

生薬等の放射性物質測定ガイドライン

平成23年12月

日本製薬団体連合会

目次

第1章 総説	6
1-1 背景及び目的	6
1-2 生薬等中の放射性物質の現状	7
1-3 用語の定義	8
1-4 ガイドラインの適用範囲	9
1-5 測定法等の選択	9
1-6 留意事項	10
<参考>	13
参考 1-1 放射能測定と化学物質測定との相違点	13
第2章 試料の採取、調製、保存及び運搬	14
2-1 試料の採取、調製、保存及び運搬操作	14
2-2 器具	14
(1) ポリエチレン袋	14
(2) 試料採取のための補助器具	15
第3章 ゲルマニウム半導体検出器を用いるガンマ線スペクトロメトリーによる放射能測定法	16
3-1 測定法の特徴	16
3-1-1 測定対象核種	16
3-1-2 測定法の特徴	16
3-1-3 測定の流れ	17
3-2 機器・器具等	18
3-2-1 機器	18
(1) ゲルマニウム半導体検出器	18
(2) 遮へい体	18
3-2-2 器具等	19
(1) 試料容器	19
(2) エネルギー校正用線源	19
(3) 効率校正用線源	19
(4) スペクトル解析ソフトウェア	19
3-3 機器校正	20
3-3-1 エネルギー校正	20
3-3-2 効率校正	20
3-4 測定操作	20
3-4-1 事前準備及び確認事項	20

(1) 機器の動作確認と設定.....	20
(2) バックグラウンド測定.....	21
3-4-2 測定手順.....	21
3-4-3 解析手順.....	21
(1) ピーク領域の設定.....	21
(2) ピーク面積の算出.....	22
(3) バックグラウンド計数率の差し引きと計数の統計による不確かさの算出.....	22
(4) 放射能の算出.....	22
(5) 検出に関する不確かさ.....	23
(6) 定量下限値の記録.....	23
(7) 測定結果の検討・評価.....	23
3-4-4 報告及び記録.....	23
3-5 測定実施の注意点.....	24
3-5-1 バックグラウンドの管理.....	24
3-5-2 機器、器具等の汚染防止.....	24
3-5-3 機器の日常管理.....	25
<参考>.....	25
参考 3-1 ガンマ線スペクトル測定システム.....	25
参考 3-2 ゲルマニウム半導体検出器の例.....	25
参考 3-3 検出器の冷却装置.....	26
参考 3-4 前置増幅器と主増幅器.....	26
参考 3-5 マルチチャンネル分析器.....	26
参考 3-6 試料容器について.....	27
参考 3-7 増幅器ゲイン調整及びエネルギー校正手順例.....	27
参考 3-8 ガンマ線スペクトル例とピーク領域 (ROI).....	28
参考 3-9 バックグラウンドスペクトルの例.....	28
参考 3-10 ピーク面積の算出例.....	28
参考 3-11 自己吸収の補正.....	29
参考 3-12 サム効果の補正.....	29
参考 3-13 試料容器及び測定時間の違いによる ^{36}C の計算例.....	30
第4章 シンチレーションスペクトロメータによる放射能測定法.....	33
4-1 測定法の特性.....	33
4-1-1 測定対象核種.....	33
4-1-2 測定法の特徴.....	33
4-1-3 測定の流れ.....	34
4-2 機器・器具等.....	35

4-2-1 機器の構成.....	35
(1) 検出器.....	35
(2) 遮へい体.....	35
(3) 試料台.....	35
4-2-2 器具等.....	36
(1) 試料容器.....	36
(2) エネルギー校正用線源.....	36
(3) 効率校正用線源.....	36
(4) スペクトル解析ソフトウェア.....	36
4-3 機器校正.....	37
4-3-1 エネルギー校正.....	37
4-3-2 効率校正.....	37
4-4 測定操作.....	37
4-4-1 事前準備及び確認事項.....	37
(1) 機器の動作確認と設定.....	37
(2) バックグラウンド測定.....	38
4-4-2 測定手順.....	38
4-4-3 解析手順.....	38
(1) ピーク領域の設定.....	38
(2) 核種同定.....	38
(3) ピーク面積の算出.....	39
(4) 放射能の算出.....	39
(5) 定量下限値の算出.....	39
(6) 測定結果の検討・評価.....	40
4-5 報告及び記録.....	40
4-6 測定実施の注意点.....	40
4-6-1 温度の影響.....	40
4-6-2 バックグラウンド.....	41
4-6-3 測定器の汚染.....	41
<参考>.....	41
参考 4-1 スペクトル測定のためのシンチレーション検出器の種類.....	41
参考 4-2 シンチレータとゲルマニウム半導体検出器との性能の比較.....	41
参考 4-3 検出効率の算出に塩化カリウムの水溶液を用いる方法.....	43
参考 4-4 ピークの重なりによる妨害.....	43
参考 4-5 遮へい効果.....	43
参考 4-6 測定時間と感度.....	43

第5章 NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ・計数装置によるスクリーニング法	45
5-1 測定法の特徴	45
5-1-1 測定対象核種	45
5-1-2 NaI シンチレーション式サーベイメータによるスクリーニング法	46
5-1-3 NaI シンチレーション計数装置によるスクリーニング法	46
5-1-4 利用条件	46
5-2 機器・器具等	47
5-2-1 機器	47
(1) NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ	47
(2) NaI シンチレーション計数装置	47
(3) 遮へい体	47
5-2-2 器具等	48
(1) 試料容器	48
(2) チェック用線源	48
(3) その他	48
5-3 機器校正及び事前準備	48
5-3-1 バックグラウンドの測定	48
5-3-2 チェック用線源(¹³⁷ Cs 線源)による機器作動状態の確認	48
(1) 計数率方式	48
(2) 積算計数方式	49
5-3-3 検出限界値の確保	49
5-4 測定操作	50
5-4-1 測定手順	50
(1) 計数率方式	50
(2) 積算計数方式	50
5-4-2 解析手順	50
5-5 測定実施の注意点	51
5-5-1 バックグラウンドの違い	51
5-5-2 測定器等の汚染	51
5-5-3 測定結果の取扱い	51
<参考>	52
参考 5-1 試料容器のタイプと検出器—線源間の空間的位置関係 (ジオメトリ)	52
参考 5-2 測定方法による測定精度	53
参考 5-3 検出限界値の算出方法	53
参考 5-4 NaI(Tl)シンチレーション検出器の濃度換算係数の例	55

第1章 総説

1-1 背景及び目的

日本製薬団体連合会（以下、「日薬連」という）は、今秋の主な国内産生薬の採取・収穫時期を迎えるにあたり、食品の放射性物質に関する国の指示対象自治体及びその隣接自治体である17都県¹（以下、「対象17都県」という）から産出される生薬の実態把握を行い、必要な注意喚起を行うため、また本ガイドライン策定のため、当該生薬の購入又は購入予定の有無ならびに放射性物質の検査結果の実態についての調査を、日本漢方生薬製剤協会（以下、「日漢協」という）に要請した。平成23年10月14日に日漢協から調査結果²が報告されたことから、日薬連は、日漢協が取りまとめた調査結果を「生薬等の放射線に関する取り組みについて（第一報）」として厚生労働省監視指導・麻薬対策課（以下「監・麻課」という）に報告した。当該報告を受け、監・麻課から、平成23年10月14日付け薬食監麻発1014第1号厚生労働省医薬食品局監視指導・麻薬対策課長通知「放射性物質に係る漢方生薬製剤の取扱いについて」（以下、「監・麻課長通知」という）が発出された。

監・麻課長通知では、生薬及び生薬を原料とした漢方生薬製剤における放射性物質に関する取扱いについて、次のように示された。

1. 医薬品の製造販売業者は、安全確保に万全を期すため、平成23年4月4日に原子力災害対策本部から示された「検査計画、出荷制限等の品目・区域の設定・解除の考え方（最終改正：平成23年8月4日）」において対象とされている自治体から東日本大震災以降に産出された漢方生薬製剤原料生薬（以下「対象原料生薬」という。）を使用して製造された漢方生薬製剤を、現時点において出荷していないことについて、速やかに自己点検を行うこと。また、自己点検の結果、万一該当する製剤があった場合は、速やかに当課に報告するとともに、当該製剤を自主的に回収すること。
2. 今後対象原料生薬を使用して製造される漢方生薬製剤については、当分の間、以下のとおり取り扱うこと。なお、以下の放射性物質の検査に係る適切な方法については、追って通知する予定であること。

- (1) 製造業者又は製造販売業者は、対象原料生薬を購入した又は購入を予定する場合にあっては、産出した市町村単位毎（当該対象原料生薬が、野生であることその他採取方法等の事情により産地たる市町村を特定できない場合

¹ 平成23年8月4日現在、対象自治体は、福島県、茨城県、栃木県、群馬県、千葉県、神奈川県、宮城県、岩手県、青森県、秋田県、山形県、新潟県、長野県、埼玉県、東京都、山梨県及び静岡県。

² 平成23年10月14日付け日漢協発第1093号「生薬等の放射線に関する取り組みについての報告」

を除く。)に、放射性物質の検査を実施すること。

- (2) 製造業者又は製造販売業者は、上記(1)の検査の結果を踏まえ、対象原料生薬についてその使用単位(以下「ロット」という。)毎に別途精密な方法により放射性物質の検査を実施するとともに、当該検査の結果、放射性物質が検出限界以下であることの確認を徹底すること。

ただし、上記(1)の検査が精密な方法により実施され、かつ当該ロットに係る(1)の検査の結果がいずれも検出限界以下である場合にあっては、別途検査を実施する必要はないこと。

- (3) 対象原料生薬については、収穫時、加工時等における洗浄を徹底すること。
(4) 製造販売業者は、対象原料生薬を使用して製造された漢方生薬製剤を出荷する場合にあっては、最終製品たる漢方生薬製剤においても、(2)の精密な方法を用いて検査した場合に放射性物質が検出限界以下であることを確認すること。

なお、対象原料生薬の放射性物質に係る管理及び当該漢方生薬製剤の製造工程管理により、最終製品中の放射性物質が、(2)の精密な方法を用いて検査した場合に検出限界以下であることが確認できる場合にあっては、必ずしも、その製造単位毎に、最終製品に係る放射性物質の検査を実施する必要はないこと。

日薬連はこれまで、生薬等の放射能汚染に関し、傘下団体の加盟会社に係る製造販売業者ならびに製造業者等が、検査の用途や必要な検査精度に応じて適切に分析法の選択を行い、また、原料生薬や最終製品の放射能の測定を適切に行うため、試料の採取等の方法、測定法ごとの使用方法や留意点を示すことを目的としたガイドラインについて検討してきたところであるが、日漢協による実態調査結果や監・麻課長通知の内容も踏まえ、今般、本ガイドラインを策定することとした。

1-2 生薬等中の放射性物質の現状

前述の日漢協による、対象17都県からの生薬に関しての実態調査では、購入又は購入予定の当該生薬について、その時点で入手されたものを検体としていたが、その測定は、平成14年5月9日付け事務連絡「緊急時における食品の放射能測定マニュアルの送付について」(放射能測定マニュアル)に掲げられているNaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ及びゲルマニウム半導体検出器を用いた検査法のほか、「放射能測定マニュアル」には掲げられていない、NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いた検査法でも実施されていた。

調査の結果、地上部の部位を使用する9生薬で放射性物質(放射性セシウム)が確認

され、このうち3生薬については、食品衛生法に基づく暫定規制値（500 Bq/kg）を超えた放射性物質（放射性セシウム）が確認された。

なお、最終製品の一部についても検査が実施されたが、測定した検体からは放射性物質は確認されていない。

1-3 用語の定義

本ガイドラインの運用上、以下の通り用語を定義する。

- ・生薬

第十六改正日本薬局方生薬総則においては、『動植物の薬用とする部分、細胞内容物、分泌物、抽出物又は鉱物などをいう。』とあり、一般的には、乾燥したものである。

- ・原料生薬

漢方生薬製剤の原料として用いる生薬で、水洗や土砂の除去などの加工調製がほどこされたもの。

- ・生薬等

生薬及び漢方生薬製剤をいう。

- ・対象原料生薬

平成23年4月4日に原子力災害対策本部から示された「検査計画、出荷制限等の品目・区域の設定・解除の考え方（最終改正：平成23年8月4日）」において対象とされている自治体から東日本大震災以降に産出された漢方生薬製剤原料生薬をいう。

- ・漢方生薬製剤

漢方製剤と生薬製剤を包含した名称。漢方製剤とは漢方理論に基づき、生薬からの抽出物（エキス剤、流エキス剤等）あるいは生薬の刻み、粉末を一種類以上使用して製した製剤。一方、生薬製剤とは、生薬からの抽出物（エキス剤、流エキス剤等）あるいは生薬の刻み、粉末を一種類以上使用して製した製剤で、化学医薬品や添加剤が含有されることもある。なお、漢方生薬製剤としては内用剤及び外用剤の別はない。

- ・生薬産地

生薬の原料となる動植物鉱物を収穫（栽培品）又は採取（野生品）した場所をいう。

- ・加工調製

生薬を生産するために行う、原料への水洗、乾燥、土砂や非薬用部位の除去などの作業をいう。

- ・集荷地

生薬産地から生薬の原料又は原料生薬が集荷される場所をいう。

- ・最終製品

製造販売業者が出荷判定する直前のものをいう。

- ・中間製品

最終製品に至るまでの、エキスや刻み・粉末生薬の集合体及びそれらを使用して製造されたバルクなどをいい、原薬として他製造業者に販売されるものを含む。

- ・スクリーニング

放射性物質による汚染の有無を放射線量の測定等により評価、判定し、必要な処置を行うためにふるい分けをすること。

1-4 ガイドラインの適用範囲

平成23年3月11日以降、対象17都県から産出された対象原料生薬及びこれを使用して製造された漢方生薬製剤を、本ガイドラインの適用範囲とする。ただし、平成23年3月11日以前に産出された漢方生薬製剤原料生薬であっても、その保管状況から放射性物質の汚染が懸念される場合には、当該漢方生薬製剤原料生薬及びこれを使用して製造された漢方生薬製剤も本ガイドラインの適用範囲とする。

なお、本ガイドラインが対象とする核種は、原子力安全委員会の定める飲食物摂取制限に関する指標の対象となる放射性物質のうち、現在、食品等において主として検査が実施されている放射性ヨウ素及び放射性セシウムとする。

1-5 測定法等の選択

前述の監・麻課長通知においては、対象原料生薬の使用及びこれを使用して製造された漢方生薬製剤を出荷する場合にあっては、「精密な方法を用いて検査した場合に放射性物質が検出限界以下であることを確認すること。」とされている。食品中の放射性物質の測定法等を踏まえると、精密な方法としては、ゲルマニウム半導体検出器を用いた検査法が適当であると考えられる。すなわち、監・麻課長通知に照らせば、現時点にお

いては、ゲルマニウム半導体検出器を用いて検査し、放射性物質が定量下限値以下³であることが必要である。

なお、この場合の定量下限値は、¹³¹I、¹³⁴Cs及び¹³⁷Csの3核種において各々20Bq/kg以下とする。

今後、国として新たな規制値の設定などがあつた場合は、必要に応じてあらためて検討するものとする。

また、現在、対象原料生薬の産地や集荷地等での確認のため、シンチレーションスペクトロメータやNaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータを活用する場合もあることから、これらを適切に活用する方法については、「水道水等の放射能測定マニュアル」(平成23年10月・厚生労働省健康局水道課)を参考とし記載した。

1-6 留意事項

製造販売業者又は製造業者は以下の事項に留意することとする。

(1) 対象原料生薬について

- ① 産出した市町村を特定し、その市町村単位毎に放射性物質の検査を行うこと。ただし、当該対象原料生薬が、野生であることその他採取方法等の事情により産地たる市町村を特定できない場合はこの限りでないが、その場合、⑤の検査を必ず実施すること。
- ② ①の検査方法としては、シンチレーションスペクトロメータやNaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータを用いるか、又はゲルマニウム半導体検出器による検査法を用いること。シンチレーションスペクトロメータやNaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータを用いて放射性物質が検出されたことが確定した場合、又はゲルマニウム半導体検出器により定量下限値を超えて放射性物質が検出された場合は、当該対象原料生薬は漢方生薬製剤の製造に使用しないこと。
- ③ 採取地、栽培地、集荷地、加工場所等を考慮し、品質ができる限り一定な集合をロットとすること。
- ④ 可能な限り、収穫時、加工時等における洗浄、土砂の除去を徹底すること。(例えば、水洗浄や非薬用部位の除去)
- ⑤ 対象原料生薬を使用する、又は出荷しようとする際は、⑥の場合を除き、必ずロット毎にゲルマニウム半導体検出器を用いて測定し、放射性物質が定量

³ 監・麻課長通知で「精密な方法を用いて検査した場合に放射性物質が検出限界以下であることを確認すること。」とあるが、本ガイドラインでは、当該通知でいう検出限界以下であることについて、検査機関の実態等に鑑み、『放射性物質が定量下限値以下』であることと解釈した。

下限値以下であることを確認すること。なお、新たな規制値等が設定された場合は、これに準じる。

- ⑥ ①において、市町村単位毎にゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性物質の検査を実施し、その結果、ロットを構成する全ての対象原料生薬において放射性物質が定量下限値以下であることが確認された場合にあっては、別途⑤の検査を実施する必要はないこと。

(2) 漢方生薬製剤に用いる日本薬局方「常水」について

水道における重点モニタリング地域⁴の漢方生薬製剤の製造業者は、製造に用いる日本薬局方「常水」については、当該水道事業者又は水道用水供給事業者での放射性物質に関する検査結果を確認すること。検査結果が入手できない場合には、「水道水等の放射能測定マニュアル」（平成23年10月・厚生労働省健康局水道課）を参考とし、定期的に検査を実施すること。

(3) 中間製品について

対象原料生薬を使用して製造された中間製品を出荷する場合にあっては、当該中間製品の製造業者において、ゲルマニウム半導体検出器を用いて検査し放射性物質が定量下限値以下であることを確認すること。ただし、対象原料生薬の放射性物質に係る管理及び当該中間製品の製造工程管理により、中間製品中の放射性物質が、ゲルマニウム半導体検出器を用いて検査した場合に定量下限値以下であることが確認できる場合にあっては、必ずしも、その製造単位毎に、中間製品に係る放射性物質の検査を実施する必要はない。

(4) 最終製品について

- ① 対象原料生薬を使用して製造された漢方生薬製剤を出荷する場合にあっては、最終製品たる漢方生薬製剤においても、ゲルマニウム半導体検出器を用いて検査した場合に放射性物質が定量下限値以下であることを出荷判定前に確認し、その上で出荷すること。
- ② ただし、対象原料生薬の放射性物質に係る管理及び当該漢方生薬製剤の製造工程管理により、最終製品中の放射性物質が、ゲルマニウム半導体検出器を用いて検査した場合に定量下限値以下であることが確認できる場合にあっては、必ずしも、その製造単位毎に、最終製品に係る放射性物質の検査を実施する必要はないこと。
- ③ 対象原料生薬を使用して製造された単一生薬の刻み、粉末製剤（単に当該原

⁴ 平成23年8月4日現在、対象自治体は、福島県、宮城県、山形県、新潟県、茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、東京都、神奈川県及び千葉県。

料生薬を刻み、又は粉碎のみを行ったもの)は、当該製剤の原料生薬においてゲルマニウム半導体検出器を用いて検査し、放射性物質が定量下限値以下であることが確認された場合には、あらためて最終製品に係る放射性物質の検査を実施する必要はないこと。

- ④ 最終製品を構成する、(3)に示した全ての中間製品において、それぞれゲルマニウム半導体検出器を用いて検査し、その結果いずれも放射性物質が定量下限値以下であることが確認され、さらに製造工程管理により最終製品においても放射性物質が定量下限値以下であることが確実に担保できる場合にあっては、必ずしも、当該最終製品に係る放射性物質の検査を実施する必要はないこと。

- (5) 検出された対象原料生薬、中間製品及び最終製品の処置について
環境省発出の産業廃棄物関連通知等を参考に、適正に処理すること。

- (6) 対象原料生薬の抽出残渣の処置について
環境省発出の産業廃棄物関連通知等を参考に、適正に処理すること。

なお、本ガイドラインの作成に当たっては、放射能の測定に係る以下の文献を参考にした。特に、第3章から第5章については、「水道水等の放射能測定マニュアル」(平成23年10月・厚生労働省健康局水道課)を参考にした。本ガイドラインの記述は、生薬等における放射性ヨウ素及び放射性セシウムの測定を行ううえで必要最小限のものとしているので、より詳細な情報が必要な場合は、これらの文献を参照していただきたい。

- 1) 厚生労働省(2002)緊急時における食品の放射能測定マニュアル。
- 2) 厚生労働省(2011)食品中の放射性セシウムスクリーニング法。
- 3) 厚生労働省(2011)水道水等の放射能測定マニュアル。
- 4) 文部科学省(1974)放射能測定法シリーズNo.6 NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法。
- 5) 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。
- 6) 文部科学省(2002)放射能測定法シリーズNo.15 緊急時における放射性ヨウ素測定法。
- 7) 文部科学省(1992)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。
- 8) 社)日本アイソトープ協会(2011)放射線防護用設備・機器ガイドー2010/2011年版ー。

- 9) 社) 日本アイソトープ協会 (2011) 緊急時における食品中の放射性セシウム測定に用いるNaI(Tl)シンチレーションサーベイメータの機器校正.
- 1.0) 独) 国民生活センター (2011) 比較的安価な放射線測定器の性能.

<参考>

参考 1-1 放射能測定と化学物質測定との相違点

(1) バックグラウンド測定

化学物質測定分光光度法で言うブランクテストのかわりに行うのが、バックグラウンド測定である。同じ測定条件で測定し、定量目的のピーク周辺に定量に影響を与えるピークがある場合には、その面積をあらかじめ求めておく必要がある。

(2) 直線性

よほど強い放射能の試料の場合でない限り、放射能測定では計数率と放射能の間に直線性が成り立つ。したがって、放射能測定では、化学物質測定に行う検量線を引くという操作はない。一方、試料と同じ形状の放射能既知の標準試料で検出効率を求めておくことが必要となる。

(3) 定量下限値

定量下限値をより低く設定するには、多くの場合は、試料の量を多くすることや充填率を高めることが効果的である。さらに、バックグラウンド放射能を下げることが重要であり、検出器全面を遮へい体で囲み、遮へいすることが必要である。さらに、なるべく長時間測定して計数の偶然による(放射性壊変や検出器での検出が偶然性に左右されること)不確かさを小さくすることや試料の不均一性や充填による不確かさを小さくすることも有効である。

第2章 試料の採取、調製、保存及び運搬

2-1 試料の採取、調製、保存及び運搬操作

- 1) 未使用のポリエチレン袋（採取容器）に、以下の事項が記載し、試料の採取前、又は採取後、速やかに記入する。
 - ① 試料番号（ロット）
（同一試料を複数容器に分けて採取する場合にはそれぞれが区別できるようにする）
 - ② 品名
 - ③ 産地名
 - ④ 採取年月日
 - ⑤ 特記事項
 - ⑥ その他関連事項（採取者名、その他評価に必要な事項）
- 2) 測定対象単位を代表する試料を採取するためにランダムサンプリングを行い、採取した試料はよく混合して均一化する。原則として1単位当たり1サンプルとする。
- 3) 採取量は、試験に必要な量の2倍程度が望ましい。⁵
- 4) 直接の採取が困難な状況では、採取用スコップ等で試料を採取し、必要に応じてじょうご等を用いて、採取容器に移す。
- 5) 測定用の試料は必要に応じて個々の測定装置に適した大きさに調製する。生薬は植物の様々な部位や、鉱物、動物など種々の大きさ、形状、固さがあり、その特性に応じた切裁や破碎等をする。なお、試料を採取した後に洗浄など検査結果に影響を与える処置をしてはならない。
- 6) 採取後、速やかに試験する。試料の運搬時に、採取容器が破損し、採取容器から試料が漏れないようにする。速やかに試験できない場合は、湿気及び虫害など避けて保存する。

2-2 器具

(1) ポリエチレン袋

チャック付きのポリエチレン製の袋など、湿気や異物の混入を防ぐもの。

⁵ ゲルマニウム半導体検出器を用いるガンマ線スペクトロメトリーにより測定する場合には、一般的には使用する容器に合わせて試料の必要量が決められる。しかし、生薬の特性によって容器への充填量が異なる為、測定に用いる容器又はその同量の容器に、5)を参考に実際に充填し、その質量を事前に確認することも重要と考える。また、外部試験機関に委託する場合には、測定の為の最低必要量を事前に確認することも必要と考える。

(2) 試料採取のための補助器具

ステンレス、ポリエチレン、又はそれと同等の材質。試料と接する部位は、汚染されないように、運搬時にはポリエチレン袋等で保護するとよい。試料採取の現場で使用するので、複数の地点で試料採取を行う場合には、これら補助器具からの汚染に注意する。

第3章 ゲルマニウム半導体検出器を用いるガンマ線スペクトロメト

リーによる放射能測定法

本章では、対象原料生薬及びこれを使用した漢方生薬製剤中の放射性ヨウ素及び放射性セシウムの濃度を測定する方法のうち、ゲルマニウム半導体検出器を用いるガンマ線スペクトロメトリーによる放射能測定法を以下に示す。なお、本測定法を自社で実施する場合は、この方法に従い、外部試験検査機関⁶に依頼する場合は、本方法に準じて測定が実施され、計数誤差による定量下限値が、 ^{131}I 、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の3核種において各々20Bq/kg以下となる測定系であることを確認する。

3-1 測定法の特徴

3-1-1 測定対象核種

測定の対象となる核種は ^{131}I 、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の3核種であり、解析に必要な放射線のデータを表3-1に示す。

表3-1：測定対象核種の放射線データ

核種	半減期	エネルギー	ガンマ線放出割合	サム効果の補正が必要なガンマ線 ()内はガンマ線放出割合
^{131}I	8.021日	364.5keV	0.817	284.3keV(0.061), 637.0keV(0.072), 他
^{134}Cs	2.065年	604.7keV	0.976	569.3keV(0.154), 801.9keV(0.087) ^{注1} , 他
		795.9keV	0.855	
^{137}Cs	30.17年	661.7keV	0.851	ない(単一ガンマ線)

出典 アイソトープ手帳11版(日本アイソトープ協会)

注1 分解能があまりよくない場合には、795.9keVと801.9keVを一つのピーク(0.942)として扱ってもよい。

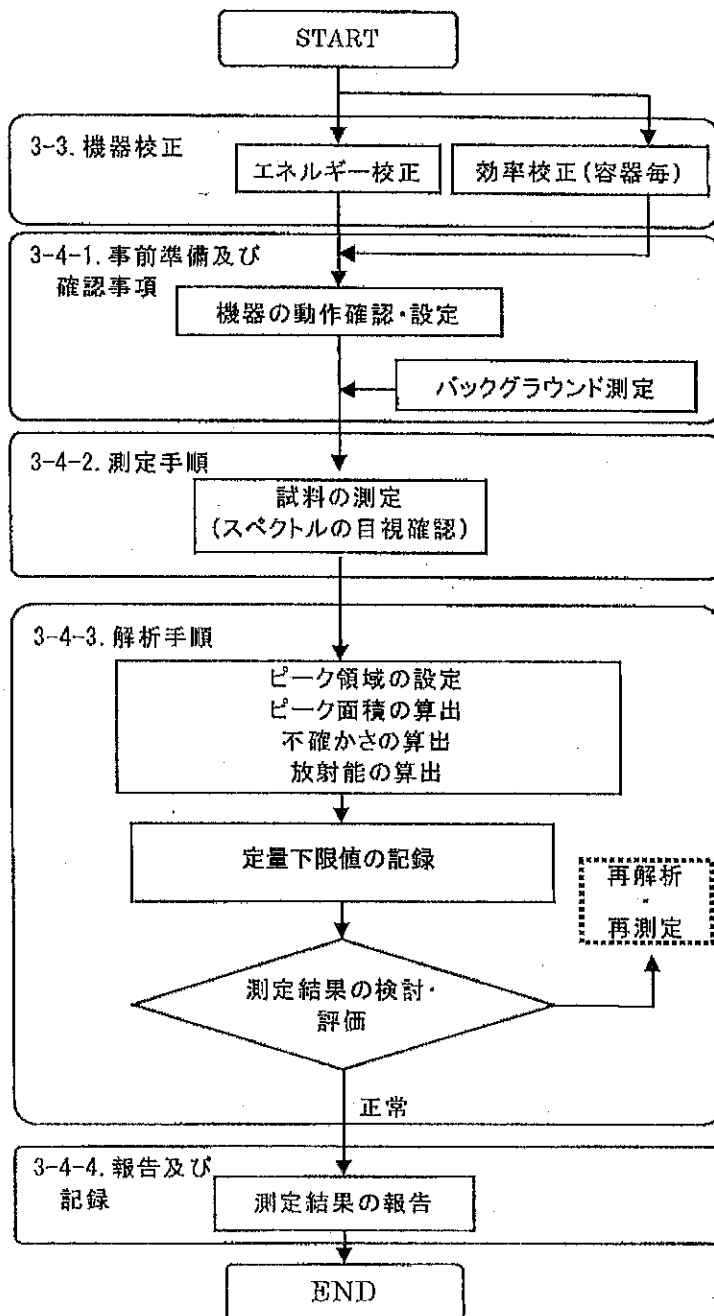
3-1-2 測定法の特徴

ゲルマニウム半導体検出器を用いるガンマ線スペクトロメトリーによる放射能測定法は、エネルギー分解能が非常に高いためエネルギー決定の精度が高く核種の同定が容

⁶ 別添1「食品中の放射性物質に関する検査を実施することが可能である登録検査機関」(厚生労働省ホームページ)を参照のこと。なお、この資料は定期的に更新される。これに示された検査機関以外にも、放射性物質に関する検査を実施している機関もあり、インターネットなどで情報を確認して、委託機関を決定することが望ましい。

易かつ確実であり、接近したエネルギーの他のガンマ線と明確に分別して解析することができる。また、ガンマ線ピークの広がり狭いため、ピーク計数値に対するバックグラウンド計数値の比率が低いので低レベル放射能の分析に適している。

3-1-3 測定の流れ



3-2 機器・器具等

3-2-1 機器

ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメータは、一般的に、ゲルマニウム半導体検出器、冷却装置、前置増幅器、主増幅器、高圧電源、マルチチャンネル分析器、ガンマ線スペクトル解析用計算機から構成される。

(1) ゲルマニウム半導体検出器

検出器の相対効率は20%程度以上とする。

エネルギー分解能は半値幅で1.8~2.0keV が一般的である。

解説3-1 ゲルマニウム半導体検出器（前置増幅器を含む）の代表的な性能

1) 検出器相対効率

検出器の相対的な検出効率を示す指標である。現在では100%程度のもも入手できるが、性能・価格比を考慮すると20~40%程度が一般的である。検出器の相対効率は、検出器前面から25cm 離れた位置に置かれた⁶⁰Co点線源の1,332keVガンマ線に対する効率を求め、同じ距離に⁶⁰Co 点線源が置かれた場合の3"φ×3"NaI シンチレーション検出器の効率 (1.20×10^{-3}) を基準として、これに対する比率 (%表示) として定義される。他のエネルギーのガンマ線に対する効率とは必ずしも比例しない。

2) エネルギー分解能

⁶⁰Co の1,332keVガンマ線に対する半値幅と定義され、1.8~2.0keVが一般的であるが、2.5keV 程度までなら定量分析にそれほど大きな支障はない。しかし、エネルギー分解能の劣化はピーク下(ピーク領域内)のバックグラウンド計数を増加させるので $3\delta_c$ (3-4-3 (5) 参照)が増大する。なお、¹³⁷Cs の662keV に対する半値幅は1.5~1.7keV である。

3) ピーク・コンプトン比

⁶⁰Co の1,332keVガンマ線に対するピーク中心チャンネルにおける計数値(カウント)と1,040~1,096keVの平均計数値(カウント)の比であり、この値(40~70)は上記の相対効率にほぼ比例し、エネルギー分解能の値にほぼ反比例するので、検出器の総合的な性能指標である。

(2) 遮へい体

低レベル放射能測定では検出器の遮へいは大変重要である。天然核種 (⁴⁰K、ウラン及びトリウム系列核種) などによるガンマ線が十分遮へいされている必要がある。

検出器周りの遮へい体としては、厚さ10~15cmの鉛遮へい体が一般的に使われている。

遮へい体内部空間のサイズは測定に使用する試料容器が納まる大きさでなければならない。

検出器の形状には、縦型(ディップスティック)、L型(液体窒素容器の側面にクライオスタットが付いている)などがあり、遮へい体の構造は検出器の形状や検出器と液体窒素容器との接続関係によって異なる。

3-2-2 器具等

(1) 試料容器

試料容器は、密封性がよく、機械的強度が高く、酸や熱などに強く、内部の試料が見えるものである必要がある。試料容器として、内容積1~2Lのマリネリ容器、内容積100~500mLの円筒形容器などが使われている。試料容器は試料量を参考に決定すること。

(2) エネルギー校正用線源

エネルギー校正用の線源としては ^{22}Na (511keV、1,275keV)、 ^{54}Mn (835keV)、 ^{60}Co (1,173keV、1,332keV)、 ^{88}Y (898keV、1,836keV)、 ^{137}Cs (662keV)、 ^{139}Ce (166keV)のように100keVから2,000keVまでをカバーするようにいくつか選んで用いる。それぞれの放射能は1,000~3,000Bqとする。

(3) 効率校正用線源

^{137}Cs 等を含む市販の標準試料で、容器と媒体の容積は試料と同じもの。それぞれの放射能は1,000~3,000Bqとする。

(4) スペクトル解析ソフトウェア

ピーク探索、核種の同定、ピーク面積の算出、計数の統計による不確かさの算出等が行えるもの。さらに、自己吸収の補正やサム効果の補正が行えるものであることが望ましい。

解説3-2 ガンマ線スペクトル解析ソフトウェア

ガンマ線スペクトルを解析して放射能を算出するために、現在では、国内製のガンマ線スペクトル解析ソフトが一般的に使われている。現在市販されているパッケージソフトは定量解析に必要なほとんど全ての機能をもっているが、次の点に注意する必要がある。

- 1) ピークの正味計数値(ピーク面積)が少ない微弱なピークでは計数の統計による不確かさが大きく、ピーク領域の自動設定が適切でないことがある。不必要に広いピーク領域を設定すると、計数の統計による不確かさが増加し、 $3\delta c$ (3-4-3(5)参照)が大きくなる。
- 2) ピーク面積計算法として計数値積算法(通称「コベル法」)とピーク関数適合法(通称「フィッティング法」)が適用できるなら、両者による解析結果を比較・検討することができる。
- 3) 近年、市販の解析ソフトで自己吸収の補正とサム効果の補正ができるようになったが、その確かさを確認しておく必要がある。なお、サム効果の補正ができる核種は限られている。
- 4) 自動計算される $3\delta c$ 及び計数の統計による不確かさについて、あらかじめその計算方法などを確認しておく必要がある。

3-3 機器校正

3-3-1 エネルギー校正

エネルギー校正用線源を対象にして、次の手順によりガンマ線エネルギーとピーク中心チャンネルとの対応関係を一次式で求める。

- 1) エネルギー校正用の線源を検出器の定まった位置に取り付け、主要なガンマ線のピーク面積が数千カウント以上になるまでスペクトルを測定する。
- 2) ガンマ線エネルギー (E) とピーク中心チャンネル (p) が直線関係にあるとして、スペクトル解析ソフトを用いて次の関係を求める。

$$E = a + b \times p$$

なお、ガンマ線のエネルギー範囲を0~2,000 keV、マルチチャンネル分析器のチャンネルフルスケールを4,000chとすることによって、計数値が低いときにもピーク領域を簡単に設定でき、この場合、上式のaは0に近い値、bはできるだけ0.500に近い値となる。

- 3) 以上のデータを記録・保存する。

3-3-2 効率校正

測定したガンマ線スペクトルから放射能を決定するには、ピークに対する計数効率(以下「ピーク効率」という。)が必要であり、放射能分析にはピーク効率の校正が正しく行われていることが前提である。

効率校正には、濃度が分かっている効率校正用線源を用いる。通常はおよそ50keV~2,000keVのエネルギー範囲に適用できるように、いろいろな核種を含む標準線源を測定して、エネルギーを変数とするピーク効率関数を求める。なお、ピーク効率は試料容器によって異なるため、複数の試料容器を使用する場合には、試料容器ごとに効率校正を行う必要がある。

3-4 測定操作

3-4-1 事前準備及び確認事項

(1) 機器の動作確認と設定

試料を測定する前に、スペクトル解析ソフトを用いて測定したエネルギー校正用線源のスペクトルを解析し、主要なガンマ線について、ピーク中心チャンネル、半値幅及びピーク計数率が正常な値であることを確認する。

(2) バックグラウンド測定

設定した測定条件におけるバックグラウンドの測定を行う。試料と同一の条件を持つバックグラウンド測定用試料（同一試料容器に対象とする放射能が含まれていない同一量の測定対象核種を含まない水を封入）を置いて測定することが原則である。

試料の放射能分析には最近測定したバックグラウンドスペクトルの解析結果を用いるので、測定に備えて、表3-1 に示す測定対象核種の主要ガンマ線エネルギーに相当するピークが認められた場合には計数率と計数の統計による不確かさを算出し、結果を保存する。なお、バックグラウンドスペクトルにはウラン系列の ^{214}Bi から放出される609.3keV (0.426) があり、このスペクトルは ^{134}Cs の604.7keVに近いので注意する。

3-4-2 測定手順

試料容器へ試料を充填する際は、できる限り空隙を少なくし、均一になるよう留意する。そのため、2-1 試料の採取、調製、保存及び運搬操作の5) で示すように、測定する生薬の特質に合わせ、必要に応じ、切裁や破砕等の方法で、前処理する。

効率校正に用いた標準試料と同じ容器に同一量の試料を充填したものを検出器の中心に合わせて取り付ける。その際、中心からのずれは、マリネリ容器では1cm程度以内、円筒形容器では2mm程度以内にする。

ピーク効率及びバックグラウンド測定の結果等から目標とする定量下限値が得られるよう試料の測定時間を設定して測定を開始する。なお、計数率が非常に高いときには、ピーク形状が劣化することがあるので注意する。

測定終了後、スペクトルを保存する。

3-4-3 解析手順

(1) ピーク領域の設定

測定が終了したら、スペクトル解析ソフトにより測定対象核種のガンマ線に対してピーク領域 (ROI) を設定する。その際、計数が不足している場合にはスムージング処理によって、チャンネル毎の計数のばらつきを平準化することもできる。

ピーク中心チャンネル (p) と半値幅 (FWHM) から、測定したスペクトルが正常であることを確認できるが、微弱なピークについてはその値が変動することがある。

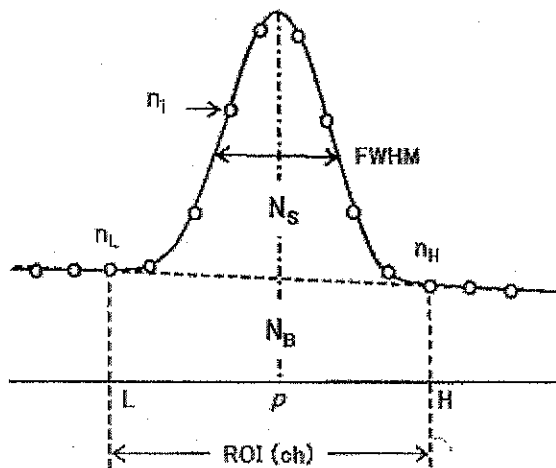


図3-1：ピーク領域(ROI)の設定とピーク面積(N_s)の算出

(2) ピーク面積の算出

ピーク面積(N_s)は、解析ソフトによるROIの自動設定ではピーク探索に基づいて計算されるが、特に微弱なピークについては、ピーク領域 (ROI) の位置と幅が適切であるか否かを確認すること。

(3) バックグラウンド計数率の差し引きと計数の統計による不確かさの算出

通常のガンマ線スペクトロメトリーではバックグラウンド計数率 n_{BG} (以下「BG計数率」という。)の差し引きは必ずしも必要ではないが、検出器と遮へい体内部の汚染がある場合には、BG計数率の差し引きを行う必要がある。正味の計数率 n (s⁻¹) を、試料の計数率 (n_s = N_s/t_s) から同一のピーク領域におけるBG計数率を差し引いた値として求める。

$$n = n_s - n_{BG}$$

計数誤差であるσ_nと計数率 (n) の関係は以下の式で表される。

$$n \pm \sigma_n = n \pm (n/t)^{1/2}$$

正味計数率に対する計数の統計による不確かさσ_n (s⁻¹) はそれぞれの計数率の統計による不確かさ (σ_s 及びσ_{BG}) の合成として次のように表される。

$$\sigma_n = (\sigma_s^2 + \sigma_{BG}^2)^{1/2}$$

(4) 放射能の算出

試料の放射能A (Bq) と放射能濃度C (Bq/kg) は次の関係^{注1}で求められる。

$$A = \frac{n}{a \varepsilon f_{SUM}} \quad C = \frac{A}{W}$$

上式において、

n : 計数率

a : 表3-1 に示されるガンマ線放出割合 D

ε : ピーク効率

f_{SUM} : サム効果補正係数

W : 試料容器中の試料の質量 (kg)

注1 標準試料との比較測定の場合は、 a 、 ε 、 f_{SUM} は同一であるから考慮する必要はない。すなわち、標準試料の放射能を A_{STD} 、計数率を n_{STD} とすると、 $A = (n/n_{STD}) A_{STD}$ で求められる。

(5) 検出に関する不確かさ

試料容器中の試料の質量の不確かさの考慮が必要でない場合、試料の放射能の計数の統計による不確かさ δ_A (Bq) と放射能濃度の計数の統計による不確かさ δ_C (Bq/kg) は次の関係で求められる。

$$\delta_A = \frac{\sigma_n}{n} A \quad \delta_C = \frac{\delta_A}{W}$$

測定された放射能濃度 C が $3\delta_C$ を超えた場合、統計的に有意であると考えられる。

(6) 定量下限値の記録

検査の信頼性を確保するため、放射能濃度の計数の統計による不確かさ δ_C の3倍を基本とし、偶然変動や機器間の特性を踏まえた上で定量できる放射能値として適切な誤差を見込んだ定量下限値を算出・記録し、その定量下限値が20Bq/kg以下であることを確認する。

(7) 測定結果の検討・評価

測定対象核種ごとの測定結果を整理し、計数の統計による不確かさ、ピーク中心チャンネル、半値幅等により正常であることを確認し、疑義がある場合、計数の統計による不確かさを考慮することで確認結果に何らかの疑義がある場合は、必要に応じて再測定を行う。

3-4-4 報告及び記録

測定業務を受託する場合には、原則として、測定業務の委託者が定める書式に測定結果を記載し報告するとともに、元データとともに保存する。

記載事項の例は次の通りである。

① 使用機器情報：機器名（検出器サイズ、分解能）、測定チャンネル数、解析ソフトウ

エアの種類、処理方法

- ② 試料情報：試料名（番号）、採取場所、採取日時、試料の量、採取容器の種類、採取担当者氏名
- ③ 測定条件：試料容器の種類、試料量、ジオメトリ
- ④ 測定記録：測定開始日時、測定時間（Live Time、Real Time）
- ⑤ 解析記録：ピーク中心チャンネル、半値幅、ピーク面積とその計数の統計による不確かさ、試料計数率とその計数の統計による不確かさ、BG 計数率とその計数の統計による不確かさ、ピーク効率、減衰補正係数、放射能及び放射能濃度とそれぞれの計数の統計による不確かさ、定量下限放射能又は定量下限放射能濃度、測定・解析担当者氏名
なお、解析記録については、転記ミスを避けるため使用する解析ソフトの報告書をそのまま用いてもよい。数値については、計数の統計による不確かさの有効桁数を基にして放射能又は放射能濃度の有効桁数の「丸め」を行う。
- ⑥ 測定結果：核種名、放射能濃度（Bq/kg）、定量下限値

3-5 測定実施の注意点

3-5-1 バックグラウンドの管理

定量目的核種と同じ核種がバックグラウンドから検出される場合には、その原因を確認し、可能な限りバックグラウンドの影響を抑えることが必要である。室内の汚染の場合には、機器周りの遮へい措置を清掃・確認し、適切な遮へいを行うことで影響を抑えることができる。遮へい体内や検出器そのものが汚染した場合には、除染に努めることが原則であるが、万一、除染できない場合には、放射能計算の際にバックグラウンドからの寄与を差し引く必要がある。

3-5-2 機器、器具等の汚染防止

検出器はポリエチレンなどで覆い、汚染を防ぐようにする。万一汚染した場合もポリエチレンの包装を交換することで対処できる。検出器表面が汚染した場合には、中性洗剤やエタノールをしみ込ませたガーゼなどでふき取る。遮へい体を開ける場合に、粉塵などの汚染物が入らないように注意する。

試料容器は簡単な洗浄を行ったうえで使用する。試料を試料容器に入れる際に試料容器の周りに試料が付着しないようにすることも重要である。

高濃度の試料を測定する場合や除染が困難な場合には使い捨て容器を使用する。試料容器を繰り返して使用する場合は、フッ素コーティングなどを施すとよい。試料容器内

にプラスチック袋を用いることも有効である。

3-5-3 機器の日常管理

測定システム全体の定期的な性能テストを行うことは機器の管理として大変重要である。性能テストでは、チェック用ガンマ線源を検出器上の一定の位置に置いて測定し、低・中・高エネルギーのガンマ線についてピーク中心チャンネル、半値幅、ピーク計数率を求め、それらを時系列データとして保存する。性能テストはできれば毎日、少なくとも一連の試料測定に先立って行うことによって常に正確なエネルギー校正を用いることができる。

また、定期的に試料がない状態又は空容器を設置して測定を行うことにより、検出器周辺部や試料容器の汚染がないことを確認する。

検出器トラブルの一つとしてクライオスタット内の真空度劣化がある。これは、液体窒素の消耗量、エネルギー分解能の低下、目視検査（クライオスタットのネック部分における結露の有無）などから判断することもできる。

<参考>

参考 3-1 ガンマ線スペクトル測定システム

放射能検査で使用するガンマ線スペクトル測定システムの基本的な構成及び仕様を以下に示す。従来、図 3-2 に示す機器構成では、増幅器などの電子回路やマルチチャンネル分析器は単独な機器として組み合わせて使用されていたが、近年の測定システムでは、データ処理装置であるパーソナルコンピュータ (PC) に高圧電源(HV)、主増幅器、マルチチャンネル分析器 (MCA) などが内蔵され、増幅度、パルス波形整形、測定時間など測定条件の設定及び動作はPCによって制御されるものが多い。また、ガンマ線スペクトルのデータ解析には市販のパッケージソフトが使われており、操作手順とデータ解析などはその解析ソフトに依存する。

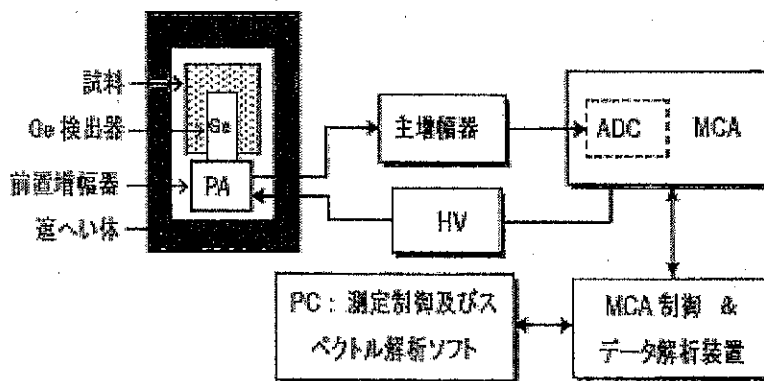


図 3-2 : ガンマ線スペクトロメータの基本的構成

参考 3-2 ゲルマニウム半導体検出器の例

一般的なガンマ線の測定には、ピークに対する計数効率が高い次の2種類の同軸型（コアキシャル）高純

度ゲルマニウム半導体検出器が用いられる。いずれの検出器も使用しないときは常温に保存することができる。

A) pタイプ高純度ゲルマニウム半導体検出器 (図3-3 左)

より一般的なガンマ線の測定に使われる。しかし、冷却しない(使用しない)期間が長いときは、結晶外側のn+不感層がLiイオンの熱拡散によって厚くなり、不感層による吸収(特に低エネルギー)及び有感受体積の減少によって計数効率が低下する欠点がある。不感層増加の割合は保存温度によるが、1年あたり $0.17 \pm 0.06 \text{mm}$ であり、当初の効率を維持するためには常時冷却することが望ましい。

B) nタイプ高純度ゲルマニウム半導体検出器 (図3-3 右)

冷却しない期間が長くて、上記のような不感層増加による計数効率の低下はほとんどない。また、ボロン注入p+層(1 μm 以下)は大変薄いので数keV以上の低エネルギーの測定も可能である。

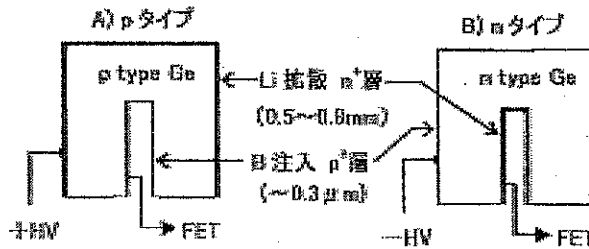


図3-3 : pタイプとnタイプの同軸型高純度ゲルマニウム半導体検出器の電極構造

参考 3-3 検出器の冷却装置

検出器の冷却方法として、次の方式のものがある。

(1) 液体窒素による冷却

測定室据置きタイプでは液体窒素容器(30L)を用い、1日の液体窒素の消費量は1~1.5Lである。毎週1回、定期的に液体窒素の残量を補充することが望ましい。

(2) 電氣的冷却装置による冷却

ガスコンプレッサ及び検出器に接続された冷却装置よりなる。近年、冷却装置の安定性と電氣的雑音の影響がかなり改善された。

(3) ハイブリッド型

上記(1)と同様に液体窒素容器を用いるが、蒸発した窒素ガスを小型の液体窒素製造装置で液体窒素にして容器に戻す。冷却装置が正常に動作していれば液体窒素の消費はほとんどない。また、冷却装置が故障のときには液体窒素で冷却して測定を継続することができる。

参考 3-4 前置増幅器と主増幅器

前置増幅器は検出器と一体構造になっており、その性能は検出器のエネルギー分解能などの性能を左右する。主増幅器には多くの種類があり、使用目的などによって信号処理の選定が可能である。近年、デジタル式の主増幅器も多く使用されるようになり、従来のアナログ式に較べて特に安定性に優れている。

主増幅器については、測定に際して、ゲイン調整出力パルス波形整形、パイルアップ除去、ポールゼロ調整等の調整を行う必要がある。

参考 3-5 マルチチャンネル分析器

近年、単独型のマルチチャンネル分析器は少なくなり、主増幅器と高圧電源を内蔵し、パソコンによって検出器印加電圧、増幅器ゲイン、ADCゲイン、パルス波形整形などを調節するタイプのものが多く使われるようになった。また、DSP(Digital Signal Processor)方式のデジタルマルチチャンネル分析器も使われるようになり、安定性など性能が向上し、いっそう小型化が進んだ。さらに、個々のパルス信号をパルス波高と共に時間情報などを時系列としてメモリーに記録し、測定後にデータの数学的演算によってスペクトルを任意にかつ容易に再現することができるリストモード計測法のマルチチャンネル分析器が使われ始めている。

参考 3-6 試料容器について

試料容器について必要な条件は、1) 密封性がよいこと、2) 機械的強度が高く、化学薬品（酸など）や熱に強いこと、3) 内部の試料が見えること、4) 入手しやすいこと、などである。

表3-2に示す容器は市販品又は注文加工品として入手できるものである。表中の効率は、検出器相対効率30%の検出器で試料中の¹³⁷Csのガンマ線（661.7keV）に対する計算値である。効率×容積の値（ε・V）は計数率に比例するので、容積が大きいほど測定に有利である。

他の容器を使用する場合にはε・Vの値を目安とするとよい。

一般的には、2Lマリネリ容器が汎用されているようであるが、測定資料が貴重な場合には、U-8容器を用いることもあり、外部検査機関に測定を委託する場合には、事前に確認することが望ましい。また、容器の大きさによって、測定時間が異なることになり、この事も事前に確認が必要と考える。

表 3-2 : 代表的な試料容器

容器名称	サイズ ^{注1}	容積V (mL)	効率ε ^{注2}	ε・V	材質	密封 ^{注3}	強度
2Lマリネリ容器	文部科学省マニュアル参照 ^{注4}	2,000	0.0087	17.4	アクリル	○	△
0.7Lマリネリ容器	文部科学省マニュアル参照 ^{注4}	700	0.0141	9.87	アクリル	○	△
市販円筒容器A	7.4cmφ×7.0cm	300	0.0104	3.12	PP	○	○
市販円筒容器B	6.0cmφ×7.1cm	200	0.0114	2.28	PP	○	◎
U-8容器	5.0cmφ×5.1cm	100	0.0152	1.52	PP	○	◎

注1 容器内の試料のサイズ；円筒形容器の場合は多少テーパがあるので平均の直径を記した。

注2 ¹³⁷Csのガンマ線（661.7keV）に対する効率（例示）

注3 蓋をしたままでは不十分であり、通常は接合部をビニールテープなどで巻いて密封性を高める。

注4 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-104頁図7-3、図7-4

参考 3-7 増幅器ゲイン調整及びエネルギー校正手順例

環境試料のガンマ線スペクトルの測定条件としては、ガンマ線のエネルギー範囲を0~2,000keV、マルチチャンネル分析器のチャンネルフルスケールを4,000ch、すなわち0.500keV/chで測定するのが一般的である。このように設定することによって、未知のピークについてピーク中心チャンネルp (ch) からエネルギー (p/2; keV) を直ちに知ることができ、また、計数値が低いときなどピーク領域を簡単に設定することができる。エネルギー校正に用いる線源には、長い半減期の核種で低・中・高エネルギーのガンマ線を放出する線源（例えば、⁶⁰Co + ¹³⁷Cs + ¹³³Ba、¹⁵²Eu など、それぞれ数100Bq、標準線源でなくてもよい）がよい。

混合核種線源（⁶⁰Co + ¹³⁷Cs + ¹³³Ba）を用いる場合のゲイン調整とエネルギー校正の手順を以下に示す。

- 1) 校正用線源を検出器直上の一定の位置に置いて測定を始め、661.7keVではピーク中心チャンネルが1,323ch、1,332.5keVではピーク中心チャンネルが2,665chになるように、増幅器のゲイン微調整とゼロ点調整を試行錯誤的に繰り返す。
- 2) 上記の調整が終わったら、主要なガンマ線ピークの計数値が1,000カウント以上になるまでスペクトルを測定する。
- 3) スペクトル解析ソフトの機能「エネルギー校正」を用いて、主要なガンマ線エネルギーE (keV) のピークのみを数本選んで解析すると、それらのピーク中心チャンネルp (ch)、半値幅 (ch)、ピーク計数率n (s⁻¹) が示される。
- 4) ガンマ線エネルギーとピーク中心チャンネルは直線関係nにあると仮定すると、次の関係が示される。

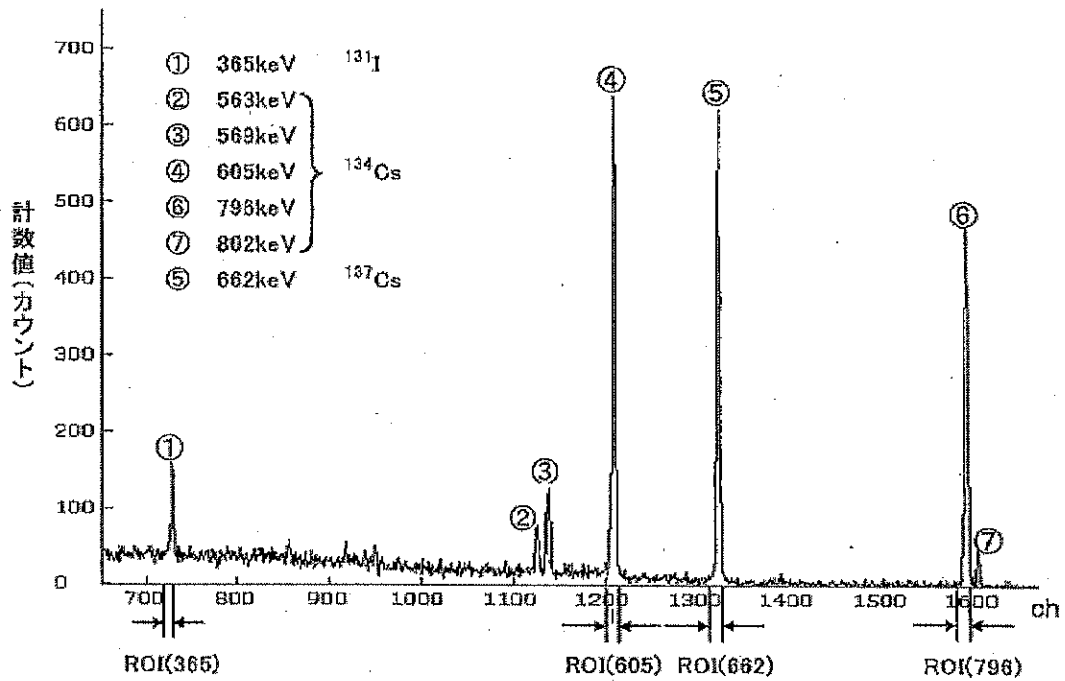
$$E = a + b \times p$$

aはできるだけ0に近い値、bはできるだけ0.500に近い値であることが望ましい。

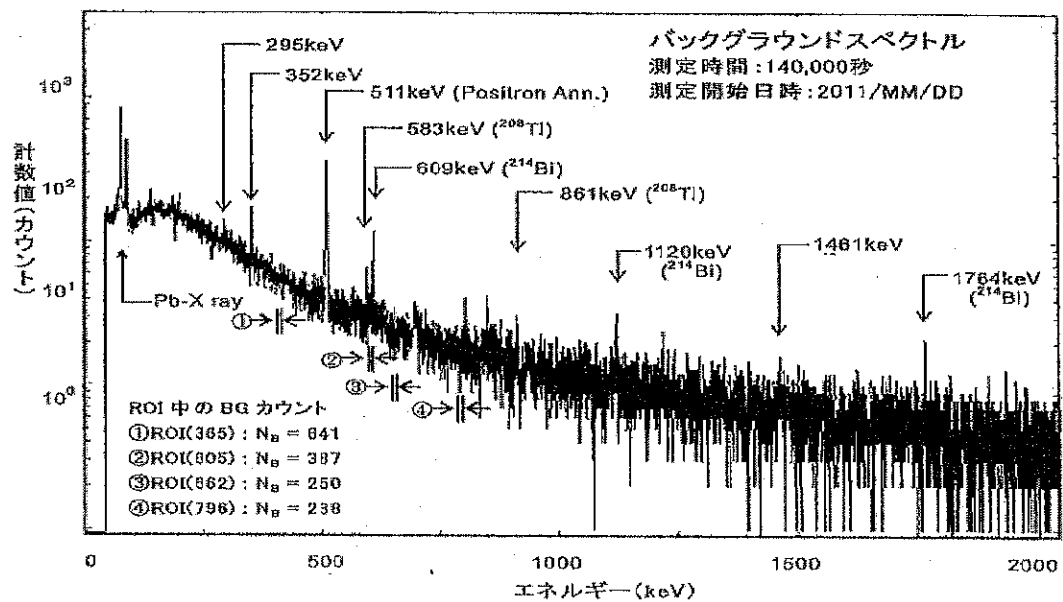
なお、解析ソフトを使用しないときは2本のピーク、例えば、E₁=661.7keVとE₂=1,332.5keVについてp₁とp₂を上式に代入してaとbを求める。

注1 直線性があまり良くない測定システムでは二次式を用いる方がよい（解析ソフトで対応できる）。

参考 3-8 ガンマ線スペクトル例とピーク領域 (ROI)



参考 3-9 バックグラウンドスペクトルの例



参考 3-10 ピーク面積の算出例

ピーク面積 N (カウント)とはピークの正味計数値であり、ピーク領域 (ROI) 内のピーク部分のみの積算計数値である。その計算法として次の二通りの方法が適用できる。

(1) 計数值積算法 (通称「コベル法」)

解析のためのROI (L~H チャンネル) はピークの半値幅 (FWHM) を基準にして自動又は手動で設定する。ピーク中心チャンネル (p) に対して、 $L=p-k \times \text{FWHM (ch)}$ 、 $H=p+k \times \text{FWHM (ch)}$ に設定する。通常、kの値を 1.5~2.0に設定するがピークの形状によっては2以上に設定してもよい。しかし、nDL (参考 3-13 参照) はROI幅のほぼ平方根に比例して増大する結果になる。

iチャンネルの計数值を n_i 、ROI (L~H) 内の全積算計数值を N_T 、ピーク直下の平坦部 (台形近似) の積算計数值を N_B とすると、ピーク面積 (N) は次のように求められる (図3-4)。

$$N_T = \sum_{i=L}^H n_i \quad N_B = \frac{1}{2} (H-L+1) (n_H + n_L) \quad \text{とすると、} N = N_T - N_B$$

その計数の統計による不確かさは、 $\sigma N = [\sigma(N_T)^2 + \sigma(N_B)^2]^{1/2}$ ただし、 $\sigma(N_T)$ 、 $\sigma(N_B)$ は N_T 、 N_B の計数の統計による不確かさ

なお、上式の n_H 、 n_L はH、Lチャンネルにおける前後数チャンネルの平均計数值を用いることが多い。この方法は計算が簡単であるが、2本以上のピークがごく接近している場合には適用できない。

(2) ピーク関数適合法 (通称「フィッティング法」)

ROI 内の計数值分布を数学的関数、例えば、ピークの形状をガウス関数 $G(i)$ 、ピーク下の平坦部を一次式 $B(i)$ と仮定して非線形最小二乗法によって関数の未知パラメータ (p、FWHM、一次式のパラメータなど) を決定する。単独ピークはもとより二本以上のピークが複合している場合にも適用できる (図3-5)。しかし、計算が複雑であり、解析ソフト内蔵のプログラムでしか計算できない。

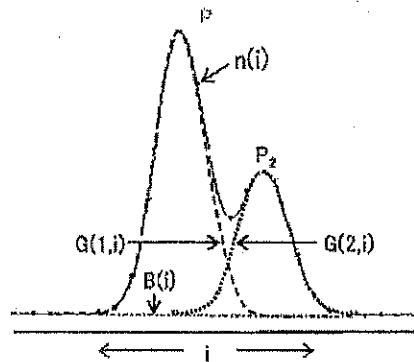
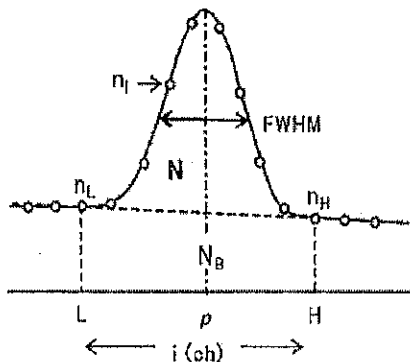


図3-4 : 計数值積算法による単独ピークの計算

図3-5 : ピーク関数適合法による複合ピークの計算

参考 3-11 自己吸収の補正

水等の容積試料において、ガンマ線が試料媒体中で散乱あるいは吸収によって減弱する現象は自己吸収といわれる。これは、①ガンマ線エネルギー、②試料媒体の種類(元素組成、充填密度)、③試料の形状・厚さ、④検出器・試料間の空間的位置関係などに依存する複雑な現象である。ガンマ線の減弱は①と②で決まる減弱係数、そして③及び④で決まる試料中のガンマ線の実効的な透過距離である。

自己吸収補正法として、いろいろな媒体の標準試料を測定し、ピーク効率を補間・補外して自己吸収を補正する方法があるが、精度の高い多くの標準線源 (異なる密度、異なる試料量の組み合わせ) を必要とするため必ずしも簡単ではない。そこで、市販のスペクトル解析ソフトでは種々の近似や仮定を基にした補正法が用いられている。

参考 3-12 サム効果の補正

多くの放射性核種は1 壊変につき2 個以上の放射線を同時 (1 μ 秒以内) に放出する。この場合、それらの放射線が1個の検出器で同時に検出されると、検出器からの信号は両者の和の波高値をもつ1個の信号とし

て分析される。この現象はサム効果といわれる。ガンマ線スペクトロメトリーで問題となるサム効果は、同時に放出される2本以上のガンマ線とエックス線によるY-Yサム効果及びY-Xサム効果である。

核種と測定ジオメトリ（高い効率の測定）によってはピーク計数率に及ぼす影響は10%以上になることがある。なお、本マニュアルの測定対象核種である¹³¹Iと¹³⁴Csにはサム効果の影響がある。

サム効果は同時に放出されるガンマ線の相互関係によって決まるので、核種によってそれぞれ異なり、¹⁵²Euのように多くの種類のガンマ線を放出する核種では補正が大変複雑となる。現在市販されているスペクトル解析ソフトではサム効果の補正ができるものがあるが、適用できる核種は限られている。

参考 3-13 試料容器及び測定時間の違いによる 3δc の計算例

3δcは、放射能が極めて低い試料の測定において、核種が検出されたか否かを判定するための目安の数値である。すなわち、その核種が検出されたか否かは、実測されたピーク面積がその計数の統計による不確かさの3倍を超えているかどうかで行われることが一般的であり、市販されている解析ソフトウェアではこの方法に基づいて自動的に判定される。一方、バックグラウンド計数率と測定時間から3δcを計算する方法も行われており、ここではその計算例を紹介する。（水の場合）

(1) nDL

nDLは検出可能な最少の計数率であり、核種には直接依存しない。試料の測定時間、ベースライン計数率（以下「BL計数率」という。）によって決まり、ガンマ線スペクトロメトリーによるnDLの算出式は複数存在しているが、ここではCooperの関係式注1によって求めることとする。

注1 この関係式は市販のスペクトル解析ソフトで多く使われているもので、文献J. A. Cooper, Nucl. Instr. Methods, 82, 273(1970)による。

なお、海外では文献Lloyd A. Currie, Anal. Chem. 40, 586 (1968)による関係式 ($nDL = 5.4/t + 3.3\sqrt{2n_B/t}$) が多く使われているが、下の式においてk=3 とすると、両者間の違いは10%程度である。

$$n_{BL} = \frac{k}{t} \left\{ \frac{k}{2} + \sqrt{\frac{k^2}{4} + 2n_B t} \right\}$$

上式において、

k : 信頼度係数 ; k=3 (信頼度99.7%)

t : 試料の測定時間 (秒)

n_B : 測定対象ガンマ線に対応するピーク領域内のBL計数率 (s⁻¹)

BL計数率 (n_B) は、測定場所、遮へい体の厚さなど測定状況によって異なり、n_{DL}はBL計数率の平方根にほぼ比例し、測定時間の平方根にほぼ反比例する。例として、k=3、t_s=500~100,000 秒の場合のn_{DL} (s⁻¹) を図3-6 に示す。

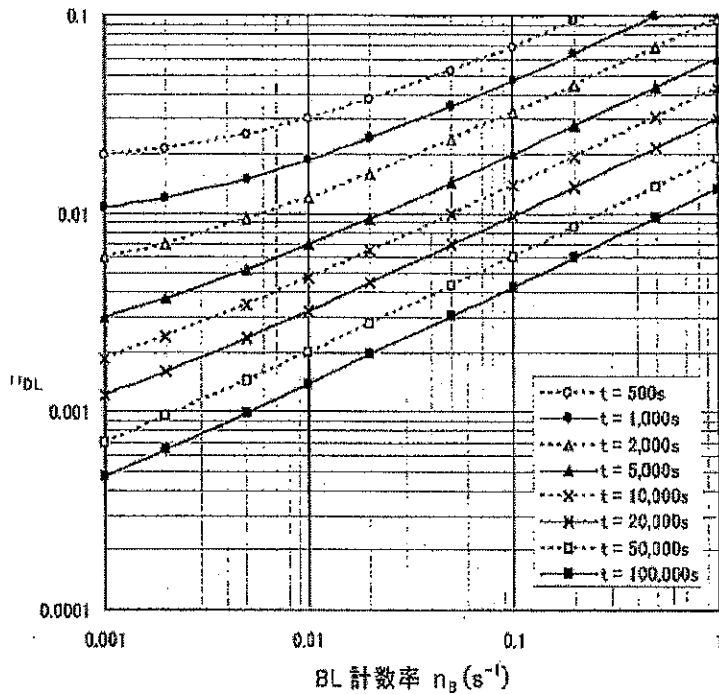


図 3-6 : BL計数率 n_B 及び試料の測定時間 t とNDLの関係

(2) A_M

A_M (Bq) は、NDL (s^{-1})、ガンマ線放出割合 a 、ピーク効率 ϵ によって次のように計算される。

$$A_M = \frac{NDL}{a \epsilon}$$

例として、試料の測定時間 (t) = 500~50,000秒、BL計数率 (n_B) = 0.001~0.1 s^{-1} をパラメータとして ^{137}Cs に対する A_M を表3-3 ($k=3$) に示す。ただし、ピーク効率 (ϵ) は検出器及び試料容器によって異なるので、代表的な値として、 $\epsilon=0.01$ として計算した。

表 3-3 : ^{137}Cs に対する A_M (Bq) : $k=3$ 、 $a=0.85$ 、 $\epsilon=0.01$

n_B (s^{-1})	測定時間 (S)						
	500	1,000	2,000	5,000	10,000	20,000	50,000
0.001	2.33	1.26	0.71	0.35	0.22	0.14	0.08
0.002	2.51	1.41	0.83	0.44	0.28	0.19	0.11
0.005	2.96	1.76	1.10	0.62	0.41	0.28	0.17
0.01	3.53	2.19	1.41	0.82	0.55	0.38	0.23
0.02	4.39	2.82	1.87	1.11	0.76	0.53	0.33
0.05	6.16	4.10	2.77	1.69	1.17	0.82	0.51
0.1	8.20	5.55	3.80	2.34	1.63	1.14	0.72

^{137}Cs 以外の核種の A_{MX} は、対象とする核種のガンマ線放出割合 a_x 、ピーク効率 ϵ_x を用いることによって、 ^{137}Cs に対する A_M から次式により求められる。

$$A_{MX} = (0.85/a_x)(0.01/\epsilon_x)A_M$$

例えば、 ^{131}I (365keV、0.817)、ピーク効率 = 1.63%、 $n_B = 0.002\text{s}^{-1}$ 、 $t = 1,000\text{s}$ の場合、 $k=3$ の $A_{MX} = (0.85/0.817)(0.01/0.0163) \times 1.41 = 0.90\text{Bq}$ であり、 ^{137}Cs よりも若干感度が良くなる。

(3) $3\delta_c$

$3\delta_c$ にあたる C_M (Bq/L)は、 A_M 、試料容積 V (L) によって次のように計算される。

$$C_M = A_M / V$$

例えば、容積2Lのマリネリ容器では A_M の値を2で除し、容積100mLの円筒形容器 (U-8 など) では A_M の値を0.1で除して求められる。例として、2Lマリネリ容器を用いた場合の ^{131}I 及び ^{137}Cs に対する C_M を表3-4及び表3-5に示す。

表 3-4 : ^{131}I に対する C_M (Bq/L) : $k=3$ 、 $a=0.817$ 、 $\epsilon=0.163$

	nB (s ⁻¹)	測定時間 (s)						
		500	1,000	2,000	5,000	10,000	20,000	50,000
2Lマリネリ容器	0.001	0.7	0.4	0.2	0.1	0.1	0.0	0.0
	0.002	0.8	0.5	0.3	0.1	0.1	0.1	0.0
	0.005	0.9	0.6	0.4	0.2	0.1	0.1	0.1
	0.01	1.1	0.7	0.5	0.3	0.2	0.1	0.1
	0.02	1.4	0.9	0.6	0.4	0.2	0.2	0.1
	0.05	2.0	1.3	0.9	0.5	0.4	0.3	0.2
	0.1	2.6	1.8	1.2	0.7	0.5	0.4	0.2

表 3-5 : ^{137}Cs に対する C_M (Bq/L) : $k=3$ 、 $a=0.85$ 、 $\epsilon=0.01$

	nB (s ⁻¹)	測定時間 (s)						
		500	1,000	2,000	5,000	10,000	20,000	50,000
2Lマリネリ容器	0.001	1.2	0.6	0.4	0.2	0.1	0.1	0.0
	0.002	1.3	0.7	0.4	0.2	0.1	0.1	0.1
	0.005	1.5	0.9	0.5	0.3	0.2	0.1	0.1
	0.01	1.8	1.1	0.7	0.4	0.3	0.2	0.1
	0.02	2.2	1.4	0.9	0.6	0.4	0.2	0.1
	0.05	3.1	2.0	1.4	0.8	0.6	0.4	0.3
	0.1	4.1	2.8	1.9	1.2	0.8	0.6	0.4