資 料

計量法に基づく放射能標準のトランスファ[†]

山田崇裕, 桧野良穂*

社団法人日本アイソトープ協会アイソトープ部技術課

113-8941 東京都文京区本駒込 2-28-45

*独立行政法人産業技術総合研究所中央第2事業所

量子放射科放射能中性子標準研究室

305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1

Key Words : Japan Calibration Service System (JCSS), traceability, national measurement standard, primary standard instrument, radioactivity standard, absolute measurement of radioactivity, JCSS accredited calibration laboratory, reference standard instrument, secondary standard instrument

1. はじめに

日本アイソトープ協会駒込本部（以下、協会という。）では、平成14年3月に国内で初めて放射能における認定事業者の認定を受け、同年6月には放射能の認定校正業務を開始した。これにより協会が供給する多くの標準線源に、国家計量標準（一次標準：特定標準器等）と計量法に基づいたトレーサビリティがあることを証明する JCSS 標章付校正証明書を付して供給できる体制となった。

計量法における校正事業者の認定を受けるまでは、現在の独立行政法人産業技術総合研究所（以下、産総研という。）の前身である工業技術院電子技術総合研究所の依頼試験制度を利用し、さまざまな核種の標準試料の供給を同研究

所から受け、これを調製、または同試料を基準にして値付けをすることで国家標準とのトレーサビリティを維持してきた。平成4年に計量法が大幅に改正され、計量法トレーサビリティ制度が発足して以来、放射線関連量においては、先ず防護レベルの放射線標準の供給が開始された。その後、放射能標準トレーサビリティ体系の整備も進められ、ようやく計量法に基づく放射能標準が供給できる運びとなった。

ここに計量法に基づいた放射能標準トレーサビリティ体系について国家計量標準から実用標準線源に至る放射能標準の具体的なトランスファの方法について紹介する。

2. 放射能における国家計量標準

計量法トレーサビリティ制度（JCSS: Japan Calibration Service System）は、平成4年5月の計量法改正により導入された。計量法第134条第1項の規定に基づき、経済産業大臣によって、放射能に係わる国家計量標準である特定標準器として「放射能絶対測定装置群」（ $4\pi\beta(\alpha)\gamma$ 同時測定装置、加圧型電離箱、液体シンチレーションカウンタ、 2π ガスフロー式比例計数装置）が指定された。また、同条第2項の規定に基づき、産総研が、特定標準器を用いた校正を

[†] Transfer Procedure of Radioactivity Standards on Japan Calibration Service System.

Takahiro YAMADA and Yoshio HINO: Radioisotopes Division, Technical Section, Japan Radioisotope Association, 2-28-45 Honkomagome, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8941, Japan, *Quantum Radiation Division, Radioactivity and Neutron Section, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 1-1-1 Umezono, Tsukuba-shi, Ibaraki Pref. 305-8568, Japan.

行うものとして指定された。

3. 特定標準器

放射能における特定標準器は、 $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時測定装置、加圧型電離箱、液体シンチレーションカウンタ、 2π ガスフロー式比例計数装置からなるが、この中で根幹をなすのは $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時測定装置である。装置の概念図を図1に示す。多くの核種の放射能はこの装置により核データに依存しない絶対測定が可能である。測定には通常、約 $20\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の薄膜（VINS膜）に放射能溶液を少量滴下し蒸発乾固して作成した測定試料を用いる。ガスフロー式 $4\pi\beta$ 比例計数管で β 線の計数率 N_β を測定し、 γ 線の計数率 N_γ をその外側に配置したNaI(Tl)シンチレーション検出器などの γ 線検出器によって測定する。さらに β 線と γ 線が $1\sim 2\text{ }\mu\text{s}$ 程度の時間内に同時に検出される計数率 N_c を測定する。 β 線および γ 線に対する検出器の効率をそれぞれ ϵ_β 、 ϵ_γ とすると、次式が成り立つ。

$$N_\beta = N_0 \epsilon_\beta$$

$$N_\gamma = N_0 \epsilon_\gamma$$

$$N_c = N_0 \epsilon_\beta \epsilon_\gamma$$

ただし、 N_0 は線源の壊変率、すなわち放射能(Bq)である。上式の連立方程式を解いて、求められる放射能 N_0 は、

$$N_0 = N_\beta N_\gamma / N_c$$

となり、計数効率等、他の情報に依存することなく放射能を絶対値として求めることができる。 $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時測定装置を用いたこの方法は放射能絶対測定法の代表的なものである。また γ 線を放出しない純 β 核種は、 ^{60}Co や ^{134}Cs などと混合した試料を $4\pi\beta-\gamma$ 同時測定装置による効率トレーサ法で測定する。 ^3H や ^{14}C のようにその化学形が蒸発乾固に適さない核種は液体シンチレーションカウンタを用いた効率トレーサ法により測定する。その他、荷電粒子線放出率の測定には 2π ガスフロー式マルチワイヤ比例計数管を用いる。これは面線源からの α 線または β 線放出率の測定に主として用いられる。

図1 $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時測定装置構成図

表1 産総研が特定標準器により校正可能な一次標準核種と校正方法

放射線の種類	物理・化学形	核種	測定方法	拡張不確かさ (k=2) (%)
即発γ線を伴うα放出体	水溶液	²⁴¹ Am	4πα-γ同時計数法	0.2
α放出体	水溶液	²²⁶ Ra	ヘニシュミット標準線源との比較	2.0
純β放出体	電着線源	²¹⁰ Pb(²¹⁰ Pb), ²⁴¹ Am, ²⁴⁴ Cm	2πα比例計数法	0.5
	水溶液	³² P, ³⁵ S, ⁶³ Ni, ⁹⁰ Sr, ¹⁴⁷ Pm, ²⁰⁴ Tl	効率トレーサー法(PPC)	1.0
	有機溶媒	³ H(T), ¹⁴ C	効率トレーサー法(LSC)又はTDCR法	3.0~5.0
	水	T ₂ O	効率トレーサー法(LSC)又はTDCR法	3.0~5.0
即発γ線を伴うβ放出体	気体	T ₂ , CT ₄ , ¹⁴ CH ₄ , ¹⁴ CO ₂ , ⁸⁵ Kr, ¹³³ Xe	ガスカウンティング法	3.0~5.0
	水溶液	²² Na, ²⁴ Na, ⁴² K, ⁴⁶ Sc, ⁵⁹ Fe, ⁶⁰ Co, ⁹⁵ Zr, ⁹⁹ Mo- ^{99m} Tc, ¹⁰³ Ru- ¹⁰³ Rh, ¹⁰⁶ Ru- ¹⁰⁶ Rh, ^{110m} Ag, ¹³¹ I, ¹³⁴ Cs, ¹⁴¹ Ce, ¹⁴⁴ Ce- ¹⁴⁴ Pr, ¹⁸¹ Hf, ¹⁹² Ir, ¹⁹⁸ Au, ²⁰³ Hg	4πβ-γ同時計数法	0.2~0.7
即発γ線を伴うEC	水溶液	⁵¹ Cr, ⁵⁴ Mn, ⁵⁷ Co, ⁶⁵ Zn, ⁶⁷ Ga, ⁷⁵ Se, ⁸⁵ Sr, ⁸⁸ Y, ¹³³ Ba, ¹³⁹ Ce, ¹⁵³ Gd, ²⁰¹ Tl	4πX(e)-γ同時測定法	0.2~0.7
	水溶液	¹²⁵ I	サムピーク法	1.0
カスケードマルチγ	水溶液	¹⁵² Eu	4πγ計数法	1.0
遅延γを伴うβ放出体	水溶液	¹³⁷ Cs	効率トレーサー法(¹³⁴ Cs)	1.0
遅延γ線を伴うEC	水溶液	¹⁰⁹ Cd	内部転換電子計数法	0.5
純EC	水溶液	⁵⁵ Fe	⁵⁴ Mn, ⁵¹ Cr標準との比較(LEPS)	2.0
純γ(IT)	水溶液	^{99m} Tc	⁹⁹ Mo測定又は光子スペクトロメータ	1.0~2.0

各国の標準研究機関はさまざまな核種の絶対測定の結果を相互比較し、その妥当性を確認している。放射能標準では、フランスにある国際度量衡局(BIPM)が中心となって国際比較を実施している。特にγ線核種については、国際γ線放出核種核種放射能参照システム(BIPM/SIR)によって、各国の標準研究機関の値が加圧型電離箱のレスポンス値として登録されている。一例として、2001年に産総研が行った⁶⁷Ga絶対測定の結果と各国の標準研究所による値の比較結果を図2に示す。ここでA_e値とは、BIPMの所有する²²⁶Ra密封線源を加圧型電離箱で測定したときに得られる電離電流値と同じ出力電流を与える⁶⁷Gaの放射能(kBq)を表すものである。産総研ではこれまで約40核種の測定実績があり、そのうち約20核種は、BIPM/SIRに登録され、その国際整合性が確認されている。また、純β核種についても国際比較が行われているが、γ核種のような放射能参照システムは未だ確立されておらず、現在、液体シンチレ

ーションカウンタを用いた同様のシステムが検討されている。このほか、面線源からのα線またはβ線放出率など、BIPMを中心とした国際比較が行われていないものについては、2国間ベースやアジア地域での国際比較を産総研が独自に実施している。

4. 特定標準器による特定二次標準器の校正

特定二次標準器とは特定標準器等により校正等を受けた計量器等のことであり、認定事業者が保有する参照標準器である。放射能における特定二次標準器は、計量法第135条第2項第2号に基づき、加圧型電離箱、γ線スペクトロメータ、液体シンチレーションカウンタ、荷電粒子測定装置が告示として定められている。これらのうち、被校正線源の核種、線源形状等により適切なものを選択する。特定標準器から特定二次標準器への実際の標準のトランスファは、特定標準器によって校正された標準線源を介して行われる。

図2 BIPM SIR による ^{67}Ga 放射能標準国際比較結果
 チェコ(UVVVR)，仏(LMRI)，英(NPL)，南ア(NAC)，
 ハンガリー(OMH)，米(NIST)，日(NMIJ/AIST)

4.1 加圧型電離箱

加圧型電離箱は中空円筒状の容器に窒素やアルゴンといった電子付着の少ない安定したガスが1～2 MPaに加圧され、封じられている。測定システムは電離箱本体の中心部に γ 線源を挿入し、封入ガスを電離して発生する微小電流を精密測定する装置である。システムの概略図を図3に示す。加圧によりレスポンスが格段に高くなるため、広範囲の放射能レベルの γ 線放出核種を非常によい再現性で校正することができる。協会ではアルゴンガス8気圧封入の加圧型電離箱および窒素ガス10気圧封入の加圧型電離箱（いずれもアロカ株式会社製）の2台を特定二次標準器として所有している。

加圧型電離箱の校正は、 $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時測定装置をはじめとする特定標準器で校正された放射能標準溶液をガラスアンプルに密閉して測定し、単位放射能当たりを得られる電離電流値 I_γ (A/MBq)で行われる。また、本システムではこの電離箱に長半減期核種である ^{166}mHo ($T_{1/2}=1200$ y) 密封線源を組み合わせている。標準溶液の測定と同時に ^{166}mHo 線源による電離電流 I_{Ho} を測定し、これに対する比(I_γ/I_{Ho})として各核種に対する校正定数を求める。このように線源出力が安定な長半減期核種の密封線源を利用して校正すれば、温度、気圧の影響やエ

レクトロメータの読み値変動等の不可避免の変動を被校正線源校正時の ^{166}mHo 線源による出力値により補正することができる。加圧型電離箱システムは長期にわたり安定しており、協会が15年以上にもわたり参照標準として維持している加圧型電離箱のレスポンスもほとんど変化していない。絶対測定法の技術的な難しさを考慮すれば、加圧型電離箱は精度のよい再現性の点から非常に適していると言える。この簡便な測定法と安定性のよい特長は、特定標準器としても $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時測定装置と組み合わせられて応用されており、産総研ではこれまでの絶対測定による値を加圧型電離箱システムに移行し、維持している。また、先にも述べたように国際度量衡局においても同様のシステムが採用され、 ^{166}mHo の代りに ^{226}Ra 基準線源を用いて、その線源出力に対するレスポンスとして各国の標準研究機関の絶対値が維持されている。

4.2 γ 線スペクトロメータ

4.2.1 Ge半導体検出器

Ge半導体検出器は電離箱では測定不可能な低レベル放射能の線源や、複数核種を混合した線源などを校正することができる。ただしGe半導体検出器の場合、ピーク解析などを必要とし、電離箱に比べ校正条件等が複雑なため、不

図3 加圧型電離箱システム構成図

確かさの要因が多く、電離箱ほどの再現性は期待できない。しかし、ほとんどの核種、形状の線源を校正用線源として要求される範囲の不確かさで校正することができる。Ge 半導体検出器は検出器から一定距離離れた点における γ 線エネルギー効率で校正されており、主に 3.7 MBq 以下の γ 線放出核種の点状標準線源、または面状標準線源の校正に用いられる。Ge 半導体検出器の校正は、 $4\pi\beta(\alpha)\gamma$ 同時測定装置をはじめとする特定標準器により値付けられた放射能溶液を秤量滴下して作製した標準線源によって行われる。ただし、自己吸収等の影響も考慮し、滴下量は数 mg と少量なため、滴下量の秤量はピクノメータ法を用いる。ピクノメータは図 4 に示すとおりポリエチレン製の容器の口を加熱して細く引き伸ばしたものを使用する。こうすることで蒸発による影響を無視することができ、数 mg 程度の少ない溶液量であっても滴下前と滴下後の質量差から滴下量を正確に秤量することができる。

校正に際しては、先ず検出器から一定距離離れた校正点を決定する。校正点は再現性よく位

図4 ピクノメータ

置決めができるように線源固定ジグを備える。Ge 半導体検出器の校正は、 γ 線のエネルギーに対する計数効率として求める。校正は広エネルギー範囲を網羅するように、低エネルギー用のプレーナ型 Ge 半導体検出器（米国

図5 Ge半導体検出器による $^{166\text{m}}\text{Ho}$ γ 線スペクトル

CANBERRA 社製)と相対効率10%の同軸型 Ge 半導体検出器 (米国 ORTEC 社製) の2種類について, ^{55}Fe , ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{51}Cr , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{88}Y , ^{60}Co の11核種の線源を用いて行い, それぞれのエネルギー効率曲線を得ている。各 γ 線のエネルギー効率は, マルチチャンネルアナライザによって γ 線スペクトル測定を行い, 全エネルギーピークについてピーク面積をコベル法により算出し, 計数率を求めている。

また, このうち同軸型 Ge 半導体検出器の校正にあたっては, 10核種 (前述の11核種から ^{55}Fe を除く) の他に $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 線源も使用している。 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ の Ge 半導体検出器による γ 線スペクトル図を図5に, また放出される γ 線のデータを表2に示す。 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 線源はマルチガンマ核種で, 放出される γ 線は80 keV~810 keV に及ぶ。したがって, 得られたエネルギー効率曲線が経時変化していないことも, 校正範囲の主要なエネルギー範囲を網羅する $^{166\text{m}}\text{Ho}$ を用いることで確認できる。

表2 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ の崩壊に伴って放出される主な γ 線のエネルギーと放出率結果

E_{γ} (keV)	Intensity (%)
80.6	11.84
184.4	72.4
280.5	29.7
410.9	11.39
529.8	9.63
571	5.54
670.5	5.65
711.7	56.0
752.3	12.27
810.3	58.2
830.6	9.77

4・2・2 ウェル型 NaI(Tl) シンチレーション検出器

ウェル型 NaI(Tl) シンチレーション検出器は ^{125}I の校正に用いる。 ^{125}I の絶対測定は国際的にウェル型 NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いたサムピーク法が採用されている。 ^{125}I は EC に伴う X 線および γ 線と K 殻転換電子の放出に伴う X 線の同時計数によってサムピークを生じるが, これら X 線と γ 線がほぼ同じ

エネルギーであるので、ウェル型 NaI(Tl) シンチレーション検出器で測定すると、シングルピークとサムピークの二つの大きなピークが検出される。サムピーク法はこのピーク比を求めることで放射能を得る絶対測定法である。協会の所有する特定二次標準器は産総研の特定標準器と同型・同寸法の検出器とし、特定標準器で校正した ^{125}I 線源を同じサムピーク法で測定して、特定標準器による校正の不確かさの範囲内で値が一致している。

4.3 荷電粒子測定装置

荷電粒子測定装置は線源から 2π 方向に出力される α 線および β 線の表面放出率の校正に用いる。協会では特定標準器と同型の大面積 2π ガスフロー式マルチワイヤ比例計数管を特定二次標準器に採用している。この比例計数管は先に述べた $4\pi\beta(\alpha)\text{-}\gamma$ 同時測定装置で使われている比例計数管と同様の原理のもので、線源内挿型で 2π 方向に出力される α 線および β 線全表面放出率の絶対値の測定が可能である。産総研と協会で所有する比例計数管は、同型のもので、そのシステム構成図を図 6 に示す。この比例計数管は、最大 $100\text{ mm}\times 150\text{ mm}$ の大面積線源の測定が可能となるよう、集電極ワイヤ (Au コーティング W ワイヤ $50\text{ }\mu\text{m}\phi$) が約 15 mm 間隔で全面に張られている。特定二次標準器の校正においては、 ^{241}Am の線源からの α 線および ^{147}Pm , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{204}Tl , ^{99}Tc , ^{60}Co , ^{137}Cs からの β 線表面放出率を特定標準器で校正し、同線源を特定二次標準器で測定し、レスポンスを求めている。このように、 β 線最大エネルギーの異なる核種を選択することで、広いエネルギー範囲において荷電粒子放出率の測定が可能であることを確認している。

4.4 液体シンチレーションカウンタ

純 β 核種と呼ばれる β 線のみを放出し、 γ 線放出を伴わない核種の放射能校正には液体シンチレーションカウンタを用いる。液体シンチレ

ーションカウンタを用いた放射能標準測定は、内部標準法及び効率トレーサ法が一般的である。産総研における純 β 核種の絶対測定は、 ^{60}Co , ^{134}Cs と混合した $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定装置による効率トレーサ法により行い、化学形が蒸発乾固に適さない ^3H や ^{14}C は液体シンチレーションカウンタによる効率トレーサ法や TDCR 法 (the triple to double coincidences ratio method) による。特定二次標準器の校正にあたっては、 ^{14}C 線源を特定標準器である液体シンチレーションカウンタで校正し、その後、同線源を特定二次標準器で効率トレーサ法により測定を行い、校正の不確かさの範囲内で、値が一致していることを確認した。

特定二次標準器である液体シンチレーション検出器には、特定標準器で校正された ^3H および ^{14}C の内部標準試料が組み合わされている。これらの内部標準試料の化学形は、ノルマルヘキサデカンであり、蒸発による濃度の変化がなく、半減期も長いので、特定二次標準器の液体シンチレーション検出器の校正周期である 2 年以内であれば、校正値の変化は十分に無視できるものである。また、内部標準法の場合、クエンチング効果による標準試料添加前後の効率変化が無視できることが前提になるが、ノルマルヘキサデカンはクエンチング効果の心配もない。 ^3H および ^{14}C の校正を行う場合、この内部標準試料を用いて液体シンチレーションカウンタで校正する。

協会で所有している特定二次標準器である液体シンチレーションカウンタは米国パッカー社製であるが、この測定器に組み込まれている放射能算出機能は解析アルゴリズムが不明確であるため、この出力によって校正することはできない。したがって単にスペクトルデータ出力のみを用い、その後の解析は産総研及び協会が開発した独自の解析ソフトを用いて校正を行っている。

図6 2πガスフロー式マルチワイヤ比例計数管システム構成図

5. 特定二次標準器による実用標準線源の校正

特定二次標準器等によりさまざまなタイプの標準線源の校正が可能である。校正に用いる特定二次標準器や測定条件は、被校正線源の核種、放射能、線源形状等により決定する。表3に協会で校正可能な標準線源を示す。これらは協会製標準線源としてJCSS 標章付き校正証明書を付けることができる。

5.1 放射能標準溶液

放射能標準溶液はガラスアンブルに熔封した水溶液で、放射能濃度 (Bq/g) について校正されている。放射能標準溶液は基本となる放射能標準体で、さまざまな校正用試料の作製に利用される。また各種試料分析や放射性医薬品などの放射能内容量の標準としても利用される。試料分析は環境試料等多岐にわたり、化学回収率の決定と比較標準として用いられる。放射性医薬品については、医薬品メーカーの測定器を

放射能標準溶液で校正することによって、適正な放射能となるようチェックされている。

5.1.1 γ線放出核種

γ線放出核種の放射能標準溶液については、ある程度の電離電流が得られる放射能であれば加圧型電離箱による校正が最も精度がよい。ただし、単核種溶液である必要がある。加圧型電離箱のバックグラウンド電流値は、数十 fA と非常に低く、バックグラウンド電流値の変動を加味しても、被校正線源の測定で数十 pA 得られれば、それほど不確かさの広がりなく、校正が可能である。たとえば ^{60}Co であれば、特定二次標準器としている電離箱で40 pA/MBq 程度得られる。したがって、1 MBq の線源では、1.0% ($k=2$) 程度の校正の不確かさで国家標準 (0.4% ($k=2$)) にトレーサブルな校正ができる。溶液は規格化された容器に密閉し測定する。これは容器の材質、壁厚等の違いにより電離箱のレスポンスが微妙に変化することを防ぐためである。また、同じ容器であっても液量が違えば自己吸収、線源位置等の条件が変わ

図7 種々の協会製放射能標準ガンマ線源

るため、やはりレスポンスは変化する。したがって、さまざまな液量の溶液を精度よく測定するためには、規定容器についてそのレスポンスの変化を溶液量の関数としてあらかじめ求めておく必要がある。校正の不確かさの広がりには、こうした補正の不確かさや被校正線源の秤量の不確かさ、また測定時の指示値変動などが含まれる。

このように、ある一定の条件を満たす線源であれば加圧型電離箱により、精度よく校正できるが、十分な電離電流が得られない放射能の場合、数段階に分けて電離箱による校正液を希釈し、正確な希釈率から校正結果を算出する。もちろん、溶液の均一性および秤量に起因する不確かさを考慮する必要がある。しかし、均一性に関しては、ほとんどの溶液は0.1 mg/g程度のキャリアを含み、また化学形を考慮して酸性溶液やアルカリ性溶液で調整しているため、十分に均一であることが確認されている。また、秤量による不確かさは、採取量を一定量以上にし、希釈を数段階に分けることで軽減できる。また、混合核種の溶液の場合は、単一核種の溶液を校正し、秤量により混合し、校正結果を算出するか、あるいは混合溶液にした後にGe半導体検出器で直接測定し、校正することも可能で

ある。

5.1.2 純 β 核種

純 β 核種については、液体シンチレーションカウンタを用いる。 ^{14}C より β 線エネルギーの高い核種の大半は、効率トレーサ法を用いた校正が可能である。効率トレーサ法の場合、 ^{14}C や ^{60}Co などをトレーサに用いれば、3～5% ($k=2$)の不確かさの範囲で、ある程度簡便に校正ができる。ただし、 ^3H は β 線エネルギーが低く計数効率が低いため、効率トレーサ法での簡便な測定では校正の不確かさも大きいものになってしまう。絶対測定された一次標準の値をトランスファするには、むしろ内部標準法が適している。内部標準法では特定二次標準器に組合わされた内部標準試料を用いる。

5.2 γ 線標準線源

5.2.1 点線源

γ 線放出核種の点線源は数百 Bq から数 MBq の範囲まで、Ge半導体検出器による校正が可能である。Ge半導体検出器はエネルギー分解能が優れているため、数核種が混合されている線源でも校正可能である。協会所有のGe半導体検出器は検出器表面から25 cmの位置におけるエネルギー効率を基準的な校正点としている

図8 協会製9核種混合標準線源からのGe半導体検出器による γ 線スペクトル(上)と、この線源によるGe半導体検出器の効率曲線の例(下)

図9 協会製放射能標準ガンマ体積線源 (U8 容器)

が、この一点での校正では、適切な条件で校正できる放射能の範囲が狭いため、より近い距離および遠い距離における校正を可能にする必要がある。特定二次標準器の校正核種について、同じ線源を校正点である25 cmと新たに設定したい校正点両方で測定し、その効率比をあらかじめ求めておく。このようにしてこの比を求めおけば25 cmにおける効率とこの比から放射能が求められる。このようにGe半導体検出器による校正は汎用性が高く利用価値が高いが、一方、スペクトル分析に伴う不確かさや、測定効率の低さから、計数の統計的変動、校正位置の再現性などによる影響で不確かさの要因は加圧型電離箱の測定に比べて多い。最も校正の不確かさが小さくなる ^{60}Co の100 kBq程度の点線源でも約2% ($k=2$) 程度の校正の不確かさとなる。

5.2.2 面線源

γ 線放出核種の面線源は直径25 mm ϕ から90 mm ϕ のものまで、エアサンプラ試料のGe半導体検出器等による放射能測定の標準線源として用いられる。この種の γ 線標準面線源は1個の線源によって校正範囲全体のエネルギー効率が得られるように数核種混合しているものが多く、協会では9核種混合線源を標準品として供給している。したがってGe半導体検出器を用いて標準面線源を校正するのが一般的である。しかし、前述の如く、Ge半導体検出器のエネルギー効率は、点線源によるものが基準であり、

図10 種々の協会製粒子線放出率標準面線源結果

25 mm ϕ ~90 mm ϕ の水平方向の広がりを持てば、当然検出器と線源間の幾何学的関係が異なるため、点線源とは効率が変化する。あらかじめ標準溶液の添加法により放射能既知の直径の異なった数種類の面線源を用いて、それぞれの大きさにおける効率と点線源の効率の比を求めておく。一度このファクタを決めれば、検出器と線源の間の幾何学的条件を保つことでこの値を校正の補正に使用でき、点線源の効率のみ定期的に確認すればよいことになる。このファクタを用いて校正した面線源の校正の不確かさは、ファクタの不確かさを考慮して3~4% ($k=2$) 程度となる。

5.2.3 体積線源

体積線源はGe半導体検出器による環境放射能分析を行うための標準線源である。環境放射能分析の対象は灰化物、土壌、水などさまざまな

表 3 協会が特定二次標準器により校正可能な二次標準核種

核種	放射能 標準溶液	放射能標準 γ (X) 線源			放出率標準 α/β 線源	放出率標準 α 線源
		点線源	面線源	容積線源	面線源	電着線源
H-3	○					
C-14	○					
Na-22	○	○				
P-32	○					
S-35	○					
Cl-36	○				○	
Ca-45	○				○	
Cr-51	○	○	○	○		
Mn-54	○	○	○	○		
Fe-55		○				
Fe-59	○	○		○		
Co-57	○	○	○	○		
Co-58	○	○				
Co-60	○	○	○	○	○	
Zn-65	○	○				
Ga-67	○					
Sr-85	○	○	○	○		
Sr-89	○					
Sr-90	○				○	
(Y-90)	○					
Y-88	○	○	○	○		
Mo-99	○					
Tc-99m	○					
Tc-99	○				○	
Ru-106	○	○			○	
Cd-109	○	○	○	○		
In-111	○					
I-123	○					
I-125	○	○				
I-131	○					
Cs-134	○	○		○		
Cs-137	○	○	○	○	○	
Ba-133	○	○	○			
Ce-139	○	○	○	○		
Ce-144	○	○		○		
Pm-147	○				○	
Eu-152	○	○				
Ho-166m	○	○				
Ir-192	○	○				
Tl-201	○					
Tl-204	○				○	
Am-241	○	○				○

であり、それぞれのマトリックスに対応する標準線源の供給が望まれるが、品質の高い密封線源にできるものは限られる。つまり、単に容器内の放射能が既知であるだけでなく、放射能が均一に密封容器内のマトリックスに分布している必要がある。実際の標準体積線源は標準溶液をマトリックスに添加し、よく攪拌して均一に

した後、マトリックスの重量から算出した放射能濃度と容器への充填重量から各線源に含まれる放射能を校正値として求める。試料の均一性は同容器にほぼ等量のマトリックスを充填した複数個の線源を Ge 半導体検出器で測定することで確認できる。

5・3 粒子線放出率標準面線源

粒子線放出率標準面線源は、 α 線や β 線の測定を目的とした表面汚染計の校正に用いる。この標準線源については、国際的にはISO 8769、国内ではJIS Z 4334で規格が規定されている。線源は放射能面密度が均一で、大きさは小さい物で25 mm ϕ から大きい物で100 mm $\times$ 150 mm程度の放射能面を持ち、この線源から放出される α 線及び β 線の表面放出率の校正を行う。表面放出率の校正は、線源内挿型の 2π ガスフロー式比例計数管により行うが、 β 線については連続エネルギーのため、先に挙げたJIS規格に則り、590 eV以上の β 線放出率の校正を行う。590 eVのしきい値は ^{55}Fe の崩壊に伴うMnのKX線の1/10のエネルギーとして設定する。

6. おわりに

これまで国内の研究機関、原子力発電所、放射性医薬品メーカーなどにおけるRI管理用の放射能測定器などの校正が、標準線源により行われてきたが、今後、放射能トレーサビリティ体系がわが国の計量法により保証されることで、品質管理上国際的にも信頼性の高いものとなる。

また、国内のトレーサビリティ制度は現在では階層化も認められている。したがって、認定事業者である協会が校正した標準線源等を用いて、各種放射能測定器の校正等を行う新たな認

定校正事業が行えるよう、さらにこの分野における放射能トレーサビリティ制度が整備されることも期待される。

産総研での国家標準を基とした協会のもつ特定二次標準器の校正、特定二次標準器による実用標準線源の校正法を紹介してきたが、これらの標準線源を用いて、現場で放射線測定器の管理者諸氏が、実際に校正するときに本報告を有用なものとされることを期待する。

文 献

- 1) 桒野良穂, 松井 真, 山田崇裕, 竹内紀男, 小野間克行, 岩本清吉, 小暮広人, 大久保昌武: 加圧型電離箱による γ 核種放射能二次標準の確立, 電総研彙報第62巻第9号(1998)
- 2) Hino, Y., Matsui, S., Yamada, T., Takeuchi, N., Onoma, K., Iwamoto, S. and Kogure, H.: Absolute measurement of ^{166}mHo radioactivity and development of sealed sources for standardization of γ -ray emitting nuclides, *Appl. Radiat. Isot.*, **52**, 545-549(2000)
- 3) Ratel, G.: International comparison of activity measurements of a solution of ^{125}I (May 1988), Bureau International des Poids et Mesures F-92310 SEVRES(1999)
- 4) 製品評価技術基盤機構: 計量法校正事業者認定制度パンフレット Ver.3
- 5) 浜田達二, 他: 放射能標準体・標準線源と其の使用法, (社)日本アイソトープ協会, 編集発行(1980.5)