放射能測定法シリーズ 6

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

文 部 科 学 省

科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室

放射線審議会測定部会の委員及び専門委員

委員(部会長)	斎	藤	信	房	東京大学理学部
	池	田	長	生	東京教育大学理学部
	伊	沢	Æ	実	放射線医学総合研究所
	井	上	弥 次	郎	電子技術総合研究所
	Л	城		巌	国立衛生試験所
	浜	田	達	二	理化学研究所
	浜	田	政	彦	国立がんセンター
専 門 委 員	阿	部	史	朗	放射線医学総合研究所
	石	Л	友	清	日本原子力研究所
	浦 久	保	五	郎	国立衛生試験所
	闼	野	眞	治	理化学研究所
	笠	井		篤	日本原子力研究所
	葛	城	幸	雄	気象研究所
	小	林	宏	信	農業技術研究所
	塩	崎		愈	海上保安庁水路部
	団	野	皓	文	鹿児島大学農学部
	敦	賀	花	人	東海区水産研究所
	ш	県		登	国立公衆衛生院

本分析法の作成にあたっては、上記委員のほか下記の方々の協力を得た。

木	下	睦	動力炉・核燃料開発事業団
河	田	燕	電子技術総合研究所
田	中	栄 一	放射線医学総合研究所
長	沢	規 矩 夫	動力炉・核燃料開発事業団
橋	本	達 也	日本原子力発電株式会社

(敬称略・五十音順)



第	1 章	序 論	1
第	2 章	用語の説明	2
第	3 章	機器の選定と設置条件	4
	3.1	検 出 器	4
	3.2	しゃへい体	5
	3. 3	電子回路	6
	3.4	機器の設置上の注意	7
第	4 章	試料容器と標準試料	9
	4.1	試料容器	9
	4.2	エネルギー校正用線源	10
	4.3	標準試料	10
第	5 章	機器の調整および使用法	13
	5. 1	エネルギー校正曲線 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
	5. 2	高圧電源電圧(印加電圧)の設定	13
	5. 3	比例増幅器の利得の調整	13
	5.4	マルチチャネル波高分析器(PHA)の調整	14
	5. 5	ピークチャネル値の求め方	14
第	6 章	性能および試験法 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	16
	6.1	直線性	16
	6.2	エネルギー分解能 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	16
	6.3	バックグラウンド	17
	6.4	計数率依存性	18
	6.5	安定性	18
	6.6	ルーチンチエック	19
第	7 章	計数効率とその求め方	20
	7.1	計数効率と7計数効率	20
	7.2	光電ピーク面積の求め方	20
	7.3	7 計数効率の求め方	22
	7.4	規格化される容器に対する3インチ径×3インチNaI	
		(T1)シンチレーション検出器の計数効率	27

7.5	KCℓ 試薬による光電ビークγ計数効率の求め方	27
第8章	単一核種の波高分布曲線と定性定量分析法	29
8.1	単一核種の波高分布曲線	29
8.2	核種の同定	33
8.3	核種の定量	34
第 9 章	混在核種の分離定量法	37
9.1	連続分布差し引き法	37
9.2	連立方程式法 ····································	42
第10章	記録及び報告	58
1 0.1	測定上の記録	58
1 0.2	報告様式	58
附表厦	原子力発電所より環境へ放出される可能性のある核種	60
附図1 植	亥種別の波高分布曲線 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	61
附図2 =	上壌,海底堆積物の波高分布曲線の一例	72

第1章序 論

環境試料中には,天然の放射性核種,核実験に伴うフォールアウトおよび原子力施設から排出され る放射性核種などが含まれている。これら放射性核種の環境中における挙動を調査し,放射能レベル を把握するにはその濃度,種類を知る必要がある。しかし環境試料中の放射性核種の濃度は試料の種 類,採取時期,採取場所および採取方法などによって異なってくる。

本マニュアルは環境中に含まれる放射性核種の種類およびその濃度をNaI(T1)シンチレーショ ンスペクトロメータを用いて分析測定する機器分析法について主として地方自治体などが行う放射能 調査の標準測定に供するために作成したものである。

最近,NaI(T1)シンチレーション検出器に比べてエネルギー分解能の非常に優れたGe(Li) 半導体検出器が一般に普及してきたが,NaI(T1)シンチレーション検出器は測定効率が優れてお り,また大量の試料の測定が可能であるという点で単一または数核種が存在する試料の分析測定法と して有効な方法である。

本マニュアルで,試料は未処理のものまたは乾燥,灰化などの前処理を完了したものを対象として おり,得られたデータの解析法として,標準試料との比較による方法,連続分布差し引き法および連 立方程式法を採用している。試料中に含まれる数核種までの分析測定と,数10ピコキューリの放射 能の検出を一応の目標としている。

なお,たとえば微量のコバルトー60から同時に放射する2本の τ 線(1.17,1.33 MeV)を 利用して,r - r同時計測を行いバックグラウンドを消去して検出限界を高めるような特殊な計測法 については,本マニュアルから除外した。

第2章 用語の説明

本マニュアルで用いられる用語のうち、特に重要なものおよびとのマニュアルで限定的に用いられるものなどについて、以下に簡単な説明を行う。

- エネルギー校正曲線 光電ピークのピークチャネル値とア線エネルギーとの関係を示す曲線を いう。
- エネルギー分解能 放射線のエネルギーに対する検出系の分解能力で,通常分離した光電ピー クの半値幅とピークチャネル値との比(%)で表示される。
- 3. エネルギー領域 波高分布曲線において目的に従って限定したエネルギー範囲をいう。
- イ線放出率 線源から単位時間に放出されるて線の数をいい、これは壊変率で線放出比を乗じたものに相当する。
- 5. 寄与領域 目的核種以外の核種の主領域に相当するエネルギー領域をいう。
- 光電ビーク ア線が検出体と作用してその全エネルギーを検出器内で失うことによって生じる
 ビークで、一般に正規分布で近似できる。
- 7. 光電ピーク 7 計数効率 光電ピークに含まれる計数率と対応する 7 線の放出率との比をいう。
- 8. 光電ピーク計数効率 光電ビークに含まれる計数率と線源の壊変率との比をいう。
- 9. 光電ビーク面積 光電ビークにおける計数値の総和をいう。
- 自然計数(率) 測定試料またはブランク試料などをおかない状態で測定される計数(率)を
 いら。(バックグラウンドの項参照)
- 11. 主領域 目的核種の主要ピークに対応するエネルギー領域をいう。
- 12. 積分直線性 波高値対エネルギー校正曲線の直線性をいい,(△E/Er)×100(%)で 表示する。ここで△Eは直線からのずれ,Erは最大エネルギーである。
- 13. 総計数(グロス 7 計数) 測定しようとする 7 線の全エネルギー範囲に含まれる計数の総和を いう。
- 14. 総計数効率 ある核種についての総計数率と線源の壊変率との比をいう。
- 15. 総計数率 全エネルギー範囲に含まれる計数率の総和をいう。
- 16. 総て計数効率 特定のて線に対する総計数率とて線の放出率との比をいう。
- 17. チャネル幅 波高分布曲線における1チャンネルに相当するエネルギーをいう。
- 18. バックグラウンド ブランク試料を置いた状態で測定される計数(率)をいう。
- 19. 半値幅 光電ビークの高さの半分における全幅をいう。
- 20. ピークチャネル ピークの中心に最も近いチャネル番号をいう。
- 21. ピークチャネル値 光電ピークの中心に相当するチャネル値をいう。

- 22. 微分直線性 チャネルあたりに相当するエネルギー幅の一様性を意味し,平均チャネル幅からの偏差の相対値(%)で表示する。
- 23. 標準試料 測定試料と同一形状,同一組成の試料に測定の対象とする核種を既知量加え,均 一に分布させたものをいう。
- 24. ライブタイム 装置の不感時間を除いた正味の測定時間をいう。

第3章 機器の選定と設置条件

NaI(T1)シンチレーションスペクトロメータの構成は使用目的などによって若干異るが,通常 NaI(T1)シンチレーション検出器,しゃへい体,電子回路(前置増幅器,比例増幅器,高圧電源 およびマルチチャネル波高分析器)などから構成される。



第3.1 図 代表的なシンチレーションスペクトロメータの構成図

3.1 検出器

NaI(T1)シンチレーション検出器は大別して,NaI(T1)シンチレータ,光電子増倍管,磁気しゃへい,前置増幅器,検出器ケースより構成される。(前置増巾器が含まれていないものもある。)

3.1.1 NaI(T1)シンチレータ: JIS Z 4321 および Z 4322 に規定されたものまたは これと同等以上の性能を有するもので、とくにエネルギー固有分解能が良好で(JIS分類記号 :等級A),自然計数率の低いもの(JIS分類記号:L)が好ましい。

NaI(T1) シンチレータの寸法は直径長さとも50.8mm(2インチ)~101.6mm(4インチ) 程度の円柱形のものがよく用いられるが、このマニュアルでは直径長さとも76.3mm(3インチ) のものを標準として用いることをたてまえとする。

とくに微量の放射能の分析測定を必要とする場合には、自然計数率を低減させるためにNaI (T1)シンチレータの窓材は低カリウムガラスまたは石英ガラスを、NaI(T1)シンチレータ のケースは銅またはステンレス鋼を用いたものがよい。

3.1.2 光電子増倍管:端窓形光電子増倍管で,光電面感度の良好なものを使用する。とくに微量 の放射能の分析測定を必要とする場合には,入射窓の部分に低カリウムガラスまたは石英ガラス を用いたものがよい。

- 3.1.3 磁気シールド:光電子増倍管は外部磁場,地磁気の影響をうけやすいので,ミューメタル などの導磁率の高い材料で光電子増倍管をしやへいする必要がある。
- 3.1.4 前置増幅器:通常,検出器内にとりつけられ,検出器からの信号を比例増幅器まで同軸ケーブルで伝送するに必要なインピーダンス変換を行うとともに信号対雑音比(S/N比)を向上して,外来電気雑音の妨害を軽減させることを主目的とする。
- 3.1.5 検出器ケースその他:上記 3.1.1 から 3.1.4 までを組合せた検出器部は,完全にしゃ光すると共に放射能で汚染されない構造とするため,ステンレス鋼または銅などの適当なケースに収納する。

試料からβ線が直接NaI(T1)シンチレータに入射するおそれがある場合には、プラスチックなどの低原子番号の物質でβ線のしゃへいを行なう。

3.2 しゃへい体

天然または人工放射性物質の r 線や宇宙線(軟成分)をしゃへいして,自然計数率を低減させる ために,検出器と試料容器をしゃへい体内に収納する。

3.2.1 しゃへい材料:しゃへい材料には主として鉛または鉄が用いられる。鉛はラジウムを含む ことがあり、その娘核種のラジウムーE(ビスマスー210)のβ線の制動放射によって約0.5 MeV以下の自然係数が増加することがある。また最近の鉄材はコバルトー60で汚染している

ものがあるので,材料として は放射能汚染の少ないものを 吟味して使用する必要がある。

3.2.2 しゃへい材料の厚さ:
一般に鉛で5~10 cm,鉄で
1.0~20 cm 程度の厚さが用いられ,これ以上厚さを増してもあまり効果はない。鉄を用いた場合のしゃへいの厚さと自然計数率の関係の一例を第3.2 図に示した。

3.2.3 しゃへい体の内張り:



自然計数率の関係

約万人(井井さちを、約片) へんけの時

線源から放射された r線はしゃへい体の壁でコンプトン散乱されて検出器に入射することがある ため,高いエネルギーの r線試料を測定したとき,第3.3 図の実線に示すごとく低エネルギー部 の計数率が増加することがある。この影響はしゃへい材料の原子番号が大きい程少ないので,主

なしゃへい材料が鉄の場合には、その内面に3mm 程度の鉛を内張りすると軽減する(第3.3図点 線)。また,この鉛の内張りは約0.5 MeV以下の自然計数率を低減させる効果もある。

一方、しゃへいの最も内側の物 質が鉛などの高原子番号のものを 使用した場合には、内側の物質と 7線との相互作用によって放出さ れる特性X線が検出器に入射する ため,低エネルギー部にピークを 生ずることがある。このエネルギ -は鉛の場合約80KeV(K特性 X線)である。これを除去するに は鉛の内面にさらに1.5mm 程度の ステンレススチールを内張りする か,または約1.0mm のカドミウム 、さらに銅を順次内張りするのが よい。



第3.3図 鉛の内張による効果

3.2.4 しゃへい装置の構造:しゃへい装置の設計にあたって留意すべき点は、イ試料容器の出入

が容易なこと。ロ. 放射能汚染 を起こしにくいこと。ハ.放射 能汚染の除去が容易なこと。 ニ. 外部からの放射線がケーブ ル貫通穴などを通して直接検 出器に入射しないこと、など である。第3.4図にしゃへい 装置の一例を示す。

3.3 電子回路



第3.4図 しゃへい装置

- 3.3.1 前置增幅器: 3.1 検出 器の項参照。
- 3.3.2 比例増幅器:前置増幅器からの信号をマルチチャネル波高分析器(以下PHAという)の 入力に必要な波高値および波形に変換することを目的とし、増幅および波形整形の機能を有する。 比例増幅器はPHAに内臓されている場合もあるが、別な比例増幅器を使用する場合には、その

出力信号の波高値,極性(正負),波形(立上り時間,滅衰時間,単極性か双極性か)などがP HAの入力に十分適合することが必要である。

3.3.3 高圧電源: 十分高い安定度と電流容量を有する出力電圧可変の高圧電源で,安定度は電源 電圧の変動±10%に対し,±0.05%以下のものが好ましい。

測定系の総合利得の微調整が必要であるので,比例増幅器の利得と高圧電源のいずれか1つは 少なくとも微細調整が可能でなければならない。

- 3.3.4 PHAおよびデータ読取り装置:市販のPHAには,基本的な波高分析機能の他,いくつ かの補助的機能を有するのが普通であるが,これらのうち最小限次のような機能を有するものが 望まれる。
 - スペクトルのCRT表示
 - (2) メモリーチャネルのサプグループへの分割
 - (3) スペクトルデータのサブグループ間の移動
 - (4) コンプリメント(補数)変換
 - (5) プリセットタイマ

そのほか,次のような機能が附加されていれば,分析に際して非常に便利である。

(1)ライブタイム,(2)クロックタイムの経時表示,(3)任意のチャンネル領域の計数値の積分,(4)ス ペクトルのストリッピング操作,(5)スペクトルの合成操作。

なお、市販のPHAには、マルチスケーラの機能がついているものが多いが、これはパルスの 時間分布などを測定するもので、このマニュアルにおいて用いられることはない。

データ読みとり装置には,いろいろのものがあるが最小限デジタルブリンタ(パラレル式ラ インプリンタ,シリアル式プリンタなど)は備える必要がある。そのほか,

- (1)チャートレコーダ(記録計) (2)XYブロッタ (3)磁気テーブ記録装置 (4)紙テープ穿 孔機
- などがあればデータの解析,整理が能率的に行なえる。特に計算機によってデータの解析を行な う場合には磁気テープ記録装置または紙テープ穿孔機は不可欠である。

これらは、その機能、使用法と特徴を熟知し、データ処理の方法、データの保存、機器の保守 および経済性などを考慮して慎重に選定する必要がある。1つの測定に必要なチャネル数は200 ~400程度が適当である。

3.4 機器の設置上の注意

検出器を収納したしゃへい体および電子回路はなるべく温度変化が少なく,かつ湿度の低い場所 に設置しなければならない。 検出器は磁場の影響をうけやすいので,トランス,モータなど強い磁界を発生する装置と隣接 しないようにする。また,検出器および電子回路装置へ電気的雑音の混入を防止するため,パルス 性の電気雑音を発生する装置(整流子型モータ,バイブレータ,リレーなどを用いた機器)に隣 接して設置することを避けるとともに,できればそれらと電源配線を共用することも避けること。

バックグラウンドの変動を防止するため、しゃへい装置の近くに強い放射線源を置かないように 注意すること。

なお、しゃへい装置の設置にあたっては、床荷重に留意すること。

第4章 試料容器と標準試料

4.1 試料容器

試料容器は,種々の材質,形状,寸法のものが考えられるが,このマニュアルにおいては,以下 に示す寸法の基準マリネリビーカ,基準ビーカおよび円形ろ紙を用いることをたてまえとし, これらの容器などに規定量の試料を充填した場合の計数効率などのデータを第7章の7.3~7.7 図に示す。ただし放射能標準試料を用いて計数効率を求める場合には,かならずしもこれらの基準 容器を使用しなくてもよい。

4.1.1 基準マリネリビーカ(塩ビ製) 規定容量 1,700ml



第4.1図 基準マリネリビーカ

4.1.2 基準ビーカ(スチロール製) 規定容量 100,200,300 ml



第4.2図 基準ビーカ

4.1.3 円形ろ紙 直径7cm 東洋ろ紙 M2

4.2 エネルギー校正用線源¹⁾

エネルギー校正用線源としては必ずしも放射能の値が既知である必要はなく、市販の線源を適宜 希釈して使用することが出来る。なお、エネルギー校正を行なう際、あまり計数率が高いとチャネ ルシフトをおこすことがあり、また逆にあまり計数率が低いと統計変動が大きいばかりでなく、計 剤に要する時間も長くなるのでエネルギー校正用線源の量は核種によって異なるが~0.1 µCi 程 度に調製する。形状は水溶液としてアンプルなどに封入してもよいが、プラスチック板上に溶液を 滴下し乾燥したのちラッカーで固定し、更にプラスチック薄板でおおったものが便利である。第4. 1表にエネルギー校正に適当と思われる核種を示した。

第4.1 3	長 エネノ	レギー校	正用核種
--------	-------	------	------

核 種	r 線	エネルギー(MeV)	半减期
144 Ce $ ^{144}$ Pr	0.1 3 3 5	0.0801 他	285日
⁵¹ C r	0.3 2 0 1		27.8日
²² Na	0.5 1 1	1.2746	2.58年
¹³⁷ C s	0.6616		30年
⁵⁴ M n	0.8348		303日
60 C o	1.1732	1.3 3 2 5	5.26年
207 B i	0.5696	1.0634 1.769	7 3 0.2年
²⁴ Na	1.3685	2.7 5 4	1 4.9 7 時間
⁸⁸ Y	0.8980	1.8361	104日

4.3 標準試料

標準試料とは放射能標準溶液の一定量を測定サンプルと同一形状,同一組成の試料に希釈または 均一に混合したもので,通常次のような手順で調製する。

1) 種々の核種のエネルギー校正用線源が日本アイソトープ協会などにおいて製作頒布されている。

- 4.3.1 放射能標準溶液²⁾の一定量をメスピペットを用いてとり,これを標準溶液と同一の化学 的形状(担体の化学形,濃度および酸濃度など)の担体溶液にて希釈し,~0.01 #C i/ml 程 度の希薄標準溶液を作る。この希薄溶液の保存にあたってはポリエチレン容器をさけ,共栓三角 フラスコなどガラス容器を使用する。
- 4.3.2 測定試料と同一形状,同一組成の物質(放射能汚染の出来るだけ少ないもの)を準備し, これを4.1 に示す試料容器に規定容量だけ充填する。もし測定試料と同一組成の物質が入手出来 ない時は,次のような代用品を用いてもよい。
 - (1) 海水,雨水などの水溶液状のもの……放射能標準溶液と同一の化学的性状(担体の化学形, 濃度および酸濃度など)の水溶液
 - (2) 海底土,スラッジ……リン酸二水素ナトリウム(結晶水を含む)
 - (3) 魚肉および動物肉(乾物)…… 4 アミノー 3 ニトロートルエン
 - (4) 乾固海水……食 塩
 - (5) 魚骨などの灰・・・・・リン酸カルシウム

なお,校正に用いた試料容器を完全に除染出来ない場合があるので,標準試料容器は測定試料 容器と別に準備することが望ましい。

波高分布曲線の連続部分は試料の組成によってかなり顕著に影響をうけるのに対して,光電ビ ーク部の強度はあまり変化しない。したがって連立方程式法や最小二乗法によってデータの解析 を行なう場合には,標準試料の組成に最大限の注意をはらう必要がある。一方,光電ビーク強度 のみに着目する連続分布差し引き法によってデータの解析を行なう場合には,標準試料の組成に 関してそれほど厳密に考える必要はなく,低エネルギー領域以外では,水溶液状の標準試料を用 いて校正を行なっておけば,その他の形状の試料についても,実用上,このデータを適用出来る 場合が多い(7章参照)。

- 4.3.3 第7章で述べるように計数効率測定の際,母材³⁾にもとづくバックグラウンド計数を差し 引く必要がある。そのため母材を充填し容器を計数効率測定と同一の条件で計数し,母材にもと づくバックグラウンド計数をあらかじめ求めておく。
 - 2) 種々の核種の放射能標準溶液が工業技術院電子技術総合研究所,日本アイソトープ協会, IAEA,英国ラジオケミカルセンターなどにおいて製作,頒布されており、これらは日本 アイソトープ協会を通じて入手出来る。また電子技術総合研究所では,依頼試験という形で 種々の核種の放射能の値ずけに応じてくる。
 - 3) 標準試料調製の際用いる測定試料と同一形状,同一組成の放射能汚染の出来るだけ少ない 物質をいう。

- 4.3.4 これらの母材に一定量の希薄標準溶液を次にのべる要領で添加する。(0.02 µCi 程度 が適当)
 - (1) 溶液状のもの:希薄標準溶液 2mlをメスピペットを用いて正確にとり,これを試料容器中の 溶液に滴下したのち,ガラス棒でよく攪拌する。
 - (2) 粉末状のもの(乾燥土,乾固海水):バックグラウンド測定終了後,母材を容器からとり出し、その一部(~100ml)をシャーレにとりわける。次に希薄標準液2mlをメスピペットを用いて正確にとり、これをシャーレ中の試料に少量づつ滴下したのち、赤外線電球を用いて乾燥させる。乾燥後乳鉢中でかるくくだき、これを残りの母材とバット中でまんべんなくまぜたのち試料容器中に再び充填する。
- (3) スラッジ状のもの:バックグラウンド測定終了後,母材をバットにあけ,これに希薄標準溶液 2mlを滴下し,これを充分にこねあわせた後再び試料容器に充填する。
- (4) フィルターペーバ状試料:規定寸法のろ紙を大型シャーレ(直経10 cm程度のもの)の上に おき、これに希薄標準溶液 0.5 mlを少しづつ、均一にひろがるように滴下したのち、乾燥する。 乾燥後アルミ箔でつつむ。

なお,対象とする核種が揮発性である場合には,乾燥に際して温度をあげないように注意す る必要がある。特にルテニウム,アンチモン,ヨウ素,セシウム,水銀などの核種については 適当な沈殿剤(例えばKIに対してAgNO3)の使用およびデシケータ内での乾燥などの処置 が必要な場合が多い。 第5章 機器の調整および使用法

5.1 エネルギー校正曲線

第5.1 図はPHAのチャネル番号と 7線のエネルギーの関係を示す図の一 例で,この曲線をエネルギー校正曲線 という。これはエネルギーの異なる7 線源を用いて波高分布曲線を測定し, 光電ピークのピークチャネル(後述) とその7線エネルギーの関係をプロッ トして滑らかな曲線で結んだものであ る。

良好な装置ではエネルギー校正曲線 はほぼ直線(5.1図の点線)で近似さ れる。1チャネルあたりの平均エネル



ギー幅をチャネル幅といい、チャネル幅はふつら10~20KeVで使用されることが多い。

5.2 高圧電源電圧(印加電圧)の設定

光電子増倍管への加電圧は光電子増倍管の利得に関係し、増幅器の利得とともにチャネル幅を決定する。通常700~1,200Vの範囲の適当な値に設定して用いられる。

光電子増倍管の利得は印加電圧の微少な変化によって大きく変化し、印加電圧100Vの変化に 対し約2倍変化する。また印加電圧はエネルギー分解能に多少関係することがあり、あまり低い印 加電圧では分解能が悪くなることがある。

5.3 比例増幅器の利得の調整

増幅器の利得は高圧電源電圧とともにチャネル幅を決定するので,測定しようとするエネルギー 範囲が PHA の有効範囲に入るよう調整する。増幅器を高い利得で使用する場合は外部電気雑音の 影響を受ける可能性が増加するので,注意を要する。

PHAに内臓されていない別の増幅器を使用する場合には,増幅器の出力の波高値,極性(正負), 信号波形(立上り時間,滅衰時間,単極性か双極性か)などがPHAの入力に十分適合するように 調整すること。

5.4 PHAの調整

- 5.4.1 ゼロ点調整¹⁾:エネルギー校正曲線を代表する直線がエネルギー軸を切る点(第5.1図の P点)を決めるもので、ふつう、P点をゼロエネルギーに調整するのが便利であるが、装置によっては不可能な場合がある。
- 5.4.2 下限ディスクリミネータ¹⁾:実際に分析されるエネルギー範囲の下限を決めるもので、このレベル以下の信号パルスはメモリーされない。これによって電気的雑音や不必要な低エネルギ ギーT線を除去することができる。
- 5.4.3 上限ディスクリミネータ:実際に分析されるエネルギー範囲の上限を決めるもので,この レベル以上の信号パルスはメモリーされない。
- 5.4.4 その他:市販のPHAにはいくつかの機能を有するものが多い。これらはPHAのマニュ アルに従って、その機能および使用法を熟知する必要がある。

5.5 ピークチャネル値の求め方

波高分布曲線において,光電ピークの中心に相当するチャネル値をピークチャネル値という。ピ ークチャネル値を求めるにはいくつかの方法があるが,ここでは一つの光電ピークが他のピークか ら明瞭に分離して存在するときに適用できる比較的簡単な図形的方法を述べる。





チャネル番号

第5.2 図 平担なスペクトルに重畳しいる場合

- 0.1 チャネルの精度でよみとることができる。
- 1) ゼロ点調整と下限ディスクリミネータは,装置によってその表現方法および内容が逆のものがある。

5.5.2 光電ビークが傾斜した連続スペクトルに重畳しているとき、あらかじめ傾斜した連続スペクトルの部分を差し引いてピーク部分のみのスペクトルを正方眼紙にブロットし、前述の方法を用いるか、または第5.3回の如く連続スペクトルにほぼ平行な何本かの線分AA',BB'……を作り、5.5.1の場合と同様にピークチャネル直を求める。

樹 緑 茄

チャネル番号

第5.3図 傾斜した連続スペクトルに重畳 している場合

第6章 性能および試験法

6.1 直線性

直線性とは、エネルギー校正曲線におけるエネルギーとチャネルとの関係の直線性をいい、積分 直線性と微分直線性がある。

積分直線性はエネルギー校正曲線の直線性を いい,(ΔE/Er)×100%であらわす。 ここでErは最大チャネルに相当するエネルギ ーΔEは直線からの最大のずれに相当するエネ ルギーである(第6.1図参照)。200チャネ ル程度のPHAを用いた場合,積分直線性は 0.2%以下であれば良好である。

微分直線性とは、チャネルあたりに相当する エネルギー幅の一様性を意味し平均チャネル幅 からの偏差の相対値(%)であらわす。通常1 ~2%以内であることが望ましい。



第6.1 図 積分直線性

直線性を劣化させる原因には次の2つがある。高エネルギー部でフィットさせた直線が原点を通るように調整した場合,実際のエネルギー校正曲線はエネルギー軸の約15eVを通る。

- 6.1.1 NaI(T1)シンチレータの発光効率のエネルギー依存性: NaI(T1)シンチレータの発 光効率が低エネルギーで変化するために積分直線性は第6.1 図に示すことく約0.2 MeV以下で 劣化する。しかしこの非直線性による誤差は小さいので、とくに精密を要しない場合或いは低エ ネルギー側を問題としない場合は、全体のエネルギー校正曲線を代表する直線で近似しても差し つかえない。
- 6.1.2 電子回路の直線性: 増幅器, PHAなどの電子回路の直線性が悪い場合がある。これは一般 に高い波高値で飽和する傾向が多いので, 6.1.1とは容易に区別される。もしこのような傾向が みられれば, ただちに修理する必要がある。

6.2 エネルギー分解能

エネルギー分解能(以下単に分解能という)は分離した光電ピークの半値幅1)(高さがピークの

1) ピークチャネルPに対して半値幅 P-A, B-Pが同一でない場合がある。特に低エネルギー側の、半 値幅が大きい場合が多い。これは試料中の自己吸収,散乱などによることがあるのでこの測定には 点線源を用いるか, B-Pの半値半幅を2倍して半値幅とすることが性能試験のときには望ましい。



エネルギー分解能の劣化の原因には,NaI(T1)シンチレータの劣化(割れまたは,吸湿による変質),光学的結合の不完全,結合用シリコングリスの流出および光電子増倍管の劣化などがある。

6.3 バックグラウンド

線源を除いてバックグラウンドの波高分布曲線を測定し、問題とするエネルギー範囲における総 計数率、ピークの有無を調べる。バックグラウンドの波高分布曲線の例を第6.3図に示す。

通常,下記のエネルギー附近にピークを生じやすい。

0.08 MeV: しゃへい材料(鉛)からの特性X線

0.51 MeV宇宙線に起因する陽電子の消滅にともなうア線

0.61,1.13,1.76MeV: ラドンー222 壊変生成物

1.46 MeV:光電子増倍管, Na I (T1) シンチレータの窓などに含まれるカリウムー40

2.6 1 MeV : β U β $\Delta - 2$ 0 8 (β U β $\Delta - C''$)

バックグラウンドの総計数率は同一のしゃへい条件のときNaI(T1)シンチレータの体積にほ ぼ比例し、鉛8cm相当の良好なしゃへいを行ない20KeV~3MeV相当のパルスを測定したとき の総計数率はNaI(T1)シンチレータ1cm³当り2.5 cpm程度以下である。

バックグラウンドは試料物質の存在にも多少影響されるので,バックグラウンドの測定には規定 の試料容器に放射能を含まない試料物質(たとえば純水)を入れて測定するのがよい。

バックグラウンドの変化は重要で,とくにしゃへいが不完全な場合には,周辺の放射線源の移動 にも注意しなければならない。

6.4 計数率依存性

高い計数率で測定し たとき,波高分布曲線 が変化することがある。 この計数率依存性は標 準線源など比較的強い 放射能を測定するとき に問題となる。

この計数率依存性は 光電子増倍管の一時的 疲労に原因するものと, 増幅器その他の電子回 路に原因するものがあ る。前者は一般に光電



第6.3図 バックグラウンドの波高分布曲線(例)

子増倍管の印加電圧が高い場合に起りやすい。このような場合には印加電圧を下げ,増幅器の利得 を増大する。ふつう総計数率1,000cps程度まで波高分布曲線に変化が認められなければ良好 である。

6.5 安定性

測定機器の性能が時間の経過とともに変わる場合がある。一般に測定機器は電子回路のウォーミ ングアップに必要な数分ないし数十分後に安定することが多いから,スイッチ投入後数十分を経て から使用するのがよい。長時間測定に際しては温度による変動が大きいので,なるべく室温の変化 をさけるようにする。

特性の変動には,主として2つの現象があり,それはエネルギー校正曲線におけるゼロ点移動と チャネル幅の変化である。ゼロ点移動はPHAの性能に原因することが多く,良好なPHAでは殆 んど無視できる。

一方,チャネル幅の変化はNaI(T1)シンチレータの温度変化の他,光電子増倍管²⁾,前置増幅器,比例増幅器,PHAなどの電子回路の利得の変化に起因する。これらの変化が測定装置の性能 仕様に示されている許容範囲内にあることを確認しておく必要がある。

2) 光電子増倍管の疲労などにより利得変化が起ることがあり、このような場合には光電子増 倍管の印加電圧を下げかつ強い放射能の測定を長時間行なうことも避けた方が良い。 6.6 *ルーチンチエック*

これまでにのべた性能の試験は,特に異常のあったときの他3~4ヶ月毎に定期的に行なう必要 があるが,ルーチンの測定においては毎日試料測定の前後に下記の手順に従って簡易なチェックと 調整を行なうのがよい。

- 6.6.1 スイッチを投入した場合には、30分以上ウォーミングアップを行なう³⁾。
- 6.6.2 代表的な2つのエネルギーの線源⁴⁾を用いて測定し波高分布曲線を求め,これよりエネル ギー校正曲線のチャネル幅とゼロ点を決定し,これが正常であるように調整する。(実際には2 つの線源のピークチャネルがそれぞれ一定の値になるようにすれば良い)
- 6.6.3 バックグラウンドを30分以上測定し、ピークおよび総計数率に異常のないことを確かめ る。
- 6.6.4 試料の測定を行なう。
- 6.6.5 その日の試料の測定が終了した後6.6.3を繰り返す。
- 6.6.6 6.6.2の測定を繰り返し、エネルギー校正曲線が、変化していないことを確認する。

- 3) 数日以上測定を中止しない限り,高圧電源は切らないことが望ましい。
- 4) 線源にはナトリウム-22(半減期2.58年,消滅放射線0.511MeV, 7線1,2746
 MeV)が便利である。

第7章 計数効率とその求め方

7.1 計数効率と ア計数効率

7.1.1 計数効率

計数効率とは,着目したチャネル領域の計数率(バックグラウンドを差引いたもの)と線源の 壊変率 no(dps)との比である。計数として全波高分布曲線に対応するチャネル領域の計数NG をとった場合と特定の光電ビーク面積に対応する計数Npをとった場合とが実用上重要でそれぞ れクロス計数率 *TG, *TPと呼ぶ。

すなわち

$$\varepsilon_{\mathrm{TG}} = \frac{\mathrm{NG}}{\mathrm{n_0} t} \dots (7-1)$$

$$\varepsilon_{\rm TP} = \frac{\rm Np}{\rm n_0 \,\iota} \, \dots \, (7-2)$$

である。ことで、tは測定時間(秒)を示す。

7.1.2 **r**計数効率

ア計数効率とは,着目したチャネル領域に含まれる特定のア線による計数率とそのア線の放出 率との比である。全波高分布曲線に対応するチャネル領域の計数NGをとった場合と特定の光電 ピーク面積に対応する計数Npをとった場合が実用上重要でそれぞれ総ア計数効率 $\epsilon_{\gamma G}$ および 光電ピークア計数効率 $\epsilon_{\gamma p}$ と呼ぶ。

すなわち,

$$\varepsilon_{\gamma_{\rm G}} = \frac{N_{\rm G}}{n_{\rm o} a_{it}} \cdots (7-3)$$

$$\varepsilon_{\gamma p} = \frac{Np}{n_0 - a_i t} \dots (7 - 4)$$

である。とこで t は 測定時間 (秒), ai は 着目 した T 線の 放出比を示す。

7.2 光電ピーク面積の求め方

N.T

光電ビーク面積の定義には、いろいろの考え方があり¹)更に光電ビーク面積の決定についても種 々の方法が考案されているが、本マニュアルでは、連続分布差し引き法²⁾を採用することとする。 この方法による光電ビーク面積の決定の手順は次の通りである。

7.2.1 ピークチォネルを読みとる。

- 7.2.2 ピークの半値幅を求める。この半値幅(Γ)は適当な単色 Γ 点線源を用いて 6.2 に示す方 法であらかじめエネルギーと半値幅との関係を求めて得られた値を用いる。半値幅はエネルギー, チャネル数のいずれかで表わされる。
- 7.2.3 第7.1 図に示すようにピークチャネル pを中心として左右に $l = 3 \times (\frac{\Gamma}{2})$ チャネルずつ とり(aおよびb点), このa, b両チャネルの間の各チャネルの計数値Ni の総和 P(カウント)を求める。

すなわち

 $P = \sum_{i=p-l}^{P+l} N_i \quad \dots \quad (7-5)$

- 7.2.4 a 点における計数値Na および b 点における計数値Nb を読みとり次 の計算を行なう。 $Q = (Na + Nb) (\ell + \frac{1}{2}) \dots (\ell - \frac{1}{2}) \dots (\ell - \frac{1}{2}) \dots (\ell - \ell - \frac{1}{2}) \dots (\ell - \ell - \ell)$
- 7.2.5 ピーク面積Np(カウント)は

$$Np = \frac{P - Q}{0.980} \dots (7 - 7)$$

として与えられる。

なお,他のピークやコンプトンエッ ジなどの妨害により,ピークチャネル を中心として左右に $l = 3 \times (\frac{\Gamma}{2})$ だ



第7.1図 光電ピーク面積の求め方

けとることが困難な場合には,lとして適宜のチャネル数をとり,上記と同一の手順でP-Qを求め,この値を $l/(\Gamma/2)$ によって決まる補正因子(第7.1表)で割り,ピーク面積Npを求める。

- このマニュアルでは単一核種の定量と混在核種の定量とを統一的にとりあつから必要から 光電ビークのベースとなる連続分布部分(第7.2図斜線部分)をとりのぞいた残りの部分を ピーク面積と定義することとする。しかし、この他にベースとなる斜線部分を含めて光電ピ ーク面積ということが多いので注意が必要である。
- 2) この方法の代表的なものにコベル法がある。

第7.1表 補 正 因 子



$l/(\Gamma/2)$	補正因子	$l/(\Gamma/2)$	補正因子
0.5	0.048	1.6	0.685
0.6	0.0 8 2	1.8	0.7 7 5
0.7	0.1 2 5	2.0	0.8 5 0
0.8	0.1 6 2	2.2	0.910
0.9	0.218	2.4	0.9 3 5
1.0	0.285	2.6	0.960
1.2	0.4 2 0	2.8	0.970
1.4	0.5 5 5	3.0	0.980

7.3 γ計数効率の求め方

7.3.1 標準試料の光電ピーク イ計数効率の決定

まず4.3 に述べた方法で標準試料を調製し,測定試料と同一条件で測定を行なう。測定時間は 核種や放射能の強さにもよるが,1,000秒が適当である。次に全領域の積分値Ng および特定 の光電ビーク領域の計数値Np を7.2 に記述した方法で決定する。このようにして得られたNp より標準試料の壊変率no(dps)および着目した τ 線の放出比 a_i を用いて,(7-4)式 に したがって,光電ビーク τ 計数効率 $\varepsilon_{\tau p}$ を算出する。入射エネルギーと τ 計数効率との関係を 求めるのに適した核種には次のようなものがある。

核種	γ線のエネルギー(MeV)	γ線放出比(%)	半减期
¹⁴¹ Ce	0.1 4 5 4	48	3 3.1 日
²⁰³ Hg	0.2791	77	4 6.9 日
⁵¹ C r	0.3201	9.8	27.8日
¹⁹⁸ Au	0.4118	95	2.7日
⁷ Be	0.4774	1 0.3	53.6日
¹³⁷ C s	0.6616	8 6	30年
⁵⁴ Mn	0.8348	100	303 日
⁶⁵ Z n	1.1 1 5 4	4 9	245日
4 ºK	1.460	(1.7827/sec/gKCl)	1.25×10 ⁹ 年
²² Na	0.5110	180	2.58年
	1.2745	100	
⁸⁸ Y	0.8980	92	104 日
	1.8361	100	
⁶⁰ Co	1.1732	100	5.26年
	1.3 3·2 5	100	
²⁴ Na	1.3685	100	1 4.9 7 時間
	2,7539	100	

第7.2表 入射エネルギーと7計数効率との関係を求めるのに適した核種

なお、これらの核種のうち、ナトリウムー22、イットリウムー88、コバルトー60および ナトリウムー24は複数本の7線をカスケードに放出する。この場合着目する7線が光電吸収を おこしても、もう1本の7線が、シンチレータ中で同時に相互作用をおこすとサム効果によって 光電ビークに対応するチャネルより高いチャネルに計数が記録されることになる。したがってこ のサム効果によって見かけの光電ビーク面積は減少することになるので、減少分を補正する必要 がある。例えばA、B二本の7線をカスケードに放出し、それぞれの放出比が100%の場合、 7線Aに対する光電ビーク7計数効率($\epsilon_{\gamma p}$)Aは次の式で与えられる。

$$(\varepsilon_{\gamma p})_{A} = \frac{(Np)_{A}}{n_{o} t (1 - (\varepsilon_{\gamma G})_{B})} \dots (7 - 8)$$

ここで $(Np)_A$ は γ 線Aに対応する光電ピーク面積, $(\epsilon_{\gamma G})_B$ は γ 線に対する総 γ 計数効率である。



第7.3図 NaI(Tl)シンチレーション検出器の7計数効率



第7.4図 NaI(Tl)シンチレーション検出器の7計数効率



(円形ろ紙)



第7.6図 水溶液と乾燥土壌の場合の光電ビークア計数効率の差



第7.7図 2.5mm Alによる吸収

7.4 規格化された容器に対する3インチ径×3インチNaI(T1)シンチレー

ション検出器の計数効率

計数効率の校正は標準試料を用いて7.3の手順に従って行なうことが望ましいが,適当な放射能標準溶液を入手出来ない時は第7.3,7.4,7.5図に示すデータを用いて計数効率を求めてもよい³⁾

ただし,試料容器は4.1 に示す規格

化されたものを用い,これを所定位

置において、3インチ径×3インチ のシンチレーション検出器で測定す

ることをたてまえとする。

なお,これらのデータはフィルタ ペーパ状 試料 の場合をのぞいて 水溶液状の試料に対するものである が,比重1.5程度の乾燥土壌試料に 対してもこの値は大幅には変わらな



第7.8図 検出器の構造の一例

い。一例として、マリネリビーカ

中の水試料に対する効率と乾燥土壌試料に対する効率の差を第7.6 図に示す。また,検出器の構造によっては第7.8 図に示すように,マリネリビーカの底を結晶上端に密着出来ないととがある。この場合には若干の効率の低下が認められる。たとえば5mm浮かび上がった場合効率の低下は全エネルギー領域にわたって約4%である。

7.5 KC1 試薬による光電ピークγ計数効率の求め方

種々の事情で規格化された容器を用いられない場合,しかも適当な放射能標準溶液を入手出来 ない時は,市販のKC1試薬を用いて次のような手順で計数効率の決定を行なっても一応実用とな る結果が得られる。

- 7.5.1 よく乾燥した市販KC1 試薬100g を試料容器に入れ,これに水を加え規定容量とする。 よく攪拌して完全に溶解したことを確かめる。
 - 3) このデータは基準マリネリビーカーとNaI(T1)シンチレータの間に検出器ケースが介 在しない場合の測定結果で、検出器ケースが介在する場合には検出器ケースの材料による 線の吸収を考慮する必要がある。一例として 2.5mm厚のアルミニウムケースによる吸収実測 値を第7.7 図に示す。

- 7.5.2 7.3 に述べた方法で,カリウム-40 に対する計数効率を求める。KC1 試薬1g あたりの ア線放出率は1.7827/sec である。この場合計数時間は4,000秒位が適当である。
- 7.5.3 ビーカなどによる小容量試料については,第7.4図,マリネリビーカについては第7.
 3図のデータからカリウムー40の7線(1.460MeV)に対する効率を読みとり、ここで実測により得た値とグラフから読み取った値の倍率を求める。この倍率を第7.4図または第7.3図に示す値に乗ずる。

なお, KC1 試薬はかならずしも水に溶解しなくてもよく,そのままみかけの規定容量だけ容器に充填して,その重量から換算して効率を求めてもよい。

8.1 単一核種の波高分布曲線

γ線が NaI(T1)シンチレータに入射すると光電効果,コンプトン散乱,電子対生成の3つ の作用でγ線エネルギーの全部または一部が NaI(T1)シンチレータに与えられる。この場合 波高分布曲線には,これら3つの作用によって吸収されたエネルギースベクトルが表われる。単一 核種の場合でもその核種から放出されるγ線が一種類かまたは数種類かにより,またγ線エネルギ ーの違いによって異なる。次にこれらの作用にもとづく波高分布曲線の基本的な事項についてのべ る。

8.1.1 光電ピーク

光電効果は入射した ア線が軌道電子にそのエネルギーを与えて軌道から追い出し,全てのエネ ルギーを失う現象であ



の形は近似的に正規分布として扱うことが出来る。

8.1.2 コンプトン散乱による連続分布

γ線が自由電子または軌道電子と衝突してエネルギーの一部を与え,γ線は初めと異なった方 向へ散乱される現象がコンプトン散乱である。第8.1図に示すような単一γ線エネルギーでみる と、コンプトン散乱によって γ 線エネルギーの一部が与えられるため、コンプトン連続分布が現われる。コンプトン散乱によって Na I (Tl)シンチレータに与えたエネルギーの最大値(E_C) は次式で与えられる。

$$E_{C} = \frac{2 E \gamma^{2}}{0.5 1 + 2 E_{\gamma}} (MeV) \dots (8 - 1)$$

E_C点に対応する波高分布曲線の点をコンプトン端といい,このコンプトン端はしばしば光電 ピークと間違われることがある。第8.1 図の P_{BS} のピークは後方散乱によって生ずるピークで あり,このピークの高さは測定試料としゃへい体内壁との距離,しゃへい体の材質によって大き く変る。このピークも光電ピークと間違われやすい。

8.1.3 電子対生成にともなうピーク

原子核の近傍を通る1.02 MeV 以上 のγ線は原子核の電場によって陰陽一対 の電子を作り全エネルギーを失う現象が 電子対生成である。

また, NaI(Tl)シンチレータ内で電
子対生成が起ったとき,生成した陽電子
は消滅し,2本の0.511 MeV 消滅放
射線を反対方向に放出する。この2本と
も NaI(Tl)シンチレータから逃げだ
す場合は,入射γ線エネルギーを Eγと
するとEγ-1.02 MeV の2光子エスケ
ーブピーク P2が現われる。



エネルギー(MeV)

第8.2図 電子対生成をともなう波高分布曲線

1本の消滅放射線が逃げ出す場合は Eγ-0.511 MeV の1光子エスケーブピーク P₁が現れる。γ線が NaI(T1)シンチレータ以外の周囲の物質中で電子対生成を行なった場合,また 陽電子放出核種の場合には消滅放射線による 0.511 MeV のピークが現われる。(第82図)
 8.1.4 KX線エスケーブピーク

一般にア線やX線が NaI (T1)シンチレータに入射するとヨウ素原子のK電子と光電効果を 起す確率が高い。この時,結晶表面近くで発生したI-KX線(28KeV) が逃げ出し,I-KX 線エスケープピークが現われる。(第8.3 図) KX線エスケープピークは,入射ア線等が光電効 果をおこす場所が検出体表面のときに現われやすいので,ほぼ0.1 MeV 以下の低いア線エネル ギーの場合に 考慮する必要がある。しかし,環境試料の測定に際しては,0.1 MeV 以下の7線

を測定の対象とすることは少な いのでKX線 エスケープピーク を考慮する必要はあまりない。 以上のものの組合わされたも のが単一エネルギーア線の基本 的な波高分布曲線である。実際 の核種はいくつかのア線が同時 または独立に放出される場合が ある。 8.1.5 サムピーク

 E_{γ_1} , E_{γ_2} の2本の γ 線が 同時に NaI (Tl)シンチレー タに入射すると,このスペクト $\nu r t t$, $E_{r_1} + E_{r_2} r t$ 対応する 同時サムピークが現われる。



第8.3図 IKX線エスケープ

実際にはコバルトー60のような2本のカスケードr線を放出する核種に顕著に現われる(第8.4図)。 一般に線源とNaI(TI)シンチレータとの距離が近いほどサムピークは大きくなる。 陽電子と同時にγ線を放出する核種においては陽電子の消滅の際放出するγ線(0.511 MeV)



と他のア線との同時サムピークが現われる。(第8.5 図)

線源が強いときには一種類のア線しか放出しないときでもPHAの分解時間内に偶然に同時に 2本の放射線が入射すると2Er

のところにサムピークが現われる。 このピークは偶然サムピークとい

ら。

8.1.6 制動放射

γ線放出率が少ないβ線放出核 種の波高分布曲線は第8.7図のよ うになる。

制動放射をおこす確率は 入射電子のエネルギーと吸 収物質の2が大きい程大で ある。

一般に制動放射スペクト ルが顕著に現われるのは β 線のエネルギーが1 MeV 以上の場合である。







第8.7図 制動放射の波高分布曲線
8.2 核種の同定

測定試料中に含まれる未知核種の同定は次の手順にしたがって行なう。ただし,長半減期核種の 場合には信頼度は悪くなるが,7線エネルギーのみから同定を行なっている。

8.2.1 エネルギー範囲の設定

測定するエネルギー範囲を決定する。一般に核分裂生成核種を対象とする場合は全チャネルを 2 MeV に、ウラン、トリウム系列などの天然の核種を含む場合は 3 MeV をカバーできるよう に P H A のゲインを 5.3 に従って調整する。

8.2.2 エネルギー校正曲線

5.1 に従って4 点以上の点がとれる ようにエネルギー校正用線源を用いて エネルギー校正曲線を求める。(第8.8 図) 8.2.3 エネルギーの決定

測定試料を明確に光電ビークが判別 できるまで測定する。光電ビークのビ ークチャネル値を5.5 に従って決め, ビークチャネル値からエネルギー校正 曲線を用いて光電ビークのエネルギー Εγ を正確に読みとりエネルギーを決 定する。

光電ピーク以外のピーク でもエネルギーが明らかな ものは同定に用いることが 出来る。たとえば同時サム ピークなどである。

8.2.4 半減期の決定

半減期の決定は試料の波 高分布曲線を適当な時間間 隔で2回以上測定する。こ の場合チャネル幅,試料の 測定位置などの測定条件は 同一にして行なう。測定し た波高分布曲線の光電ピー







ク計数率を経過時間に対して片対数方眼紙にプロットして減衰曲線を求める。半減期は光電ビー ク計数率が1%になる時間で決める。

8.2.5 核種の推定

核種の推定は決定したエネルギーおよび半減期が一致する核種をアイソトープ表, r 線表¹⁾あるいは波高分布曲線のカタログなどと照合して決定する。

この7線のエネルギー半減期から未知核種を決定する方法では,試料中に含まれる核種の波高 分布曲線が単純であり,かつ半減期が数日程度と比較的短い場合,容易である。

8.3 核種の定量

試料中に含まれる核種が一種類の場合には,光電ピークγ計数効率から求める他に,崩壊率既知 の標準試料の波高分布曲線との比較によっても定量することができる。

8.3.1 バックグラウンド波高分布曲線の測定と差し引き

あらかじめ空の試料容器に放射能が含まれていない物質(たとえば純水)を入れ,測定資料と 同一条件で波高分布曲線を測定しバックグラウンドの波高分布曲線とする。試料の波高分布曲線 の各チャネルについてバックグラウンド波高分布曲線の対応チャネルの計数率値を差し引く。こ の場合,バックグラウンド波高分布曲線をPHAの減算モードで一定時間測定した後,試料を加 算モードで同じ時間測定すると,バックグラウンド計数率は差し引かれ正味の試料の波高分布曲 線が得られる。

同一種類の試料を数多く測定するときにはPHAのメモリーを2分割にし前半(1/2)メモリー グループにはバッククラウンドの波高分布曲線を減算モードで一定時間測定し記憶させておき、 後半(1/2)メモリーグループにこのバックグラウンドを移す。試料を測定する毎に前半メモリー グループからバックグラウンドの波高分布曲線を後半メモリーグループに呼び出し試料の測定を 行なえば正味の試料の波高分布曲線が得られる。このバックグラウンドの波高分布曲線は引き続 き共通して用いることが出来る。

なお試料の測定時間は前に測定したバックグラウンドと同一か,またはどちらかの時間に換算

1) C.M. Lederer, J.M. Hollander, I.Perlman: "Table of Isotopes" 6th Ed. (1968) (John Willy & Sons Inc.) M.A.Wakat: "Nuclear Data Tables" Vol.8 No.5-6 (1971) (Academic Press) M.J.Martin, P.H. Blichert-Toft: "Nuclear Data Tables" Vol.8, No.1-2 (1970) (Academic Press) できるものでなければならない。(6.3参照)

もし別にバックグラウンドの波高分布曲線が必要なときには測定時間を 5×10^4 秒程度測定 し各チャネルの計数率を求めておく。

- 8.3.2 光電ピークγ計数効率から求める方法
- (1) 試料の調製

測定資料は一定の容器に均一に入れる。もし試料が植物の乾燥物のようなものなら出来るだけ 圧縮するか、ミキサーで砕いて入れる。試料の厚さは標準試料と同一厚になるようにする。 測定試料は測定時間以外は標準試料と同一条件で測定する。

- (2) 試料の波高分布曲線の測定
- 試料に含まれる核種の γ 線エネルギーによってエネルギー範囲をゼロより 1 MeV ~ 3 MeV になるように設定する。ライブタイムで測定時間を設定して測定する。試料の測定時間は試料 中に含まれる核種の濃度によって異なるが,天然レベルのものは1×10⁴ ~ 5×10⁴ 秒の 測定時間が必要である。
- (3) 光電ピーク計数率

光電ビーク計数率は第8.10図に示すようにピーク値の ½ における全幅(半値幅)の2倍 または3倍の範囲内に入る各チャネルの計数率の合計として求める(7.2参照)。この場合光 電ビークは正規分布として近似できるのでこの範囲の計数値はビークの全面積に対してそれぞ れ98および100%となる。このほか正規分布の底の部分を差引いて面積を求める場合があ りこの場合は第7.1表の如

く85および98%となる

(4) 核種濃度

正味の光電ピーク計数率 から次式によって試料中の 核種**濃**度を決定する。

犐

計数



第8.10図 光電ピーク計数率

 $C = \frac{N_P}{3.7 \times 10^4 \epsilon_{\gamma P} ai.t} \cdot \frac{1}{V} (\mu Ci/cm^3 \pm \hbar t \mu Ci/g) \cdots (8-2)$ C : 試料中の核種の放射能濃度 $N_P : 光電ピーク面積に対応する計数$ $\epsilon_{\gamma P} : 同 - x + \pi - 0 + \pi \ell - 2 + \pi + \pi + \pi + 0$ $a_i : \gamma 線 0 + \pi + 0 + \pi + \pi + \pi + 0$ t : 測定時間(秒)

V : 測定試料の容量(cm³)または重量(g)

8.3.3 標準試料の波高分布曲線との比較により求める方法

測定試料中に含まれる核種と同一核種の崩壊率既知の標準溶液があるときには、それを用いて 測定試料と同一形状の標準試料を作成し、その標準試料の波高分布曲線と試料の波高分布曲線と を比較することによって核種農度を求めることができる。

(1) 標準試料の波高分布曲線

4.3 にしたがって試料中の核種と同一核種の崩壊率既知の標準溶液を適当に希釈し測定試料 と同一形状の標準試料を作る。²)

8.3.1と同様にして測定を行ない,波高分布曲線の光電ビーク計数率を求める。

(2) 試料の波高分布曲線

標準試料と同一条件で試料の測定を行ない標準試料の波高分布曲線の光電ピーク領域と同一領域で光電ピーク計数率または総計数率を求める。

(3) 核種農度

試料中の核種濃度は次式から求める。

4) 放射能は10⁻²~10⁻³ µCi が適当である。

第9章 混在核種の分離定量法

試料中に含まれる混在核種の分離定量法には核種が既知の場合と未知の場合があり,未知の場合は 最初にそれぞれの核種の推定を行なわなければならない。

NaI(T1)シンチレーションスペクトロメータによって得られる波高分布曲線は試料中に含まれる核種のそれぞれのア線スペクトルの合成である。一方それぞれのスペクトルにおいて核種を代表する特徴は光電ビークでそのエネルギーが第1の指標となる。

したがって試料に含まれる混在核種の分離定量が可能な場合、次の三つに大別することが出来る。

- (1) 試料中に含まれる主な核種が1ないし2核種に限定され,波高分布曲線に明確なピークが存在 し,容易に核種の同定を行ない得る場合。
- (2) 試料中に含まれる核種が数核種であり、それぞれお互いに同程度の量が含まれ、核種があらか じめ推定されている場合。
- (3) 核種の半減期が比較的短く(1か月程度),波高分布曲線中に明確なビークが認められる場合。 一般に混在核種の定量法として連続分布差し引き法,連立方程式法,スペクトルストリッピング法 備考1),最小二乗法^{備考2)},などがあるが,このマニュアルでは連続分布差し引き法,連立方程 式法について解説する。
 - 備考1) スペクトルストリッピング法

この方法は測定した波高分布曲線から、これに含まれる核種の波高分布曲線を逐次差し 引き、その差し引き量をそれぞれ定量していく方法である。この場合、高いエネルギーの γ線は常に低い部分に寄与するので、エネルギーの高いγ線を放出する核種から差し引き を行なわなければならない。この方法は他の方法に比して客観性に乏しいが、混在誤差は 少ない。しかし、この方法では数多くの核種のスペクトルデータが必要であるとともに、 かなりの経験を必要とする。また一般に、高いチャネル部分の計数は少ないので、統計誤 差が大きく低いチャネルに影響する。このため高いチャネルの積分計算(または部分加算) を行なうことが望ましい。

備考2) 最小二乗法

この方法はスペクトルストリッピング法,連立方程式法を各チャネルの数値全部を用い もっとも誤差が少なくなる答を得る方法で実際行なうには電子計算機によらなければなら ない。

9.1 連立分布差し引き法

連続分布差し引き法は波高分布曲線中に存在する明確なピークに着目し、その面積から定量を行う

なう方法で、あらかじめ着目した光電ピークのエネルギーを 8.2 によって決定し、核種の同定を行 なっておかなければならない。

一般にピーク領域は正規分布で代表される光電ピークと他の核種ならびにより高いエネルギーの 7線からのスペクトル寄与から成っている。したがって,定量を行なうピーク領域からスペクトル 寄与を連続分布として差し引き,目的の光電ピークを求めるのがこの方法である。

この方法による定量は,標準試料を用いないで光電ピークのみに着目する場合は9.1.1 にしたが って,また試料と同一形状の標準試料がある場合には9.1.2 によって行なう。

9.1.1 光電ピーク γ 計数効率から求める方法

光電ピーク γ 計数効率を用いて定量を行なう場合はあらかじめ光電ピーク γ 計数効率 $E_{\gamma p}$ を 7.3 にしたがって求め、目的核種の核データから定量に用いる光電ピークの γ 線エネルギーの放 出比(a_i)を調べておく。

目的核種の定量は次の手順によって行なう。

- PHAの全チャネル(100~400チャネル)を2~3 MeV になるようにゲインを5.3
 にしたがって調整する。この際、出来るだけ10 KeV /チャネルに調整する。
- (2) 試料を1.000~10,000秒間測定しその結果を第9.1図の如く片対数グラフ用紙にプロ ットする。



第9.1図 試料の波高分布曲線

(3) グラフには第9.1表にならって測定条件を記載する。

データ番号	
測 定 日	
測 定 開 始 時 刻	
測 定 時 間	
試 料 名	
試料採取日時	
測 定 容 器	
試料 重量	
試料 容積	
試 料 形 状	
測 定 位 置	
検出体	
高 圧 印 加 電 圧	
使用チャネル	
チャネル幅	
ゼロエネルギーのチャネル	
または	
ゼロチャネルのエネルギー	
データ処理方法	連続分布差し引き 連 立 方 程 式

- (4) 目的核種の代表となる光電ピークのピークチャネルを no とし、no を中心として左右に半 値幅の2倍または3倍の範囲(±1)の両端のチャネルを no-1, no+1 とする。
 (7.2参照)
- (5) $i + \pi \pi n$ の計数値 N_i について $n_o \ell + \pi \pi n h$ ら $n_o + \ell + \pi \pi n t$ までの総和Pを求める。

$$P = \sum_{i=n_{0}-l}^{n_{0}+l} N_{i} \quad \dots \quad (9-1)$$

(6) $n_o - l - 1 + \pi \pi n \pi t$ ば $n_o + l + 1 + \pi \pi n \sigma$ 計数値をそれぞれ N_a, N_b とし、Qを 次式によって求める。 $Q = (N_a + N_b) (l + \frac{1}{2}) \cdots (9 - 2)$

(7) ピーク面積 N_P は次式によって求める。

Fは補正因子(第7.1表参照)

(8) 誤差は次式によって求める。

(9) 以上の計算を行ない,測定結果は第9.2表の如く記載する。

	測	定	試	料	標	準	試	料
Р								
$n_0 + l$								
n _o – <i>l</i>								
F(2ι /Γ)				:				
Q								
Np	$N_{SA} =$				$N_{ST} =$			
誤 差	$\Delta N_{SA} =$				⊿ N _{ST}	=		
ピークチャネル値(エネルギー)		(MeV)			(MeV)
測 定 時 間	$t_{SA} =$				$t_{ST} =$			
光電ピーク計数効率	$\varepsilon_{\mathrm{TP}} =$							
標準試料の放射能					$D_{ST} =$			

第9.2表 測 定 結 果

(10) 試料放射能 D'SA は

$$D'_{SA} = \frac{N_{SA}}{t_{SA}} \cdot \frac{1}{\varepsilon_{\gamma P}} \cdot \frac{1}{a_i} \dots (9-5)$$

で求める。

誤差 $\Delta D'_{SA}$ は、 $\Delta D'_{SA} = D'_{SA} \cdot \frac{\Delta N_{SA}}{N_{SA}} \cdots (9-6)$

で求める。

N_{SA}: 試料のピーク面積 t_{SA}: 試料の測定時間

 $\varepsilon_{\gamma P}$:光電ピーク γ 計数効率 a_i : γ 線の放出比

9.1.2 標準試料の波高分布曲線との比較により求める方法

数量既知の標準試料を用意し、次の手順により試料中の混在核種の分離定量を行なう。

- (1) 試料中に含まれる核種について標準試料を4.3 にしたがって調製する。
- (2) PHAの全チャネル(100~400チャネル)を2~3MeV になるようにゲインを5.3
 にしたがって調整する。この際出来るだけ10KeV/チャネルに調整する。
- (3) 試料を測定し、その結果を第9.1図の如く片対数クラフ用紙にプロットする。
- (4) 標準試料を100~1,000秒間測定し,その結果を(3)と同様第9.2図の如く片対数グラフ 用紙にブロットする。



第9.2図 標準試料の波高分布曲線

- (5) それぞれのグラフには第9.1表にならって測定条件を記載する。
- (6) (3)の波高分布曲線に含まれるピーク中、(4)の標準試料と一致する代表的な光電ピークを選び、 そのピークチャネルを n_o とし、 n_o を中心として左右に半値幅の2倍または3倍の範囲($\pm l$)の両端のチャネル番号を $n_o - l$ 、 $n_o + l$ とする。(7.2参照)
- (7) 各チャネルの計数値 N_i の総和Pを n_o- l チャネルから n_o+l チャネルまで求める。
 (9-1式参照)
- (8) $n_o l 1 + \pi n \pi k U n_o + l + 1 + \pi \pi n o 計数値をそれぞれ N_a, N_b とし(9-2) 式によってQを求める。$

- (9) ピーク面積 Np は(9-3)式によって求める。
- (10) 誤差は(9-4)式によって求める。
- (1) 以上の計算を試料と標準試料について行ない測定結果は第9.2表の如く記載する。
 (12) 試料放射能 D_{SA} は

で求める。

誤差
$$\Delta D_{SA}$$
は、 $\Delta D_{SA} = D_{SA} \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta N_{SA}}{N_{SA}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_{ST}}{N_{ST}}\right)^2}$ (9-8)

で求める。

D _{ST} :標準試料の放射能	N _{SA} : 試料のピーク面積
N _{ST} : 標準試料のピーク面積	t _{SA} : 試料の測定時間
t _{ST} :標準試料の測定時間	

9.1.3 測定結果の表示と注意事項

測定結果は,同定した核種,同定に用いたγ線エネルギー,放射能,誤差および効率の決定法 を第9.3表の如く表示する。

試料の波高分布曲線に明確なピークが存在する場合は、それぞれについて該当核種を定量する ことが出来、そして数本のエネルギーの異なる7線を放出する核種については、それぞれ独立し たピークを用いた定量結果が一致しなければならない。

それらの結果が計数誤差の3倍を考慮しても一致しない場合は、この方法を用いてはならない。 試料の測定時間は放射能強度に応じて10,000~100,000秒間測定することが望ましい。

第9.3表 測 定 結 果

核	種	γ線エネルギー	放 射 能	誤 差	効率の決定法
			D _{SA}	⊿ d _{sa}	ε _{γP}
			D _{SA}	⊿ D _{SA}	標準試料

9.2 連立方程式法

連立方程式による混在核種の定量法は既知の核種を用いてそれぞれの核種の主領域を定め、その 主領域に含まれる他核種の寄与を連立方程式を用いて解き、目的核種を分離定量する方法である。 この方法を用いて定量を行なう場合,次の条件が満たされなければならない。

- (1) 試料中に含まれる核種がすべて明確にわかっていること。
- (2) 試料中に含まれる核種について試料と同一型状の標準試料が用意されていること。
- (3) 試料を測定する場合の測定条件は標準試料を測定したときと測定時間を除き同一測定条件が保 証されていること。

上記の条件のいずれかが満たされていないか、不充分と思われる場合は、9.2.2の方法によっ て全計数率値を測定し結果のチェックを行なうか、9.1の方法によって主な核種についてクロス チェックを行なう必要がある。また(3)の条件については主としてチャネル幅の変動の割合が0.5 の以下であることが要求されるので、NaI(T1)シンチレータの温度変化を1℃以下に保つ必 要がある。

連立方程式法は核種の数が多くなるにしたがって複雑になる。核種が2~3核種の場合は比較 的簡単であるが,4核種以上の場合は逆マトリックスを用いて行うのが便利である。この際特に 注意することはチャネル幅を5.1にもとづいて0.5%以下の精度で調整する。もし調整が不充分 であったり未調整の場合はチャネル領域を9.2.3によって校正しなければならない。

イ 2核種(I-131, C_S-137)を含む試料の例

ょう素 - 131とセシウム - 137の標準スペクトル(第9.3図)から,主領域¹⁾を選び出 しバックグラウンド計数値を差し引いた主領域の計数値を N_{II} , N_{Cs} ,Cs とし,Cs 領域に おける I の寄与計数値を N_{ICs} , I領域における C_8 の寄与計数値を N_{CsI} とする。 次にそれぞれの主領域に対する寄与領域の比率を次式により求める。

試料を標準試料と同一条件で測定し,試料計数値からバックグラウンド計数値を差し引いた 総計数をヨウ素 - 131,セシウム - 137の各領域について求め,N_{S.I},N_{S.Cs}とする。 ヨウ素 - 131,セシウム - 137のみによる主領域の計数値 N_I,N_{Cs} を次の二連一次方程式 より求める。

$$N_{S,I} = N_I + N_{C_S} \cdot R_{C_S,I} \cdot \cdots \cdot (9 - 11)$$
$$N_{S,C_S} = N_{C_S} + N_I \cdot R_{I,C_S} \cdot \cdots \cdot (9 - 12)$$

求める N₁.N_C。は次の行列式となる。

1) この場合寄与領域は他の核種が一種類であるので一領域を選べばよい。

$$N_{I} = \frac{\begin{vmatrix} N_{S.I} & R_{CS.I} \\ N_{S.CS} & 1 \end{vmatrix}}{\begin{vmatrix} 1 & R_{CS.I} \\ R_{I.CS} & 1 \end{vmatrix}} \dots \dots (9 - 13)$$

$$N_{CS} = \frac{\begin{vmatrix} 1 & N_{S.I} \\ R_{I.CS} & N_{S.CS} \end{vmatrix}}{\begin{vmatrix} 1 & R_{CS.I} \\ R_{I.CS} & 1 \end{vmatrix}} \dots (9 - 14)$$

これより

$$N_{I} = \frac{N_{S.I} - R_{C_{S.I}} \cdot N_{S.C_{S}}}{1 - R_{C_{S}} \cdot I \cdot R_{I.C_{S}}} \qquad \dots \dots \dots \dots \dots (9 - 1 5)$$
$$N_{CS} = \frac{N_{S.C_{S}} - R_{I.C_{S}} \cdot N_{S.I}}{1 - R_{C_{S}} \cdot I \cdot R_{I.C_{S}}} \qquad \dots \dots \dots \dots (9 - 1 6)$$

となり、N_I、N_{Cs} と光電ビーク計数効率から、それぞれの核種の放射能が得られる。 ロ 4核種(I-131 C_S-137、B_a-140 およびK-40)を含む試料の例

各々の領域における計数値よりバックグラウンド計数値を差し引き次の方程式の組合せを作る。

(I-131)
$$N_{S,I} = N_I + N_{Ba} \cdot R_{Ba,I} + N_{Cs} \cdot R_{Cs,I} + N_K \cdot R_{K,I} \cdots (9-17)$$

(Ba-La-140) $N_{S,Ba} = N_I \cdot R_{I,Ba} + N_{Ba} + N_{Cs} \cdot R_{Cs,Ba} + N_K \cdot R_{K,Ba} \cdots (9-18)$
(Cs-137) $N_{S,Cs} = N_I \cdot R_{I,Cs} + N_{Ba} \cdot R_{Ba,Cs} + N_{Cs} + N_K \cdot R_{K,Cs} \cdots (9-19)$
(K-40) $N_{S,K} = N_I \cdot R_{I,K} + N_{Ba} \cdot R_{Ba,K} + N_{Cs} \cdot R_{Cs,K} + N_K \cdots (9-20)$
ここでRはそれぞれ主領域に対する寄与領域の比率で標準試料によってあらかじめ求めておく。

例えば,第9.3(3)図に示すバリウム - ランタン - 140の例にならって数値を入れると (I-131主領域)

 $N_{S.I} = 1.000 N_I + 0.826 N_{Ba} + 0.339 N_{Cs} + 0.347 N_K \quad \dots \dots \quad (9-21)$ (Ba-140 主領域)

$$\begin{split} N_{S,Ba} &= 0.0\,1\,8\,N_{I}\,+\,1.0\,0\,0\,N_{Ba}\,+\,0.1\,9\,4\,N_{Cs}\,+\,0.2\,2\,9\,N_{K} \quad\cdots\cdots\cdots\cdots(\,\,9\,-\,2\,2\,) \end{split}$$
 ($C_{S}\,-\,1\,3\,7\,\pm\,$ 領域)

 $N_{S.Cs} = 0.0\,6\,6\,N_{I} + 0.2\,4\,8\,N_{B\,a} + 1.0\,0\,0\,N_{Cs} + 0.3\,0\,6N_{K} \cdots \cdots \cdots \cdots (\,9-2\,3\,)$ (K - 4 0 主領域)

$$N_{S,K} = 0.000N_{I} + 0.125N_{Ba} + 0.000N_{Cs} + 1.000N_{K} \cdots \cdots \cdots \cdots (9-24)$$

となる。

この連立方程式を解くために²⁾上記の係数のマトリックスAについて逆マトリックス \overline{A} を作る。

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} 1.0\ 0\ 0 & 0.8\ 2\ 6 & 0.3\ 3\ 9 & 0.3\ 4\ 7 \\ 0.0\ 1\ 8 & 1.0\ 0\ 0 & 0.1\ 9\ 4 & 0.2\ 2\ 9 \\ 0.0\ 6\ 6 & 0.2\ 4\ 8 & 1.0\ 0\ 0 & 0.3\ 0\ 6 \\ 0.0\ 0\ 0 & 0.1\ 2\ 5 & 0.0\ 0\ 0 & 1.0\ 0\ 0 \end{bmatrix} \dots (9\ -\ 2\ 5\)$$

$$= \begin{bmatrix} 1.0\ 2\ 7\ 1 & -\ 0.7\ 8\ 5\ 2 & -\ 0.1\ 9\ 5\ 8 & -\ 0.1\ 1\ 6\ 7 \\ -\ 0.0\ 0\ 5\ 7 & 1.0\ 7\ 8\ 9 & -\ 0.2\ 0\ 7\ 4 & -\ 0.1\ 8\ 1\ 6 \\ -\ 0.0\ 6\ 6\ 6 & -\ 0.1\ 7\ 4\ 5 & 1.0\ 5\ 6\ 4 & -\ 0.2\ 6\ 0\ 2 \\ 0.0\ 0\ 7 & -\ 0.1\ 3\ 4\ 9 & 0.0\ 2\ 5\ 9 & 1.0\ 2\ 2\ 7 \end{bmatrix} \dots (9\ -\ 2\ 6\ 6)$$

この逆マトリックスから次式が作られる。

 $N_{I} = 1.0\ 27\ N_{S.I} - 0.7\ 85\ N_{S.Ba} - 0.1\ 9\ 6\ N_{S.Cs} - 0.1\ 1\ 7N_{S.K} \cdots \cdots (9-27)$ $N_{Ba} = -0.006\ N_{S.I} + 1.0\ 79\ N_{S.Ba} - 0.2\ 0\ 7\ N_{S.Cs} - 0.1\ 8\ 2\ N_{S.K} \cdots (9-28)$ $N_{CS} = -0067\ N_{S.I} - 0.1\ 7\ 5N_{S.Ba} + 1.0\ 5\ 6\ N_{S.Cs} - 0.2\ 6\ 0\ N_{S.K} \cdots (9-29)$ $N_{K} = -0.001\ N_{S.I} - 0.1\ 3\ 5\ N_{S.Ba} + 0.0\ 2\ 6\ N_{S.Cs} + 1.0\ 2\ 3N_{S.K} \cdots (9-30)$

得られた N_{I} , N_{Ba} , N_{Cs} , N_{K} はそれぞれョウ素 - 1 3 1 , バリウム - 1 3 7 , カリウム - 4 0 のみの主領域の計数値 N_{i} である。

あらかじめこの領域についての光電ピーク計数効率 ϵ_{TP} をそれぞれの i 核種について求め i 核種の放射能 D_i を

で求める。

連立方程式によって得られた放射能は予想されない核種が含まれる場合は大幅の誤差を伴う ことがあるが,不明核種が存在しない場合には原則的にいかなるエネルギー領域を選定しても 得られた結果が一致する。(後述)

2) 連立方程式を解くには、あらかじめ各係数について逆マトリックスを作っておくと便利 であり、逆マトリックスを作らない4元以上の式の場合には大変な労力がいる。逆マトリ ックスは計算機(ミニコンピューター位で10元式位まで容易に行なえる)を用いて作る ことができる。



第9.3(1)図 ヨウ素-131の標準スペクトル



第9.3(2)図 セシウム 137の標準スペクトル





-48-





-49-

- 9.2.1 連立方程式による混在核種の定量法
- (1) 5.3 にしたがってチャネルあたりの平均エネルギー幅を10 KeV に調整する。
- (2) 測定試料ならびにあらかじめ推定される核種の標準試料を測定する。測定時間は測定試料については1,000~10,000秒間を標準とし、必要に応じてその10倍程度の時間をとり、標準試料については主領域の計数誤差が1%(10,000カウント以上)以下となるように選ぶ。
- (3) 得られた波高分布曲線は,第9.4図の如く書き,測定条件に関する内容を図中に入れる。



第9.4 図 波高分布曲線

(4) 推定される核種の主領域を定め、このチャネル領域を第9.4図のA、B、C、D、E・・・・・の如く示す。それぞれの核種についてのチャネル(エネルギー)領域は、第9.4表を参考として定める。

第9.4表 連立方程式による混在核種の分離定量法に利用されるエネルギー領域の例

核種	半 減 期	主なγ線エネルギー(MeV)と放出比(%)	エネルギー領域 (MeV)
7 _{Be}	5 3.6 1 日	0.4774(10.3)	0.3 9 - 0.5 3
22 _{Na}	2.58年	{0.5110(180)}1.2745(100)	1.21 - 1.35
24 _{Na}	1 4.9 7 時間	1.3685(100), 2.7539(100)	1.27 - 1.45
40 K	1.2 5×10 ⁹ 年	1.460(11)	1.39 - 1.53
42 _K	12.52時間	0.3129(0.2), 1.5247(18)	1.4 3 - 1.6 1
46 _{Sc}	8 3.9 日	0.8892(100), 1.211(100), 2.04 : S um	0.81 ~ 0.95
51 _{Cr}	27.8日	0.3 2 1 0 (9.8)	0.2 7 - 0.3 7
54 _{Mn}	303日	0.8348(100)	0.7 5 - 0.8 9
57 _{Co}	270日	0.0144(8.4),0.1219(87),0.1363(11)	0.0 7 - 0.1 9
50-7	4 5 1 0	0.1424(0.85), 0.1922(2.8), 0.3348(0.7)	102-117
59Fe	4 5. 1 🖽	1.0993(56.5),1.2916(43.2)	1.03 - 1.17
60 _{Co}	5.26年	1.1732(100), 1.3325(100), 2.50 : Sum	125-1.39
65 _{Zn}	245日	{0.511(3.4)}, 1.1154(49)	1.03 - 1.17
76	のよび時間	0.5591(44.6),0.657(6.3),1.2162(3.4)	040-062
70As	2 0.4 叶子[8]	1.4394(0.26), 1.79(0.32), 2.0966(0.6)	0.4 9 - 0.0 3
86 _{Rb}	1 8.6 6 日	1.0788(8.8)	0.99-1.17
85 _{Sr}	64.0日	0.5140(100)	0.4 3 - 0.5 7
0.0	1045	{0.511(1.4)}, 0.8980(92), 1.8361(100)	000 007
00 Y	104	2.74 : Sum	0.03-0.97
95 _{Zr}	65日	0.7 2 4 2 (4 3) , 0.7 5 6 7 (5 4.6)	0.6 9 - 0.8 3
95 _{Nb}	35日	0.7658(99)	0.69-0.83
0.0		0.0406(6.3),0.1405(95),0.1811(7.6)	000 010
99Mo	いりい いい いい いうしょう いち いうしょう いちん いいちょう しょうしょう ひょうしょう しょうしょう ひょうしょう しょうしょう ひょうしょう しょうしょう しょう	0.3817(0.01), 0.7397(14), 0.922:Sum	0.09-0.19
103 _{Ru}	39.8日	0.0398(0.07),0.4971(90),0.6103(5.6)	0.4 3 - 0.5 7
106 _{Rh}	30秒	0.51180(20.5),0.61620(0.81),0.62180 (9.76)	0.4 3 - 0.5 7

核種	半减期	主な γ線エネルギー(MeV)と放出比(%)	エネルギー領域 (MeV)
		0.6027(98),0.645(8),0.7228(14)	
1.2.4	6000	0.9683(1.72),1.0451(1.84),1.3255(1.47)	1 " 0 - 1 9 1
124 Sb	00.9日	1.3683(2.45),1.45(2),1.6910(45.7)	1.5 9 - 1.8 1
		2.0912(5.2), 2.294 : Sum	
125 a	20年	0.0353(0),0.1764(7.2),0.4279(30.4),	0 2 7 - 0 4 9
125Sb	2. 0 4-	0.4634(10.7),0.6006(18.1),0.6359(11.5)	0.37 0.49
131 -	8080	0.0802(2.6),0.2843(5.4),0.3645(82),	0.21 - 0.41
	0.00Ц	0.637(6.8),0.723(1.6)	0.51 0.41
		0.3753(1.5),0.5692(14),0.5631(8),	
134 _{Cs}	2.07年	0.6046(98), 0.7958(88), 1.0384(1.1),	0.7 3 - 0.8 7
		1.1677(1.9), 1.3650(3.4)	
137 _{Cs}	30年	0.66160(86)	0.5 9 - 0.7 3
		0.0532(1.95),0.0810(36),0.2763(7.5),	
133 _{Ba}	7.2年	0.3027(19.6),0.3559(67),0.3837(9.4),	0.3 1 - 0.4 3
		0.436 : Sum	
140 5	128日	0.030(11),0.1627(6),0.3049(6),	0 1 3 - 0 5 7
Ттова	12.0 Ц	0.4238(5),0.4376(5),0.5373(34)	0.40 0.01
141 _{Ce}	3 3.1 日	0.1454(48)	0.0 9 - 0.1 9
1440	285日	0.0336(0.15),0.0409(0.5),0.0534(0.09),	0.0.0 - 0.1.9
Ce		0.0801(1.54),0.1335(10.8)	0.0 9 0.1 5
		0.0911(30),0.1967(0.1),0.2754(1.5),	
147 _{Nd}	11.06日	0.3194(2.9),0.3982(1.6),0.4103(0.1)	0.4 5 - 0.5 9
		0.4398(1.9),0.5310(15),0.6859(1)	
198 _{Au}	2.697日	0.4118(95),0.6759(1),1.0877(0.2)	0.35-0.49
203 _{Hg}	46.9日	0.2791(77)	0.21 - 0.35

第9.5表 測 定 結 果

チャネル領域	計数值	誤 差

- (6) 推定される核種については、主領域の計数値を1とし、他の寄与領域の割合を算出する。
- (7) 推定される核種について、お互いの寄与係数を第9.6表の如く示す。

(8) (7)の逆マトリックスを第9.7表の如く示す。

第9.6表 寄 与 計 数

第9.7表 第9.6表の逆マトリックス



- (9) 試料の各領域の計数値と第9.7表の逆マトリックス係数kijを用いて,試料中に含まれる核種の主領域の計数値を算出する。i 核種の主領域の計数値は各主領域 j の計数置をNj とし、 <u>ン</u>kij Nj で求める。
- (10) 主領域の計数効率をそれぞれの核種について第9.8表の如く示す。

第 9.8 表 主領域の計数効率

核種	主領域	計数效率				
a	А	$\varepsilon_{\mathrm{TP}}$ (a)				
b	В	$arepsilon_{\mathrm{TP}}$ (b)				
с	C	ε _{TP} (c)				

(1) 計数値の誤差計算は、チャネル領域の計数値をNとすれば、 \sqrt{N} として記載する。 (1) 核種 a の主領域の計数値 N_a は、

 $N_{a} = k_{a}\bar{A} \cdot N_{A} + k_{a}\bar{B} \cdot N_{B} + k_{a}\bar{C} \cdot N_{C} + k_{a}\bar{D} \cdot N_{D} + \cdots \cdots \cdots \cdots (9 - 32)$

で求める

(13) 計数誤差 ⊿Na は

$$\Delta N_{a} = \sqrt{k_{a} A^{-2} (N_{A} + B_{A}) + k_{a} B^{-2} (N_{B} + B_{B}) + \dots + (9 - 3 3)}$$

で求める。

 $N_{A'}, N_{B'}$: i 核種のチャネル領域におけるバックグラウンド計数値を含む計数値

(14) 核種 a の放射能 Da は,

 $D_a = N_a / (\epsilon_{TP}(a) \cdot t)$ (9-34)

誤差 ΔD_a は, $\pm \Delta N_a / (\varepsilon_{TP}(a) \cdot t)$ で求める。

9.2.2 連立方程式法における全計数率チェック

連立方程式法によって求めた推定核種の量は,推定核種以外の不明核種が存在しない場合には チャネル領域をどのように選んでも,標準試料の合成スペクトルと一致する。したがって,連立

3) バックグラウンドと試料の測定時間は同じであること。

方程式法によって求めた推定核種の量に相当する標準試料の全エネルギー領域の積算値をそれぞ れ求めた推定核種の量について加え合わせたものは,試料の波高分布曲線の全エネルギー領域の 積算値と一致しなければならない。この両数値の差が計数誤差の3倍を超える場合は,この方法 によって求めた数値を採用してはいけない。これを連立方程式法における全計数率チェックとい う。このチェックは,次の手順によって行う。

- (1) 推定核種の標準試料についての波高分布曲線の全計数率値N'Tiを求める。
- (2) 標準試料の放射能を $D'_i(\mu C_i)$ とし,単位放射能(μC_i)当りの全計数率値 N_{Ti} を

 $N_{Ti} = N'_{Ti} / D'_{i} \cdots (9 - 35)$

で求める。

- (3) 9.2.1 によって得られた試料中に含まれる推定核種の放射能を Di とする。
- (4) 試料中に含まれる推定核種の全計数率値 NT は

$$N_T = \frac{\Sigma}{i}$$
 $N_{Ti} D_i$ ··········(9-36)で求める。

(5) 計数誤差 **Δ**N_T⁴⁾は

$$\Delta N_{\rm T} = \sqrt{\frac{\Sigma}{\rm i} (N_{\rm T\,i} \cdot \Delta N_{\rm i} / N_{\rm i} \cdot D_{\rm i})^2}$$

- (6) 試料の全計数率値 N'_T を求める。
- (7) N'TとNTの差が計数誤差の3倍を超える場合は、このチェックが不合格となる。

9.2.3 チャネル領域の校正法

一般にγ線スペクトルを表現する方法として, チャネル番号を検出体内で吸収されたエネルギ ー換算して表わす。これはお互いの結果を比較する場合に便利である。γ線スペクトロメータに よって得られたこれらの測定結果は測定器の保守,取扱い,周囲温度などにより同一試料の繰り 返し測定を行っても必ずしも一致した結果が期待できないし,また,他の測定機器によって得ら れた結果と比較する場合も,それぞれの測定器の特性(基準点,直線性),測定条件(チャネル 幅,測定時間)が異なるため問題があり,これを統一するのがチャネル領域の校正である。

特に連立方程式法によって核種の定量を行う場合には,チャネル領域の厳密な校正が必要である。

次にこの校正法を示す。

試料を測定し、この結果得られた波高分布曲線またはこれと同条件で測定した標準試料の波高

4) ここで, \emph{D} N $_{\mathrm{T}}$ \gg \emph{D} N $'_{\mathrm{T}}$

分布曲線から既知の γ線エネルギーのピークチャネル値を 5.5 の方法によって求める。これらの 値から 2 点用い,その中間または近傍領域について内挿または外挿によってチャネル番号とエネ ルギーの関係を求める。 5.1 によって得られたチャネルと γ線エネルギーの関係が非直線の場合 は 3 点を用い,二次式によって求めることが望ましい。

ー般式としては,第9.5図の如く得られた波高分布曲線からピークチャネル値 P_1 , P_2 , P_3 ····· P_i を求め,そのエネルギー,チャネル番号をそれぞれ E_1 , E_2 , E_3 ····· E_i , n_1 , n_2 n_3 ····· n_i とする。また求めるエネルギー領域を〔 E_L , E_n 〕,チャネルを〔 n_L , n_n 〕とする。

今エネルギー領域の下限 E_L および 上限 E_n が E_2 , E_3 間にあった場合には,内挿法によって次式によって n_L , n_n を求めることができる。

 $E_{2} = k n_{2} + \Delta n \cdots (9-38)$ $E_{3} = k n_{3} + \Delta n \cdots (9-39)$ $E_{L} = k n_{L} + \Delta n \cdots (9-40)$ $E_{n} = k n_{n} + \Delta n \cdots (9-41)$

すなわち(9-38),(9-39)式 よりk, In を求め(9-40), (9-41)にk, Inを代入すること によって得られる。



第9.5図 波高分布曲線

また,二次式で行う場合には,

 $E_{1} = kn_{1}^{2} + k' n_{1} + \Delta n \cdots (9 - 4 2)$ $E_{2} = kn_{2}^{2} + k' n_{2} + \Delta n \cdots (9 - 4 3)$ $E_{3} = kn_{3}^{2} + k' n_{3} + \Delta n \cdots (9 - 4 3)$ $E_{3} = kn_{3}^{2} + k' n_{3} + \Delta n \cdots (9 - 4 4)$ $E_{3} = kn_{3}^{2} + k' n_{2} + \Delta n \cdots (9 - 4 5)$ $E_{3} = kn_{3}^{2} + k' n_{3} + \Delta n \cdots (9 - 4 6)$ $E_{4} = kn_{4}^{2} + k' n_{4} + \Delta n \cdots (9 - 4 7)$

のいずれかによってk,k', 1nを求め

$$E_{L} = kn_{L}^{2} + k'n_{L} + \Delta n \cdots (9 - 48)$$
$$E_{n} = kn_{n}^{2} + k'n_{n} + \Delta n \cdots (9 - 48)$$

 $に k, k', 4 n を 代入して n_L, n_n を 求める。$

このエネルギー領域の計数値を求める方法では、nLを切り上げたチャネルnL'から、nnを切り捨てたチャネルnn なでの積算値にnL, nnの端数の計数値を加えなければならない。端数の計数値はそれぞれ切り上げ、切り捨てたチャネル数の補数値(0.1を切り捨てた場合0.1)を dn_L , dn_n とし、nL', n_n' , nL'-1 $n_{n'+1}$ の計数値 NL', Nn', NL'-1, Nn'+1とすれば次式により端数の計数値が求められる。

$$\sum_{nL'}^{nL'} N = N_{L'} \times \Delta n_{L} + \frac{N_{L'-1} - N_{L'}}{2} \times \Delta n_{L}^{2} - \frac{3}{8}N_{L}' - \frac{1}{8}N_{L-1}'$$
$$\sum_{nN'}^{nN} N = N_{n'} \times \Delta n_{N} + (N_{N+1}' - N_{N}') \times \Delta n_{N}^{2} \times \frac{1}{2} - \frac{3}{8}N_{N}' - \frac{1}{8}N_{N+1}'$$

$$E_{L} \downarrow b E_{n} \odot x \wedge x - 領域間の計 N_{L}^{-1}$$
数値が得られる。すなわち
$$\sum_{E_{L}}^{E_{n}} N \iota ,$$

$$\sum_{E_{L}}^{E_{n}} N = \sum_{n_{L}}^{n_{L}'} N + \sum_{n_{n'}}^{n_{n}} N + \sum_{n_{L'}}^{n_{n'}} N$$
.....(9-52)
$$N_{L}^{-1}$$

$$N_{L}^{-1}$$

$$N_{L}^{-1}$$

となる。

このように校正されたチャネル領域は, ア線エネルギーで表わされた場合,標準 試料を含め多くの試料について共通して 使用することができる。

これを $\Sigma_{n,i}^{n,n'}$ N に加算すれば,



4) 括弧内はマイナスになる場合もある。

第10章 記録および報告

10.1 測定上の記録

測定に際しては、次の項目についてそれぞれ記録しておく必要がある。

- 測定装置(増巾器,高圧電源,波高分析器など)
 製造社名,型式,全チャネル数,記憶容量,データー読み取り方式など。
- 2. Na I(T1)検出器

製造社名,シンチレーター(寸法,JISまたは型式),光電子増倍管(型式,寸法),前置 増幅器,しゃへい体(厚さ,寸法,材質)

3. 測定条件

試料番号,測定年月日,試料名,試料形状,試料重量または容量,試料容器,測定開始時刻, 測定時間,測定位置,高圧印加電圧,増幅度(ゲイン),パルス波型,使用チャネル,チャネル 幅,データー処理方法

などである。

10.2 報告様式

報告様式の一例を次に挙げる。

γ線スペクトロメトリーによる核種分析結果

波	高分析装置		社製	型			
操	NaI(T1)		"ф × "	分解能 %			
授	ħ⊄ L1	JIS	·				
L	* ~ い 体	材質		mm 厚			
設	高圧印加電圧		v				
	増 幅 度	COARSE	FINE				
下	チャネル幅		KeV/ch				
置	使用チャネル数	c h					

-59-

昭和		年	J.]	 日		
担当	機 関	名					
主任	担当	者					
担	当	者					

試料 番号	試 料 名	採 取 年月日	1) 採取 場所	、試料な処	2) その形状 よび 理法	測定 容器	測 定 供試量	測 定年月日	測定時間	3) 検出 核種	γ線エネ ルギー 領 域	光電ビーク のチャネル 領 域	検出 効率 (%)	放射能濃度 pCi /kg 生または l	データー解析法	備	考
								1				-					
·	<u></u>	<u> </u>	<u> </u>														
				<u> </u>			1										
								1	1							÷	
				+	<u></u>			1					· ·				
注	 注 1) 採 取 場 所 : 採取地名の他採取層などを記入すること。 2) 試料の性質 : 試料の物性,供した試料の部位および未処理,風乾,灰化処理などの別を記入すること。 3) 検 出 核 種 : 核種の同定の具体的な手法を備考欄に記入すること。 																

1. 海水中に放出される可能性の

ある核種

核 種	半減期	生成
3 H	12.26年	A
51 Cr	27.8日	С
54 Mn	303日	С
59 _{Fe}	45日	С
58 Co	7 1.3日	С
60 Co	5.26年	С
65 _{Zn}	245日	С
⁸⁹ Sr	52日	F
90 Sr	28.1年	F
⁹⁹ Tc	2.12×10 ⁵ 年	F
131 _I	8.0 5日	F
134 Cs	2.07年	F.A
137 _{Cs}	30年	·F

A: ACTIVATION C: CORROSION F: FISSION 2. 空気中に放出される可能性の

ある核種

核種	半減期	生成
³ H	12.26年	А
^{4 1} Ar	1.83時間	А
⁸⁵ Kr	10.76年	F
85m Kr	4.4時間	F
87 _{Kr}	76分	F
88 _{Kr}	2.8時間	F
⁸⁹ Sr	52日	F
⁹⁰ Sr	28.1年	F
131 _I	8.05日	F
133 _I	21時間	F
135 I	6.7時間	F
133 _{Xe}	5.27日	F
135 _{Xe}	9.2時間	F
135m Xe	15.6分	F
138 _{Xe}	17分	F
134 _{Cs}	2.07年	F.A
137 _{Cs}	3 0 年	F



 $10^2 \downarrow 0$

200 400

600

800

高

波

値

1000 1200 1400 1600 1800 2000 2200 2400 2600





-62-

(7) クロム - 51



(8) マンガン-54



(9) 鉄-59





(1) コバルトー60

(12) 亜 鉛-65



(13) ヒ 素-76





(15) ストロンチウムー85

(16) イットリウム-88



(17) ジルコニウム+ニオプー95



(18) モリプデン-99





-66-



24) セシウム-134

(25) セシウムー137



(26) バリウム-133

(27) バリウムー140



(28) セリウムー141

(29) セリウム+プラセオジウムー144


(30) ネオジウム-147













-70-



(34) ウラン系列





附図2 土壌および海底堆積物の波高分布曲線の一例



47年2月1日氏名 年月日 NaI(T1) $3''\phi \times 3''$ Detector B(-) SMALL×2 EXD-GAN 測 $B\frac{1}{1}$ 0.8GAIN 定 0.03 Zero L // 条 н. v 1010VLinear 件 Amp $Time(Sec) | 1 \times 10^4$ 壌 サンプル名 土 サ 状 風 乾 土 形 \sim 器 基準マリネリビーカ 容 プ 量 2.0 kg 重 ル 考 備



年月日	47年2月1日	氏名
	Detector	Na I (T I) $3'' \phi \times 3''$
測	Exp.GAIN	B(-) SMALL×2
定	GAIN	в V ₁ 0.8
タ	Zero L	// 0.0 3
	$H \cdot V$	1010 V
件	Linear Amp	
	Time(Sec)	1×10^4
	サンプル名	海底堆積物
サ	形 状	風乾土
レプ	容 器	基準マリネリビーカ
n	重量	2.0 kg
	備考	

(2) 海底堆積物の波高分布曲線(例)

-75-

文部科学省放射能測定法シリーズ

1.	全ベータ放射能測定法	昭和	51	年	9	月	(2言	1)	
2.	放射性ストロンチウム分析法	昭和	58	年	12	月	(3 訂	1)	
3.	放射性セシウム分析法	昭和	51	年	9	月	(1 訂	J)	
4.	放射性ヨウ素分析法	平成	8	年	3	月	(2言	1)	
5.	放射性コバルト分析法	平成	2	年	2	月	(1 言	1)	
6.	NaI(TI) 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	1	月			
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								
		平成	4	年	8	月	(3言	1)	
8.	放射性ジルコニウム分析法	昭和	51	年	9	月			
9.	トリチウム分析法	平成	14	年	7	月	(2言	1)	
10.	放射性ルテニウム分析法	平成	8	年	3	月	(1言	1)	
11.	放射性セリウム分析法	昭和	52	年	10	月			
12.	プルトニウム分析法	平成	2	年	11	月	(1 訂	1)	
13.	ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の	前処理	里注	ż					
		昭和	57	年	7	月			
14.	ウラン分析法	平成	14	年	7	月	(2言	1)	
15.	緊急時における放射性ヨウ素測定法	平成	14	年	7	月	(1 言	I)	
16.	環境試料採取法	昭和	58	年	12	月			
17.	連続モニタによる環境γ線測定法	平成	8	年	3	月	(1言	1)	
18.	熱ルミネセンス線量計を用いた環境ヶ線量測定法	平成	2	年	2	月	(1言	1)	
19.	ラジウム分析法	平成	2	年	2	月			
20.	空間ヶ線スペクトル測定法	平成	2	年	2	月			
21.	アメリシウム分析法	平成	2	年	11	月			
22.	プルトニウム・アメリシウム逐次分析法	平成	2	年	11	月			
23.	液体シンチレーションカウンタによる放射性核種分析法	平成	8	年	3	月	(1言	1)	
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							
		平成	4	年	8	月			
25.	放射性炭素分析法	平成	5	年	9	月			
26.	ヨウ素-129分析法	平成	8	年	3	月			
27.	蛍光ガラス線量計を用いた環境ヶ線量測定法	平成	14	年	7	月			
28.	環境試料中プルトニウム迅速分析法	平成	14	年	7	月			

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 1月 制定
昭和 52 年 11 月 1 日 第 1 刷 発行
平成 15 年 8 月 29 日 第 8 刷 発行
発 行 所
財団法人 日 本 分 析 セ ン タ ー
〒263-0002 千葉県千葉市稲毛区山王町 295-3
電 話 (043) 423-5325(代表)
(043) 424-8663(直通)
F A X (043) 423-4071