

資料

ガンマ線スペクトロメトリーにおける
 放射能標準試料を用いた自主点検

酒井康宏, 飯島育代, 林 孝子, 桑原千雅子

Investigation of self-inspection using a
 radioactive standard sample in
 gamma-ray spectrometry

Yasuhiro SAKAI, Ikuyo IJIMA,

Takako HAYASHI and Chikako KUWAHARA

神奈川県衛生研究所では、1961年に米国とソビエト連邦（現ロシア）による大気圏内核実験が再開されたことから、その影響を把握するため、同年より科学技術庁（現文部科学省）の委託を受け、放射能調査を開始した。以来現在に至るまで、神奈川県における環境の放射能レベルを把握し続けている。また、環境放射能水準調査を国（科学技術庁、後に文部科学省）から受託した47都道府県の分析機関が参加する、外部精度管理に相当する放射能分析確認調査事業^{1,2)}に1991年から毎年参加し、放射能分析手法から測定結果までの信頼性を確保するとともに、技術の向上に努めている。

2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所事故では、大量の放射性物質が環境中に放出された。神奈川県においても食品や飲料水の放射能汚染が危惧され、食品等の放射能分析が急務となった。事故直後は、多数の様々な試料を迅速に測定し、放射能汚染の全体像を把握するこ

とが最重要視されたが、時間の経過とともに分析の精度、正確さが求められるようになった。

厚生労働省は、事故直後に設定した食品中の放射性物質の暫定規制値³⁾を2012年4月1日から規格基準による、より厳しい基準値に変更した⁴⁾。また、検査の信頼性管理を定め、分析における信頼性の確保に努めるよう通知した⁵⁾。

こうした経緯から、われわれは、ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器γ線スペクトロメータ（以下、測定器、表1）を用いた放射能測定における信頼性管理への対応のため、日常での自主点検法の確立を試みている。今回、現在分析に使用しているエネルギー校正式ならびに効率校正式が妥当であるかを確認するための方法を検討したので報告する。

濃度既知で80keVから2048keVの範囲に適度に分散するγ線エネルギーを放出する、¹⁰⁹Cd, ⁵⁷Co, ¹³⁹Ce, ⁵¹Cr, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn, ⁸⁸Y, ⁵⁹Fe, ⁶⁰Coの9核種を含む放射能標準試料を月1回、80,000あるいは50,000秒測定した。本調査では、測定器のリニアアンプのゲイン調整に使用する⁶⁰Coと食品衛生法で規格基準が定められている¹³⁷Csを検討対象とした。

⁶⁰Coは、1173.2keV及び1332.5keV、¹³⁷Csは661.6keVのエネルギーのγ線を放出する。各測定器は⁶⁰Coの1332.5keVについて全チャンネル（以下、ch）数を4096ch/2048keVとしたときは2665ch（Can）に、8192ch/2048keVとしたときは5330ch（PGT及びOx）にピーク中心が位置するようにゲイン調整されている。

エネルギー校正式は、γ線エネルギーE(keV)とピーク中心チャンネルP(ch)を関係づけるもので、未知試料中のγ線エネルギーを同定するための重要な要素である。

今回、エネルギー校正式の妥当性は、⁶⁰Co及び¹³⁷Csの基準とするチャンネル（以下、基準ch）と各測定器で実測して得られたch（以下、実測ch）のずれの割合から判

表1 Ge半導体検出器γ線スペクトロメータの構成

メーカー	略称	検出器	相対効率 (%)	分解能 (keV)	マルチチャンネルアナライザ	解析プログラム
Canberra	Can	GC-3520 容積：168ml	35	2.0	DSA1000	スペクトルエクスプローラ
Princeton Gamma-Tech Instruments	PGT	IGC40200 容積：169ml	40	2.0	MCA8000 (PGT)	Quantum MCA V4.04 (PGT) 及び γスタジオ (SEIKO EG&G)
Oxford	Ox	CNVDS30-35195 容積：194ml	35	1.95	MCA8000 (PGT)	Quantum MCA V4.04 (PGT) 及び γスタジオ (SEIKO EG&G)

表2 放射能標準試料測定時の⁶⁰Coと¹³⁷Csの実測チャンネルと基準チャンネルからのずれ

核種	エネルギー (keV)	測定機器	全ch数	基準ch	チャンネル(ch)			基準chとのずれ(%)		
					最大	最小	平均	最大	最小	平均
⁶⁰ Co	1332.5	Can	4096	2665	2665	2663	2665	0.061	0.00038	0.013
		PGT	8196	5330	5331	5328	5330	0.033	0.00056	0.012
		Ox			5331	5328	5329	0.035	0.013	0.023
¹³⁷ Cs	661.6	Can	4096	1323	1323	1322	1323	0.057	0.0030	0.015
		PGT	8196	2646	2645	2643	2644	0.095	0.042	0.071
		Ox			2645	2642	2644	0.14	0.034	0.091

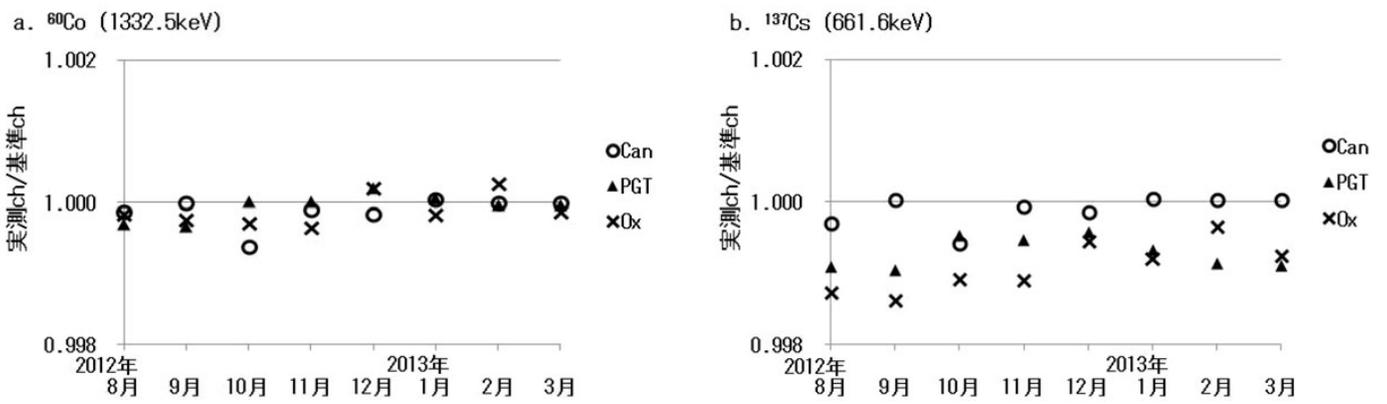


図1 ⁶⁰Coと¹³⁷Csの基準チャンネルに対する実測チャンネルの比の変動

断した。表2に⁶⁰Co, ¹³⁷Csの基準ch, 各測定器での実測chならびに基準chからのずれの割合を示した。また, 測定ごとの⁶⁰Co, ¹³⁷Csの基準chに対する実測chの比をそれぞれ図1a,bに示した。

各測定器において, 基準chからのずれの割合が大きかったのは, ⁶⁰Coでは, Can 0.061% (10月), Ox 0.035% (11月), PGT 0.033% (9月), ¹³⁷Csでは, Ox 0.14% (9月), PGT 0.095% (9月), Can 0.057% (10月)であった。⁶⁰Coは全測定器とも, 基準chからのずれならびにその変動が小さかったが, ¹³⁷CsはOx, PGTにおいて, ずれとその変動が大きかった。Ox, PGTのリニアアンプはアナログ式で, デジタル式でゲイン調整をするCanに比べると調整が難しいことや, 特にOxは機種が古く, 震災以降継続した測定が出来るように接続した無停電源装置によりプリアンプ出力信号にノイズが付加され若干性能が低下していることなどが要因として考えられるが, 検証できてはいないため, 引き続き調査が必要と考える。

解析プログラム(表1)は, 検出された核種のピーク中心チャンネルが, 基準となるチャンネルより0.15%ずれると適切な核種同定が出来なくなるが, 本調査でのずれは,

全て0.15%以内であったので, 全測定器とも, 現在使用しているエネルギー校正式が適正であることが確認できた。

日常の測定においては, バックグラウンドを含め多くの試料から検出される天然放射性核種の⁴⁰K (1460.75keV)について, 実測ch/基準ch(2921.5chあるいは5843ch)が0.15%以内であることを確認している。⁴⁰Kの実測ch/基準chが0.15%以上ずれた際は, ゲイン調整後, 放射能標準試料を測定し, エネルギー校正を実施することとしている。

次に, 効率校正式は, 測定試料の条件に応じて, ピークの計数率と放射能強度を関係づけるもので, 核種の定量に必須の要素である。

表3に毎月測定した放射能標準試料の⁶⁰Co, ¹³⁷Csの定量結果をまとめた。また, ⁶⁰Co, ¹³⁷Csの測定月ごとに測定値の添加値に対する比をそれぞれ図2 a,bに示した。図内の破線は, 放射能標準試料の校正証明書に示された放射能強度(添加値)に相対拡張不確かさ(%)を含めた範囲を示す。測定器別に定量結果を比較すると, 添加値に対してCanが最も近く, PGT及びOxはやや高めを

示したが、全測定器とも定量値は、破線で示す範囲内にあることから、適正に定量されていると判断できた。このことにより、定量に用いた効率校正式は適正であることが確認できた。また、測定毎の変動については、⁶⁰CoではPGT, Ox, Can, ¹³⁷CsではOx, PGT, Canの順で相対標準偏差は大きくなったが、⁶⁰Coは0.6%未満、¹³⁷Csは0.5%未満で、月別の変動は全測定器において小さいことが分かった。

今回、放射能標準試料を用いて、⁶⁰Co、¹³⁷Csを対象とし、エネルギー校正式及び効率校正式の妥当性を検討したところ、どちらも適正であることが確認できた。このことから、放射能標準試料を用いた自主点検は、Ge半導体検出器によるγ線スペクトロメトリーの信頼性管理に有用であることが明らかとなった。

今後、他の核種についても検討を行い、γ線スペクトロメトリーにおける自主管理基準を設定するための検討資料とし、放射能分析における更なる信頼性の確保に努めたい。

(平成24年 8 月 1 日受理)

参考文献

- 1) 財団法人分析センター：放射能分析確認調査技術検討会資料、1997年度～2010年度
- 2) 財団法人分析センター：放射線監視結果収集調査検討会（環境放射線モニタリングセミナー）資料（別冊）、2011年度～2012年度
- 3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：放射能汚染された食品の取り扱いについて、食安発0317第3号（平成23年3月17日）
- 4) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：乳及び乳製品の成分規格等に関する省令の一部を改正する省令、乳及び乳製品の成分規格等に関する省令別表の二の（一）の（1）の規定に基づき厚生労働大臣が定める放射性物質を定める件及び食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件について、食安発0315第1号（平成24年3月15日）
- 5) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：食品中の放射性物質の試験法について、食安発0315第4号（平成24年3月15日）

表 3 放射能標準試料中の⁶⁰Coと¹³⁷Csの放射能定量結果

核種	放射能添加値 (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	測定機器	放射能 (Bq)				相対標準偏差 (%)	
				最大		最小			平均
				定量値	± 定量誤差	定量値	± 定量誤差		
⁶⁰ Co	365	5.2	Can	370	± 0.944	364	± 0.949	367	0.59
			PGT	381	± 0.936	377	± 0.734	379	0.35
			Ox	381	± 0.922	375	± 0.924	378	0.43
¹³⁷ Cs	357	4.9	Can	361	± 0.759	357	± 0.754	359	0.41
			PGT	370	± 0.742	367	± 0.613	369	0.34
			Ox	367	± 0.774	365	± 0.758	366	0.20

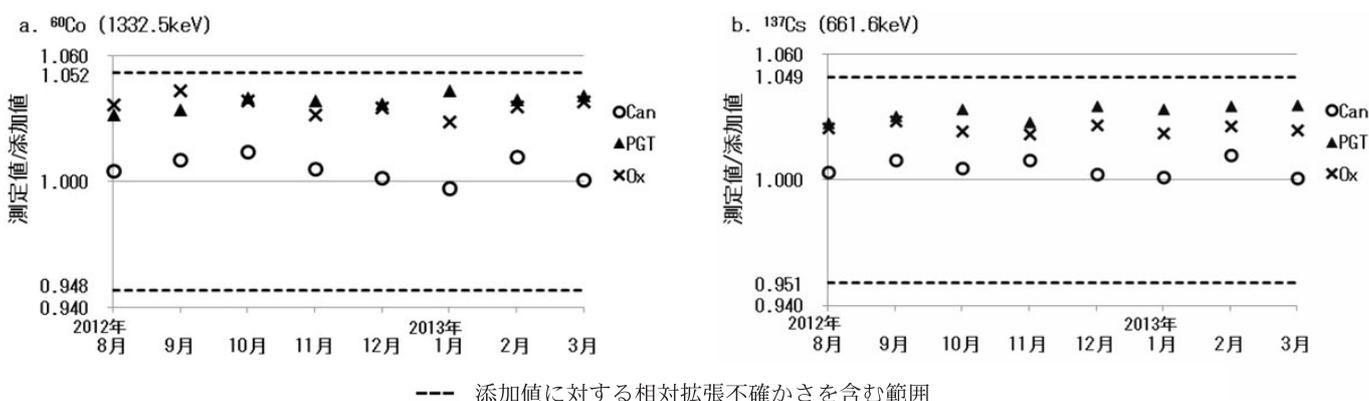


図 2 ⁶⁰Coと¹³⁷Csの添加値に対する測定値の比の変動