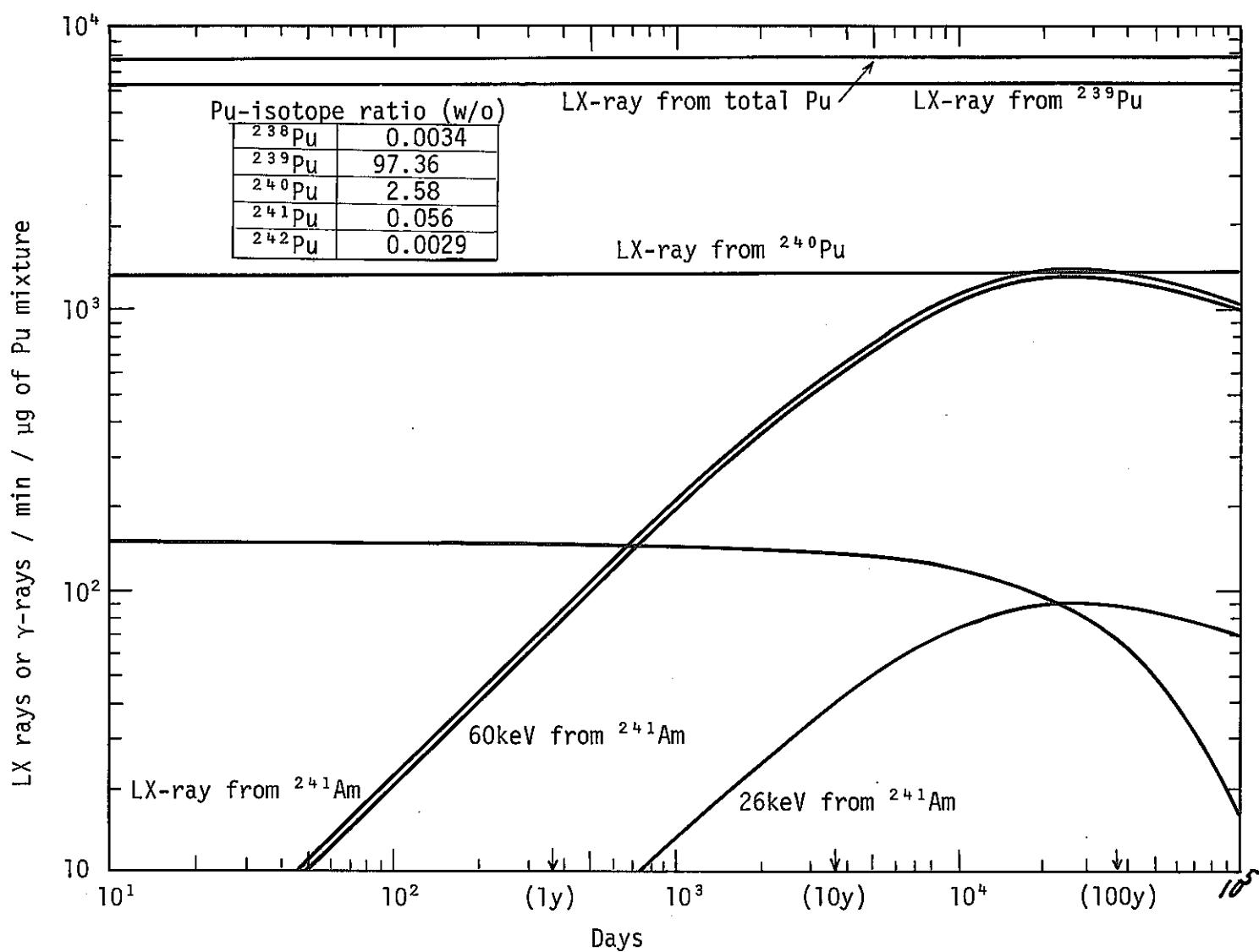


Fig. 16 LX rays and γ -rays activity versus time for stated isotopic Pu mixture

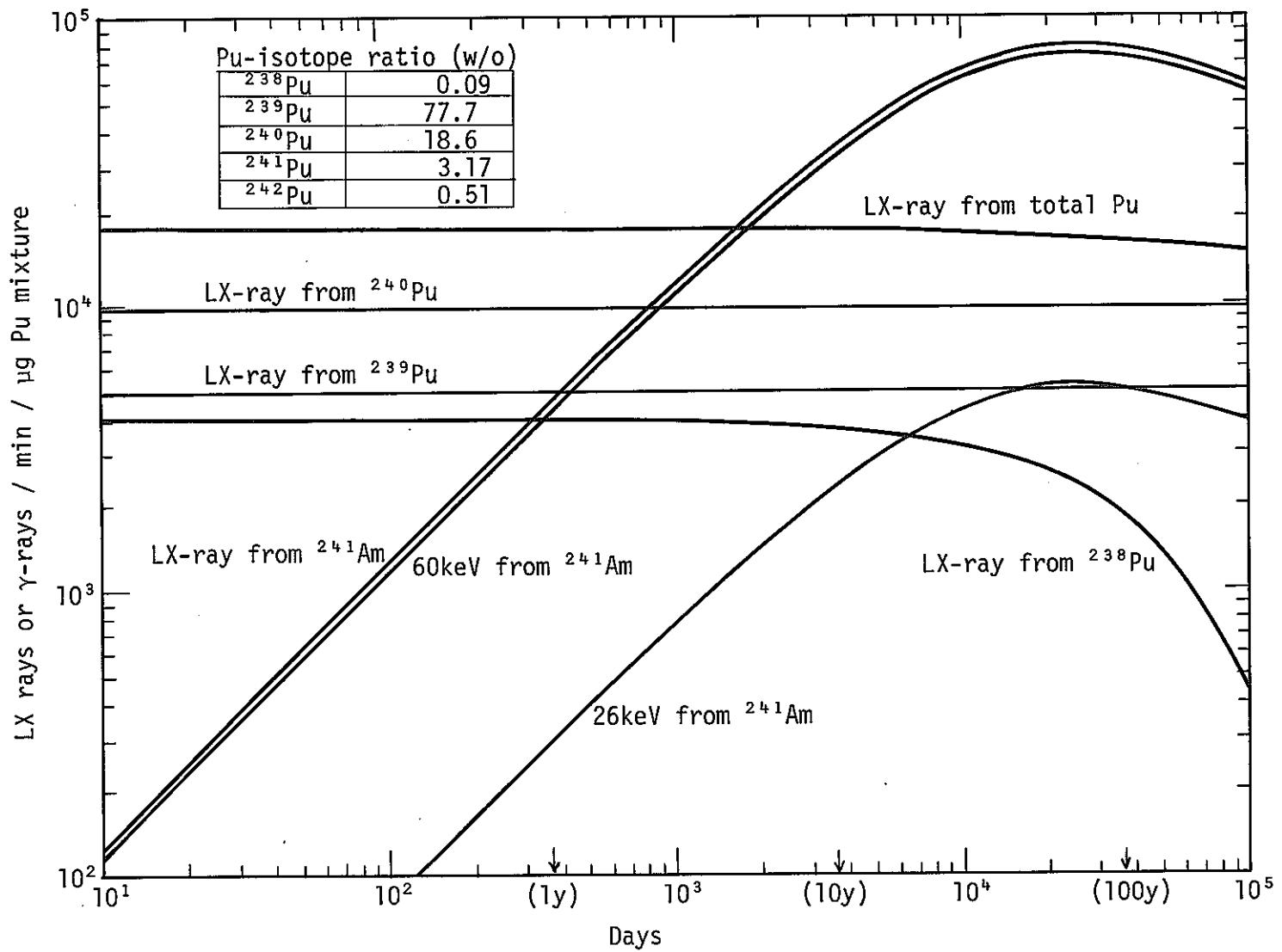


Fig. 17 LX rays and γ -rays activity versus time for stated isotopic Pu mixture

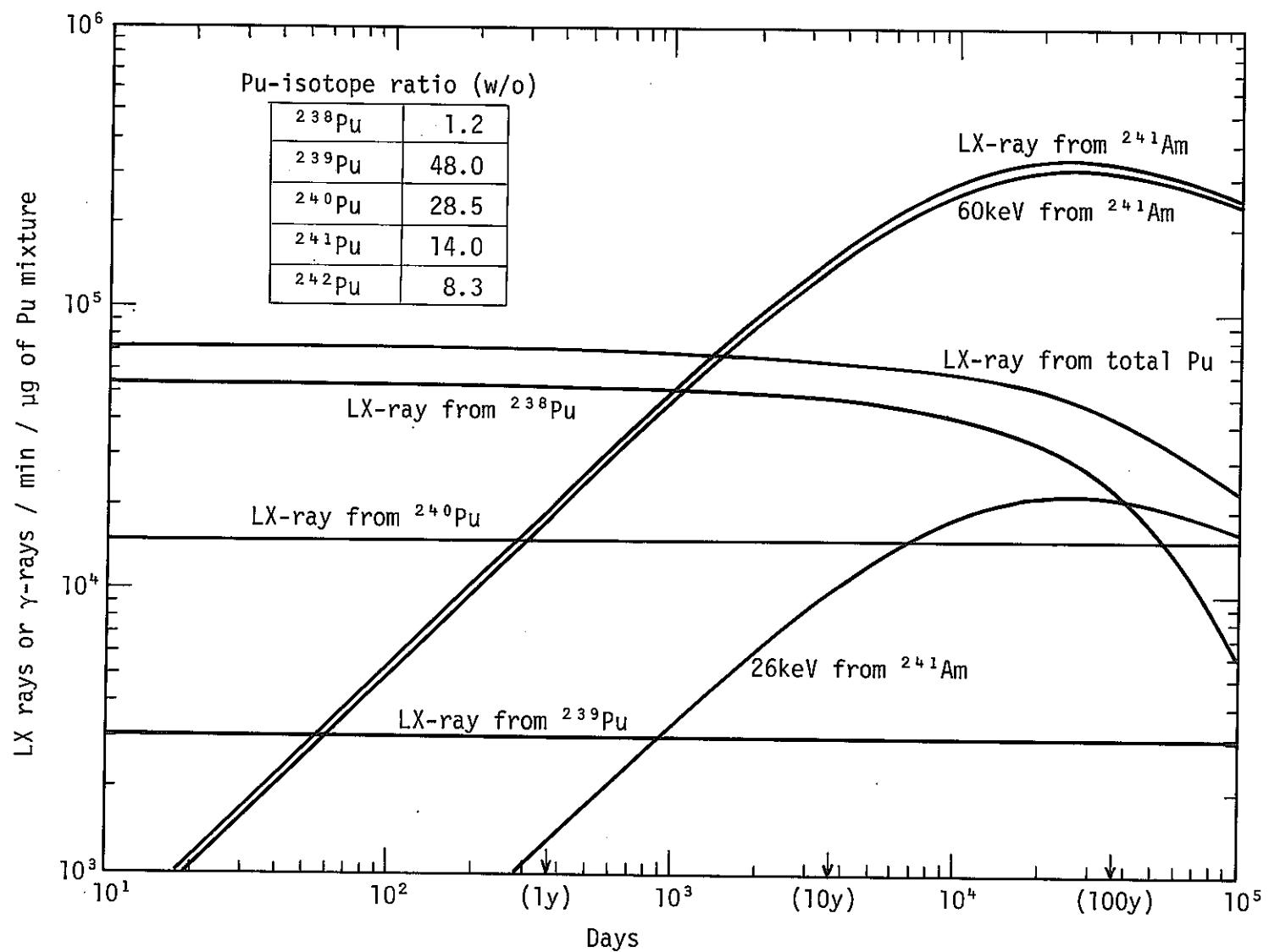


Fig. 18 LX rays and γ -rays activity versus time for stated isotopic Pu mixture

6. 結果の総合検討

6.1 誤差評価

5.1節と5.2節で述べたように、Pu同位体組成比と、ヒトの胸部軟組織厚さが、ファントム実験に用いた条件と異なると、ファントム実験から得た値に補正を加える必要がある。

ファントム実験から得た計数効率を基にして、Pu同位体組成比が異なる3種類のPuと、胸部軟組織厚さを変数として求めた計数効率をFig.19に示す。

Fig.19中のPuの同位体組成比は、5.1節のTable.9に示した3種類の同位体組成比のPuを意味する。

Fig.19中に、動燃・東海事業所の成人男子60名について、超音波断層装置から求めた、60名の平均胸部軟組織厚さを↓で示した。

Fig.19から、試算に用いた3種類の同位体組成比のPuの場合、平均胸部軟組織厚さのヒトについて計数効率を比較すると、スタンダードグレードPuでは 0.44 cpm/nCi 、原子炉級Pu-IIでは 0.77 cpm/nCi となる。実際に東海事業所内で取扱われるPuの同位体組成比の変動幅は、Table 9に示した範囲内に入ると考えられる。したがって、ヒトが吸入したPuの同位体組成比に関する情報が全く入手できない場合には、原子炉級Pu-Iの同位体組成比を仮定して一次評価を行なえば、Pu同位体組成比が、結果におよぼす影響は-24%，+33%になる。Pu同位体組成比の情報が入手できた時にはその同位体組成比を用いて(1)式から X_{α} 比を計算し補正を行なう。

一方、胸部軟組織厚さは、5.2.2項で述べたように成人男子60名測定した者の内、最低は 1.5 cm 、最高は 3.2 cm 、平均は 2.03 cm である。Fig.14から、最低の 1.5 cm と、最高の 3.2 cm の軟組織厚さ 17 keV エネルギー領域に対する計数効率の値を読みとり、その比を求めるとき約4となる。

すなわち、今回測定した最も軟組織厚さの薄い人と、最も厚い人との間で、計数効率は約4倍変化する。したがって、 17 keV エネルギー領域を解析する時には、胸部軟組織厚さに対する補正是不可欠であると言える。断層超音波装置がない場合にはTable 10に示した。体重／身長と胸部軟組織厚さの実験式を用いて、本人の体重／身長の値から胸部軟組織厚さを求め軟組織厚さに対する補正を行なう。この補正を行なわない場合で、一律、平均軟組織厚さを用いて評価すると、解析結果は、+67%，-140%の誤差を供なうことになる。

以上述べた誤差要因の他に、測定結果に大きく影響するものとして、肺中のPuの分布がある。これは、3.3節Fig.7のジオメトリの変化による計数効率の変化率で示したように、特に 17 keV エネルギー領域を解析する場合には、約1桁近い誤差を伴う可能性がある。

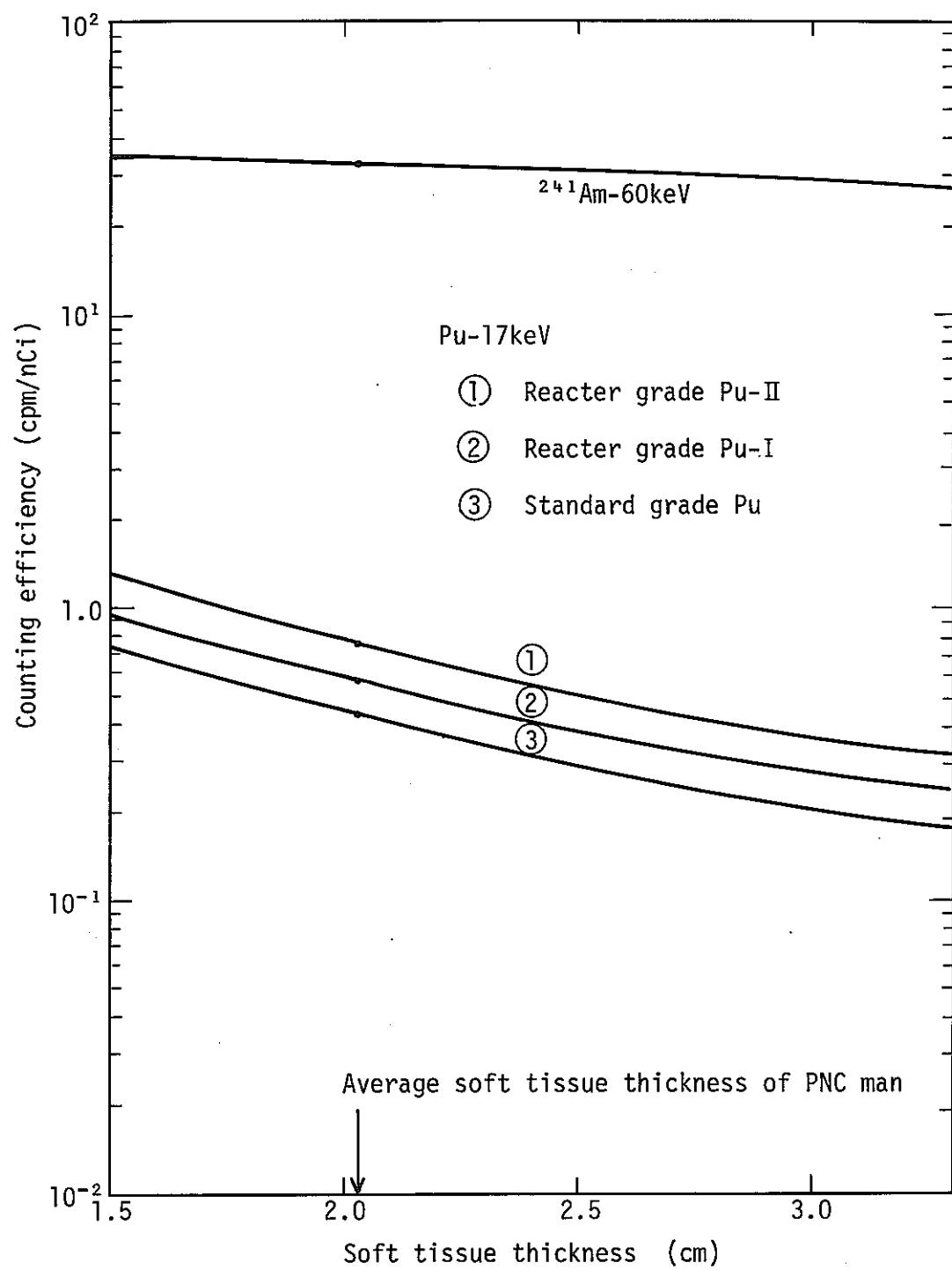


Fig. 19 Relation between soft tissue thickness and counting efficiency

したがって、17 keV エネルギー領域の解析から直接肺中 Pu を定量しようとする場合には、肺をスキャニングし、肺中 Pu の分布を把握し、これらの結果を基に、計数効率を慎重に決定しなければならない。

さらに、²⁴¹Am が存在する時には、まず²⁴¹Am を定量し、17 keV エネルギー領域への寄与分を評価しなければ、17 keV エネルギー領域から Pu を定量することはできない。

以上の検討から、17 keV エネルギー領域から Pu を定量する場合には、肺中の Pu の分布の把握、胸部軟組織厚さに対する補正、Pu 同位体比および²⁴¹Am の影響に対する補正を正しく行なわなければ、結果の確度は著るしく低くなることがわかる。

したがって、これらの補正が充分行なえない時で、かつ²⁴¹Am が存在する時には、²⁴¹Am をトレーサーとして利用してまず²⁴¹Am を定量し、別に求めた Pu/²⁴¹Am 比を用いて、間接的に Pu を求める方法が Pu 定量の確度は高くなると言える。

²⁴¹Am の 60 keV を定量する場合には、最も軟組織厚さの薄い 1.5 cm のヒトと、最も軟組織厚さの厚いヒトでは、計数効率の値の差は Fig.14 から約 20 % であり、平均軟組織厚さを一律用いた時には、解析結果の誤差は +6 %、-14 % となり、Pu の解析誤差に比べて小さい。

6.2 検出限界

6.1 節の検討結果からわかるように、ファントム実験から求めた計数効率をヒトに適用する際にはいくつかの補正が必要ある。したがって、ヒトに対する検出限界も一義的に定まらない。

5.1 節の Table 9 に示した 3 種類の同位体組成比の Pu をパラメータとし、胸部軟組織厚さを変数として(3)式に示す計算式と、6.1 節の Fig.19 の計数効率を用いて、 $t_s = t_b = 50$ 分の場合

$$\text{M.D.A.} = \frac{k}{2} \left(\frac{k}{t_s} + \sqrt{\left(\frac{k}{t_s} \right)^2 + 4 n_b \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)} \right) / \eta \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

ここに、

M.D.A. ; 検出限界値 (nCi) (Minimum detectable amount)

k ; 3σ 法により 3 を用いる。

t_s, t_b ; 試料およびバックグラウンドの測定時間 (分)

n_b ; バックグラウンドの計数率 (cpm)

η ; 計数効率 (cpm/nCi)

合について計算した検出限界を Fig.20 に示す。また、(3)式を用いて原子炉級 Pu-I について計算した Pu と、²⁴¹Am の 60 keV に対する、測定時間と検出限界の関係を Fig.21 に示す。Fig.19 と Fig.20 の中から、成人男子 60 名の平均軟組織厚さに対する検出効率と検出限界をぬきだ

してそれぞれ Table11 の(2)と(3)覧にそれぞれ示した。

(3)覧の検出限界は、バックグラウンドが充分安定した状態にあり、かつ、ヒトの体内の⁴⁰K や ¹³⁷Cs の変動分は考慮していない時のものである。

そこで、“ホスウィッチ型”検出器を用いて行なった 120 名の成人男子の測定結果を用いて、ヒトを実際に測定した時の検出限界を検討する。

Table12 に、120 名の測定結果とその間の鉄室内のバックグラウンド計数率について統計処理した結果をまとめて示す。また、肺モニタの計数値と体格との相関を調べるために、体格のうち体重をとり上げ、体重と計数率の相関を調べた。その結果を Fig.22 と Fig.23 に示す。Fig.22 は体重と 17 keV エネルギー領域の計算率を、Fig.23 は体重と 60 keV エネルギー領域の計数率の関係を示したもので、グラフ中には、一次近似直線、95% と 99% 信頼区間、および相関係数をそれぞれ示した。

Table11において、120名のヒトの測定値に対する標準偏差は、鉄室の経時変化に伴う自然放射線の変動と、ヒトの個人差による⁴⁰K および ¹³⁷Cs の個体差を最も忠実に表わしていると言える。そこで、この標準偏差の 3 倍を、実際にヒトを測定した時の検出限界計数率と定義する。その検出限界は、それぞれの同位体組成比の Pu に対する計数効率を用いて計算すると、平均軟組織厚さのヒトに対して、Table11 の一番左の観に示す値となる。これが実際のモニタリングに適用できる検出限界値で、この値は単にバックグラウンド計数値の統計変動から(3)式を用いて求めた Table11 の(3)覧に示した検出限界値よりも約 2 倍大きな値となる。

Fig.22 と Fig.23 において体重と各エネルギー帯の計数率の相関を見ると、体重と 17 keV エネルギー領域の計数率の相関係数は 0.19 であるのに対し、体重と 60 keV エネルギー領域の計数率の相関係数は 0.66 で、特に Fig.23 の 60 keV エネルギー領域と体重については明らかに正の相関が認められる。

したがって、定常モニタリングなどの有意判定における閾値は、体重による計数率の変動を考慮して行なう方法が良いと言える。体重と正の相関を持つ体内の放射性物質は⁴⁰K であることがわかっている³⁵⁾。したがって、60 keV エネルギー領域の計数率は⁴⁰K のコンプトン成分の影響によるものと言える。

参考として、120名のヒトについて計算した身長、体重、胸囲、胸幅、および胸厚の平均値と標準偏差を、Table13 に示す。

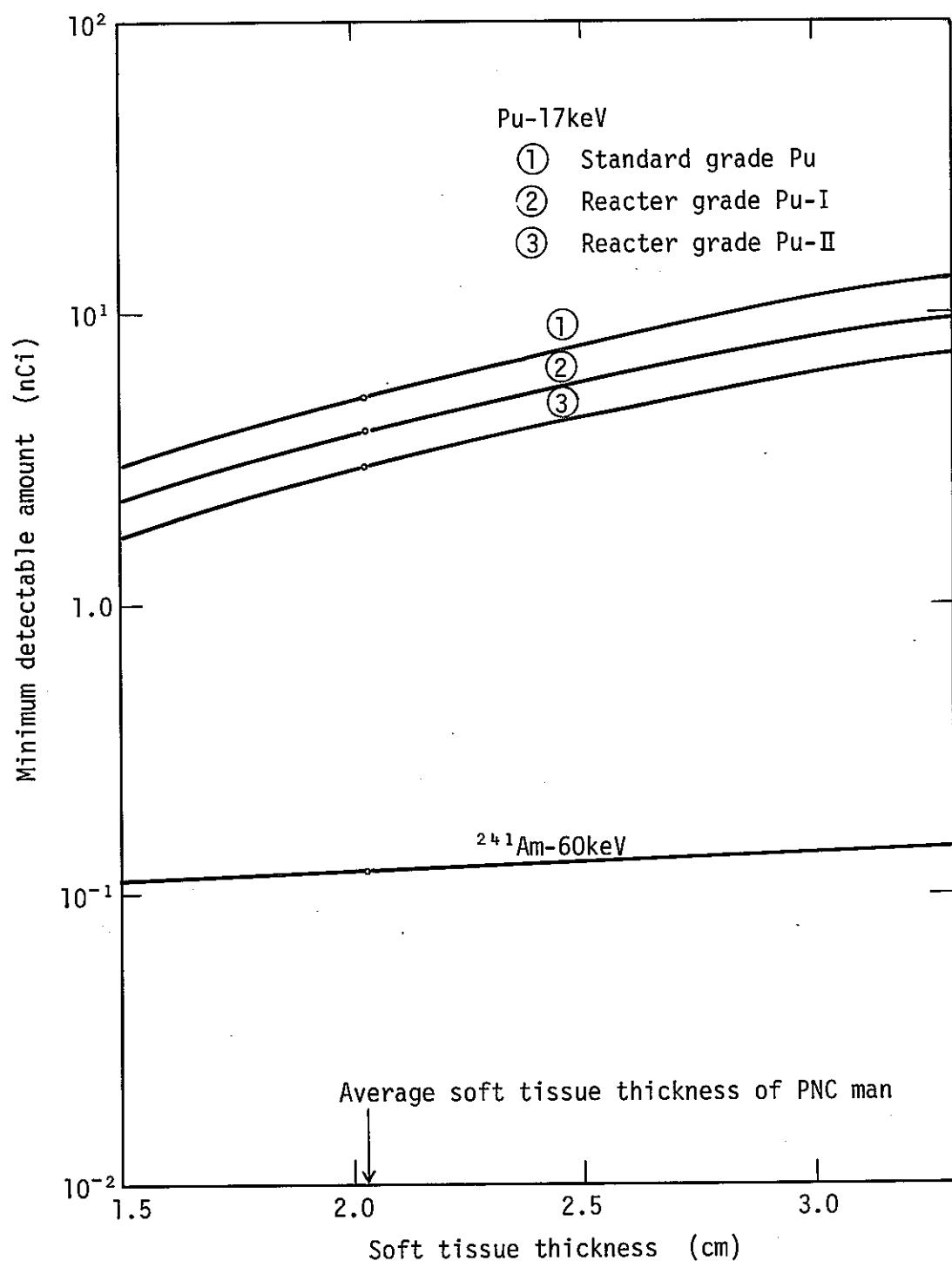


Fig. 20 Relation between soft tissue thickness and minimum detectable amount

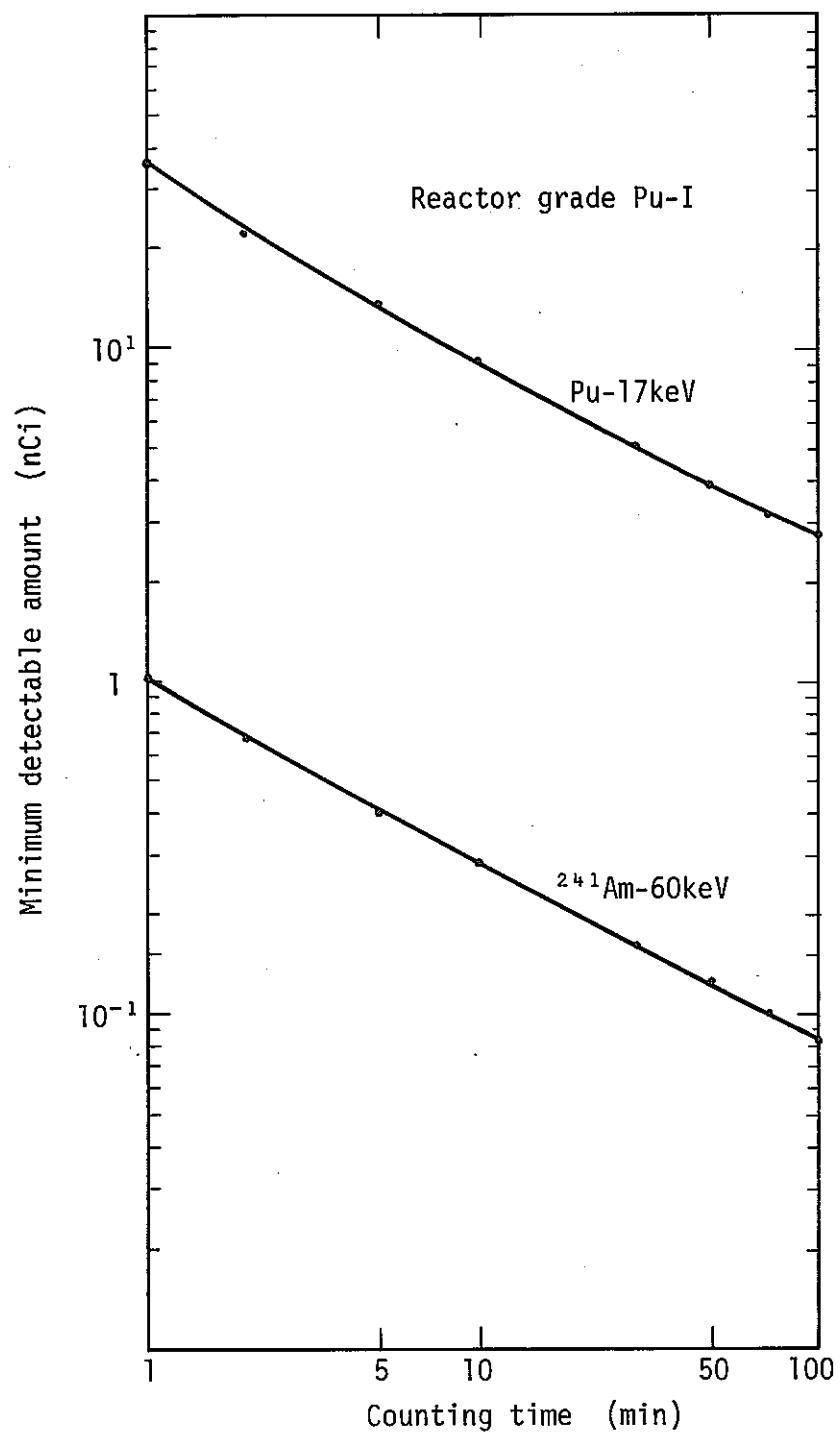


Fig. 21 Relation between counting time and minimum detectable amount

Table 11. Detection efficiency and minimum detectable amount

Pu grade Pu isotope ratio (w/o)		Detection efficiency (cpm/nCi)		Minimum detectable amount for average PNC man (nCi)	
		(1) Rando phantom	(2) Average PNC man (Chest soft tissue thickness=2.03cm)	(3) Ideal condition (Without ^{40}K , ^{137}Cs)	(4) Actual condition (Include ^{40}K , ^{137}Cs)
Standard grade Pu					
^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	
0.0034	97.36	2.58	0.056	0.0029	0.16
Reactor grade-Pu-I					
^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	0.21
0.09	77.7	18.6	3.17	0.51	0.58
Reactor grade-Pu-II					
^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	0.28
1.2	48.0	28.5	14.0	8.3	0.77
^{241}Am		27	32	0.1 ₂	0.3 ₃

Table. 12 Result of lung counter in human subject

	Gross counts/min of each energy band (cpm)				
	Subject *		Background of monitoring room **		
	11.5 ~ 23KeV	50 ~ 68KeV	11.5 ~ 23KeV	50 ~ 68KeV	
Mean \bar{X}	12.7	41.4	8.54	12.5	
Standard deviation σ	1.28	3.52	1.16	1.34	
3σ	3.84	10.6	3.48	4.02	

Date : 20-Nov.-78 ~ 26-Dec.-78

Number of subject: N = 120

* Counting time : 3,000 sec

** Counting time : 50,000 sec (n = 21)

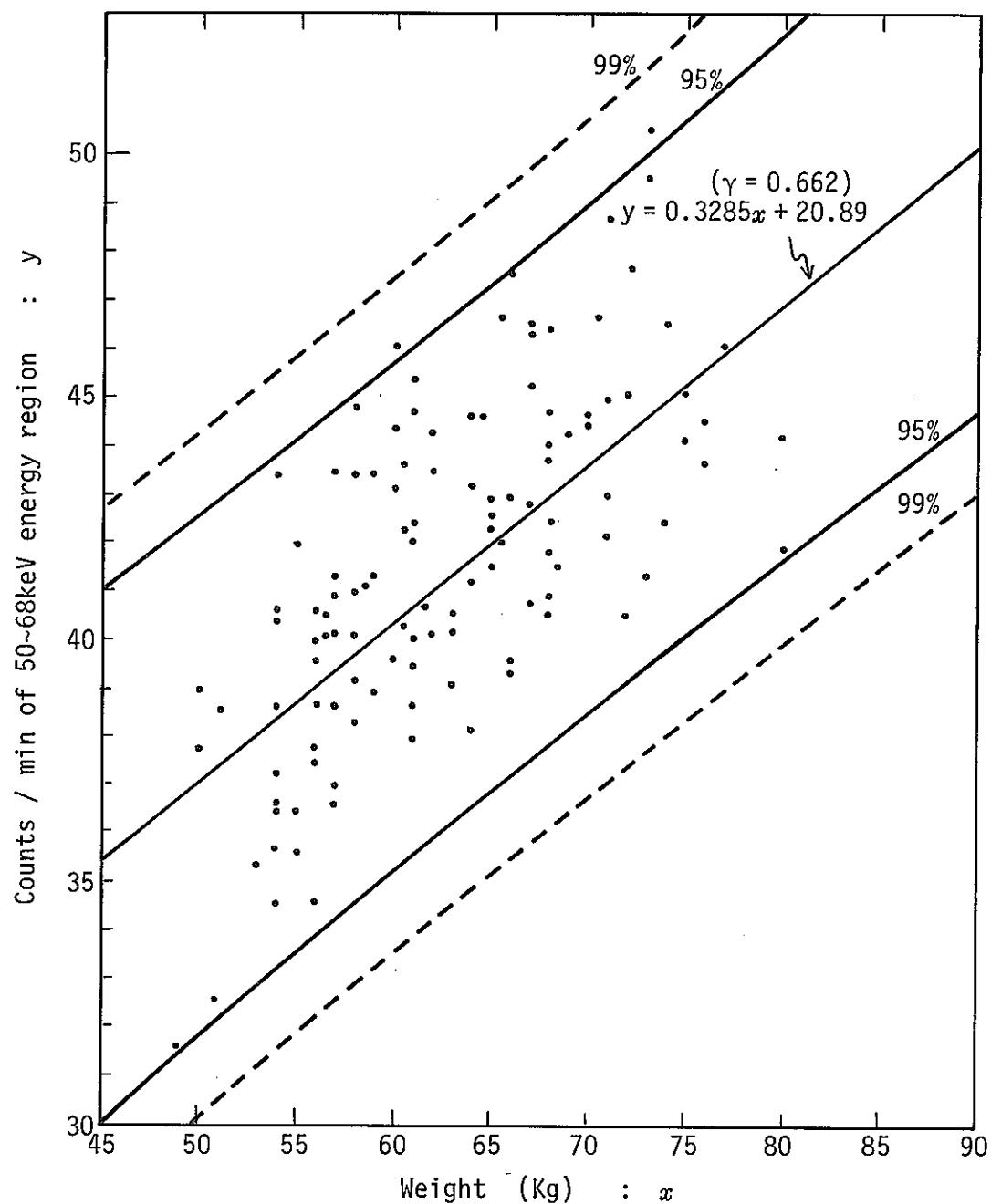


Fig. 23 Correlation between weight and 60keV energy region counting rate of normal subject

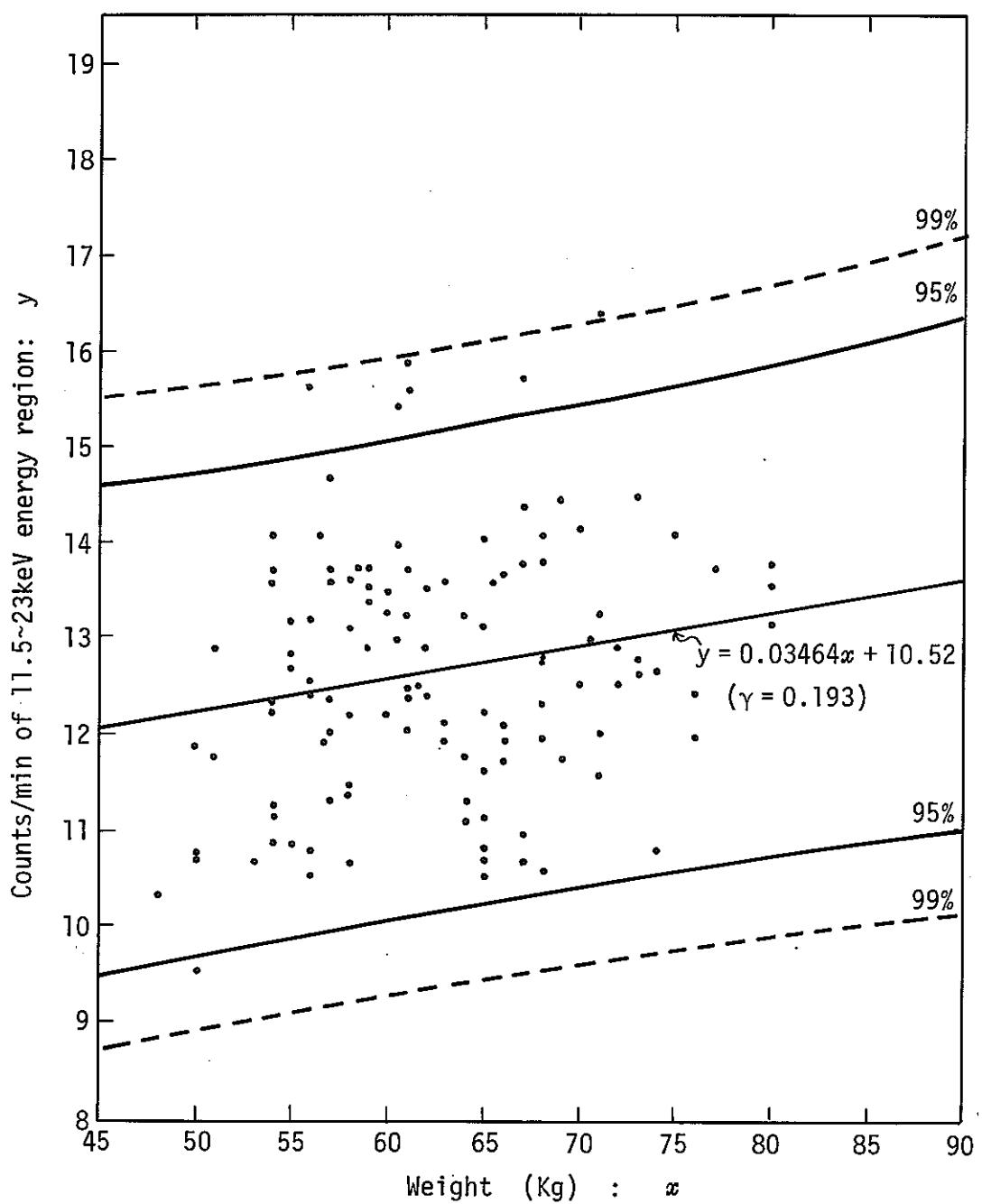


Fig. 22 Correlation between weight and 17keV energy-region counting rate of normal subject

Table 13. Average and standerd deviation of body build

Parameter	Mean	Standerd deviation
Weight (Kg)	62.5	7.10
Height (cm)	167.4	5.81
Chest thickness (cm)	20.5	2.76
Chest width (cm)	29.4	1.50
Chest circumstance (cm)	89.0	5.12

Number of subject: 120

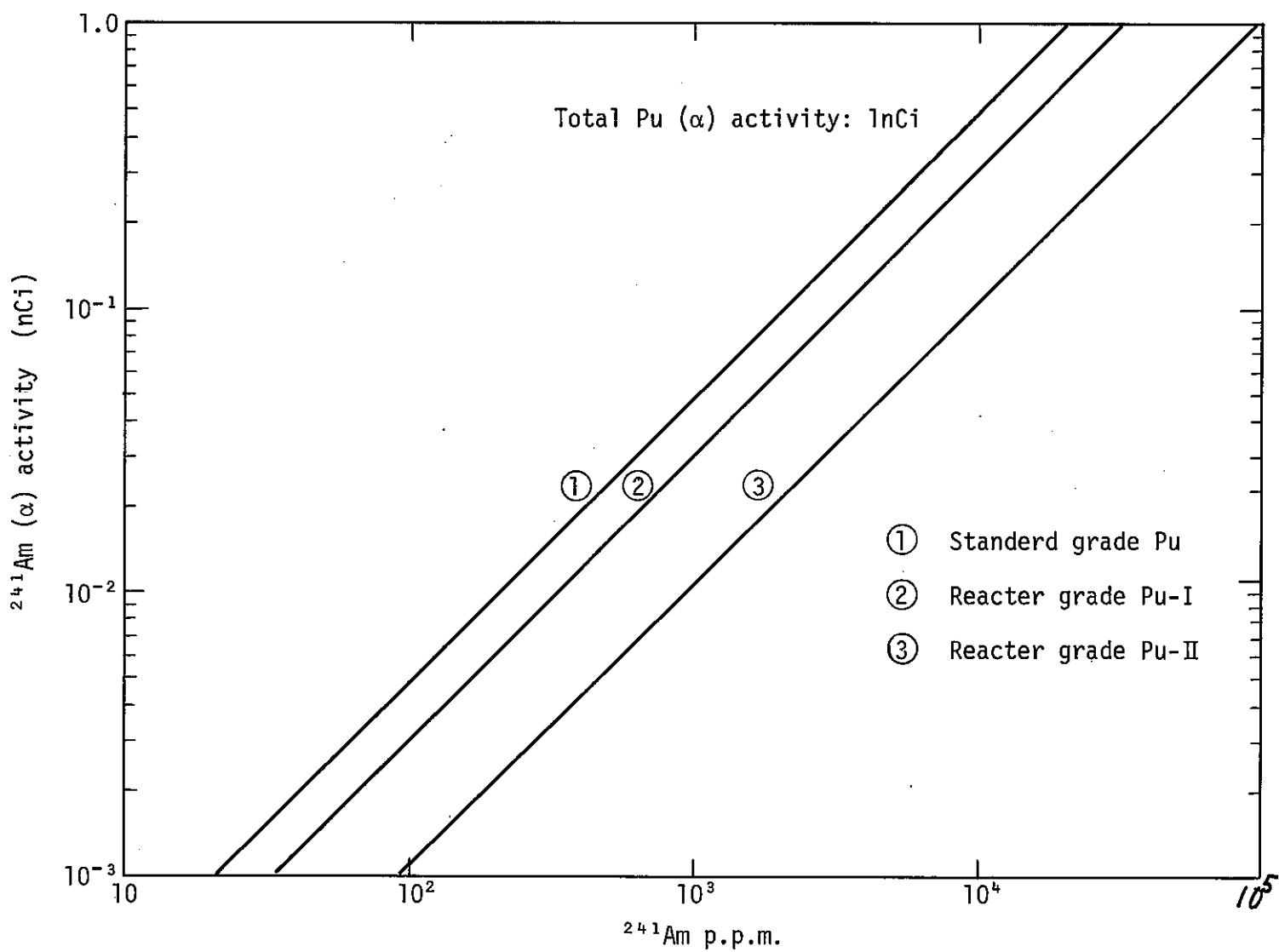


Fig. 24 Relation between ^{241}Am p.p.m. and ^{241}Am activity corresponding to 1nCi of Pu

つぎに、 ^{241}Am がPuに共存する場合について検討する。 ^{241}Am の含有量は、Puの重量に対する割合(ppm)で表現すると、Puが1 nCi存在する時、5.1節のTable 9.に示した3種類の同位体組成比のPuについて、 ^{241}Am の ppmと ^{241}Am の放射能の関係は、Fig.24に示すようになる。

一例として、Table 9.に示す原子炉級Pu-Iの同位体組成比のPuが、Table 11.に示す検出限界値の7 nCi存在した時、PuのL X線による17 keVエネルギー領域の計数率は、鉄室のバックグラウンドの10 cpmに($7(\text{nCi}) \times 0.58(\text{cpm}/\text{nCi}) =) 4.1(\text{cpm})$ 加わることになる。一方、Puが7 nCi存在し、 ^{241}Am が 10^4 ppmの時、 ^{241}Am の放射能は、Fig.24から、2.1 nCiとなる。 ^{241}Am が2.1 nCi存在すると、 ^{241}Am のL X線による17 keVエネルギー領域の計数率はTable.5に示す ^{241}Am の17 keVに対する計数効率を用いて計算すると($2.1(\text{nCi}) \times 3.4(\text{cpm}/\text{nCi}) =) 7.1(\text{cpm})$ 増加する。この ^{241}Am による7.2 cpmは、Puを定量する上からは防害となり、Puの定量の確度を低くすることになる。

一方、 ^{241}Am の2.1 nCiは、60 keVに対する ^{241}Am の検出限界値の0.33 nCiよりも1桁高いため、 ^{241}Am は60 keVエネルギー領域の計数率から解析することができる。

したがって、 ^{241}Am が 10^4 ppm存在するとわかっている時には、まず、60 keVから ^{241}Am を定量し、この値と 10^4 ppmの値を用いてPuを定量すれば良いことになる。

以上の検討結果から ^{241}Am が、 ^{241}Am の60 keVエネルギー領域に対する検出限界値である0.33 nCi以上存在する時には、誤差評価の項でも述べた様に、まず、 ^{241}Am を60 keVエネルギー領域の計数率の解析から求め、別に求めたPu/ ^{241}Am 比を用いてPuを定量する方法が現実的である。この場合、 ^{241}Am が 10^4 ppm存在することが明らかになり、かつPuの同位体組成比が原子炉級Pu-Iであったとすると、 ^{241}Am の検出限界値の0.33 nCiに対応するPuの放射能は、Fig.25に示した ^{241}Am の ppmとPuの放射能の関係から1.1 nCiとなる。この値は、Puの17 keVエネルギー領域の検出限界値である7 nCiよりも小さな値であり、 ^{241}Am が 10^4 ppm存在する時には、Pu/ ^{241}Am 比から間接的にPuを求める方がPuに対する見掛け上の検出限界値は良くなることになる。

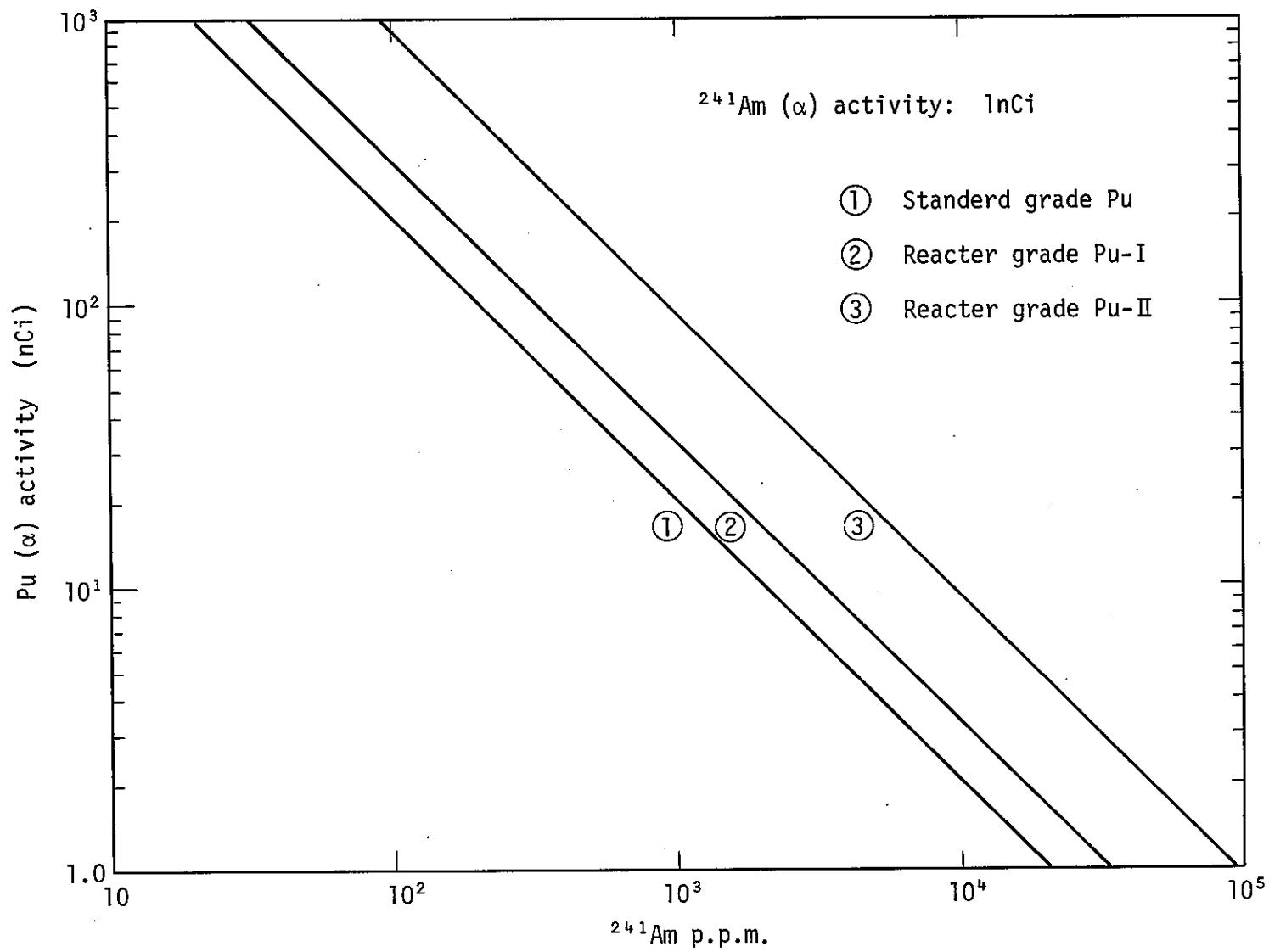


Fig. 25 Relation between ^{241}Am p.p.m. and Pu activity corresponding to 1nCi of ^{241}Am

7. 結 論

肺に取込まれた Pu を体外から測定するための肺モニタに、 NaI (Tl) と CsI (Na) の二重結晶からなる 12.5 cm 直径の“ホスウィッチ型”検出器を導入し、この検出器の特性試験と、 Pu および ^{241}Am 線源と人体等価“ランド”ファントムを用いて、校正を行なった。また、ファントム校正から得られた校正定数をヒトに適用する際に問題となる Pu 同位体組成比の影響、軟組織厚さの影響、および ^{241}Am の影響について検討した。得られた結果は以下のとおりである。

- (1) NaI / CsI 二重結晶からなる検出器と波形処理回路の導入によって、バックグラウンドは、従来の 20 cm 直径の NaI の単一結晶の検出器に比べ、17 keV エネルギー領域で $1/3$ に、60 keV エネルギー領域で $1/2.5$ に減少した。
- (2) 人体等価ファントムを用いて校正した結果、スタンダードグレードの Pu の 17 keV エネルギー領域に対して 0.16 cpm/nCi、 ^{241}Am の 60 keV エネルギー領域に対して 27 cpm/nCi の計数効率を得た。
- (3) スタンダードグレードの Pu の X/α 比を 1.0 とすると、最も高次化した Pu (^{239}Pu が 48 %) では、 X/α 比は 1.75 倍になる。ヒトの吸入した Pu の同位体組成比が、ファントム校正に用いた Pu の同位体組成比と異なる場合、この X/α 比を用いて補正する方法を提案した。
- (4) ヒトの胸部軟組織厚さを、超音波装置を用いて成人男子 60 名について実測し、体格との相関関係を調べた。
その結果、胸部軟組織厚さは、体重 / 身長と最も相関係数の高いことがわかった。また、測定した 60 名の胸部軟組織厚さは、平均 2.03 cm \pm 0.37 cm (1 σ)、最低で 1.5 cm、最大で 3.2 cm であった。胸部軟組織厚さが 1.5 cm のヒトと 3.2 cm のヒトでは、17 keV エネルギー領域の軟組織に対する吸収割合は約 4 倍異なる。したがって、Pu を 17 keV エネルギー領域の計数率から解析する場合には、胸部軟組織厚さに対する補正は必要不可欠である。
- (5) ^{241}Am の影響について検討した結果、 ^{241}Am の LX 線が Pu の LX 線より多くなる時は、化学分析などによって Pu / ^{241}Am 比を別に求め、肺モニタでは、 ^{241}Am の 60 keV の γ 線を用いて ^{241}Am を定量し、これと Pu / ^{241}Am 比のデータから肺中の Pu 量を推進する方法が現実的である。
- (6) 検出限界について、120 名のヒトの実測データを用いて検討した。その結果、平均的な体格（胸部軟組織厚さが 2.03 cm）のヒトについて、スタンダードグレードの Pu (^{239}Pu が 97 %) では、50 分計測の場合、検出限界値は 9 nCi である。
原子炉級の Pu (^{239}Pu が 78 %) については、50 分計測の場合、検出限界値は 7 nCi である。

^{241}Am の 60 keV に対する検出限界値は 50 分計測の場合 0.33 nCi である。

8. 今後の検討結果

Pu の 17 keV エネルギー領域の計数効率はファントム実験の結果ではスタンダードグレードの Pu に対して 0.16 cpm/nCi である。これに対し 17 keV エネルギー領域のバックグラウンドは約 10 cpm で、この両者の数字からも Pu のクラス Y の年摂取限度である $5 \times 10^2 \text{Bq}$ (13 nCi) を検出することが、いかにむずかしいかが推測できる。加えて、軟組織の厚さが正確にわからない場合には、解析結果の確度はファクター 2 ~ 5 になると考えられる。

^{241}Am が存在しない場合には、Pu の 17 keV エネルギー領域の L X 線を用いて解析せざるを得ない。

しかし、 ^{241}Am が検出された時には、Pu を直接肺モニタから定量しようとしないで、肺モニタでは ^{241}Am のみを定量し、Pu / ^{241}Am 比は、鼻スミヤ試料や糞試料などの化学分析から別に得、これらのデータから、肺中の Pu を間接的に求める方法が、より正確な肺中 Pu を推定する方法としては現実的であると言える。

したがって、今後の肺中 Pu を定量するための技術開発の焦点は、ヒトが吸入したものと同じ Pu について、Pu / ^{241}Am 比を迅速に求める技術の開発が上げられる。また、微量 Pu から同位体存在比を迅速に測定する技術の開発も必要である。

さらに、吸入後時間の経過とともに Pu および ^{241}Am は骨に移行するため、体外から骨に移行した Pu および ^{241}Am を定量するための校正法の検討も必要と思われる。

9. 謝 辞

肺モニタの校正に関し、終始有益な助言を頂いた日本原子力研究所体内放射能課城谷考氏と、校正用 Pu 線源の入手および値付けにご協力頂いた技術部分析課山田一夫氏および安全管理部環境安全課吉村征二副主任研究員に感謝の意を表します。

また、診断用超音波装置は、株日立メディコのご好意により使用させて頂いたもので、ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) ICRP Publication 19, The Metabolism of compounds of plutonium and other actinides, Pergamon Press, (1972)
- 2) ICRP Publication 30, Limits for intakes of radionuclides by workers, Pergamon Press, (1978)
- 3) B.T. Taylor, A proportional counter for low-level measurement of plutonium-239 in lungs, Health Physics Vol. 17, 59-69, (1969)
- 4) T. Ishihara et al., Plutonium lung monitor using a thin NaI(Tl) crystal of large area, Health Physics Vol. 17, 669-678, (1969)
- 5) K.L. Swinth et al., Developmental scintillation counter for detection of plutonium in vivo, Health Physics Vol. 19, 543-550, (1970)
- 6) M.R. Boss and J.R. Mann, Body counter evaluations of plutonium exposures, Health Physics Vol. 13, 259-266, (1967)
- 7) E.G. Shapiro and A.L. Anderson, Dual energy analysis using phoswich scintillation detectors for low-level in vivo counting, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-21, (1974)
- 8) S.P. Garg and D. Newton, Reduction of the low energy background of a phoswich detector, Health Physics, Vol. 32, 113-116, (1977)
- 9) R.C. Shrima and G. Krishnamachari, A large-area phoswich detector for measurement of low levels of low-energy photon emitters, Nucl. Inst. and Method. Vol. 130, 305-311, (1975)
- 10) F.K. Tomlinson and R. Brown, Application of phoswich detectors for lung counting plutonium-238, Proceeding of a 3 rd International Congress of IRPA. (1973)
- 11) G.F. Clemente, In vivo measurement of ^{239}Pu in man, (Health Physics problems of internal Contamination)
- 12) A.L. Anderson and G.W. Campbell, LLL plutonium lung counter calibration and discussion of errors, UCRL-78409, (1976)
- 13) V. Lössner, High-sensitivity detection of low-energy photon emitters in man by pulse-shape analysis, in Diagnosis and treatment of incorporated radio-nuclides, IAEA, 249-263, (1976)
- 14) A. Schmitt and H. Fessler, Recent developments in lung counting of transuranium nuclides at Karlsruhe, in Diagnosis and treatment of incorporated radio-nuclides, IAEA, 285-292, (1976)
- 15) 立田初己,「肺中プルトニウム測定用遮蔽設備に関する業務」, 動燃委託研究業務報告書, 日本原子力研究所, (1970)

- 16) 城谷考, 藤田稔 他, 「肺中プルトニウム測定法研究 — 大面積比例計数管の開発 —」, JAERI-memo 4145, (1970)
- 17) 城谷考, 藤田稔, 「肺中プルトニウム測定法の研究 — 大面積 NaI(Tl) 検出器の開発とその校正 —」, JAERI-memo 4455, (1971)
- 18) 須磨崎一治, 岡部正則 他, 「肺モニタによる人体バックグラウンドと肺中プルトニウムの調査報告」, ZN842-73-05, (1973)
- 19) D. Newton and Frances. A. Fry et. al, Interlaboratory comparison of techniques for measuring lung burdens of low-energy photon-emitters, Health physics. Vol. 35, 751-771, (1978)
- 20) D. Newton and B.T. Taylor, X-ray counting efficiencies for plutonium in lungs, derived from studies with inhaled palladium-103, Health Physics, Vol. 34, 573-585, (1978)
- 21) T. Shirotani, A large area thin NaI(Tl) detector for external counting of low-energy emitters in lung, Jur. Nucl. Sci. and Tec. Vol. 12, [7] 442-449, (1975)
- 22) T. Shirotani and M. Fujita, A method of determination of correction factor for different body builds in the assessment of Pu-239 in lung, Jur. Nucl. Sci. and Tec. Vol. 10 [5], 301-308, (1973)
- 23) ICRP Publication 26, 1977, 日本アイソトープ協会
- 24) H.I. Israel, Phys. Rev. 88, 682 (1952)
- 25) D. West, J.K. Dawson et al, Phil. Mag. 43, 875 (1952)
- 26) I. Ahmad, Thesis, Univ. California; UCRL-16888 (1966)
Nuclear spectroscopic stndies of some very heavy odd-mass nuclides
- 27) JRACBN, Vol. 27. No.1 (1975)
- 28) L.G. Faust, Measured and calculated surface dose rates of plutonium and plutonium oxides, BNWL-SA-22, (1965)
- 29) C.E. Bemis, et al.
Detection of internally deposited actinides part IV: preliminary considerations in the use of large, planar intrinsic Ge detectors, ORNL CONF-760202-20
- 30) D. Newton and B.T. Taylor, X-ray countining efficiencies for Pu in lung, derived from studies with inhaled Pd-103, Health Physics Vol. 34, 573-585, (1978)
- 31) D. Ramsden and C.O. Peabody, The use of ultrasonic to investigate soft tissue thicknesses on the human chest AEE-R-493, (1967)
- 32) J. Rundo, Effective tissue thickness for external counting of low energy emitters in lung, Health Physics, Vol. 17, 155-157, (1969)

- 33) P.N. Dean, Estimation of chest wall thickness in lung Counting for Plutonium, Health Physics Vol. 24, 439~442, (1973)
- 34) G.W. Campbell and A.L. Anderson, New development in ultrasonic of the chest and other body organs IAEA-SM-229/53, (1978)
- 35) 斎藤節子, 小泉勝三 他, 「ホールボディカウンタの臓器ファントムによる校正」; PNC-N841-79-13, p.49, (1979)