

Nal(Tl) シンチレーションスペクトロメータによる
 γ 線スペクトロメトリーガイダンス

2015年3月

公益社団法人日本アイソトープ協会
理工学部会

目 次

序論.....	1
第1章 測定原理.....	2
第2章 測定機器.....	4
2.1 検出部.....	5
2.2 測定装置部.....	7
(参考) 新しいAD変換.....	9
2.3 遮蔽体.....	10
2.4 機器設置上の注意(測定室・分析室).....	11
2.5 機器への性能要求.....	13
第3章 機器の設置と点検・調整.....	15
3.1 スペクトル表示位置の調整.....	15
3.2 エネルギー校正.....	16
3.3 効率校正.....	17
3.4 点検.....	18
第4章 試料の測定.....	22
4.1 分析作業フロー.....	22
4.2 測定手順.....	22
4.3 結果の解釈.....	23
4.4 測定結果の記録.....	26
第5章 測定試料調製法.....	28
5.1 試料容器.....	28
5.2 試料の前処理.....	28
5.3 試料の作り方.....	29
5.3.1 食品試料の扱い.....	29
5.3.2 試料の充てん.....	30
第6章 スペクトル解析.....	33
6.1 ピークサーチ.....	33
6.2 ピーク面積の算出.....	34
6.2.1 単純ピーク積分.....	34
6.2.2 ピーク関数適合による複合ピークの処理.....	35
(参考) その他の複合ピークの処理方法.....	37
第7章 放射能濃度の計算.....	41
7.1 放射能濃度の計算.....	41
7.2 自己吸収補正.....	41
7.2.1 円柱容器.....	42
7.2.2 マリネリ容器.....	42
7.3 カスケードサム効果.....	43
7.4 測定の不確かさ.....	44
第8章 精度管理と計量トレーサビリティ.....	45
8.1 標準線源.....	45
8.2 標準物質.....	47
8.3 計量トレーサビリティ.....	48
8.4 保守・点検と校正.....	49

(参考資料 1) カスケードサム補正	51
(参考資料 2) ベルトコンベア式食品モニタの概要	54
1. 装置の特徴	54
2. 装置の構造	54
3. 測定方式	55
4. 使用上の注意点	55
(参考資料 3) 全計数型放射能濃度測定装置の概要	57
1. 装置の原理	57
2. 特徴	57
3. NaI(Tl)スペクトロメータとの違い	58
4. 放射能濃度の測定	59
5. 点検・校正	59
6. 装置例と代表仕様	59

序論

2011年3月11日の東京電力福島第一原子力発電所の事故に伴い、広範囲にわたって拡散した放射性物質により環境が汚染された。農産物をはじめとする食の安全を確認するために、多くの種類の食品中の放射能濃度測定装置が市場に投入され、各所で測定が行われている。

例えば、厚生労働省で定める食品中の放射性物質の試験法ではエネルギー分解能の優れたゲルマニウム検出器が用いることが規定され、検査に用いられているが、比較的安価で液体窒素での冷却が不要なNaI(Tl)シンチレーション検出器もスクリーニング検査や自主検査目的の測定などでは多く用いられている。厚生労働省より発出された「食品中の放射性セシウムスクリーニング法」でも、ゲルマニウム検出器以外のNaI(Tl)シンチレーション検出器などもスクリーニングに用いることを想定し、活用されている。これらの機器の情報については、日本アイソトープ協会のホームページに「食品中の放射性セシウムスクリーニング法に対応可能な検査機器の情報について」において確認できる。また、同協会が出版している「機器ガイド」には、スクリーニング法を用いた検査以外の一般の測定に用いる機器も紹介されている。

事故発生後の早い時期では短半減期で放射能が高い ^{131}I (半減期:8.021日)が主たる対象核種であったが、数ヶ月以降は ^{137}Cs (半減期:30.04年)、 ^{134}Cs (半減期:2.065年)が主たる測定対象核種に移り変わっている。スクリーニング法のような検査においては、必ずしもスペクトル分析は必要ないが、このように測定核種が混在しその比率が時間と伴に変化するような場合にそれぞれの核種の放射能を正確に測定するには、核種を同定し核種ごとの放射能を評価するスペクトル分析法が有効である。分析法については、「文部科学省マニュアル 放射能測定シリーズ NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法：昭和49年」が刊行されておりWeb上からダウンロードが可能であり、参考となる。しかしながら、近年の食品中の放射能測定においては、 ^{137}Cs は662keV、 ^{134}Cs は605keV及び796keVが主たる放出 γ 線であり、環境中の自然放射線による γ 線スペクトル分布の中に埋もれた微量の放射能を精度良く測定するには、試料の調整、スペクトル測定、測定環境、スペクトル分析などに十分配慮する必要があり、文部科学省マニュアルのみでは現在の要求に対応するには不十分な面もある。

本ガイドではこのマニュアルを補完する意味で、近年の技術開発およびスペクトル分析手法の進展を踏まえ、また、現在必要とされている食品中の放射性セシウムの放射能濃度測定に焦点を当て、測定の原理、分析方法、測定および評価の際に注意すべき点を解説する。

現在の食品中の放射能濃度測定装置は、マリネリ容器や円筒容器に試料を入れNaI(Tl)シンチレーション検出器で測定する装置が主流であるが、他にも、大容量の米袋などをベルトコンベア式で測定する装置やプラスチックシンチレータを用いた比較的安価な装置などがあり、これらについても参考に紹介する。

本書が、食品中の放射能の分析測定に携わる方、さらにはこれから放射能分析装置の設計に携わる技術者のガイドとなれば幸いである。また、このガイドは厚生労働省より発出された「食品中の放射性セシウムスクリーニング法」、その他、関連のマニュアル、ガイドラインなどに適用できる測定器の性能及び分析法を規定したものではないことを付記する。

第1章 測定原理

試料中の放射性核種の放射能を測定するには、放射性核種が崩壊したときに放出されるヘリウムの原子核の α 線、電子の β 線、光子の γ 線を測定して、放射線のエネルギーから放射性物質を決定し、単位時間あたりに計数した放射線の数から放射能を決定する。放射線はその種類、エネルギーによって透過力が異なる。一般に α 線は最も透過力が弱く、紙で遮蔽できる。 β 線は α 線より透過力があるが、数 mm 程度の軽金属板で遮蔽でき、弱透過性放射線に分類される。一方、 γ 線は透過力があり、遮蔽するには原子番号が高く、密度の大きな数 cm~10 cm 程度の鉛などの物質が必要となる。

放射線の透過力の違いは、放射線・放射能測定において重要な要素となる。放射性核種の決定には、一般に γ 線が用いられる。 α 線や β 線は弱透過性放射線のため自己遮蔽（吸収）されやすく、表面汚染の測定などには適しているが、スペクトロメトリーによる放射性核種の同定では、試料調製など専門的な技術が必要で、容易ではない。一方、 γ 線は物質内部からの放出でも物質透過に際して大部分の γ 線はエネルギー（情報）を失うことなく、放射性核種から放出された γ 線エネルギーの情報が測定スペクトルから得られる。放射性核種が放出する γ 線のエネルギーは放射性核種ごとに決まっているため、得られたエネルギースペクトルから放射性核種の同定が比較的容易にできる。食品中の放射能濃度を測定するには、含まれる放射性核種の同定を行い、その放射性核種の濃度を測定する必要があり、この方法が利用される。

γ 線スペクトロメータに用いられる γ 線の検出器としては、放射線の入射で電子-正孔対をつくる半導体検出器と、光を出すシンチレータが知られている。シンチレータとはシンチレーション（閃光や蛍光）を出すもので、その光は非常に弱く、光による電子信号を増幅する光電子増倍管（以下、PMT という。）などと組み合わせて用いる。食品中の放射性核種を容易に測定できる検出器としては半導体検出器の一つであるゲルマニウム検出器（以下、Ge 検出器という。）が最も高性能であり、専門の分析機関などで用いられている。しかしながら、Ge 検出器は高価な上、冷却用の液体窒素が必要であり取扱いも容易ではない。Ge 検出器と比較して安価であり、取扱いやすい代表的な検出器はタリウム活性化ヨウ化ナトリウム NaI(Tl)^{*1-1)}シンチレータを用いたものである。NaI(Tl)シンチレーション検出器（以下、NaI(Tl)検出器という。）を利用した NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ（以下、NaI(Tl)スペクトロメータという。）は Ge 検出器を用いたものより性能は劣るものの、現在の放射性セシウムに対する一般食品の規制レベルの測定は十分可能である。

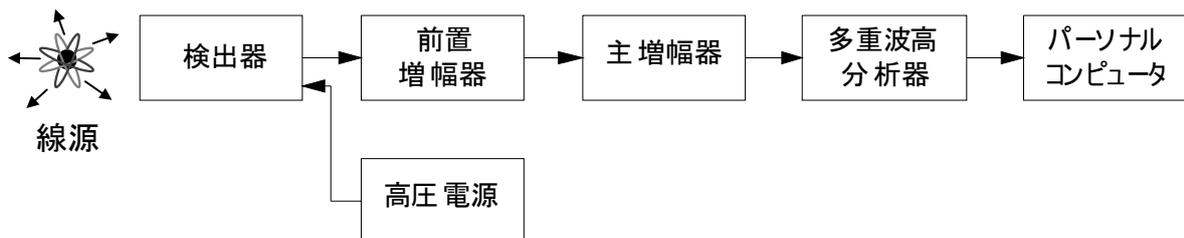


図 1.1 NaI(Tl)検出器を用いた γ 線スペクトロメータの回路構成例

γ 線スペクトロメータの構成ブロック図を図 1.1 に示す。装置は一般に、検出器、増幅器などの計測回路部及び解析部（パーソナルコンピュータ）により構成される。市販の装置には、高圧電源、増幅器、多重波高分析器（マルチチャンネルアナライザ：MCA）などの計測回路部が検出器と一体化し、遮蔽体を含む検出部と解析用パソコンにより構成されているような装置もある。詳細は第 2 章で述べる。

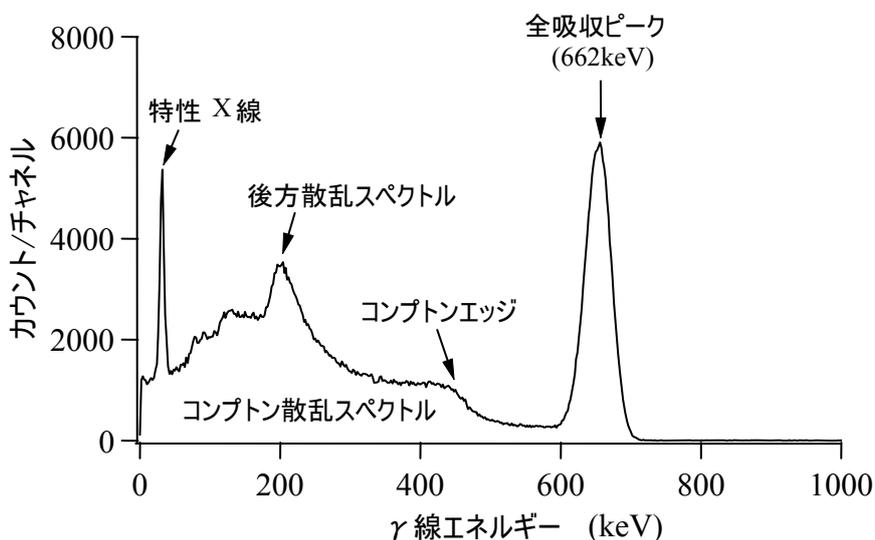


図 1.2 ^{137}Cs γ (X)線スペクトルの例

図 1.2 に放射性セシウム ^{137}Cs を NaI(Tl)スペクトロメータを用いて実際に測定したスペクトルの例を示す。検出器に入射した γ 線は、検出器と相互作用を起こすことで、そのエネルギーのすべて又は一部を検出器に付与し、検出器はこの付与されたエネルギーに比例したパルス信号を出力する。パルス信号の波高ごとの計数値分布（ヒストグラム）が図 1.2 に示すような γ 線スペクトルである。 ^{137}Cs の場合、放出される 662 keV の γ 線による全吸収ピークが観測されるが、それ以外のエネルギーにもスペクトルは広がっている。 γ 線を計測すると、 γ 線の持つすべてのエネルギーを吸収した場合の全吸収ピーク（光電ピーク）、検出器の中で一部のエネルギーが吸収されてできるコンプトン散乱スペクトル、検出器の外側に向かった γ 線が周辺の物質と散乱を起こして検出器に入射した結果生じる後方散乱スペクトル、内部転換に伴い、放射性核種の原子内の励起された電子が安定状態に遷移する際に発生する特性 X 線スペクトルが観測される。コンプトン散乱スペクトルは特定のエネルギーより低いエネルギー領域に現れ、この特定のエネルギーをコンプトンエッジと呼ぶ。検出器の中でコンプトン散乱を 1 度起こし、この散乱した γ 線が再度検出器の中で検出されることもある。このような現象は多重コンプトン散乱といい、散乱したエネルギーの重なりとして検出され、コンプトンエッジより高いエネルギーにもスペクトルが現れる。 γ 線スペクトロメトリーにおいては、このような検出原理を理解し、スペクトル情報を正しく読み取ることができなければ、正しい測定を行う上で重要である。

*1-1) NaI(Tl)シンチレータには放射線の入射によるシンチレーションの光の波長を調整するために微量のタリウムが添加されている。

第2章 測定機器

ここでは、NaI(Tl)スペクトロメータについてより詳細に説明をする。

市販のスペクトロメータは、NaI(Tl)検出器と高圧電源 (HV)、増幅器及びスペクトルを作成するマルチチャンネルアナライザ (MCA) を組み合わせ、得られたスペクトルから放射能濃度を計算する。AD 変換部以前の回路がアナログ方式のものと、それとは異なるデジタル方式のものがある。ここでは近年普及している PC を使用した解析装置でスペクトルの作成、放射能濃度の計算を行うデジタル式を例に解説する。

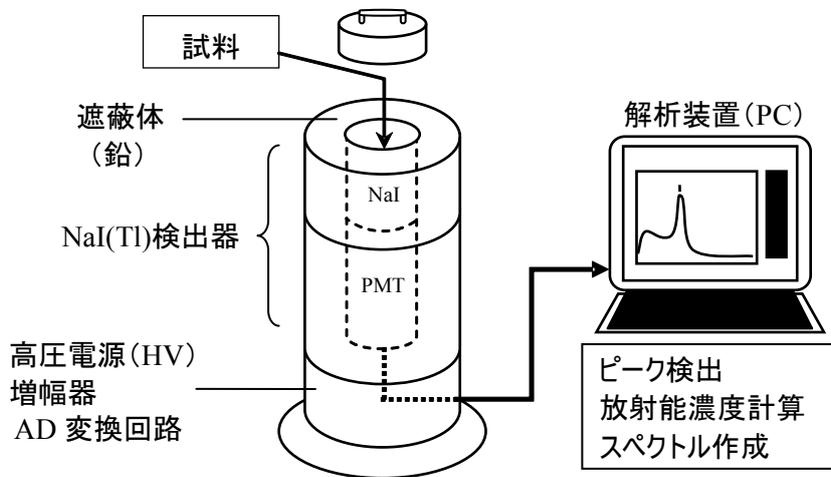


図 2.1 NaI(Tl)スペクトロメータの構造

デジタル方式の NaI(Tl) スペクトロメータの構造例を図 2.1 に示す。検出部は遮蔽材で囲まれ、外部 γ 線の影響を受けにくい構造となっている。 γ 線が検出器に入射すると PMT から電気信号が出力され測定回路に入力する。測定回路は増幅器と AD 変換回路でできており、検出器からの信号をデジタル信号に変換して解析装置に出力し、デジタル信号になったエネルギー信号を、解析装置でエネルギーごとに分類する。 γ 線が検出器で検出されるたびにこの動作を繰り返して、エネルギー分布であるスペクトルを得る。解析装置は、作成したスペクトルを表示するとともに、測定対象となる放射性核種のピークを検出し計数値を求めるピーク検出機能、求めた計数値から放射能濃度を求める放射能濃度計算機能などを持つものが一般的である。

近年は回路の小型化により測定回路や高圧電源が検出器に組み込まれて一体となったものも出ている。さらには一般的となったパーソナルコンピュータと検出器をケーブルで接続することで解析装置の機能をコンピュータソフトで実現して、試料の充てん質量を入力するだけで放射能濃度の測定結果を表示する装置が増加している。検出器には電源が必要であるが、これもコンピュータから供給することで容易に使用できる装置が増加している。

2.1 検出部

NaI(Tl)スペクトロメータの検出部は、主に NaI(Tl)シンチレータと PMT で構成される。NaI(Tl)シンチレータが γ 線の入射で発する光は非常に弱く、光を電気信号に変換しながら増幅する PMT を使用して電気信号に変換する。NaI(Tl)シンチレータが発する光は、検出した γ 線のエネルギーに比例し、PMT にて光量に比例した波高の電気信号に変換することで、 γ 線のエネルギーに比例した電気信号が得られる。NaI(Tl)シンチレータと PMT で構成された検出器の構造を図 2.2 に示す。近年電子回路の発展は目覚ましいものがあるが、NaI(Tl)シンチレータと PMT を組み合わせた検出器の構造は従前からほとんど変化していない。検出器は機械的衝撃や温度衝撃に弱いので、特に下記の注意が必要である。

- ・物をぶつけない 衝撃を与えると NaI(Tl)シンチレータや PMT が破損することがある。
- ・試料を押し込まない 試料容器が検出器に無理な力をかけ、NaI(Tl)シンチレータや PMT が破損することがある。
- ・試料は室温で測定する 検出器に急激な温度変化を与え、NaI(Tl)シンチレータが破損することがある。

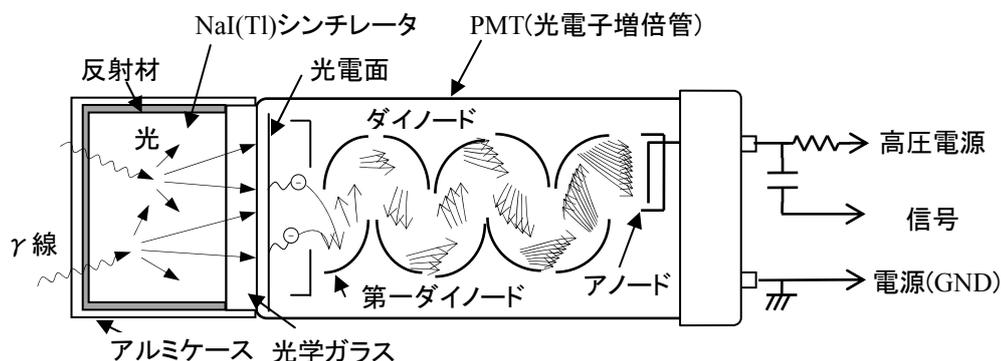


図 2.2 検出器の構造

・ NaI(Tl)シンチレータ

NaI(Tl)シンチレータは、エネルギー分解能が良く、入手しやすいが、単結晶のため温度変化に弱く、潮解性があり密閉された容器に入れられている。NaI(Tl)シンチレータの発光を PMT に集めるために NaI(Tl)シンチレータの周辺には反射材が塗られており、PMT と接合される面のみに光学ガラスに接合されている。

NaI(Tl)シンチレータは、体積が大きいほど γ 線に対する感度が高くなり短時間で測定が可能となる。主に直径と高さが 2 インチ ϕ (51 mm) \times 2 インチ又は 3 インチ ϕ (76 mm) \times 3 インチの NaI(Tl)シンチレータが使われている。NaI(Tl)シンチレータのサイズが 3 インチの場合、2 インチに比べ体積が 3 倍以上あり、その分検出感度が高くなることで、短時間にあるいはより高い精度で測定が可能になる反面、装置が大きくなり、より高価でもある。微量な放射性核種の検出が目的の場合は 3 インチの NaI(Tl)シンチレータが有利であるが、スクリーニングの目的には 2 イン

チの NaI(Tl)シンチレータで十分な感度を持つ。測定時間を長くすればさらに小さいサイズの NaI(Tl)シンチレータでも測定は可能である。

検出器の重要な性能を示す指標の一つにエネルギー分解能がある。放射性核種が出す γ 線は ^{137}Cs が662 keV というように固有のエネルギーが決まっている。しかしながら、この γ 線を測定すると、広がりを持ったスペクトルが測定される。この広がりをエネルギー分解能で評価する。通常、ピークエネルギー付近で測定された最大のカウンント値に対し、1/2 のカウンントになるエネルギー幅である、FWHM (Full Width at Half Maximum) で表す。NaI(Tl)シンチレータの場合は、エネルギー分解能は得られた FWHM をピークエネルギーで除し百分率 (%) で表すのが通例である。このエネルギー分解能を決定する要因はいくつかあるが、NaI(Tl)シンチレータが出力する光子数のばらつきが最も支配的で、PMT の増幅のばらつきと PMT が出すノイズ、その後段の測定回路でのノイズなどがその他の要因となる。測定する γ 線のエネルギーによりエネルギー分解能は変わる。NaI(Tl)シンチレータを使用したスペクトロメータのエネルギー分解能は、 ^{137}Cs から放出された 662 keV の γ 線で評価し、検出器の大きさにもよるが、2 インチ~3 インチの検出器では 7% - 9%程度が一般的である。

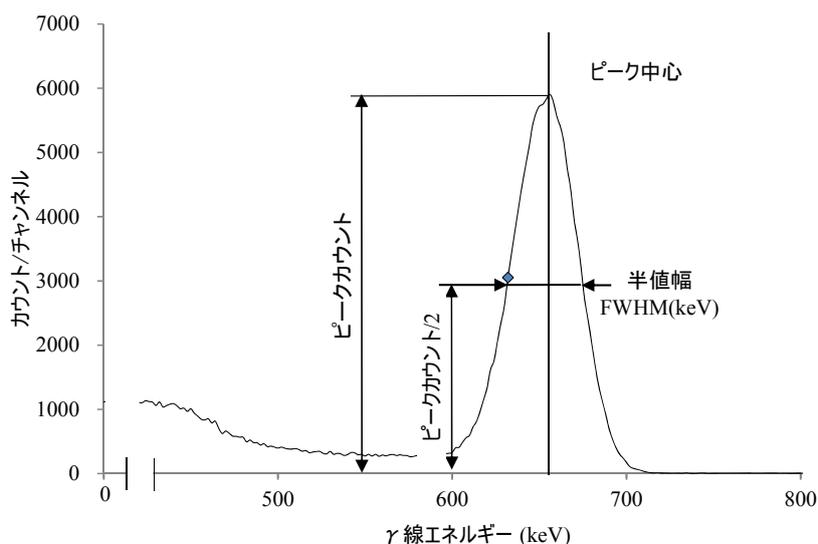


図 2.3 エネルギー分解能

・光電子増倍管 (PMT)

PMT は光を受けて電子を出し、内部でこの電子を増加させて光信号を電気信号に変換しながら増幅するものである。PMT を動作させるには周辺機器として高圧電源が必要であり、内部で電子を増加させるために、数 100 V から 1000 V 程度の電圧を印加している。電圧配分するダイバダ回路を通じて各ダイノードに電圧が印加される。NaI(Tl)シンチレータから出た光を電子に変換する光電面 (図 2.2 参照) で発生した電子は、電圧が加えられた第一ダイノードの間で加速、収束され、第一ダイノードに衝突すると、ダイノードで衝突した電子の数倍の数の二次電子が発生する。この二次電子は同様の過程により次のダイノードで増倍される。これを 10 段程度繰り返す。

返して、最後のアノードから電気信号を出力する。PMT は電極間に印加した電圧で増幅する真空管であり、電極間に印加された電圧が変化すると、出力する信号が変化する。高圧電源電圧が変化すると、電極間の電圧が変化するため、わずかな高圧電源電圧の変化でも増幅度が大きく変化する。数十 V の電圧変化でも、増幅度は 50% 程度変化することもあるので、高圧電源電圧を安定させることは非常に重要である。

PMT はシンチレータとともに、外部から光が入らないように遮光ケースに収納されている。遮光が破られると、PMT あるいは後段の測定回路が破損する可能性もある。PMT の周辺の磁気が変わると増幅度の変化が発生するので、場合によっては、外部の磁気の影響を低減するため、検出器全体を高透磁率の金属製のケースに入れる必要がある。

2.2 測定装置部

・測定回路

検出器の PMT から出力された信号は前置増幅回路に入力される。この増幅回路は、PMT からの出力信号を受けて、以降の処理が実行しやすいように信号を増幅するとともに高圧電源からの電圧を PMT に印加する（前置増幅器を介さずに高圧をかける PMT もある）。増幅回路で増幅された信号は、シェーピング回路にて波形整形処理を行い、AD 変換回路で信号をデジタル化できるようにする。PMT の信号を受ける前置増幅回路は、10 keV から 2 MeV 程度あるいはそれ以上の信号を扱う必要があり、小さな信号から大きな信号まで扱える広いダイナミックレンジが要求される。また、入射した信号を比例性を保ち忠実に増幅できる直線性が必要である。

図 2.4 に主な波形処理を示す。検出器からの出力信号は、 γ 線を検出すると ns (10^{-9} s) オーダですぐに出力し、NaI(Tl)シンチレータ

の発光特性から約 250 ns の減衰時間で減少する。シンチレータの発光はこの減衰時間に応じて減少するが、全体の発光量が等しくても微小時間ごとの発光量はばらついている。

増幅器では信号を大きくするとともに、このばらつきが信号に含まれないようにするために、信号の積分を行う。そのため増幅回路の出力信号は、減衰時間が数十 μ s (10^{-6} s) と長い信号となる。

シェーピング回路は、増幅回路の出力信号をさらに積分して立ち上がりの緩やかな信号にす

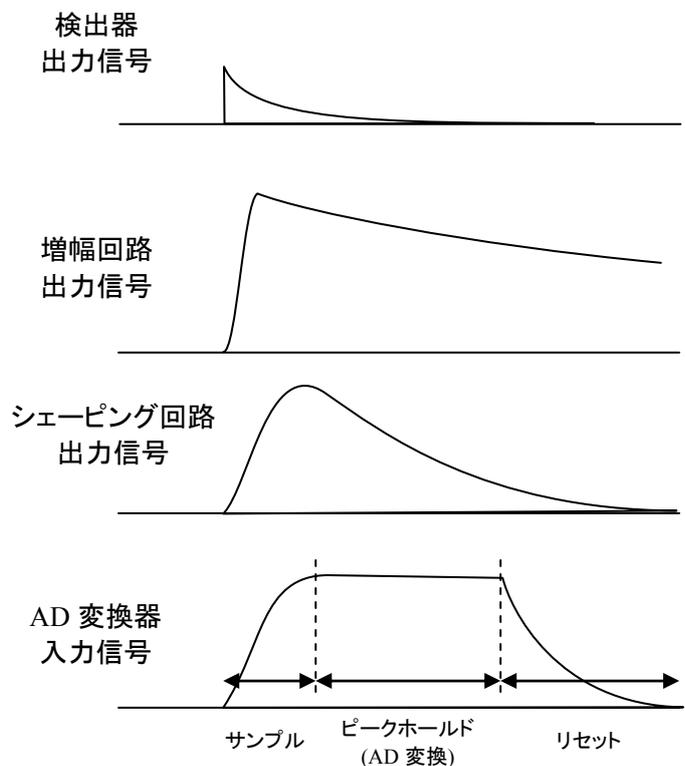


図 2.4 測定回路での波形処理

るとともに、微分操作を行って信号全体の長さを短くする。

AD 変換回路では入力した信号の最大値を保持するピークホールドが行われ、ホールドされた電圧をデジタル化（数値化）する AD 変換が行われる。変換が終わるとホールドはリセットされ新たな信号の変換が行えるようになる。

変換されたデジタル信号はデータ処理に取り込まれ、スペクトルが作成され表示される。現在では、AD 変換までを測定回路として検出器アセンブリの内部あるいは近傍で実施し、AD 変換出力をパソコンで取り込む方式が増加している。

・前置増幅回路

前置増幅回路を構成する増幅回路部とシェーピング回路部は、それぞれアナログ回路である。2つの回路が組み合わされて1つの回路になっている装置が多いが、放射線計測用のユニットで構成されたものもあり、この場合はいくつかのユニットの組合せとなっている。

増幅回路とシェーピング回路は、検出器に入射する数 keV から数 MeV の広範囲にわたる大きさの信号を扱える広いダイナミックレンジと、入射した信号を忠実に増幅できる直線性が要求される。さらに宇宙線など数 MeV を超える信号が検出されることもあり、ダイナミックレンジを超えることもあるが、このような場合でも以後の信号が破綻することなく継続して計測できるように設計されていなければならない。

シェーピング回路では波形処理が行われるが、検出した γ 線のエネルギーに比例した信号を出力する必要がある。検出器で検出された信号の大きさを保持しつつ、AD 変換回路が扱いやすい信号に波形が処理されることで、エネルギーごとにグループ化するスペクトルが作成できる。

・AD 変換回路

AD 変換回路は、前置増幅回路にて増幅、波形成形されたアナログ信号をデジタル化するものである。AD 変換には時間がかかるため、シェーピング回路の出力信号の最大値を保持するピークホールドを行い、保持（ホールド）している間に AD 変換を行う。変換に

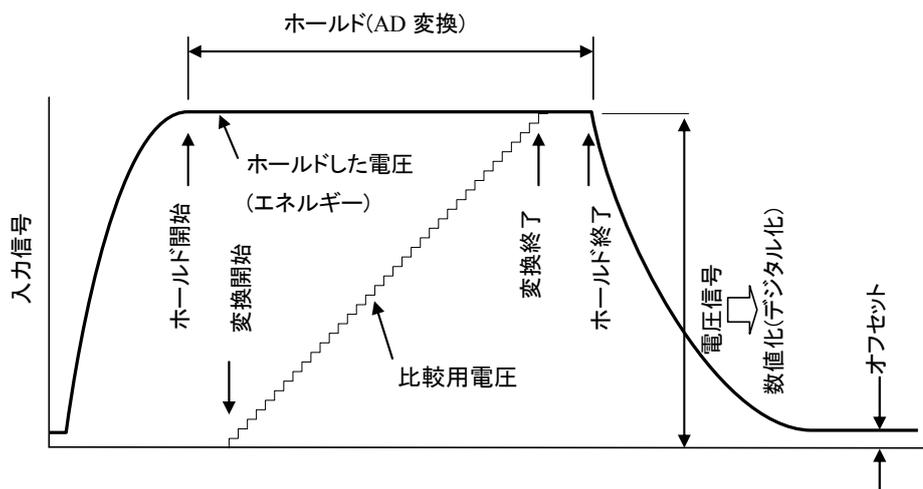


図 2.5 信号デジタル化の概念図

要する時間は、数 ms (10^{-3} s) と長くかかるものが多かったが、最近は数 μ s (10^{-6} s) に短縮されつつある。AD 変換回路はデジタル信号への変換が終わると、信号の保持を終了して信号のリセット

トを行い次の γ 線信号の入力に備える。

AD変換は、連続したアナログ信号を数値化するもので、一定の大きさごとにグループ化する。AD変換の一例を図2.5に示す。AD変換回路は、AD変換を開始すると小さな電圧を順次加算して、比較用電圧を作成する。この比較用電圧とホールドした電圧の比較を行い、比較用電圧が小さい場合は、小さな電圧の加算を再度行う。比較用電圧は徐々に大きくなり、ホールドした電圧と等しくなる。比較用電圧がホールドした電圧と等しくなった時点で、小さな電圧の加算を終了し、加算回数をデジタル化された信号として出力する。ホールドした電圧は γ 線の持つエネルギーと比例しており、デジタル化（数値化）された出力は、エネルギーと比例していることになる。

比較用電圧は0 Vから順次大きくなるため、 γ 線を検出しない時（0 keV相当）の電圧は0Vにしなければならない。0 Vからのずれをオフセットといい、調整を行う必要がある。

（参考）新しいAD変換

高精度なデジタル変換には時間がかかるため、従来1つの γ 線入射に対し1度のデジタル変換を行っていた。現在はAD変換の能力が向上し、より短時間で変換可能となり、変換方式や処理方式が変わりつつある。近年のAD変換は、数十 ns (10^{-8} s) の時間で行うことが可能になり、 γ 線の検出に無関係にAD変換が連続して行われる。この方法では1つの γ 線に対し、連続して複数の変換を行い、信号を加算してエネルギー信号とする。連続的に変換された信号は、Digital Signal Processor (DSP) で順次加算され、一定時間加算することで γ 線のエネルギー信号とする。アナログ信号の場合は積分を行うことで信号に含まれるノイズを軽減していたが、DSPでは連続した信号をデジタル化した後で処理してノイズ低減を行う。また、処理中に次の γ 線が検出された場合に処理を中断するなど、新たな機能の追加と、より高計数率への対応がなされている。また常にデジタル変換を行っているため、 γ 線の入らない信号で自動的にゼロ点調整を行うことも可能であり、その機能が組み込まれた装置もある。

・AD変換の直線性

AD変換回路はアナログ信号をデジタル化するためのものであり、連続した信号をデジタルの離散信号にする。一定の電圧範囲の入力信号を決まったチャンネルとして出力し、このチャンネルの発生頻度をまとめたものがスペクトルになる。AD変換回路は一定の電圧ごとにチャンネルが変わるようにすべきであるが、すべてのチャンネルを同じ電圧で切り替わるようにすることは難しく、わずかであるがチャンネルごとに電圧が異なっている。このチャンネルごとの電圧のずれを直線性（微分直線性）という。

図 2.7 は、AD 変換の一部を拡大して抜き出したものである。AD 変換回路では、一定の電圧ごとにチャンネルが変化する理想の変換が行われるべきであるが、チャンネルが変化する電圧は一定ではなく、広い部分あるいは狭い部分を持つ太い直線で示す、実際の変換のようになっている。すべての入力信号が同じ割合で AD 変換回路に入力する場合、すなわち均一なスペクトルが測定される場合は、各チャンネルで計測されるカウントはすべて同じになるべきであるが、変換する電圧がばらつくために各チャンネルで計測されるカウントは、理想の値に比べ大きくばらついたものになり、均一なスペクトルが入力されてもばらついたスペクトルになってしまう。

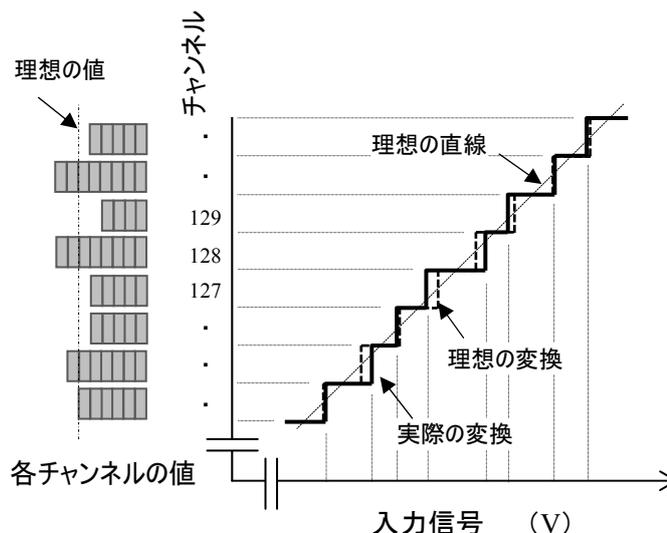


図 2.7 デジタル化の直線性

スペクトロメータは得られたスペクトルのピークから放射性核種を決める装置であるが、スペクトルにばらつきが生じ、ピーク位置をずれて検出することもある。エネルギーピークが異なる位置に移動して見えたり、ピークがない場所に全吸収ピークが存在するように見えることがあり、検出する放射性核種の取り違えや、放射能の測定の正確性に問題が生じる。

2.3 遮蔽体

試料に含まれる放射性核種からの γ 線を、外部 γ 線からの影響をできるだけ低減して測定するためには、検出部に鉛などの遮蔽を設けることが必要である。遮蔽厚さの違いによって遮蔽能力は異なり、スペクトロメータの性能に影響を及ぼす。バックグラウンド計数率は、検出限界計数率を決定する一つの大きな要因であり、バックグラウンドの計数率が低ければ限界計数率が低くなり検出限界は低くなる、あるいは短い測定時間で決められた検出限界を満足することが可能になる。検出部を遮蔽することが、外部から入射するバックグラウンド γ 線を低減させる最も確実な方法である。

通常遮蔽体としては、3~5 cm 程度の厚さの鉛を使用する。図 2.8 に鉛の遮蔽体の厚さと検出限界の関係を示す。このグラフは、バックグラウンドとして 662 keV 付近のエネルギーを持つ γ 線がある測定環境での測定下限の例を示したものである。放射能濃度 (Bq/kg) で示す検出限界は、バックグラウンド計数率及び測定時間だけではなく、検出効率、試料の充てん質量、試料を入れる容器のサイズも大きな影響を及ぼす。

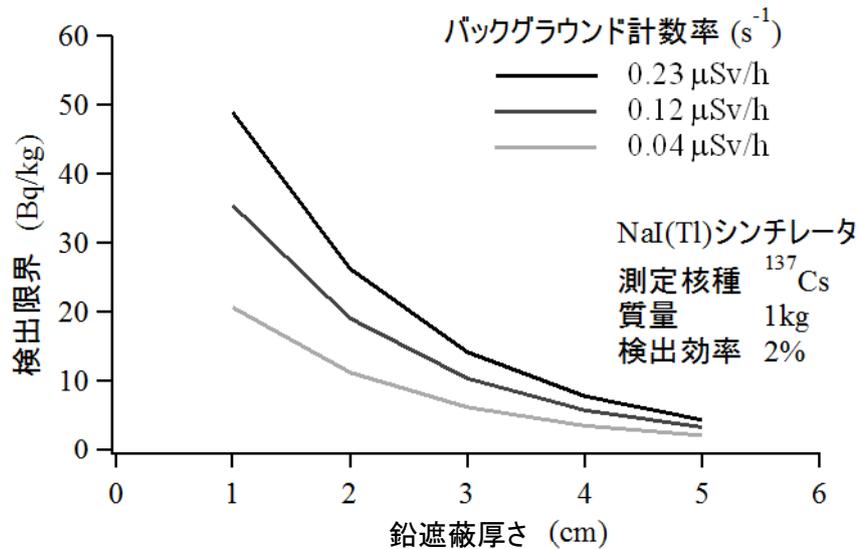


図 2.8 遮蔽体の厚さと検出限界の例

2.4 機器設置上の注意（測定室・分析室）

正確性の高い測定を実施するためには、性能の良い NaI(Tl) スペクトロメータを使用すると同時に、その使用環境についても十分考慮する必要がある。設置場所については、販売業者又は据付業者と打合せを行い、装置性能が十分発揮できるように下記の各項目に示す点に留意して設置すること。

・耐荷重

NaI(Tl) スペクトロメータの遮蔽体は通常 50 kg から 150 kg 程度で、さらに重いものもある。そのため、装置を設置する場所は、装置重量に対応した耐荷重を有していなければならない。さらに、地震や床面の傾きで装置が動くと危険なため、装置が移動しないように固定する必要がある。移動可能な装置も固定する方法が指定されているので、確実に固定して使用するのがよい。机の上などに設置するような装置の場合は、装置の重量に十分耐えられる机を用いる。地震などを考慮し、机への固定、机の床面への固定も行うとよい。

・バックグラウンド

バックグラウンドの原因として、宇宙線によるもの、周囲物質（コンクリートやガラスなど）に含まれる ⁴⁰K、空気中のラドン、土中のウラン系列、トリウム系列の壊変生成物などの他、今回の原子力発電所事故によって放出された放射性セシウムによるものがある。図 2.9 に測定する時間と検出限界の試算を示す。図に示す通りそもそもバックグラウンドが高いと検出限界は低くならない。

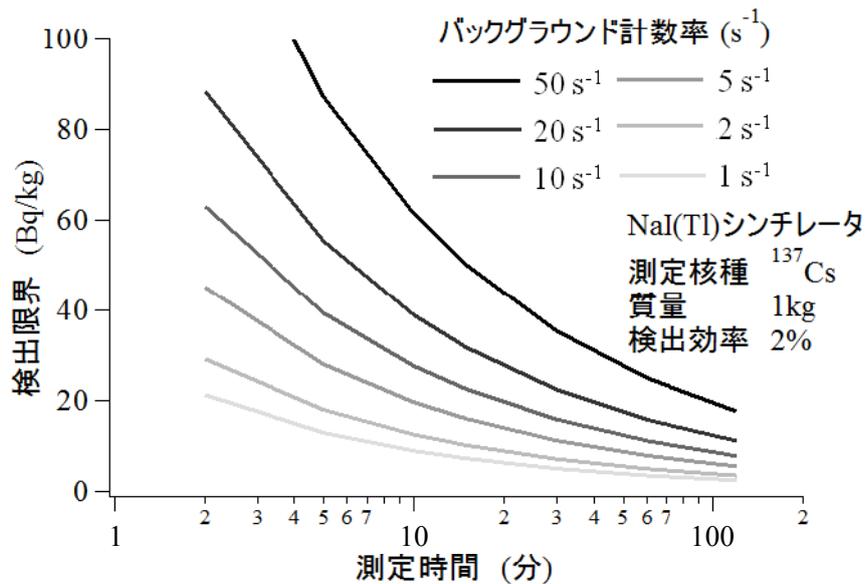


図 2.9 バックグラウンドと検出限界

鉛による遮蔽は検出器に外部からγ線が入射しないようにするためのものであり、隙間からγ線が入り込むことも考慮すべきである。食品を測定室に入れた後に蓋を閉めるが、蓋をしっかり閉めないと隙間が生じてγ線が入射することになる。厚い遮蔽容器でバックグラウンドを低減させても、直接γ線が入射するので大きな影響を与える。隙間として検出器周辺に気をとられやすいが PMT は真空管であり、ほとんど遮蔽能力を持たない。そのため PMT が鉛の外に出ている構造の場合は、PMT の方向からγ線が入射することを考慮する必要がある。装置の下側に鉛の遮蔽を追加することが必要になる場合がある。

なお、測定器周辺に線源や他の試料を置いているとバックグラウンドが上昇することもある。これらは測定器から十分に距離をとった場所や遮蔽された場所に保管することが望ましい。

・環境温湿度

検出器の NaI(Tl)シンチレータと PMT は、温度による影響を受けやすい。図 2.10 は装置の周囲温度と得られたスペクトルのピークチャンネルの例を示したものである。周囲温度が変化するとピークのチャンネル位置に影響を与える。装置が採用している解析手法にもよるが、放射能濃度の結果に大きな影響を及ぼす場合も少なくない。周囲温度の変化が少ないほど、精度の高い測定が行えるので、空調による温度管理が行われることが望ましいが、空調の風が直接検出器や測定装置にあたらないように注意する必要がある。NaI(Tl)スペクトロメータの内部温度が周囲温度と同じになるまでには、長い時間 (2~3 時間) かかるため、できるだけ 24 時間の温度管理を行うことが望ましい。24 時間の温度管理が困難な場合でも、測定開始の 2~3 時間前には温度管理を始めるようにすることが必要である。測定する試料の温度も検出器に影響を与えるので、暖かいものや冷たいものなどは室温に戻して測定する必要がある。

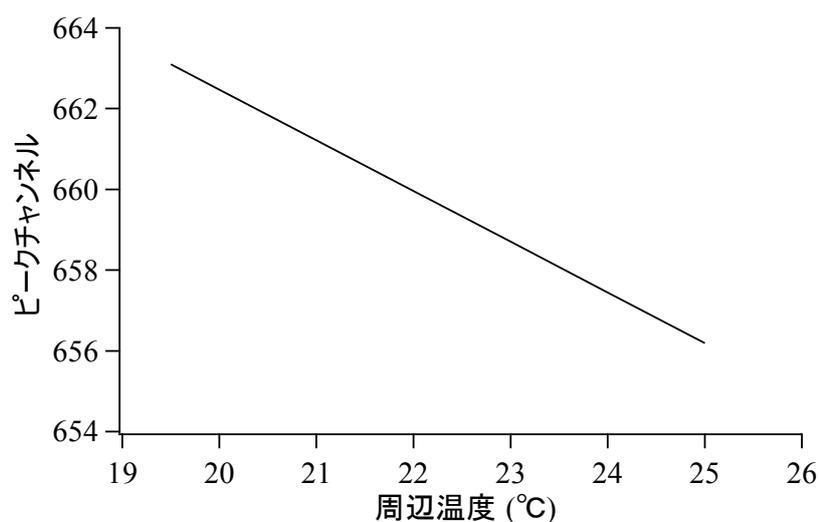


図 2.10 周囲温度の影響の例

湿度については影響が少ないが、装置が冷えているときに環境温度を上昇させると装置周囲や内部に結露を起こすことがあり、装置の動作不良や故障を起こすことがあるので湿度が高くならないようにする必要がある。

・磁気

PMT は内部で電子を増幅しているが、電子の移動が磁気の影響を受ける。設置や定期点検時に設置場所の磁気の影響を含めて調整している。磁気の変化すると調整がずれることになる。磁石はもとより、電動機などを近くに置くと PMT の増幅率が変化することがあるので、磁気を発するものを近づけないようにする必要がある。

2.5 機器への性能要求

試料の放射能を測定するという目的で用いられる機器には、様々な性能が要求される。例えば、NaI(Tl)スペクトロメータのようなシンチレーション式の放射能測定器に対しては、日本工業規格「JIS Z 4342 (2013)：シンチレーション式放射能測定器-食品中の γ 線放出核種」があり、測定機器に求められるべき最小限の性能が規定されている。本項では、当該 JIS の記載に従い、どのような性能が要求されているかその一部紹介する。なお、詳細については当該 JIS を参照されたい。

(1) 放射能測定に関わる仕様

以下の項目について規格値と試験方法が規定されている。

- ・試験で用いる線源は、放射能又は放射能濃度について国家標準へのトレーサビリティが確立された校正機関によって校正された、標準線源とする。
- ・測定対象核種は少なくとも ^{40}K 、 ^{60}Co 、 ^{131}I 、 ^{133}Ba 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs を含むこと。

- ・ γ 線エネルギーの有効測定範囲は少なくとも 150 keV～1500 keV を含むこと。
 - ・ 測定器の精度（相対基準誤差）は±20%であること。
 - ・ 指示値の変動（変動係数）は 0.1 以下であること。
 - ・ 10 分間の余熱時間（電源を投入してからの時間）中の指示値変化は±10%であること。
 - ・ 有効測定範囲を超える放射能の試料を測定した場合には指示可能な最大値又はオーバースケールが表示されること。
 - ・ 警報設定精度は±11%であること。
- 検出限界，周囲の γ 線の影響，及び ^{137}Cs 測定時の ^{134}Cs の影響について規格値は定めておらず試験方法のみを規定している。

（2）測定環境に関わる仕様

温度等の周囲環境，及び振動等の機構的な環境の変化に対する，測定器の指示値の変化等について規格値と試験方法が規定されている。

- ・ 温度特性
- ・ 湿度特性
- ・ 電源電圧の変動
- ・ 耐衝撃性（据え付け式の装置には非適用）
- ・ 耐振動性（据え付け式の装置には非適用）

（3）電磁環境に関わる仕様

製造者は測定器をどのような電磁環境に設置するかまでは管理できない。そこで，測定器の電磁両立性については一般電気・電子装置と同等の使用環境条件として，JIS C 61000-6-1（電磁両立性—第 6 部：共通規格—第 1 節：住宅，商業及び軽工業環境におけるイミュニティ）に従い，次の項目について規格値と試験方法が規定されている。

- ・ 外部電磁界特性
- ・ 電源周波数磁界イミュニティ特性
- ・ 静電気放電試験
- ・ 無線周波数電磁界によって誘導する伝導妨害に対するイミュニティ
- ・ 電氣的ファストトランジェント／バーストイミュニティ特性
- ・ サージイミュニティ特性
- ・ 電圧ディップ，短時間停電及び電圧変動に対するイミュニティ特性

第3章 機器の点検・調整

測定装置は装置の示す値が正しいことを確認，検証した上で使用しなければならず，項目に応じて装置の日常点検及び定期点検を実施する。ここでは装置使用者が自ら調整するための参考として，スペクトル表示位置の調整，エネルギー校正，効率校正方法の概要を説明する。

なお，個々の機器によって点検・調整項目や方法は異なるため，具体的な操作は装置メーカーの取扱説明書に従うこと。

3.1 スペクトル表示位置の調整

NaI(Tl)スペクトロメータは，検出器に入射した γ 線を光，電気信号に変換して検出した γ 線のエネルギー分布をスペクトルとして表示する。計測可能なエネルギー範囲がスペクトルとして表示されないと，放射性核種の取り違え，異常な計数などが起き，試料に含まれる放射能の測定ができなくなる。また，同じ放射性核種を測定した時は，同じ場所にスペクトルが表示される必要がある。

PMT や信号増幅回路の増幅度，AD 変換回路のオフセットは，時間経過や装置の設置環境の変化に伴い変動し，スペクトルの表示位置も変る。精度の良い測定を行うために，PMT の増幅度や，前置増幅回路や AD 変換回路の増幅度，オフセットを定期的に調整して，同じ場所にスペクトルが表示されるように維持する必要がある。

PMT の増幅度の変化は印加電圧の調整で行い，パルス増幅回路や AD 変換回路のオフセットの変化は信号が数値化される直前の AD 変換回路で代表してゲイン調整（増幅度の調整）とゼロ点調整（オフセットの調整）で行う。

最近の測定装置は，決められた放射性核種を用意すると印加電圧設定値や，ゲイン調整，ゼロ点調整の調整を自動的に実施し，設定値を操作 PC が記憶できるものがあるが，ここでは計測を行いながらマニュアルで調整を行う手順を，印加電圧の調整，ゲイン調整及びゼロ点調整について説明する。

・印加電圧の調整

印加電圧の調整は，放射線源（ ^{137}Cs など）を用いて行うのがよい。

放射線源を装置の測定器に置き，スペクトルを得る。図 3.1 のとおりスペクトルのエネルギーピーク位置を，印加電圧を変化させながら適した位置に表示するように調整する。位置とその許容範囲は装置によって決められている場合が多いが，ここでの調整は，大まかに調整を行えばよい。微調整は電子回路のゲイン調整とゼロ点調整とで行う。

なお，電源投入時に PMT に自動的に電圧が印加される装置もあるが，この場合でもこの印加電圧設定を日常点検時に確認することが必要である。

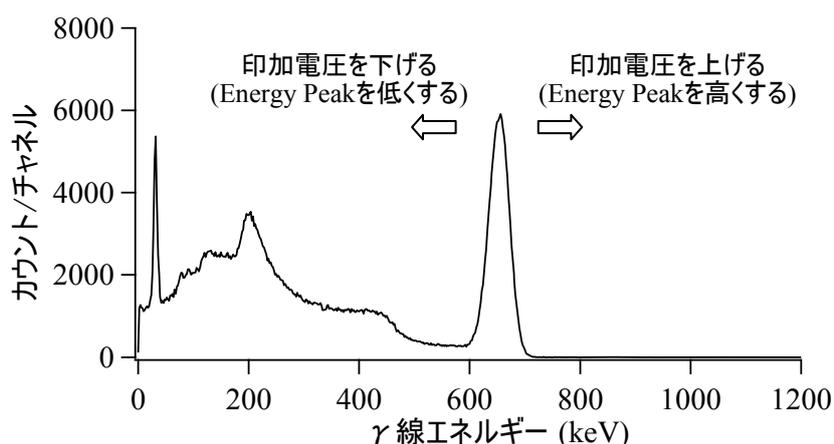


図 3.1 印加電圧の調整

・ゲイン調整とゼロ点調整

調整は測定装置内の AD 変換回路に入力する信号を調整するもので、エネルギーの異なる 2 本の γ 線（例えば ^{57}Co 及び ^{60}Co など）を用いる。

ゲイン調整とは、高いエネルギーの表示位置を調整する機能で、高いエネルギーを持つ γ 線のエネルギーピーク位置を主に動かすことができる。ゼロ点調整とは、低いエネルギーを持つ γ 線のエネルギーピーク位置を主に動かすことができる。ゲイン調整とゼロ点調整はそれぞれの調整に影響を与えるので、両方のピーク中心が、決められたチャンネルの許容範囲に入るまで、スペクトルを確認しながら繰り返し実施する。ゲイン調整とゼロ点調整の両方あるいは片方を調整した後、3.2 エネルギー校正を実施しなければならない装置もある。

近年、電子回路の安定度が増すとともにデジタル化が進み調整方法も変化している。従来 2 つの γ 線エネルギーを利用する必要があったが、1 つのエネルギーで調整できるようにしたものもある。

3.2 エネルギー校正

試料の放射能は得られたスペクトルから放射性核種を特定し、一定の範囲の計数を求めて計算するため、スペクトルのピーク位置のエネルギーを精度良く求めなければならない。スペクトル表示のチャンネルをエネルギーに換算する係数を求めるのがエネルギー校正である。

エネルギー校正は、エネルギーの異なる 2 本の γ 線を用いて行う。2 本の γ 線のエネルギーは、NaI(Tl)スペクトロメータで測定可能なエネルギー範囲内であり、測定関心領域の近傍を中心として、広いエネルギー範囲であることが望ましいのではないのでしょうか。装置メーカーが推奨している放射性核種があれば推奨されたものを使用すること。最近の測定装置は、決められた放射性核種と手順に従って測定を行うと自動的にエネルギー校正を行い、スペクトルの表示位置（チャンネル）とエネルギーの換算を自動で行って表示するものがある。このような装置の場合は、エネルギー校正とエネルギーへの換算が不要になるので、取扱説明書に従って測定すること。

参考として、 ^{57}Co と ^{60}Co の標準線源を利用してスペクトルのチャンネルとエネルギーの換算を行う係数を求めるためのエネルギー校正手順を以下に示す。

- a. ^{60}Co 線源を測定し、スペクトルを得る。
- b. ^{60}Co のスペクトルからピークサーチを行いピークエネルギー (EP_{Co} : 1333keV) を示すチャンネル (CH_{Co}) を求める。
- c. ^{57}Co 線源を測定し、スペクトルを得る。
- d. ^{57}Co のスペクトルからピークサーチを行いピークエネルギー (EP_{Ct} : 122 keV) を示すチャンネル (CH_{Ct}) を求める。
- e. 以下の式でゲイン校正係数 (K_G) とオフセット校正係数 (K_O) を求める。

$$K_G = \frac{EP_{\text{Co}} - EP_{\text{Ct}}}{CH_{\text{Co}} - CH_{\text{Ct}}}$$

$$K_O = \frac{EP_{\text{Co}} \cdot CH_{\text{Ct}} - EP_{\text{Ct}} \cdot CH_{\text{Co}}}{EP_{\text{Co}} - EP_{\text{Ct}}}$$

- f. 試料の測定で得られたスペクトルからピークサーチを行い、ピークチャンネル (CH_n) を求め、下記の式で未知のエネルギー (EP_n) を計算する。

$$EP_n = K_G \cdot (CH_n - K_O)$$

a.から e.で K_G と K_O を求めるのがエネルギー校正である。これは日常的に実施することが望ましく、日常点検で線源を用いてスペクトルを測定し、ピークチャンネルが同じであることが確認できればよい。

なお、 K_G と K_O を求めているが、これは下の式を解いて求めた結果である。

$$EP_{\text{Co}} = K_G \cdot (CH_{\text{Co}} - K_O)$$

$$EP_{\text{Ct}} = K_G \cdot (CH_{\text{Ct}} - K_O)$$

3.3 効率校正

検出効率は、試料中に含まれる放射性物質から放出される γ 線が検出器と相互作用（ピーク効率の場合は、光電効果など全吸収を起こす相互作用）を起こす確率で決まる。この相互作用の確率は γ 線のエネルギーに依存する他、試料の形状や試料内部での減衰、NaI(Tl)シンチレータの大きさ、試料と NaI(Tl)シンチレータの位置による影響を受け、同じ型式であっても装置ごとに検出効率は変わる。そのため、効率校正は装置ごとに実施する必要がある。

効率校正は、2.5 (1) に示す放射能又は放射能濃度について国家標準へのトレーサビリティが確立された校正機関によって校正された標準線源を使用して実施する。測定用試料と同じ形状で、測定対象となる放射性核種と同じ核種の標準線源を用いるのが望ましい。

参考に一般的な標準線源を用いた校正手順例を以下に示す。

- a. 効率校正を行う線源を測定しスペクトルを求める。着目するピークに対して、バックグラウンド及び数え落としが十分に無視できる計数率を与える標準線源を用い、ピーク正味計数率に対す

る計数統計による不確かさが1%以下になるまで測定するのが望ましい。

- b. スペクトルのピーク位置を中心とした一定の範囲内にある計数値を求める。
- c. バックグラウンドを差し引いた正味のピーク計数値を求める。
- d. cで求めた計数値を測定時間と既知試料の放射能で除算し、効率を求める。

3.4 点検

点検として、装置を使用する前に実施する日常点検、装置の性能を確認するため1回/年程度で行う定期点検がある。

・日常点検

装置を使用する前に毎日実施する点検であり、装置の外観点検、測定による点検を行う。

外観点検は、装置周辺に測定に不要なものが無いか、外観に異常が無いか、蓋が閉められるか、測定室に異常が無いか、測定回路などとの接続に異常が無いか等を確認する。測定による点検は、装置の電源を入れて、エネルギー校正（ゲイン調整）を行い、バックグラウンド測定と試験用標準線源又は点検用試料の測定を行う。バックグラウンド測定は測定用試料が無の状態で行い、計数値に大きな変化が無いことを確認するとともに得られたスペクトルに異常なピークが無いことを確認する。点検用試料による測定は、試験用標準線源又は装置に付属の点検用試料を測定し、決められた計数値内にあることを確認する。

バックグラウンド測定で計数値に変動があったり、スペクトルに異常なピークがある場合は、装置周辺に放射性物質があったり、装置内の検出部付近が汚染している可能性がある。この場合は、装置周辺の再確認や不要なものの除去を行う。また、検出部を再確認し、異物がないか、前日の測定試料が残っていないかを確認する。検出部を汚染した場合、中性洗剤や水に濡らした布などでふき取る。装置周辺の再確認、測定室の再確認を実施した後、必ずバックグラウンドの測定を実施し、バックグラウンドが日常と変化が無いことを確認する。

試験用標準線源又は点検用試料による測定で放射能濃度が規定値にない場合は、装置周辺の汚染、測定室の汚染、検出器の変動がある。汚染については、バックグラウンド測定で再確認を実施すること。検出器の変動は、スペクトルで確認する。試験用標準線源又は点検用試料に含まれる核種のエネルギーにあったエネルギー位置にピークがあるか確認する。

表 3.1 に日常点検の点検項目を参考に示す。

表 3.1 日常点検項目

点検項目	点検内容	結果	備考
1. 外観点検			
装置周辺	装置周辺に測定に不要なものが無いこと	OK・NG	
外観	傷, 凹みが無いこと	OK・NG	目視確認
蓋	動きがスムーズなこと	OK・NG	
	測定室に蓋ができること	OK・NG	
検出部	傷, 凹みが無いこと	OK・NG	
	汚れが無いこと	OK・NG	汚れがある場合は清掃を行う
	異物が無いこと	OK・NG	異物がある場合は除去と清掃を行う
接続	測定用ケーブルが接続されていること	OK・NG	
2. 測定による点検			
電源投入	装置が正常に立ち上がること	OK・NG	
バックグラウンド	電源を投入し, 試料を入れずに測定を行い, 計数値とスペクトルを確認する		電源投入後 10 分以上置くこと
	計数値に異常が無いこと	OK・NG	_____ カウント
	スペクトルに異常なピークが無いこと	OK・NG	
試験用標準線源・点検用試料 ¹⁾	装置に添付された点検用試料を測定する		
	放射能濃度がメーカー指定値の±10%以内にあること	OK・NG	_____ Bq/kg
	エネルギー校正 (ゲイン調整)	OK・NG	

¹⁾: 適切な点検用試料がない場合は, 測定容器に測定用試料と同様に塩化カリウムを詰めて点検用試料とすることもできる。塩化カリウムが測定容器内で動かないようにしっかり詰めて固定し, 測定容器からこぼれることがないように, テープ等を用いて密閉する。ただし, この場合も製造業者の指定値が示されている必要がある。

・定期点検

装置の調整は時間とともに変化することがある。そのため、定期的に調整・確認を行う定期点検が必要であり、基本的に1年に1度実施する。定期点検は、装置の調整が行われるため装置メーカー又は設置業者に依頼することが望ましい。点検内容は、日常装置の外観点検、測定による点検以外に、検出器の調整、既知試料による調整である校正、日常点検のための測定が行われる。

外観点検として、設置場所の確認、外観の確認、蓋の確認、測定室の確認、測定回路などとの接続等の確認を行う。調整は、装置の立ち上げ確認、バックグラウンドの確認、検出器 (PMT) に印加する印加電圧調整、スペクトルのピーク位置を調整するエネルギー校正、既知の試料を使用し放射能の検出効率を求める効率校正を行う。さらに日常点検の際に基準となる値を設定するための測定を行う。

表 3.2 に定期点検の点検項目を参考に示す。

表 3.2 定期点検項目

点検項目	点検内容	結果	備考
1. 外観点検			
装置周辺	装置設置場所が安定していること	OK・NG	
	装置周辺に測定に不要なものが無いこと	OK・NG	
外観	傷、凹みが無いこと	OK・NG	目視確認
蓋	動きがスムーズなこと	OK・NG	
	測定室に蓋ができること	OK・NG	
検出部	傷、凹みが無いこと	OK・NG	
	汚れが無いこと	OK・NG	汚れがある場合は清掃を行う
	異物が無いこと	OK・NG	異物がある場合は除去と清掃を行う
接続	測定用ケーブルが接続されていること	OK・NG	
2. 調整			
電源投入	装置が正常に立ち上がること	OK・NG	
バックグラウンド	電源を投入し、試料を入れずに測定を行い、スペクトルを確認する		電源投入後 5 分以上置くこと
	スペクトルに異常なピークが無いこと	OK・NG	

スペクトル表示位置の調整	検出器 (PMT) に印加する電圧を調整し、調整後の電圧値を記録する。	電圧 _____V	
	測定回路を調整して、ゲイン調整、ゼロ点調整を行い、調整値がわかる場合調整値を記録する。	ゲイン _____ ゼロ点 _____	調整値がわかる場合のみ
エネルギー校正	エネルギー校正を行いゲイン校正係数 (K_G) とオフセット校正係数 (K_O) を求める。	ゲイン _____ オフセット _____	係数を計算にて求める場合のみ
効率校正	既知の試料を使用し、効率校正を行う。効率がわかる場合は効率を記録する。	効率 _____	効率がわかる場合のみ
分解能	^{137}Cs 線源を測定し、検出器の分解能を記録する。	_____%	
3. 日常点検のための測定			
バックグラウンド	試料を入れずに測定を行い、計数値を確認する。		_____ カウント
試験用標準線源・点検用試料	点検に使用する点検用標準線源あるいは装置に添付された点検用試料を測定し放射能濃度を確認する。		_____ Bq/kg

第4章 試料の測定

本章では、NaI(Tl)スペクトロメータによる環境試料測定の操作手順について述べる。

4.1 分析作業フロー

分析フローの例を図4.1に示す。測定作業をするにあたっては、機器等の準備が必要である。日常的に行うべきことの具体的方法は3章を参照されたい。

4.2 測定手順

日常点検が完了後、試料の測定を下記の手順で行う。

- (1) 検出器汚染防止のため、できるだけ測定試料をポリエチレン袋で包む。ポリエチレン袋は放射性表面汚染がないことが確実なもの（試料調整場所など、表面汚染の起きやすい場所に置かれていないもの）を用いる。検出部周辺の試料設置場所が狭く、袋に包むと試料が設置できない場合には、容器の表面に汚染がないことを確実にすること。
- (2) 測定試料を検出部にセットする。装置の取扱説明書に指定された既定の位置にセットしなければならない。マリネリ容器の場合には、検出器中心と容器の中心を目視で合わせる程度で十分である。
- (3) プリセット時間を設定する。
プリセット時間は、測定対象核種について想定している検出限界を達成するのに十分な時間にする必要がある。定量目的では十分な計数統計を得られる測定時間を設定すればよい。
- (4) 測定を開始する。開始後、確実に測定が開始されているか表示画面等で確認することが望ましい。
- (5) 測定終了後、表示される放射能濃度が検出限界以下の場合、想定していた検出限界を達成しているか確認する。
- (6) 試料を取り出し、その試料が測定対象の試料であったかを試料番号などで確認する。
- (7) 測定データを保存する。保存されたデータを開き、データが確実に保存されていることを確認する。ファイル名やコメントに試料識別を付けるのが望ましい。
- (8) スペクトルの確認を行う。
 1. ピーク形状が正常かどうかを見る。ピークシフトや異常なピークの広がりがないか確認する。
 2. ピークを同定し、通常検出されない核種や想定していない核種の有無を確認する。
- (9) 分析結果のレポートを確認する。使用した容器、充てん量に一致したピーク効率を用いているか、試料量、測定時間など、放射能濃度の計算に用いたパラメータに誤りが無いか確認する。

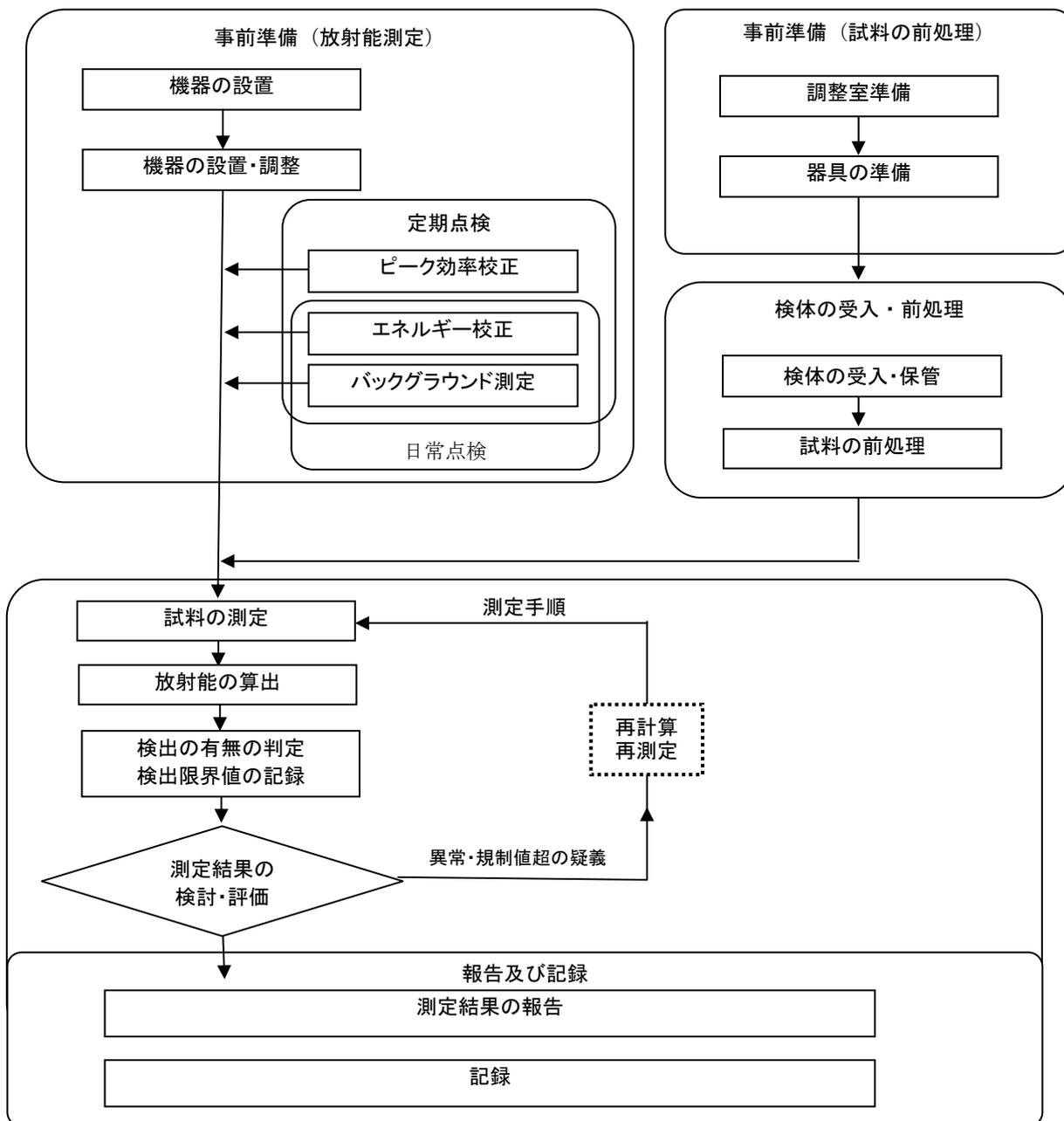


図 4.1 分析フローの例

4.3 結果の解釈

食品の放射能測定を目した市販のシンチレーション式放射能測定器を用いる場合は、通常、測定から結果算出まで自動的に行われる。しかしながら、その結果をそのまま受け入れられるとは限らない。NaI(Tl)スペクトロメータの場合、次の事を考慮しなければならない。

- ・ある程度測定対象となる核種を想定している（例えば ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{40}K など）
- ・NaI(Tl)検出器は、Ge 検出器などの高分解能検出器と比較し分解能が低いため、エネルギーの近い γ 線を弁別して分析できない場合がある。

これらにより、例えば想定している核種以外の核種による γ 線を、想定している核種のものからであると誤認する場合や、想定されている核種以外の影響を結果に含む場合もありうる。このような事象が起きた場合、測定器自身が自動的に対応するのは事実上困難である。その可能性があるには、分析者自身が結果について結果を受け入れるかどうかを十分検討しなければならない。その際、測定スペクトルの生データが有効となる。（測定器によってはスペクトルの生データが得られないものもあるが、このような測定器の場合には、これ以降の分析者による判断に供するデータがないため、的確な分析を行うには適さない場合もありうる。）ここではその一例を紹介する。

(1) ^{214}Pb , ^{214}Bi の影響

NaI(Tl)スペクトロメータの場合、試料に含まれる天然核種が、測定対象核種である ^{131}I , ^{134}Cs 及び ^{137}Cs と誤認検出される場合がある。図 4.2 に天然核種である ^{232}Th 及び ^{238}U の壊変系列図¹⁾を示す。壊変してできた核種を子孫核種といい、多くの核種が天然核種として存在する。例えば、
① ^{214}Pb : ^{131}I から放出される 365keV に近い 352keV の γ 線を放出する。

② ^{214}Bi : ^{134}Cs から放出される 605keV に近い 609keV の γ 線を放出する。

図 4.3 に示す通り NaI(Tl)検出器の分解能では、この程度のエネルギー差のピークを異なる核種によるものと判定することは不可能なため、②の場合、「 ^{134}Cs 検出」となりうる。一方、図 4.4 に示す通り Ge 検出器は分解能が良いためこのように誤認される恐れが少ない。この例だと、 ^{214}Pb , ^{214}Bi はいずれも ^{222}Rn の子孫核種であり、通常両方の核種が存在しているため、スペクトルでその事が確認できる。 ^{214}Bi による 609keV の γ 線を ^{134}Cs の 605keV の γ 線ではないと判定するのは困難であるが、 ^{137}Cs の 662keV でないことはほぼ確実に判断できる。今回の福島第一原子力発電所の事故後であれば、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能の比率は事故直後ではほぼ 1 : 1 であり、半減期のより短い ^{134}Cs の比率は低くなる。そのようなことから、ある程度の量の検出があれば、測定結果が ^{134}Cs の放射能が ^{137}Cs より過大になることは想定しにくく、天然核種による影響が疑われる。

例えば、井戸水などを測定する場合には、ウラン系列の ^{222}Rn が含まれることがあり、その子孫核種による誤認検出が起こりうる。このような場合、 ^{222}Rn は半減期が 3.8 日のため、数日後同じサンプルを測定した場合には極端に数値が減るか、検出限界以下になりうる（子孫核種である ^{214}Pb , ^{214}Bi は親核種の半減期で減衰する）。したがって、スペクトルの確認だけではなく、ある程度時間をおいての再測定が有効な場合もある。

(2) ^{40}K の影響

食品などには天然核種として ^{40}K が含まれる。 ^{40}K は 1461keV の比較的高いエネルギーの γ 線を放出するため、それより低いエネルギー範囲に対して、コンプトン連続部の成分を誤計数することにより影響を及ぼすこともありうる。装置が採用している解析方式によっては、この影響で放射性セシウムが検出されたと誤認することや、測定値が影響を受け、ずれを生じることがありうる。

注1) ^{232}Th 及び ^{238}U は壊変して出来た核種も不安定な放射性核種であるためさらに壊変する。原子核が不安定である限り崩壊を繰り返し、安定核種になったところで壊変が終了する。このような一連の壊変の順序を壊変系列という。

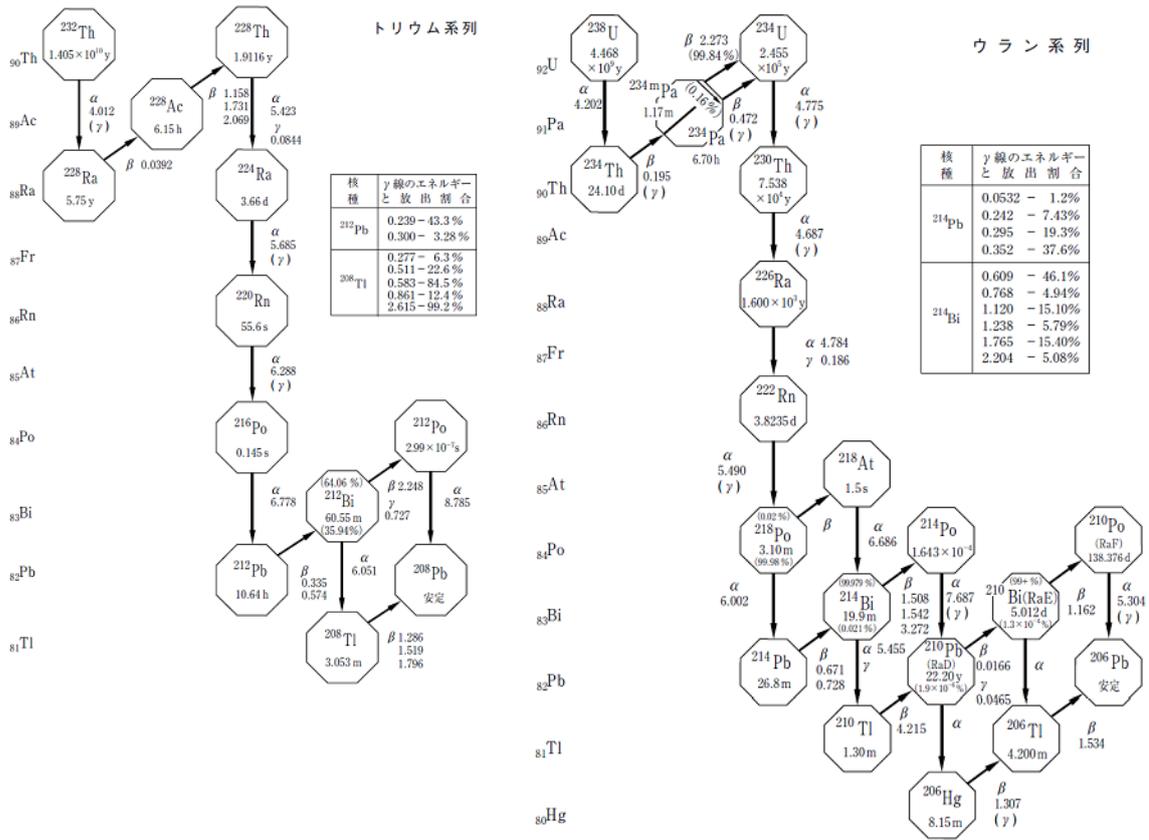


図 4.2 放射性壊変系列図

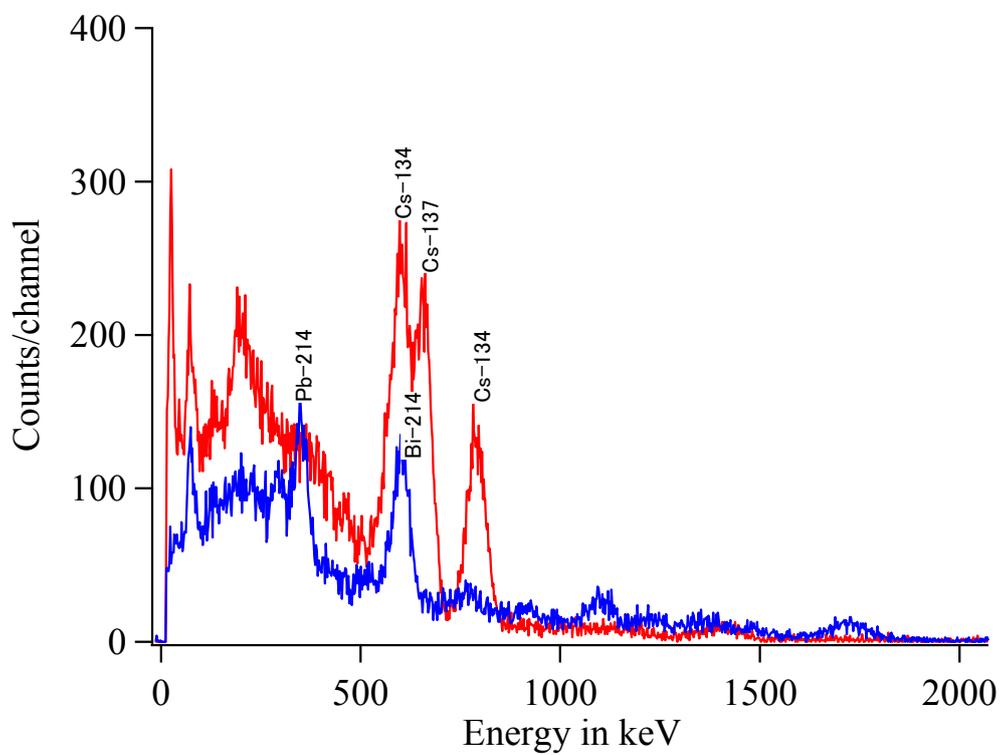


図4.3 NaI(Tl)検出器による ^{134}Cs , ^{137}Cs スペクトル (赤) と ^{226}Ra (ウラン系列) スペクトル (青)

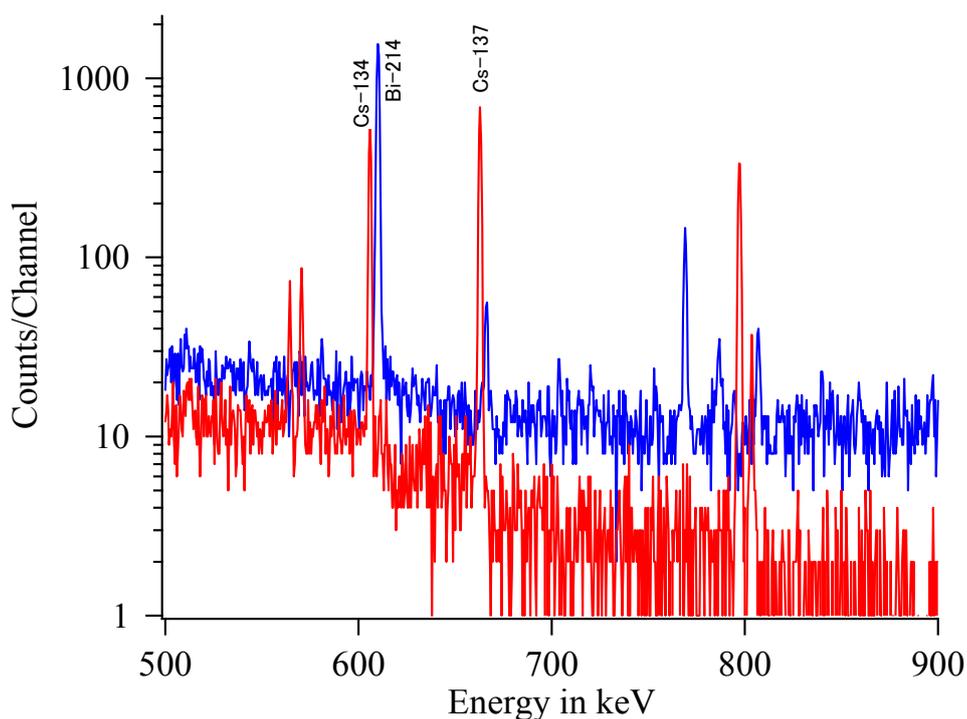


図4.4 Ge検出器による¹³⁴Cs, ¹³⁷Csスペクトル (赤) と²²⁶Ra (ウラン系列) スペクトル (青)

4.4 測定結果の記録

測定結果の記録は下記の情報を含むことが望ましい。

- 試料に関する情報

試料識別番号 : 測定試料固有の番号

試料名 :

試料採取場所・依頼者情報 :

試料採取日時 : 採取年月日

供試量 : 単位, 測定に供した量

容器の種類 :

試料質量 :

- 測定情報

測定番号 :

測定開始時 : 年月日時分

測定終了時 : 年月日時分

使用した測定器 (形式, シリアル番号等) :

測定時間 : live time (秒)

測定者 :

- ・測定条件，測定目的について

測定目的：依頼試料ではない，機器の検査，調整等を目的とした測定等
測定における特記事項：

- ・測定データ

測定スペクトル：

核種及び放射能濃度：

（計数統計の）不確かさ：

検出限界¹⁾：

- ・その他 特記事項

¹⁾ 検出限界は、「このくらいの計数があればバックグラウンドだけではなく，試料の汚染によるものが含まれると区別できると言える（と考えるのが妥当である）」指標となる，装置性能を示す重要なパラメータの一つとして用いられている。但し，現状では検出限界を求める方法は必ずしも統一されておらず装置によって Kaiser の方法，Currie の方法といった考え方や計算式の異なる方法が用いられている。また，用語も検出限界，検出下限等統一されていない。JIS Z 4342 では Currie の方法に基づく方法を採用し，「最小検出放射能」として定義されている。

第5章 測定試料調製法

5.1 試料容器

試料の容器は主に円筒型とマリネリ型の2種類に大別できる。容器ごとに検出器—容器間の幾何学的条件が異なるため、容器の種類及び充てん量（かさ）ごとに同じ条件の標準線源で検出効率を求めておかなければならない。一般に容器が大きくなると検出効率が低くなる。しかしながら、マリネリ容器は図5.1に示す通り検出器を囲うような形状のため、幾何学的な効率の面で有利である。ただ、マリネリ容器は規格が標準化されていないため、様々な大きさ、形状のものが市販されている。マリネリ容器であっても容量が大きくなると、検出効率は低くなる。しかしながら大量の試料を測定できるため、放射能濃度にかかわる検出限界は低くできる。結果的には~4L程度までなら試料の量が多い方が有利ではあるが、大きな容器だと遮蔽体を大きくしなければならぬ。NaI(Tl)スペクトロメータで測定を行う場合は、放射能濃度にかかわる検出限界を低くするためには、測定する試料の量のある程度増やす必要があり、一般に0.5L~1L容量のマリネリ容器を用いる。

5.2 試料の前処理

NaI(Tl)スペクトロメータで測定を行うために試料の特別な前処理は必要ない。例えば厚生労働省の定める食品の放射性物質試験法では、「文科省 放射能測定法シリーズ 24 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」に準じるとされている。このマニュアルに記載された方法は、液体の試料はそのまま、固体の試料は、予めハサミ、カッター、包丁等で細切りした後、全体を均一に混和し、設定された容量を機器校正に用いたものと同じ測定容器に予め重量を測定してから充填するといったものである。測定では容器中に放射性物質が均質に分布していることが前提となるため、前処理では、試料容器中で放射性物質が偏在しないように均質にすることが主目的となる。さらに、測定試料の幾何学的条件（形状、高さ等）やその密度は、ピーク効率を決定するための要因の一つであり、測定試料の調製の良否により定量値に差異が生じる恐れがある。したがって、試料を刻んで詰めるだけと言っても、注意しなければならない。

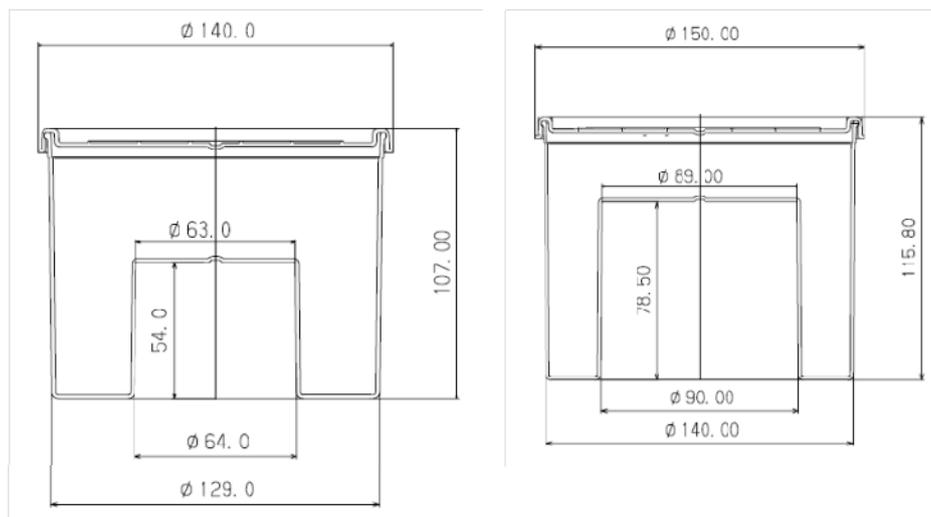


図 5.1 マリネリ容器の例 (左 2”×2”用, 右 3”×3”用)

図 5.1 のマリネリ容器 (2”×2”用) の試料充てん高さとピーク計数効率の関係を図 5.2 に示す。このようにピーク計数効率は試料の充てん量により変化する。したがって校正に用いた標準線源と同じ高さだけ試料を充てんし測定する必要がある。例えば、充てん高さ 10cm の規定に対して 5mm 高く充てんした場合、この計算結果を用いると基準の計数効率に対して約 4% 低くなる。

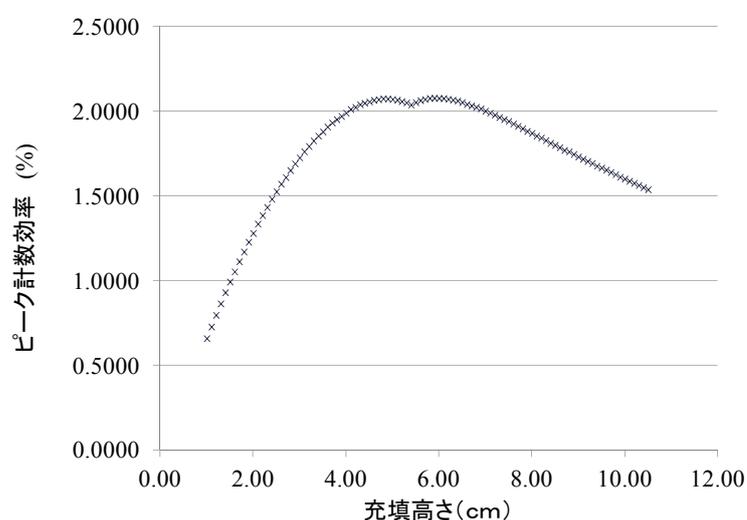


図 5.2 マリネリ容器 (2”×2”用) の試料充てん高さとピーク計数効率 (2”×2”NaI) の関係の例 (EGS5 による計算)

5.3 測定試料の準備

5.3.1 食品試料の扱い

食品の場合は、厚生労働省の放射性物質試験法において、いくつか試料の扱いについて示されている。試料は原則として可食部とされ、「食品、添加物等の規格基準」(昭和 34 年厚生省告示第 370 号) 第 1 食品 A 食品一般の成分規格 5 (2) 検体に規定される食品は、当該項目の第 1 欄の各食品について、各々第 2 欄の試料の調製に従うこととし、製造し、又は加工した食品は、原則としてそのままの状態を測定試料とする (飲用に供する茶等、飲用に供する状態で検査する食品は除く。) こととされている。表 5.1 はこの規格基準に示されている表を抜粋したものである。飲用に供する茶は、荒茶又は製茶 10g 以上を 30 倍量の重量の熱水 (90℃) で 60 秒間浸出し、40 メッシュ相当のふるい等でろ過した浸出液を測定試料とすることとされている。また、告示

で示された、乾燥きのこ類及び乾燥野菜並びに乾燥させた海藻類及び乾燥させた魚介類等を測定する際には、できるだけ飲食に供される状態と同様の状態で行う観点から、粉碎後のサンプルに、日本食品標準成分表等の水戻しによる水分含量の公表データ（重量変化率）（表 5.2）を参考として、必要な水分をあらかじめ添加し行うことを原則とするが、乾燥状態で検査を行い、換算を行っても差し支えないとされている。

5.3.2 試料の充てん

試料は容器に隙間なく詰めることが基本である。これは先に述べたように標準線源と同じ幾何学的条件にするためである。そのためには試料のかさを標準線源に合わせる必要があり、容器によって定められた量を充てんしなければならない。例えば、試料の量が少なく規定量充てんできない場合などはその容器で測定することはできない。また、標準線源の比重は1程度であり、比重の補正を行わない場合には、試料と標準線源の比重差によりずれが生じるため、できるだけしっかり詰めて比重を1に近づけることが望ましい。

表5.1 食品，添加物等の規格基準
（昭和34年厚生省告示第370号）第1食品 A食品一般の成分規格 5（2）検体

食 品	検 体
大麦及びそば	脱穀した種子
小麦及びライ麦	玄麦
米	玄米
とうもろこし	外皮，ひげ及びしんを除いた種子
その他の穀類	脱穀した種子
えんどう，小豆類，そら豆及び大豆	豆
らつかせい	殻を除去したもの
その他の豆類	豆
あんず，うめ，おうとう，すもも及びネクタリン	果梗及び種子を除去したもの
もも	果皮及び種子を除去したもの
オレンジ，グレープフルーツ，なつみかんの果実全体，ライム及びレモン	果実全体
なつみかん及びみかん	外果皮を除去したもの
なつみかんの外果皮	へたを除去したもの
その他のかんきつ類果実	果実全体
西洋なし，日本なし，マルメロ及びりんご	花おち，しん及び果梗の基部を除去したもの
びわ	果梗，果皮及び種子を除去したもの
アボカド及びマンゴー	種子を除去したもの
キウイー	果皮を除去したもの
グアバ	へたを除去したもの
なつめやし	へた及び種子を除去したもの
パイナップル	冠芽を除去したもの
パッションフルーツ及びパパイヤ	果実全体

バナナ	果柄部を除去したもの
いちご, クランベリー, ハックルベリー, ブラックベリー及びブルーベリー	へたを除去したもの
ラズベリー	果実全体
その他のベリー類果実	へたを除去したもの
かき	へた及び種子を除去したもの
すいか, まくわうり及びメロン類果実	果皮を除去したもの
ぶどう	果梗を除去したもの
その他の果実	可食部
かぶ類の根及びだいこん類の根	泥を水で軽く洗い落としたもの
かぶ類の葉, クレソン, ケール, だいこん 類の葉及び芽キャベツ	変質葉を除去したもの
カリフラワー及びブロッコリー	葉を除去したもの
キャベツ及びはくさい	外側変質葉及びしんを除去したもの4個をそれぞれ 4等分し, 各々から1等分を集めたもの
きょうな及びこまつな	根及び変質葉を除去したもの
西洋わさび	泥を水で軽く洗い落とした根
チンゲンサイ及びその他のあぶらな科野菜	可食部
かんしょ, こんにやくいも, さといも類, ばれいしょ, やまいも及びその他のいも類	泥を水で軽く洗い落としたもの
かぼちゃ, きゅうり及びしろり	つるを除去したもの
その他のうり科野菜	可食部
アーティチョーク, エンダイブ及びチコリ	変質葉を除去したもの
ごぼう及びサルシフィー	葉部を除去し, 泥を水で軽く洗い落とし, 細切した 後, 肉挽き器を用いて擦り碎いたもの
しゅんぎく	根及び変質葉を除去したもの
レタス	外側変質葉及びしんを除去したもの
その他のきく科野菜	可食部
しいたけ, マッシュルーム及びその他のきの こ類	可食部
セロリ, パセリ及びみつば	根及び変質葉を除去したもの
にんじん及びパースニップ	泥を水で軽く洗い落としたもの
その他のせり科野菜	可食部
トマト, なす及びピーマン	へたを除去したもの
その他のなす科野菜	可食部
アスパラガス	茎
たまねぎ, にんにく, ねぎ及びわけぎ	外皮及びひげ根を除去したもの
にら及びその他のゆり科野菜	可食部
えだまめ, 未成熟いんげん及び未成熟えん どう	花梗を除去したもの
オクラ	へたを除去したもの
さとうきび	皮を除去したもの
しょうが	葉を除去し, 泥を水で軽く洗い落としたもの

てんさい	泥を水で軽く洗い落としたもの
ほうれんそう	赤色根部を含み、ひげ根及び変質葉を除去したもの
たけのこ及びその他の野菜	可食部
ごまの種子, なたね, ひまわりの種子, べにばなの種子, 綿実及びその他のオイルシード	種子
アーモンド, ぎんなん, くり, くるみ, ペカン及びその他のナッツ類	外果皮を除去したもの
カカオ豆及びコーヒー豆	豆
茶	茶
ホップ	乾花
その他のスパイス及びその他のハーブ	可食部

表5.2 日本食品標準成分表等の水戻しによる水分含量の公表データ（重量変化率）

品目	重量変化率
乾燥しいたけ	5.7
乾燥きくらげ	10
乾燥あらげきくらげ	4.9
乾燥しろきくらげ	15
かんぴょう	5.3
干ぜんまい	6.3
いもがら	7.6
干わかめ	5.9

第6章 スペクトル解析

試料を測定して得られたスペクトルについてピークサーチを行い、核種を同定し、全エネルギー吸収ピークの面積から放射能を計算する。これらは、測定器に組み込まれたソフトウェアで処理するのが通例である。スペクトル解析の方法は、探査の結果検出されたピークについて同定し、ピーク面積を計算し放射能を定量する場合と、ピークが検出されたか否かに係わらず、着目する核種のピーク位置において面積を計算し、放射能を定量する場合がある。市販の測定器の場合でもこれらのいずれかによる。この方法の詳細は、文部科学省放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー」に記載されており、原則として NaI(Tl) スペクトロメータを用いたγ線スペクトロメトリーでも同様の方法が適用できる。但し、これらの計算は容易ではなく、適用するにあたっては、専門家により妥当性を十分に検証することが望ましい。

6.1 ピークサーチ

スペクトル解析では、測定して得られたスペクトルデータについてピークサーチにより有意なピークを検出する。本来ピークサーチの結果より核種の同定を行うが、NaI(Tl)スペクトロメータの場合には、核種を想定した測定が主であり、主にこれらの結果を6.2の解析における逐次計算の初期値に用いる。なお、これらの方法は、放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」の第9章の方法などが利用できる所以詳細については参考文献を参照されたい。

なお、スペクトルの決められたチャンネルに着目し、ピークサーチを行わない場合もある。ただし、このような場合にはエネルギー校正が確実に行われていることが前提となる。

ピークサーチ手順の例

- (1) ガウス型平滑化2次微分フィルタを作る。

$$F(x) = \exp\left\{-\frac{2.773(x-x_0)^2}{W^2}\right\} \quad (6-1)$$

ここに、

x_0 : ピーク中心

W : 半値幅 (FWHM)

$x-x_0=j$ と置き換え、 j について2階微分すると

$$F''(j) = -\left\{\frac{5.546}{W^2}\left(1-\frac{5.546j^2}{W^2}\right)\exp\left(-\frac{5.546j^2}{2\cdot W^2}\right)\right\} \quad (6-2)$$

- (2) 全チャンネルについてサーチする。 j を $-3W$ から $3W$ まで変化させる。
- (3) 対象ピーク周辺領域の計数値について平滑化2次微分値とその誤差を計算する。

平滑化 2 次微分値は次式による。

$$N''(i) = \sum_{j=-k}^k F''(j) \cdot N(i+j) \quad (6-3)$$

ここに、

$N(i+j)$: $(i+j)$ チャネルの計数値

k : $3 \times W$

$N''(i)$ の計数統計による不確かさは次式による。

$$\sigma''(i) = \sqrt{\sum_{j=-k}^k F''(j)^2 \cdot N(i+j)} \quad (6-4)$$

$N''(i) \times (-1) > \sigma''(i) \times 2 \text{ or } 3$ をピークとする。

- (4) ピーク中心は 3 点計数法によりピーク中心とその不確かさを計算する。
- (5) 異なるフィルタ幅で連続してピークが見つければピークとする。
- (6) FWHM 及びチャンネルとエネルギーの関係を得るためのピークをピックアップする。ピックアップピークは Pb-KX, ^{40}K , ^{134}Cs (605keV, 796keV, 605keV+796keV sum), Cs-137 (662keV) などが利用できる。サーチドピークにライブラリピークを割り当てる。

6.2 ピーク面積の算出

6.2.1 単純ピーク積分

原則として、正味のピーク面積はピーク部分と見なされる領域の各チャンネルの計数値を単純に加算し、ピーク領域のベースラインを推定し差し引いて求める。 γ 線スペクトルのピーク領域のベースラインに含まれる要素は、ブランク試料により得られる自然バックグラウンドだけではなく、当該ピーク以外の γ 線と検出器、遮蔽体との相互作用によって生じるコンプトン連続部を含む。また試料に含まれる他の核種による γ 線もこのピーク領域に寄与するため、単にブランク試料により得た自然バックグラウンドスペクトルを差し引いても正しい正味のピーク面積を得ることができない。

ピーク面積の計算法はいくつかの方法がある。一般には、直線（一次関数）で表されるベースライン（バックグラウンド）を差し引き求める。妨害ピークを含まない単一のピークの正味ピーク面積を求めるには、ここに示すような最も単純な方法が有効である。ここではベースラインを直線とする場合の例を示す。

この場合ピークの中で最も計数率の高いチャンネルの高側低側に対称な p チャンネルの領域 P 、領域 P の両サイドに隣接するそれぞれ b チャンネルの領域 $B1, B2$ の 3 つのチャンネル領域を設定する。ピーク半値幅 h に対して、ピーク領域のチャンネル幅 $p \approx 2.5h$ 、 $b \approx p/2$ を決める。

正味のピーク面積は次式で得られる。

$$n_N = n_g - n_b \quad (6-5)$$

n_N は次による。

$$n_g = \sum_{i \in P} n_i, \quad n_{B1} = \sum_{i \in B1} n_i, \quad n_{B2} = \sum_{i \in B2} n_i, \quad n_b = \frac{P}{2b} \cdot (n_{B1} + n_{B2}) \quad (6-6)$$

n_g , n_b , n_N に対する標準偏差は次式で表される。

$$u(n_g) = \sqrt{n_g}, \quad u(n_b) = \frac{P}{2b} \sqrt{n_{B1} + n_{B2}}, \quad u(n_N) = \sqrt{n_g + \left(\frac{P}{2b}\right)^2 \cdot (n_{B1} + n_{B2})} \quad (6-7)$$

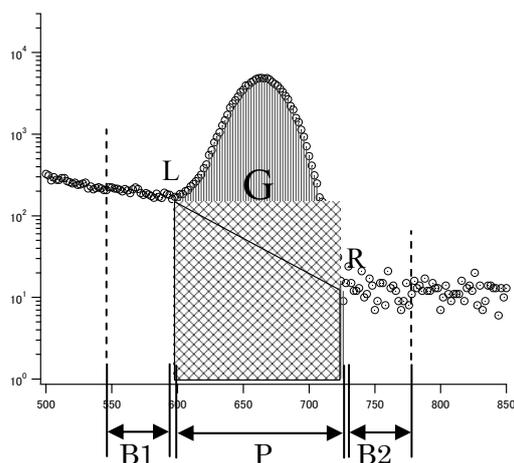


図 6.1 全吸収ピークとベースライン

6.2.2 ピーク関数適合による複合ピークの処理

異なる核種の γ 線ピークが重なった複合ピークについても、各ピーク面積を分離して求めることができる。特に ^{137}Cs の γ 線ピークは、 ^{134}Cs から放出される 605keV の γ 線ピークと重なるため、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を含む試料で、 ^{137}Cs の放射能を求めるには複合ピークの処理が必要となる。このような場合にはピーク関数適合を用いなければそれぞれのピーク面積を求めることができない。その概要を以下に示す。

複合ピークを含んでいる複雑なスペクトル分析には、非線形・線形のピーク関数適合（フィッティング法）が有効である。しかしながら、一般にこのようなより精巧なピーク分析を行うには十分な経験を要する。ガウス関数を含む非線形フィッティング関数の扱いについて十分な知識を要す

る専門家によって最適化され、妥当性が検証されたソフトウェアを用いることが望ましい。ただし、複数の γ 線を放出する核種の場合、複合ピーク（隣接ピーク中心距離 $<3\text{FWHM}$ ）を避け、独立した単独ピーク（隣接ピーク中心距離 $>3\text{FWHM}$ ）を用いるのがよい。この場合、6.1に示す単純な方法によりピーク面積を求めることができる。

ピーク面積を求める際には、原則としてピークの校正時と実際の試料測定時において同じ手法を用いる。フィッティング法の場合は、ピークが重なっていても、ピークとピークの間には凹があれば適合計算できる。この様にピークチャンネルが異なる幾つかのピークが重なりあって複合ピークを作る場合、複合ピークにおける各チャンネルの計数値 $F(x)$ は幾つかのガウス関数の和として次の様に表される。

$$F(x) = \sum_{i=1}^n \left[A_i \exp \left\{ -B_i^2 \times (x - x_i)^2 \right\} \right] + g(x) \quad (6-8)$$

$$B_i^2 = \frac{2.7726}{W_i^2}$$

ここに、

$F(x)$ チャンネル x における計数値

x チャンネル

x_i i 番目のピークの中心

A_i i 番目のピークの高さ

W_i i 番目のピークの FWHM（半値幅）

$g(x)$ ベースライン関数

適合関数の計算は、逐次計算により求められる。ピークフィッティング法では、得られた測定値の組みを生じる確率が最も大きくなる適合関数 $f(x)$ を調節し、尤もらしい適合関数を推定する。式(6-8)の適合関数に対して、ピーク面積 S は次式で得られる。

$$S = \frac{A}{B} \sqrt{\pi} \quad (6-9)$$

例えば、放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」の第9章では、最尤法によるピークフィッティング法の詳細が、標準偏差の計算も含めて記述されているので、詳細は参照されたい。

NaI(Tl)スペクトロメータでの測定では核種を想定したものであり、この時のピークフィッティングは、ピーク高さおよびベースラインのみを適合パラメータとし、FWHM やピーク中心は予め関数化しておき固定パラメータとして取り扱うことも考えられる。その際は試料スペクトルでエネルギー校正を行う、ドリフトや検出器劣化などによる FWHM の広がりが少ないことが前提となる。

なお、フィッティング法では、関数適合の妥当性を検証するため、適合度をチェックするには χ^2 検定が有効である。 χ^2 の値を計算し、それがカイ 2 乗分布で予想される範囲から外れていれ

ば、適合が妥当でないと判断できる。計数統計の不確かさの範囲内で適合関数を求められていれば妥当と言えるであろう。

(参考) その他の複合ピークの処理方法

複合ピークの各ピーク面積を求めるには、原理的にピーク関数適合による方法が一般的である。ただし、このような複合ピークを処理する方法として、従来マトリクス法、寄与係数法などもある。しかしながら、ピーク関数適合によらないこれらの方法は、試料の比重の影響などにより正確なピーク面積の算出に影響を及ぼすことが予測される。したがって、ピークフィッティング法によらない方法は条件によっては原理的に正確ではないこともありうる。

本ガイダンスでは、これらの方法を使用するにあたっての注意点とともに方法の概要を参考として示す。

連立方程式 (逆マトリクス) 法

試料中に含まれる主な核種が数核種に限定され、かつ核種が予め推定できる場合、逆マトリクス法により含まれる核種それぞれの放射能を定量することができる。この方法は核種が既知の標準線源を用いてそれぞれの核種の主領域（通常、主要 γ 線のピーク領域）を定め、その領域に含まれる他核種の寄与を、逆マトリクスを用いて求める方法である。試料に ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs 及び ^{40}K が含まれている場合の例を以下に示す。

図 6.2 のとおり各核種の主要領域を設定する。

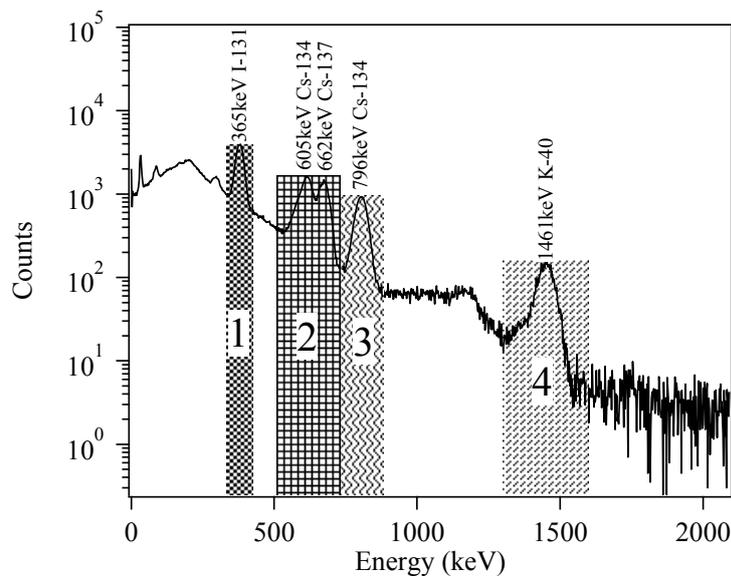


図6.2 ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs 及び ^{40}K 混合 γ 線スペクトル (NaI(Tl)スペクトロメータ)

領域 i のグロス計数値 N_i は、次式で表すことができる。

$$N_i = \sum_j N_{Xj} \times e_{ij} + B_i \times (t/t_b) \quad (6-10)$$

B_i は領域 i のバックグラウンド計数值, N_{Xj} は領域 j を主領域とする核種 Xj による領域 j の計数值である。

e_{ij} は核種 Xj の標準線源を用いて, 主領域 j に対する寄与領域 i の計数率の比として求める。

核種 Xj ($j=1,2,3,4$) に対応する領域 i ($i=1,2,3,4$) については, 次の関係が成り立つ。

$$\begin{aligned} N_{X1} \times e_{11} + N_{X2} \times e_{12} + N_{X3} \times e_{13} + N_{X4} \times e_{14} &= N_1 - B_1 \times (t/t_b) \\ N_{X1} \times e_{21} + N_{X2} \times e_{22} + N_{X3} \times e_{23} + N_{X4} \times e_{24} &= N_2 - B_2 \times (t/t_b) \\ N_{X1} \times e_{31} + N_{X2} \times e_{32} + N_{X3} \times e_{33} + N_{X4} \times e_{34} &= N_3 - B_3 \times (t/t_b) \\ N_{X1} \times e_{41} + N_{X2} \times e_{42} + N_{X3} \times e_{43} + N_{X4} \times e_{44} &= N_4 - B_4 \times (t/t_b) \end{aligned} \quad (6-11)$$

右辺は測定により得られる。これらは次のマトリックスで表すことができる。

$$\begin{pmatrix} e_{11} & e_{12} & e_{13} & e_{14} \\ e_{21} & e_{22} & e_{23} & e_{24} \\ e_{31} & e_{32} & e_{33} & e_{34} \\ e_{41} & e_{42} & e_{43} & e_{44} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} N_{X1} \\ N_{X2} \\ N_{X3} \\ N_{X4} \end{pmatrix} = M \times \begin{pmatrix} N_{X1} \\ N_{X2} \\ N_{X3} \\ N_{X4} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} N_1 - B_1 \times (t/t_b) \\ N_2 - B_2 \times (t/t_b) \\ N_3 - B_3 \times (t/t_b) \\ N_4 - B_4 \times (t/t_b) \end{pmatrix} \quad (6-12)$$

e_{ij} を要素とするマトリックス M について逆マトリックス M^{-1} を求めると, N_{Xj} は次式で求められる。

$$\begin{pmatrix} N_{X1} \\ N_{X2} \\ N_{X3} \\ N_{X4} \end{pmatrix} = M^{-1} \begin{pmatrix} N_1 - B_1 \times (t/t_b) \\ N_2 - B_2 \times (t/t_b) \\ N_3 - B_3 \times (t/t_b) \\ N_4 - B_4 \times (t/t_b) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \bar{e}_{11} & \bar{e}_{12} & \bar{e}_{13} & \bar{e}_{14} \\ \bar{e}_{21} & \bar{e}_{22} & \bar{e}_{23} & \bar{e}_{24} \\ \bar{e}_{31} & \bar{e}_{32} & \bar{e}_{33} & \bar{e}_{34} \\ \bar{e}_{41} & \bar{e}_{42} & \bar{e}_{43} & \bar{e}_{44} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} N_1 - B_1 \times (t/t_b) \\ N_2 - B_2 \times (t/t_b) \\ N_3 - B_3 \times (t/t_b) \\ N_4 - B_4 \times (t/t_b) \end{pmatrix} \quad (6-13)$$

したがって, 計数值 N_{Xj} とその標準偏差 σ_{NXj} は, 逆マトリックス M^{-1} の要素 \bar{e}_{ij} を用いて次式で表される。

$$\begin{aligned} N_{Xj} &= \bar{e}_{j1} \times (N_1 - B_1 \times (t/t_b)) + \bar{e}_{j2} \times (N_2 - B_2 \times (t/t_b)) \\ &+ \bar{e}_{j3} \times (N_3 - B_3 \times (t/t_b)) + \bar{e}_{j4} \times (N_4 - B_4 \times (t/t_b)) \end{aligned} \quad (6-14)$$

$$\sigma_{N_{Xj}} = \sqrt{\bar{e}_{j1}^2 \times [N_1 - B_1 \times (t/t_b)] + \bar{e}_{j2}^2 \times [N_2 - B_2 \times (t/t_b)] + \bar{e}_{j3}^2 \times [N_3 - B_3 \times (t/t_b)] + \bar{e}_{j4}^2 \times [N_4 - B_4 \times (t/t_b)]} \quad (6-15)$$

核種 X_j の放射能 A_j は次式により求めることができる。

$$A_j = N_{Xj} / (\varepsilon_{Xj} \times t) \quad (6-16)$$

ただし、この方法の場合、 e_{ij} は試料の比重にも依存するため、標準線源と同じ比重でなければ誤差が生じることとなる。したがって、各パラメータがどのような条件で求められているのか把握し、その条件とできるだけ同じにする必要がある。

寄与係数法

二本のピークが異なった核種によるものであり、かつ妨害基準ピークがある場合、適用できる。ピーク領域を 図 6.3 のように、 L_0 、 R_0 とする。ベースライン領域を 6-1 の方法などで計算し、両ピークを含めた正味のピーク面積 $N_{\text{net}}(P+P')$ を求める。 P を対象ピークとし、 P' を妨害ピークとする。すなわち妨害ピークを含めたピーク面積を $N_{\text{net}}(P+P')$ 及びその標準偏差を $\sigma_{N(P+P')}$ で表わす。妨害基準ピーク (P'') に対して、6-1 の方法でピーク面積 $N_{\text{net}}(P'')$ およびその標準偏差 $\sigma_{N(P'')}$ を求める。妨害ピークのピーク計数に対する $N_{\text{net}}(P'')$ の割合（寄与係数）を ν とする。 ν は、 P' 及び P'' の γ 線放出割合をそれぞれ I' および I'' 、ピーク効率を ε' 及び ε'' とすると、 ν は次式で表される。

$$\nu = \frac{I' \cdot \varepsilon'}{I'' \cdot \varepsilon''} \quad (6-17)$$

対象ピークの面積 $N_{\text{net}}(P)$ 及びその標準偏差 σ_N は次式で表される。

$$N_{\text{net}}(P) = N_{\text{net}}(P+P') - \nu N_{\text{net}}(P'') \quad (6-18)$$

$$\sigma_N = \sqrt{\left\{ \sigma_{N(P+P')} \right\}^2 + \nu^2 \left\{ \sigma_{N(P'')} \right\}^2}$$

ただし、この方法の場合、 ν は試料の比重にも依存するため、標準線源と同じ比重でなければ誤差が生じることとなる。

試料に複数の核種が含まれる場合に、この手法を利用して、高エネルギー側のピークを妨害基準ピークとしてコンプトン連続部を差し引き、低エネルギー側の正味ピーク面積を求めることもある。ただし、この場合にもピークとコンプトン連続部の計数率の比は、試料の比重にも依存するため、標準線源と同じ比重でなければ誤差が生じることとなる。さらに、妨害基準ピークそのものが2核種以上の複合ピークになる場合、対処が困難である。例えば、事故後の試料で、 ^{134}Cs 及び ^{40}K を含む場合には、 ^{40}K から放出される1461keVの γ 線ピークは ^{134}Cs によるサムピーク(605keV+796keV)と重なりあうため、妨害処理に支障をきたす恐れがある。

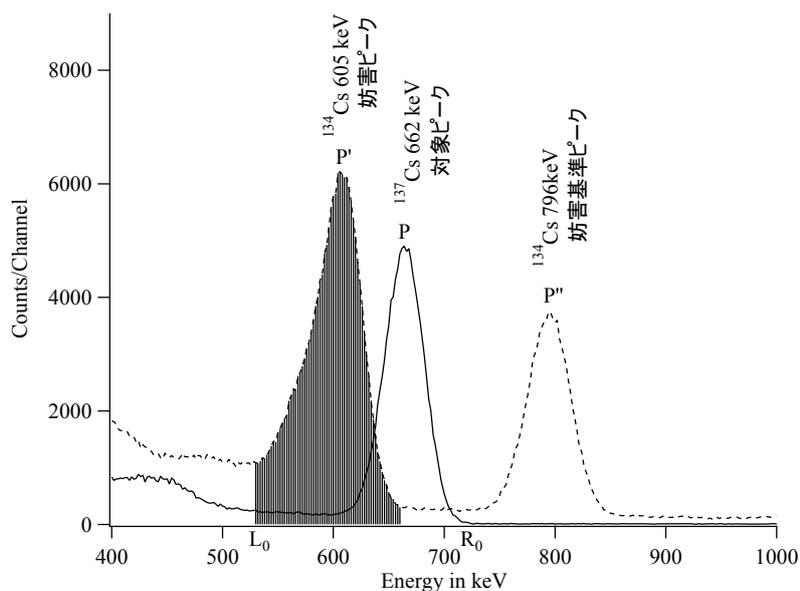


図6.3 $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 混合スペクトルにおける妨害ピーク

[参考文献]

- 1) 文部科学省(1974) 放射能測定法シリーズ No.6 NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータ 機器分析法
- 2) 文部科学省(1992) 放射能測定法シリーズ No.7ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー

第7章 放射能濃度の計算

7.1 放射能濃度の計算

試料に含まれる各核種の放射能濃度 C_A は対象ピークの正味計数値 $n_{N,E}$ から次式により求められる。

$$C_A = \frac{n_{n,E} / t_g}{P_E \cdot \epsilon_E \cdot V \cdot f_E} \quad (7-1)$$

ここに、

P_E : γ 線の放出割合

V : 試料の質量

ϵ_E : E keV の γ 線に対するピーク効率

f_E : 各種補正係数

補正係数 f_E は次式による。

$$f_E = f_d \cdot f_{cl,E} \cdot f_{su,E} \quad (7-2)$$

ここに、

f_d : 減衰補正

$f_{cl,E}$: カスケードサム補正

$f_{su,E}$: 偶発同時計数補正

f_{sa} : 自己吸収補正

ただし、カスケードサム補正は、 ^{134}Cs のような複数の γ 線がほぼ同時に放出されるような核種の場合、補正を要するが、 ^{134}Cs の標準線源で ϵ_E を求めた場合は補正の必要はない (7.3 参照)。偶発同時計数補正についても、低放射能試料の測定の場合は通常無視できる。

7.2 自己吸収補正

自己吸収補正の方法の詳細は、文部科学省放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」に記載されており、原則として NaI(Tl)スペクトロメータを用

いた γ 線スペクトロメトリーでも同様の方法が適用できる。

7.2.1 円柱容器

試料から放出される γ 線の一部は、試料の厚みによる自己遮蔽がある。したがって、試料と校正用標準線源の容器形状、充てん量、媒体・試料の比重は同じである必要がある。しかしながら、試料の種類は様々であり、標準線源と異なる比重の試料を測定する場合には、自己吸収は数学的に補正するのが一般的である。自己吸収は、主として試料媒体の線減弱係数及び試料の充てん量や厚さなど幾何学的条件に依存する。補正は、標準線源の媒体と試料の媒体の違いによる線減弱係数の差によって自己吸収が補正する。比重の低い試料に対しては、次式により計算で補正するのが一般的である。

$$f_{sa} = \frac{\mu t}{1 - e^{-\mu t}} \quad (7-3)$$

ここに、

t : 試料の厚さ

μ : 試料を構成する物質の γ 線エネルギーに対する線減弱係数

この補正法は最も単純化された方法で、実際には容器の大きさによっては検出器の形状も依存するため、このことを考慮したより複雑な補正法やモンテカルロシミュレーションを用いることもある。

7.2.2 マリネリ容器

マリネリ容器など試料の厚みが一定ではない容器では 7.2.1 による正確な補正は困難である。マリネリ容器は検出器を囲う形状のため、自己吸収による補正は検出器の大きさに対してそれほど依存しないことから、次のような方法が多く用いられている。

検出器の効率 $\varepsilon(E, G, \mu)$ は次式のように近似することができる。

$$\varepsilon(E, G, \mu) = \varepsilon(E, G) \cdot f(\mu) \quad (7-4)$$

ここに、

E : γ 線エネルギー

G : 幾何学的条件

μ : 線減弱係数

ここで、 $f(\mu)^{-1} = 1 + a\mu + b\mu^2$ と仮定すると、

$$\frac{\varepsilon(E, G, \mu_{S1})}{\varepsilon(E, G, \mu_{S2})} = \frac{\varepsilon(E, G)}{\varepsilon(E, G)} \cdot \frac{f(\mu_{S1})}{f(\mu_{S2})} = \frac{f(\mu_{S1})}{f(\mu_{S2})} = \frac{1 + a\mu_{S2} + b\mu_{S2}^2}{1 + a\mu_{S1} + b\mu_{S1}^2} \quad (7-5)$$

となり、補正係数は γ 線のエネルギー及び検出器によらず容器だけで決定できる。
 比重の異なる二つの標準線源のピーク効率を求めれば、(7-5)における a, b が決定できる。

したがって、試料 X に対する自己吸収の補正係数 f_{sa} は、標準線源 S に対して次式により得られる。

$$f_{sa} = \frac{f(\mu_X)}{f(\mu_S)} \quad (7-6)$$

図 7.1 に図 5-1 の 2”×2”用マリネリ容器を用いた場合の、比重変化とピーク効率の関係の計算例 (EGS5 による) を示す。例えば 662keV の γ 線に対するピーク計数効率はピーク比重 1 の試料に対する計数効率に対して、比重 0.3 では 10%程度高くなることわかる。

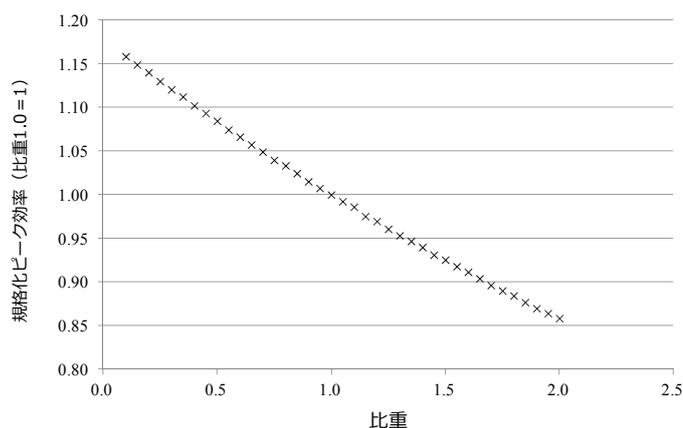


図7.1 試料の充てん比重とピーク効率の関係の例

7.3 カスケードサム効果

カスケードサム効果は、励起レベルの寿命がアンプの集積時間に比べて短い励起核から、安定核に転移する際に放出される 2 本以上の γ 線が同時検出されることにより起こる。 γ 線が検出器で全エネルギーを付与すると、その γ 線エネルギーに対応した全エネルギー吸収ピークが生じるが、それと同時に他の γ 線を検出した場合、その γ 線により生じたパルスとの合計エネルギーに相当するチャンネルに計数され、全吸収ピークには計数されない。例えば、 ^{134}Cs では、796keV の γ 線放出に連続して、ほぼ同時に 605keV の γ 線が放出される。したがって、796keV の γ 線が検出器にすべてのエネルギーを付与したとしても、605keV の γ 線が同時に検出されれば、796keV に相当するチャンネルには計数されず、796keV に対するピーク効率よりも実際のピーク効率は低くなり、補正を要する。図 7.2 に NaI(Tl)検出器のピーク効率の例を示す。破線のピーク効率曲線は、カスケードサム効果が無視できる核種により得たものである。これに対し、 ^{134}Cs の標準線源により得た 605keV 及び 796keV に対する

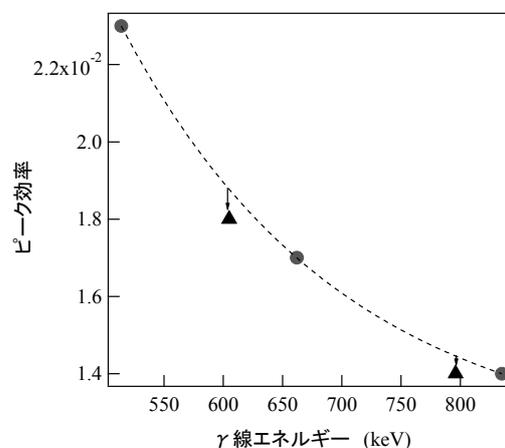


図7.2 NaI(Tl)検出器のピーク効率の例

ピーク効率は、カスケードサム効果により相対的に低くなっていることがわかる。

なお、ピーク効率を ^{134}Cs の標準線源で求める場合にはこの補正は要しない。NaI(Tl)スペクトロメータの場合、核種を想定した測定が主であり、測定対象核種の標準線源を用いてピークの校正するのが一般的である。カスケードサムの補正は複雑であり、NaI(Tl)スペクトロメータのようにある程度核種を限定して測定する場合には、測定対象核種の標準線源でピーク効率を求める方が容易である。ただし、標準線源の媒体と試料の比重が異なる場合には、7.2 の自己吸収だけでなく、このカスケードサムにも影響するので注意が必要である。

7.4 測定の不確かさ

GUM による測定の不確かさは次式で得られる。

$$u(c_A) = \sqrt{\left(\frac{w}{t_g}\right)^2 \cdot [u^2(n_{g,E}) + u^2(n_{b,E})] + c_A^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w)} \quad (7-7)$$

$$\text{ただし, } w = \frac{1}{P_E \cdot \varepsilon_E \cdot V \cdot f_E}$$

したがって、 $u_{\text{rel}}(w)$ は次式で表すことができる。

$$u_{\text{rel}}^2(w) = u_{\text{rel}}^2(P_E) + u_{\text{rel}}^2(V) + u_{\text{rel}}^2(\varepsilon_E) + u_{\text{rel}}^2(f_E) \quad (7-8)$$

ここに、

$U_{\text{rel}}(P_E)$: γ 線の放出割合の相対不確かさ

$U_{\text{rel}}(V)$: 試料の質量の相対不確かさ

$U_{\text{rel}}(\varepsilon_E)$: E keV の γ 線に対するピーク効率の相対不確かさ

$U_{\text{rel}}(f)$: 補正係数の相対不確かさ

$U_{\text{rel}}(\varepsilon_E)$ は、次式で表すことができる。

$$u_{\text{rel}}^2(\varepsilon_E) = u_{\text{rel}}^2(n_{\text{Ns,E}}) + u_{\text{rel}}^2(A) + u_{\text{rel}}^2(P_E) = u_{\text{rel}}^2(n_{\text{gs,E}} - n_{\text{bs,E}}) + u_{\text{rel}}^2(A) + u_{\text{rel}}^2(P_E) \quad (7-9)$$

ここに、

$U_{\text{rel}}(A)$ は校正に用いた標準線源の不確かさ

[参考文献]

- 1) 文部科学省(1992) 放射能測定法シリーズ No.7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー
- 2) ISO10703(2007) Water quality - Determination of the activity concentration of radionuclides - Method by high resolution gamma-ray spectrometry

第 8 章 精度管理と計量トレーサビリティ

精度管理の手法は、大きく外部精度管理と内部精度管理に分類される。外部精度管理は技能試験やクロスチェックへの参加により、自らの測定結果がずれていないことを他機関との比較により確認するものである。内部精度管理は品質システムの構築や手順書の整備、機器のドリフト確認、濃度既知試料の測定等、機関内部における品質活動である。

放射能濃度の測定における精度管理の場合、外部精度管理は、様々な機関や団体が開催している放射能測定の技能試験があり、内部精度管理としては各種標準物質を用いた測定の妥当性確認や標準ガンマ体積線源による機器校正があげられる。機器校正では特に、測定のトレーサビリティの観点から、装置の機器効率を決める際に用いる線源の放射能が国家標準と結びついていることが求められる。これを確かなものに行っているのが計量トレーサビリティである。

この章では、精度管理に活用される標準線源および標準物質、並びにそれらの放射能を国家標準に結びつける計量トレーサビリティについて紹介し、あわせて保守・点検や校正の重要性について述べる。

8.1 標準線源

標準線源は 3 章で示されたピーク計数効率校正を行うために用いる。適切な校正が行えるよう次に示す特徴が求められる。

(1) 放射性核種

測定対象核種を含む標準線源を用いた γ 線スペクトル測定により、直接、計数効率を求めることができる。測定対象と同じ核種を、同じ割合で含む標準線源であれば、スペクトル測定による必要はなく、正味の総計数から計数効率を求めることもできる。ただし、この場合は、半減期の違いにより試料に含まれる放射能の割合が逐次変化するため、計数効率も経時的な見直しが必要になる。

表 8.1 に日本アイソトープ協会から頒布している標準ガンマ体積線源で用いられる ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の、主な γ 線エネルギーと放出割合を示す。

表 8.1 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の主な γ 線エネルギーと放出割合

放射性核種	エネルギー (keV)	放出割合 (%)
^{134}Cs	563	8.4
	569	15.4
	605	97.6
	796	85.5
	802	8.7
	1365	3.0
^{137}Cs	662	85.1

出典：アイソトープ手帳第 11 版，日本アイソトープ協会（2011 年）

1.461 MeV の γ 線を放出する ^{40}K ，ウラン系列にあって 609 keV, 768 keV など複数のエネルギー

の γ 線を放出する ^{214}Bi 、トリウム系列にあって583 keV、2615 keVなど複数の γ 線を放出する ^{208}Tl など、もともと自然界に存在する放射性核種が、校正の邪魔になる場合があるため、標準線源にはそれらを含まない方が望ましい。

(2) 放射能

測定装置には、周囲の放射線や、測定回路に起因する固有のバックグラウンド計数がある。着目するピークに対して、バックグラウンド及び数え落としが十分に無視できる計数率（100カウント/分程度）を与える放射能を持つことが望ましい。日本アイソトープ協会から頒布している標準ガンマ体積線源の放射能は合計数キロボクレルで、放射線障害防止法の規制対象とならない密封線源である。表 8.2 に ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を含む標準 γ 線源の放射能とその校正の不確かさの例を示す。校正証明書は製品1件ずつに発行される。

表 8.2 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を含む標準ガンマ体積線源の放射能と校正不確かさの例

核種	放射能 (Bq)	相対拡張不確かさ ¹⁾ (%)
^{134}Cs	1.794×10^3	4.5
^{137}Cs	1.821×10^3	4.5

注¹⁾ 不確かさは包含係数 $k=2$ とした相対拡張不確かさで表されている。

(3) 形状・材質

測定装置の計数効率、一般に試料を置く位置や、試料の形状により大きく変わる。したがって標準線源の形状は、測定・分析機関で用いる測定試料の容器と同じであるか、又は計算により補正可能であるものを用いなければならない。図 8.1 に試料容器に充填した標準線源の外観を示す。日本アイソトープ協会では、発注者が持ち込む密封性が保証された任意の容器に、線源を充填することが可能である。



図 8.1 市販の試料容器（マリネリ）に充填した標準線源

標準線源の媒体には、放射性溶液、活性化アルミナ粉末、樹脂などがある。線源による γ 線の自己吸収は計算により補正できる。補正量が10%程度にまで大きくなると、補正の不確かさが無視できないほど大きくなることもある。放射能の評価の正確性を高めるためには、標準線源の材質や密度は、測定試料のそれらと同様であることが望ましい。また、計算に必要な標準線源の組成や質量が示されていることが望ましい。

8.2 標準物質

放射能測定を行う検査機関では、校正事業者により校正された標準ガンマ体積線源を用いて測定装置の計数効率を校正し、測定トレーサビリティを確保する。しかし、食品中に含まれる放射性セシウムの放射能を測定する場合、放射能が小さいため、バックグラウンド計数に埋もれたり、放射性セシウム以外の放射性物質からのγ線との弁別測定が困難であったり、などの理由で、正しい測定ができていないとの確証が得られない場合がある。そのような場合、検査機関では上述の校正に加えて、測定対象と類似の物質で構成され、同程度の放射能をもち、放射能の値が分かっている認証標準物質を測定し、認証値と同じ結果が得られることで、測定が正しく行なわれていることを自ら確認し、評価・検証することが重要となる。標準物質はこのような測定の妥当性確認に用いることができる。

標準物質のうち、試料全体にわたり均質化された物質で、ISO ガイド 34 やガイド 35 等の国際規格に定められた手順に従い、特性値が国家計量標準と結び付けられて定められており、認証書が付されているものを認証標準物質としている。2015 年 2 月現在、国内で放射性セシウムを含む認証標準物質を販売しているのは、産業技術総合研究所、日本アイソトープ協会、日本分析化学会などである。また、国際原子力機関（IAEA）が様々な標準物質を販売している他、米国標準研究所（NIST）等の海外研究機関からも販売されている。なお、日本分析センターは試験を目的として地方公共団体の研究向けに標準物質を頒布している。

標準物質と標準線源は混同されやすいが、異なるものである。すなわち、標準線源は校正に用いることを念頭に作製されているので、核種や放射能が計数効率の校正に適している。一方、標準物質は放射能が測定試料と同程度で比較的弱い。また、測定対象となる核種の他に自然界に存在する放射性物質を含むことが多い。放射能の測定装置では、試料の放射能に対する装置のレスポンスは広い範囲で適正に保たれている。そこで、わざわざ放射能が小さく十分な計数が得られにくい、標準物質を基準として試料の放射能を求めるよりも、十分な計数統計が得られやすく校正の妨害となる核種を含まない、標準線源による校正結果を基準として試料の放射能を求める方が、不確かさのより小さい測定が行えると期待できる。それぞれ目的に応じての利用を心がけたい。

以下、食品検査装置向けを中心に標準物質を紹介する。

(1) 活性化アルミナ粉末を基材とした大容積対応の標準物質

日本アイソトープ協会が開発し、頒布している。標準線源と同じ活性化アルミナ粉末に ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を吸着させたものである。厚生労働省により発出された放射性セシウムスクリーニング法のスクリーニングレベル確認に用いることを想定し、放射性セシウムの合計放射能濃度が約 60 Bq/kg に調整されている。ベルトコンベア等で測定対象物を移動させながら自動測定する装置の点検などに用いられており、米袋を想定した容積を持つものも入手可能である。

(2) 玄米を基材とした標準物質

一般の水田で食用に供するものと同様の方法で栽培・収穫・加工された玄米を用いている。土壌

環境由来のものを除く ^{134}Cs , ^{137}Cs は含まれていない。図 8.2 及び表 8.3 に、それぞれ放射性セシウムを含む玄米の標準物質の外観及び仕様概略を示す。



a) 試薬瓶入り b) 試料容器に充填
図 8.2 放射性セシウムを含む玄米の標準物質の外観

表 8.3 放射性セシウムを含む玄米の標準物質の仕様概略

型式	核種	放射能 (Bq/kg)	不確かさ ¹⁾ (Bq/kg)
JSAC0731 及び JSAC0732 (日本分析化学会)	^{134}Cs	141 ²⁾	9
	^{137}Cs	210 ²⁾	13
	^{40}K	75 ²⁾	7
NMIJ CRM 7541-a (産業技術総合研究所)	^{134}Cs	33.6 ³⁾	2.6
	^{137}Cs	51.8 ³⁾	4.6

注1) 不確かさは包含係数 $k=2$ とした拡張不確かさで表されている。

注2) 放射能の基準日は 2012 年 6 月 1 日午前 0 時 (日本標準時) である。

注3) 放射能の基準日は 2012 年 8 月 1 日午前 9 時 (日本標準時) である。

8.3 計量トレーサビリティ

放射能の単位はベクレル (Bq) と定められている。放射能測定は試料の放射能が 1 ベクレルの何倍あるかを測定している。そこで 1 ベクレルを正しく定めた標準が必要になる。そのような標準を保有する校正機関に測定器を持って行き、表示すべき指示値と実際の指示値を比較することにより、その測定器の効率を確認することができる。このような行為を校正という。校正された測定器で得られた結果は、他の測定器の結果と比較ができるようになる。校正機関は、より上位の校正機関から校正を受けており、最終的には国の最上位の標準 (国家標準) に辿り着く。これを測定の計量トレーサビリティという。Ge 検出器や、NaI(Tl)検出器で放射能を測定する場合、8.1 項で述べた標準線源を用いて計数効率を求める。標準線源の放射能は、日本アイソトープ協会によって校正されている。日本アイソトープ協会が維持している標準器は、産業技術総合研究所が維持する標準器によって校正されている。このようにして現場の測定が国家標準と結び付けられる。日本国内では現在、線量、放射能ともに、産業技術総合研究所が国家標準を維持している。図 8.3 に放射能測定のトレーサビリティを図示する。

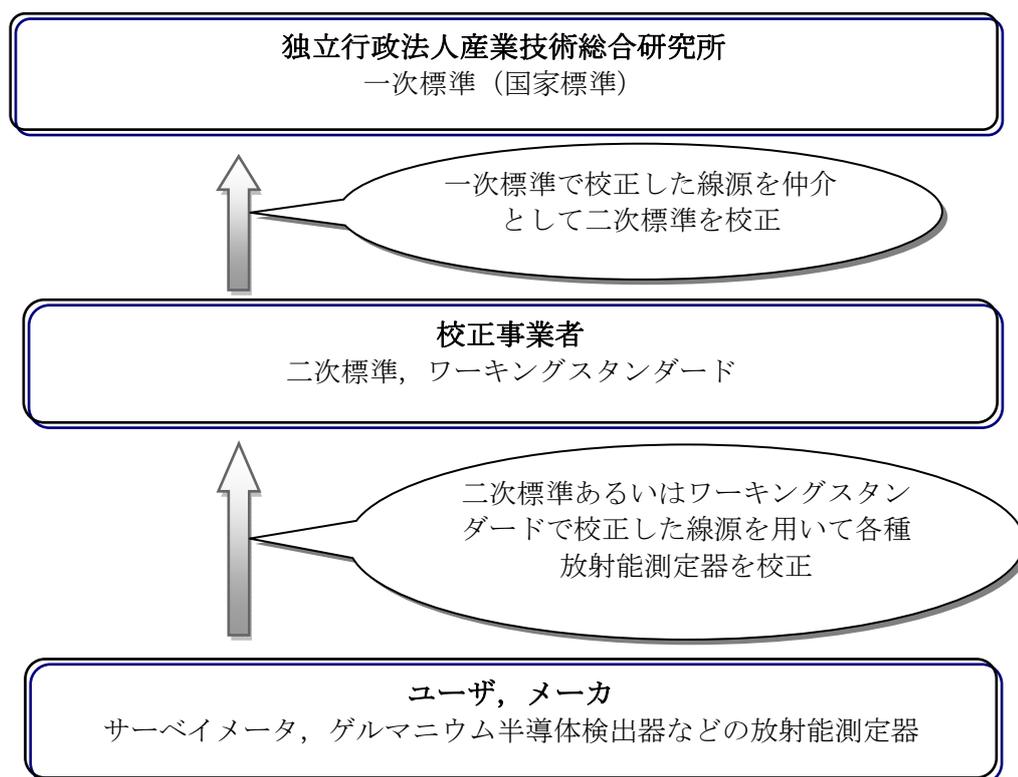


図 8.3 放射能測定に関するトレーサビリティ
出典：はじめての放射線計測，日本アイソトープ協会（2012 年）

放射能の計量トレーサビリティは、測定器の分解能や安定性と共に、測定の信頼性において測定器に求められる重要な要素であり、使用者の責任において維持されなければならない。計量トレーサビリティに則って装置校正を行うためには、トレーサビリティの証拠となるべき校正証明書が発行されている線源を用いることが何よりも重要である。JCSS ロゴが付いた校正証明書は、計量法に基づいて校正が行われ、国家標準へのトレーサビリティを保証するものである。日本アイソトープ協会が頒布している標準ガンマ体積線源には、購入時に JCSS 校正を指定することにより、JCSS ロゴ付きの校正証明書が発行される。

8.4 保守・点検と校正

正しい測定の基本となるのが、測定器の維持である。製造業者が出荷する際には、試験等により測定器の指示値のずれが規格を満たすことを確認していることが多い。そのため購入した測定器の指示値が大きく外れることはないが、これは 8.3 に示す計量トレーサビリティのとれた校正ではない。製品の実力を最大限発揮させ、正確な測定をしようとするならば、製造業者の出荷試験に頼るだけでなく、使用者の責任で校正を行い、測定の不確かさをより小さくする必要がある。

数年にわたり測定器を利用し続ける場合は、定期的に保守点検を行い部品等が劣化していないこと、測定回路等が適切に調整されていること、直線性のような基本性能が維持されていることを確認・検証しなければならない。加えて、標準線源を用いて校正を行ない、指示値のずれを確

認しておかなければならない。校正結果に基づき、使用者が調整や補正を行うこともある。また、日常的な点検も大切である。バックグラウンド計数の確認や、チェックソース等を用いた指示値確認等、使用者が自ら定めた項目を、毎日あるいは毎週等、使用の頻度に応じて確認するのが良い。

以上のような保守・点検と校正により、測定器を正しい状態に維持しておくことが使用者に求められている。保守マニュアルや保守記録を適切に整備し、測定器の健全性を維持し、その証拠となる記録を保持することが望ましい。

〔参考文献〕

- 1) 表 8.1 については、アイソトープ手帳第 11 版，日本アイソトープ協会（2011 年）
- 2) 表 8.3 に示す日本分析化学会の標準物質については，
<http://www.jsac.or.jp/srm/srm-0731.pdf> 及び <http://www.jsac.or.jp/srm/RDJSAC0731.pdf> （2014 年 3 月確認）
- 3) 表 8.3 に示す産業技術総合研究所の標準物質については，
https://www.nmij.jp/service/C/crm/61/7541a_J.pdf （2014 年 3 月確認）
- 4) 図 8.3 については，はじめての放射線計測，日本アイソトープ協会（2012 年），118 頁より引用。

(参考資料 1) カスケードサム補正

カスケードサム補正の例を, ^{134}Cs について示す。

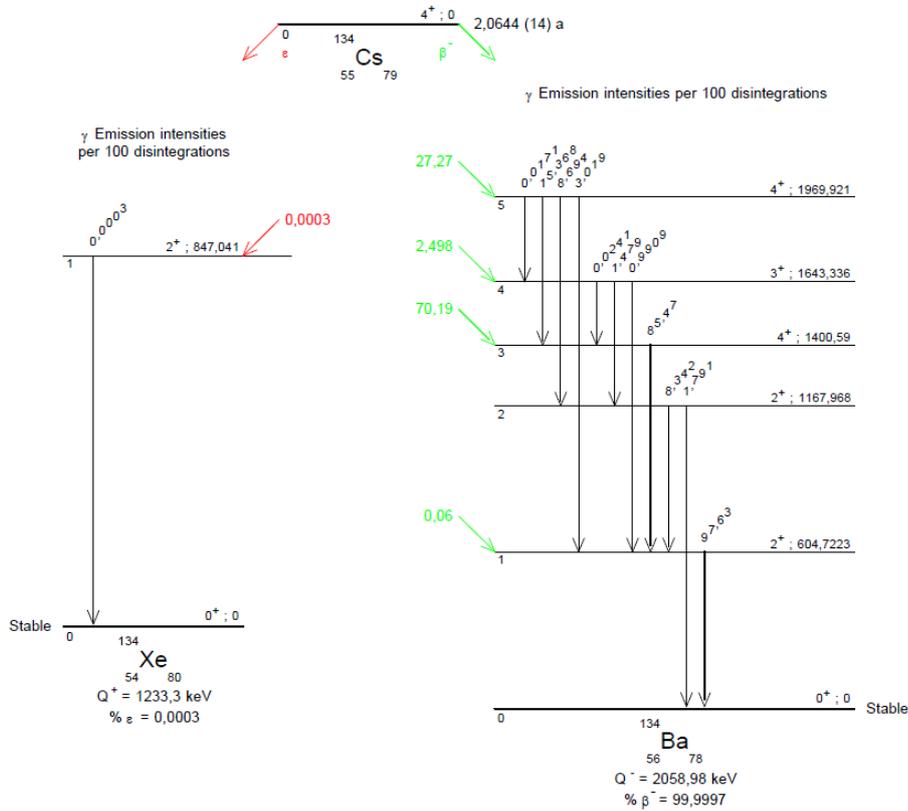


図 参1.1 ^{134}Cs 壊変図

Cs-134 の 795.9 keV γ 線のカスケードサム補正

この γ 線は励起準位 3 から励起準位 1 に遷移するとき発生するものであり, 励起準位 3 への β 崩壊, 励起準位 4 への β 崩壊及び励起準位 4 から励起準位 3 への遷移, 励起準位 5 への β 崩壊及び励起準位 5 から励起準位 3 への遷移, 励起準位 5 への β 崩壊, 励起準位 5 から励起準位 4 への遷移及び励起準位 4 から励起準位 3 への遷移に引き続いて発生するものである。また, この後, 励起準位 1 から基底準位への遷移が起こる。

これらの事象からカスケードサムによる計数率の減少割合は以下のように表される。

$$\begin{aligned}
P_{31} &= \frac{q_{53}}{B_3 + q_{43} + q_{53}} \frac{\varepsilon_t(53) + \alpha_K(53)\omega_K \varepsilon_t(KX)}{1 + \alpha_t(53)} \\
&+ \frac{q_{43}}{B_3 + q_{43} + q_{53}} \frac{\varepsilon_t(43) + \alpha_K(43)\omega_K \varepsilon_t(KX)}{1 + \alpha_t(43)} \\
&+ \frac{q_{43}}{B_3 + q_{43} + q_{53}} \left(1 - \frac{\varepsilon_t(43) + \alpha_K(43)\omega_K \varepsilon_t(KX)}{1 + \alpha_t(43)} \right) \frac{q_{53}}{B_4 + q_{53}} \frac{\varepsilon_t(53) + \alpha_K(53)\omega_K \varepsilon_t(KX)}{1 + \alpha_t(53)} \\
&+ \frac{\varepsilon_t(10) + \alpha_K(10)\omega_K \varepsilon_t(KX)}{1 + \alpha_t(10)}
\end{aligned} \tag{1}$$

以下の核データを代入して、 P_{31} を求める。

$$\begin{aligned}
q_{53} &= 15.512, \quad B_3 = 70.19, \quad q_{43} = 0.0262, \quad \alpha_t(53) = 0.00936, \quad \alpha_K(53) = 0.00805 \\
\omega_K &= 0.900, \quad \alpha_t(43) = 0.087, \quad \alpha_K(43) = 0.0722, \quad B_4 = 2.498, \quad \alpha_t(10) = 0.00593, \quad \alpha_K(10) = 0.00503 \\
P_{31} &= 0.179\varepsilon_t(53) + 0.001\varepsilon_t(KX) \\
&+ 0.0003\varepsilon_t(43) + 0.00002\varepsilon_t(KX) \\
&+ (0.0003\varepsilon_t(53) + 0.000002\varepsilon_t(KX))(1 - 0.920\varepsilon_t(43) - 0.060\varepsilon_t(KX)) \\
&+ 0.994\varepsilon_t(10) + 0.005\varepsilon_t(KX)
\end{aligned} \tag{2}$$

となるが、内部転換による寄与は小さく、また、 γ 線についても 596.3 keV、604.7keV 以外は寄与が小さいので、省略すると、 P_{31} は以下ようになる。

$$P_{31} = 0.179\varepsilon_t(53) + 0.994\varepsilon_t(10) \tag{3}$$

Cs-134 の 604.7 keV γ 線のカスケードサム補正の例

この γ 線は励起準位 1 から基底準位に遷移するとき発生するものである。 P_{10} については、もともとの式が複雑なため、内部転換の項と遷移確率の少ない遷移を省略して書くと以下のようになる。

$$\begin{aligned}
P_{10} &= \frac{q_{31}}{q_{10}} \left(\frac{\varepsilon_t(31)}{1 + \alpha_t(31)} + \left(1 - \frac{\varepsilon_t(31)}{1 + \alpha_t(31)} \right) \frac{q_{53}}{B_3 + q_{43} + q_{53}} \frac{\varepsilon_t(53)}{1 + \alpha_t(53)} \right) \\
&+ \frac{q_{21}}{q_{10}} \left(\frac{\varepsilon_t(21)}{1 + \alpha_t(21)} + \left(1 - \frac{\varepsilon_t(31)}{1 + \alpha_t(31)} \right) \left(\frac{q_{52}}{q_{42} + q_{52}} \frac{\varepsilon_t(52)}{1 + \alpha_t(52)} + \frac{q_{42}}{q_{42} + q_{52}} \frac{\varepsilon_t(42)}{1 + \alpha_t(42)} \right) \right) \\
&+ \frac{q_{51}}{q_{10}} \left(\frac{\varepsilon_t(51)}{1 + \alpha_t(51)} \right) \\
&+ \frac{q_{41}}{q_{10}} \left(\frac{\varepsilon_t(41)}{1 + \alpha_t(41)} \right)
\end{aligned} \tag{4}$$

Table of radionuclideより、以下のデータを代入して、 P_{10} を求める。

$$\begin{aligned}
q_{31} &= 85.73, \quad q_{10} = 98.21, \quad \alpha_t(31) = 0.00302, \\
q_{53} &= 15.512, \quad B_3 = 70.19, \quad q_{43} = 0.0262, \quad \alpha_t(53) = 0.00936, \\
q_{21} &= 8.402, \quad \alpha_t(21) = 0.00714, \quad q_{42} = 1.496, \quad q_{52} = 8.72, \quad \alpha_t(42) = 0.0144, \quad \alpha_t(52) = 0.00297, \\
q_{51} &= 3.022, \quad \alpha_t(51) = 0.000987, \quad q_{41} = 0.993, \quad \alpha_t(41) = 0.00208
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
P_{10} &= 0.870\varepsilon_t(31) + 0.156\varepsilon_t(53)(1 - 0.997\varepsilon_t(31)) \\
&+ 0.085\varepsilon_t(21) + (0.073\varepsilon_t(52) + 0.012\varepsilon_t(42))(1 - 0.993\varepsilon_t(21)) \\
&+ 0.031\varepsilon_t(51) \\
&+ 0.010\varepsilon_t(41)
\end{aligned} \tag{5}$$

[参考文献]

- 1) CEA(2011) Table of radionuclide, http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm
- 2) IEC61452(1995) Nuclear instrumentation- Measurement of gamma-ray emission rates of radionuclides – Calibration and use of germanium spectrometers

(参考資料 2) ベルトコンベア式食品モニタの概要

1. 装置の特徴

スクリーニング法に従い30kg米袋等の放射能濃度の検査を袋等梱包状態で行うことができる。放射能濃度の検査では、スクリーニング法に従った測定下限値及びスクリーニングレベルで基準値を超えないことを判定できる。

Ge 検出器などでの検査では試料の一部をサンプリングしての検査となるが、ベルトコンベア式では全量を検査することができる。また、サンプルの破碎などの前処理が不要なため、商品価値を損なわずに全量検査を行うことができる。

専門的な放射線測定技術は不要で、規定の寸法及び質量の米袋などをベルトコンベアに載せて流すだけで検査することができる。

ベルトコンベアで流すことにより、30kg米袋で250袋/h程度の高い検査処理能力を有する。ベルトコンベア及び遮蔽体を有するため大きさは3.3(W)×1.0(D)×1.5(H)m程度で、質量は2.3トン(分割化)、測定対象は37×66×18cm・30kg程度のタイプもある。

2. 装置の構造

ベルトコンベア式食品モニタは装置本体とベルトコンベアで構成される。装置本体はNaI(Tl)検出器及び検出器信号から放射能濃度を算出し判定する演算部、判定結果を表示する表示部、ベルトコンベアの制御部で構成される。(図参 2.1)

NaI(Tl)検出器は鉛などの遮蔽体で覆われており、これによりBG放射線を遮蔽して測定下限値を低くしている。ベルトコンベア式食品モニタでは、試料中の放射能分布が均質であることを想定しているが、試料の上下にNaI(Tl)検出器を配置するなど、試料-検出器間の幾何学的条件が異なることによる計数効率の差があまり大きくならないように工夫されている。



図 参 2.1 ベルトコンベア式食品モニタ構造の例

3. 測定方式

図 参 2.2 に示す測定系により，NaI(Tl)検出器は食品から放出される γ 線を検出し，パルス数の信号を演算部へ出力する。演算部では検出されたパルス信号数を放射能濃度（Bq/kg）に換算する。得られた放射能濃度とスクリーニングレベル（Bq/kg）の設定値を比較して，合否判定する。

NaI(Tl)検出器からのパルス信号数の放射能濃度（Bq/kg）への換算は，事前に米袋と同等の寸法及び質量の ^{137}Cs 標準線源によりパルス信号数と放射能濃度の相関を求めておいて行う。

NaI(Tl)検出器は γ 線のエネルギーに比例する信号を出力するため，信号の大きさにより γ 線を放出する放射能を識別することができる。これにより， ^{137}Cs と ^{134}Cs の γ 線のエネルギーに相当する大きさの信号のみを計数することで，BG放射線による計数を低く抑えて測定下限値を低くしている。

ベルトコンベア方式では食品の先端から終端までNaI(Tl)検出器の前を通過するため，食品の先端または終端に含まれる放射能も精度よく測定できる。

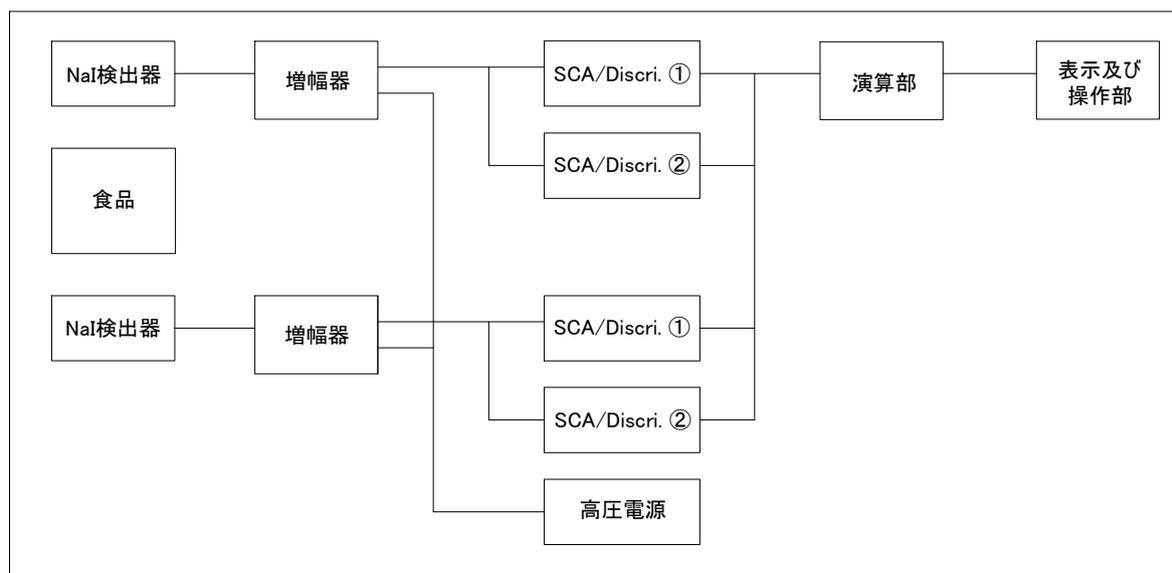


図 参 2.2 ベルトコンベア式食品モニタの測定回路ブロック図

4. 使用上の注意点

1) 測定対象の寸法及び質量

測定対象の寸法が設定値と実際の値で異なると，得られた放射能濃度値は不正確となるため，設定値通りの大きさを測定するか，設定値の変更等が必要となる。これは，測定対象の食品が大きくなると，検出器に対する見込み角（立体角）が小さくなるため検出効率は小さくなる。このため，検出効率は放射能濃度（Bq/kg）への換算で用いるため，実際より小さい検出効率（cps/Bq）で換算すると放射能濃度は高く算出されてしまうことになる。

同様に，測定対象の質量が設定値と実際の値で異なると，得られた放射能濃度値は不正確とな

るため、設定値通りの質量で測定するか、設定値の変更等が必要となる。これは、測定で得られた放射エネルギー (Bq) を質量で除して放射能濃度 (Bq/kg) を算出するため、実際より大きい質量で算出すると放射能濃度は低くなってしまふことになる。

2) BG 線量率と測定下限値

測定下限値は BG 放射線による NaI(Tl)検出器の計数値を換算したものであり、計数値が小さくなると測定下限値は小さくなる。このため、BG 線量率が低いと NaI(Tl)検出器の計数が小さくなり、測定下限値は小さくなる。測定下限値が小さくなると精度よくまた短時間で測定できるため、モニタはできるだけ BG 線量率が低い場所及び状態で使用することが望ましい。

また、モニタは鉛等で BG 放射線を遮蔽しているが、減衰した一部の BG 放射線を計数する。実際の測定では食品を測定した NaI(Tl)検出器の計数値から、BG 放射線による計数値を差し引いた正味の計数値により放射能濃度を算出している。このため、BG 線量率が変化すると、BG 放射線による計数値の減算が不正確となり、得られた放射能濃度値は不正確となる。そこで、モニタを移動したり、周囲の BG 線量率が変化したりした場合には、再度 BG の計数値の測定を行う必要がある。また、BG 放射線による計数値の精度が高くなるため、使用開始前の BG の計数値の測定では、できるだけ長くまたは多く測定することが望ましい。

また、周囲の状況が同じで BG の計数値が通常より高くなった場合、検出器周辺に放射能が付着した可能性等があり、拭き取り等の処置を行うことが望ましい。

バッチ式のポット型モニタも BG 線量率の変化は影響を受けるが、ベルトコンベア式は開口部があるため、開口部に対する BG 線量率の変化に対して注意し、定期的に BG を測定する必要がある。

3) 設置

ベルトコンベア式食品モニタは食品がスムーズに流れることで正確に測定できるため、食品の流れが途中停止したり、不安定であったりした場合は、試料の一部の部分を集中的に測定してしまうことなどにより正確な測定・検査が行えない。このため、ベルトのゆるみやコンベアと装置本体の高さを確認して、試料がスムーズに流れるように保守することが望ましい。

(参考資料 3) 全計数型放射能濃度測定装置の概要

1. 装置の原理

NaI(Tl)スペクトロメータは、エネルギーピーク部分の計数を求め、それぞれの γ 線の放射能濃度を求めている。これに対し、全計数型放射能濃度測定装置は、図参 3.1 に示すように、一定のエネルギー以上のすべての γ 線計数を求め放射能濃度を求める。全計数型放射能濃度測定装置は、測定する計数が多く、短時間での測定が可能であるが放射性物質ごとの放射能濃度を求めることができない。

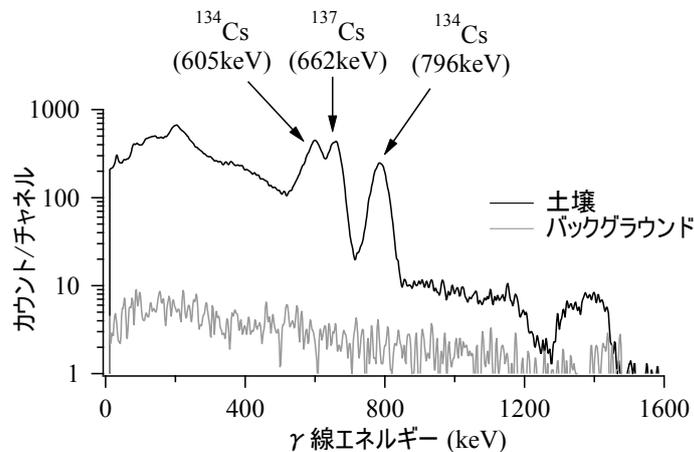


図 参 3.1 全計数型放射能濃度測定装置における計数スペクトルの例

全計数型による放射性セシウムの放射能濃度測定の場合は、 ^{137}Cs の計数効率を用いていれば、 ^{134}Cs と ^{137}Cs で γ 線の放出割合が異なり高めに計算され、また ^{40}K などの他の放射性物質も合わせて測定されるために、NaI(Tl)スペクトロメータに比べ、放射性セシウムの放射能濃度は高めになる傾向を示す。しかし、高めに表示されることは測定結果に正のバイアスがかかることであり、測定試料（食品中）の放射性セシウムスクリーニングの目的を達成することが可能であり、測定結果は安全側に表示されている。一方、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の混合比を仮定して放射性セシウムに対する校正定数を決定している場合は、 ^{134}Cs の割合の減少とともに感度は悪い方向に推移する。したがって日数の経過とともに結果は危険側に推移することになるため、定期的に校正をし直す必要がある。

2. 特徴

全計数型放射能濃度測定装置から得られる情報は、計数データのみで一般にスペクトルデータは得られない。そのため、検出器として NaI(Tl)より低いエネルギー分解能のシンチレータを用いることも可能である。特にプラスチックシンチレータは、潮解性が無く、形状の自由度が高い。

そのため、図参 3.2 に示すようにシンチレータを井戸形に作成して、試料を覆うようにして感度を高くすることができ、試料を入れる容器も入手性のよい円柱形の容器が使用可能となる。

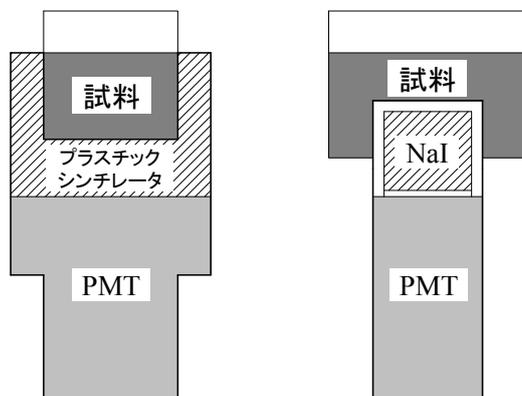


図 参 3.2 検出器の違い

試料全体に含まれる放射性物質の大まかな放射能濃度を測定する目的には適した方法であり、シンチレータの形状変更による感度向上とあわせて測定時間の短縮、試料の質量低減が図れる。測定時間が 15 分程度と短く、また試料も 300-500g と少なくすることが可能であり、容器も安価な軟膏容器が使用でき、スクリーニングなどに適したものである。

3. NaI(Tl)スペクトロメータとの違い

全計数型放射能濃度測定装置の違いを図参 3.3 に示す。一定のエネルギー以上の γ 線を検出する比較回路と、一定のエネルギー以上の γ 線を数える計数機能が違いである。比較回路は AD 変換回路より簡単で小規模な回路となり、解析装置の機能も小規模で、装置の開発、製造が容易になるとともに安価に製作することが可能となる。

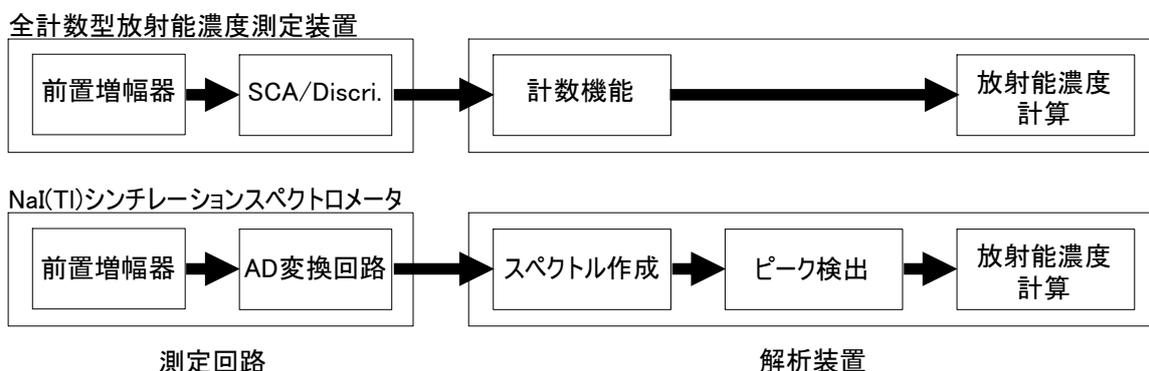


図 参 3.3 全計数放射能濃度測定装置の機能

4. 放射能濃度の測定

全計数型放射能濃度測定装置は、試料を計測した計数値と、試料無で計測した計数値の差分を使用して放射能濃度を求める。そのため、試料無で計測するバックグラウンド測定が必須である。測定環境が変わらなければバックグラウンドに大きな変化が無いので、1, 2 回/日のバックグラウンド測定で運用することができる。

試料の計数値 (N_s) からバックグラウンドの計数値 (N_b) を減算し、検出器の効率 (ϵ)、試料の質量 (W) から放射能濃度を演算する。放射能濃度は Bq/kg で求められ、質量は kg、試料測定時間は t_s 、バックグラウンド測定時間は t_b とし、時間は秒で求める。

$$\text{放射能濃度} = \frac{1}{W} \cdot \frac{1}{\epsilon} \cdot \left(\frac{N_s}{t_s} - \frac{N_b}{t_b} \right)$$

5. 点検・校正

全計数型放射能濃度測定装置も NaI(Tl)スペクトロメータと同様に PMT を使用しており、印加電圧の調整、エネルギー調整、効率校正が必要である。また、日常点検、定期点検も同様である。

放射性セシウムの放射能濃度測定の割合は、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の半減期の違いにより変化している。測定日の違いにより補正も行うが、点検用試料による計数値の確認と、バックグラウンド計数値を確認すること、定期点検による ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能濃度測定の割合の定期的な確認が必要である。

6. 装置例と代表仕様

全計数型放射能濃度測定装置の装置例と主な仕様を示す。

主な仕様

検出限界	25Bq/kg 以下	(放射性セシウムとして)
測定条件	試料質量	310g (比重 1.0)
	測定時間	15 分
	BG 測定時間	20 分
検出器	ウェル型プラスチックシンチレーション検出器	
遮蔽	センサー周囲 鉛約 23mm 厚	
試料容器	専用容器 83mm ϕ x 92mm, 容量 310ml	
動作環境	温度	10 ~ 30 $^{\circ}$ C
質量	70kg	
計測部	ノート PC	



図 参 3.4 フードスクリーニングシステムの例

公益社団法人日本アイソトープ協会 第24期理工学部会

放射能測定・除染技術等に関する調査検討専門委員会

委員長	小嶋	拓治	(独)日本原子力研究開発機構)
委員	大石	晃嗣	(清水建設(株))
	白川	芳幸	(独)放射線医学総合研究所)
	松原	昌平	(日立アロカメディカル(株))
	柚木	彰	(独)産業技術総合研究所)

放射能測定・除染技術等に関する調査検討専門委員会

食品等の放射能測定のための分析法の規格化ワーキンググループ

主査	松原	昌平	(日立アロカメディカル(株))
委員	海野	泰裕	(独)産業技術総合研究所)
	川口	常昭	(日立アロカメディカル(株))
	佐藤	泰	(独)産業技術総合研究所)
	柚木	彰	(独)産業技術総合研究所)
	山田	崇裕	(公社)日本アイソトープ協会)

NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる
 γ 線スペクトロメトリーガイダンス

2015年3月31日 初版第1刷発行

編集・発行 公益社団法人日本アイソトープ協会

〒113-8941 東京都文京区本駒込二丁目28番45号

電 話 代表 03-5395-8021

学術・出版 03-5395-8081

E-mail gakujutsu@jrias.or.jp

U R L <http://www.jrias.or.jp/>