

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 4 9 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 正実	放射線医学総合研究所
	井上 弥次郎	電子技術総合研究所
	川城 巖	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
	阿部 史朗	放射線医学総合研究所
専門委員	石川 友清	日本原子力研究所
	浦久保 五郎	国立衛生試験所
	岡野 眞治	理化学研究所
	笠井 篤篤	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
	教賀 花人	東海区水産研究所
	山 泉 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)

目 次

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 シャヘイ体	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方法	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 マルチチャンネル波高分析器（PHA）の調整	14
5.5 ピークチャンネル値の求め方	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 ルーチンチェック	19
第 7 章 計数効率とその求め方	20
7.1 計数効率と τ 計数効率	20
7.2 光電ピーク面積の求め方	20
7.3 τ 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 KC ₂ 試薬による光電ピーク τ 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
10.1 測定上の記録	58
10.2 報告様式	58
附 表 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 核種別の波高分布曲線	61
附図 2 土壌、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、核実験に伴うファ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(Tl)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(Tl)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(Tl)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ピコキュリー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-60から同時に放射する2本の γ 線(1.17, 1.33 MeV)を利用して、 γ - γ 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

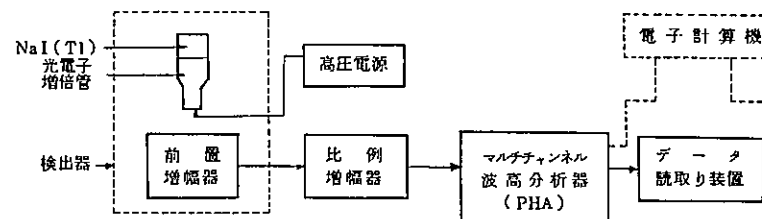
本マニュアルで用いられる用語のうち、特に重要なものおよびこのマニュアルで限定的に用いられるものなどについて、以下に簡単な説明を行う。

1. エネルギー校正曲線 光電ピークのピークチャンネル値と γ 線エネルギーとの関係を示す曲線をいう。
2. 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ンネル値との比(%)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。
4. γ 線放出率 線源から単位時間に放出される γ 線の数をいい、これは壊変率 γ 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。
6. 光電ピーク γ 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ピークで、一般に正規分布で近似できる。
7. 光電ピーク γ 線数効率 光電ピークに含まれる計数率と対応する γ 線の放出率との比をいう。
8. 光電ピーク計数効率 光電ピークに含まれる計数率と線源の壊変率との比をいう。
9. 光電ピーク面積 光電ピークにおける計数値の総和をいう。
10. 自然計数(率) 測定試料またはブランク試料などをかかない状態で測定される計数(率)をいう。(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、 $(\Delta E/E\gamma) \times 100$ (%)で表示する。ここで ΔE は直線からのずれ、 $E\gamma$ は最大エネルギーである。
13. 総計数(グロス γ 計数) 測定しようとする γ 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 γ 計数効率 特定の γ 線に対する総計数率と γ 線の放出率との比をいう。
17. チャンネル幅 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 光電ピークの高さの半分における全幅をいう。
20. ピークチャンネル ピークの中心に最も近いチャンネル番号をいう。
21. ピークチャンネル値 光電ピークの中心に相当するチャンネル値をいう。

22. 微分直線性 チャンネルあたりに相当するエネルギー幅の一様性を意味し、平均チャン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(Tl)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なるが、通常NaI(Tl)シンチレーション検出器、シャペル体、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ンネル波高分析器)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(Tl)シンチレーション検出器は大別して、NaI(Tl)シンチレータ、光電子増倍管、磁気シャペル、前置増幅器、検出器ケースより構成される。(前置増幅器が含まれていないものもある。)

3.1.1 NaI(Tl)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(Tl)シンチレータの寸法は直径長さとも508mm(2インチ)~1016mm(4インチ)程度の円柱形のもがよく用いられるが、このマニュアルでは直径長さとも763mm(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(Tl)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(Tl)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：端面形光電子増倍管で、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、地磁気の影響を受けやすいので、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ゃ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、完全にしゃへう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(Tl)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 シャへい体

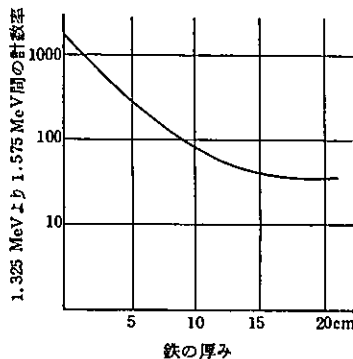
天然または人工放射性物質のγ線や宇宙線(軟成分)をしゃへいして、自然計数率を低減させるために、検出器と試料容器をしゃへい体内に収納する。

3.2.1 シャへい材料：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-E(ビスマス-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-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 シャへい材料の厚さ：

一般に鉛で5~10cm、鉄で10~20cm程度の厚さがいられ、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 鉄を用いた場合のしゃへいの厚さと自然計数率の関係

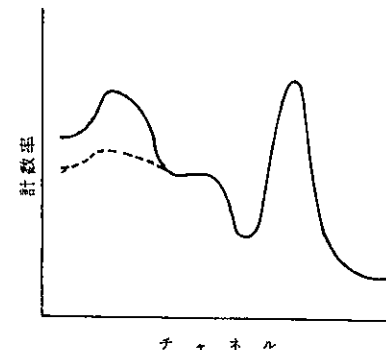
第3.2図に示した。

3.2.3 シャへい体内張り：

線源から放射されたγ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γ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。

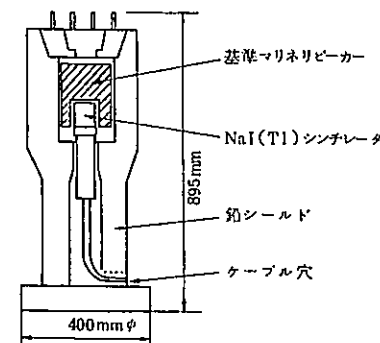
一方、しゃへいの最も内側の物質が鉛などの高原子番号のものを使用した場合には、内側の物質とγ線との相互作用によって放出される特性X線が検出器に入射するため、低エネルギー部にピークを生ずることがある。このエネルギーは鉛の場合約80 KeV(K特性X線)である。これを除去するには鉛の内面にさらに1.5mm程度のステンレススチールを内張りするか、または約1.0mmのカドミウム、さらに銅を順次内張りするのがよい。



第3.3図 鉛の内張りによる効果

3.2.4 シャへい装置の構造：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。



第3.4図 シャへい装置

3.3 電子回路

3.3.1 前置増幅器：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ンネル波高分析器(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に内蔵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、減衰時間、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。

- (1) スペクトルのCRT表示
- (2) メモリーチャンネルのサブグループへの分割
- (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、次のような機能が追加されていれば、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、マルチスケータ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。

データ読取り装置には、いろいろのものがあるが最小限デジタルプリンタ（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プロッタ (3) 磁気テープ記録装置 (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ンネル数は200～400程度が適当である。

3.4 機器の設置上の注意

検出器を収納したシャヘイ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受けやすいので、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氣的雑音の混入を防止するため、パルス性の電氣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、シャヘイ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。

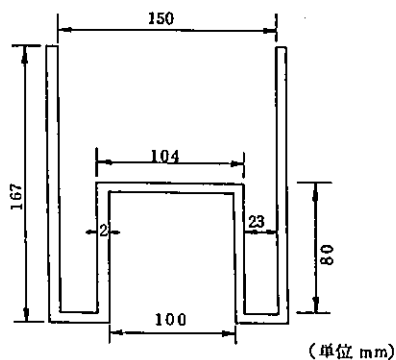
なお、シャヘイ装置の設置にあたっては、床荷重に留意すること。

第4章 試料容器と標準試料

4.1 試料容器

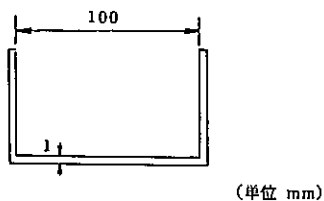
試料容器は、種々の材質、形状、寸法のものが考えられるが、このマニュアルにおいては、以下に示す寸法の基準マリネリビーカー、基準ビーカーおよび円形ろ紙を用いることをたてまえとし、これらの容器などに規定量の試料を充填した場合の計数効率などのデータを第7章の7.3～7.7図に示す。ただし放射能標準試料を用いて計数効率を求める場合には、かならずしもこれらの基準容器を使用しなくてもよい。

4.1.1 基準マリネリビーカー（塩ビ製） 規定容量 1,700ml



第4.1図 基準マリネリビーカー

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



第4.2図 基準ビーカー

4.1.3 円形ろ紙 直径7cm 東洋ろ紙 No.2

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ンネルソフトをおこなうことがあり、また逆にあまり計数率が低いと統計変動が大きいためばかりでなく、計測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當と思われる核種を示した。

第4.1表 エネルギー校正用核種

核種	γ 線エネルギー (MeV)		半減期
$^{144}\text{Ce} - ^{144}\text{Pr}$	0.1335	0.0801	他 285日
^{51}Cr	0.3201		27.8日
^{22}Na	0.511	1.2746	2.58年
^{137}Cs	0.6616		30年
^{54}Mn	0.8348		303日
^{60}Co	1.1732	1.3325	5.26年
^{207}Bi	0.5696	1.0634	1.7697 30.2年
^{24}Na	1.3685	2.754	14.97時間
^{90}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性状(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、 $\sim 0.01 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 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-3ニトロトルエン
- (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、光電ピ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払う必要がある。一方、光電ピ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づけに応じてくる。

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($\sim 100\text{ml}$)をシャーレにとりわけける。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。乾燥後乳鉢中でかくくつき、これを残りの母材とバット中でまんべんなく混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、母材をバットにあげ、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て後再び試料容器に充填する。

(4) フィルターペーパー状試料:規定寸法のろ紙を大型シャーレ(直径10cm程度のもの)の上におき、これに希薄標準溶液0.5ml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。

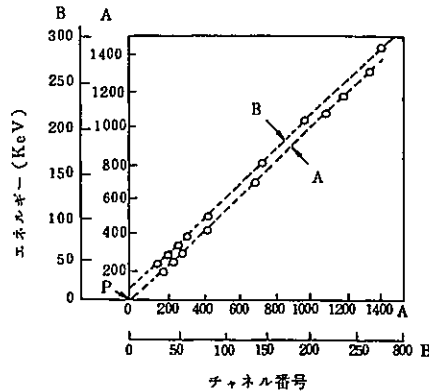
なお、対象とする核種が揮発性である場合には、乾燥に際して温度をあげないように注意する必要がある。特にルテチウム、アンチモン、ヨウ素、セシウム、水銀などの核種については適当な沈殿剤(例えばKIに対して AgNO_3)の使用およびデシケーター内での乾燥などの処置が必要な場合が多い。

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のチャンネル番号と γ 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 γ 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ンネル（後述）とその γ 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ほぼ直線（5.1図の点線）で近似される。1チャンネルあたりの平均エネルギー幅をチャンネル幅といい、チャンネル幅はふつう10～20KeVで使用されることが多い。



第5.1図 エネルギー校正曲線

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ンネル幅を決定する。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小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もある。

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ン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に内蔵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、減衰時間、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。

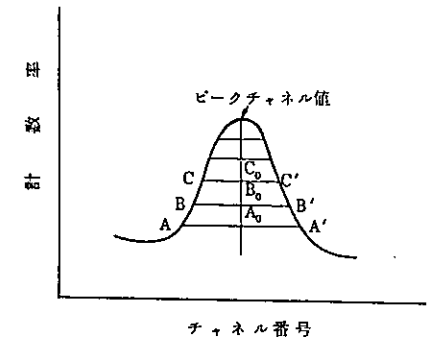
5.4 PHAの調整

- 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ー γ 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 ピークチャンネル値の求め方

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ンネル値をピークチャンネル値という。ピークチャン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。

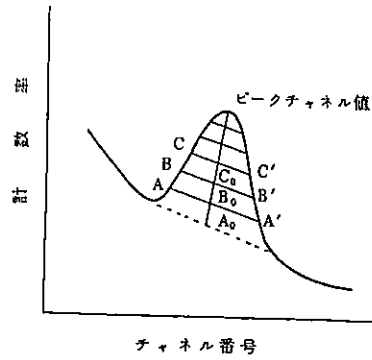
- 5.5.1 光電ピークが独立して存在し、または平坦なスペクトルに重畳しているとき、第5.2図の如くピークの部分を正方眼紙にプロットして滑らかな曲線で結ぶ。つぎに何本かの横線を引き、この曲線との交点AA', BB'……とする。これらの線分AA', BB'……の中点A₀, B₀……を求め、これらを結ぶ直線を作る。この直線はピークの頂点近くでは垂直になる。この垂直部分に相当するチャンネル値をピークチャンネル値とする。ふつう0.1チャンネルの精度でよみとることができる。



第5.2図 平坦なスペクトルに重畳している場合

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 光電ピ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眼紙にプロットし、前述の方法を用いるか、または第5.3図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ンネル直を求める。



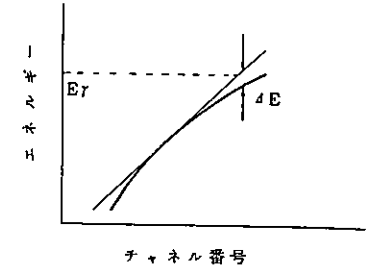
第5.3図 傾斜した連続スペクトルに重畳している場合

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ン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、 $(\Delta E / E_T) \times 100\%$ であらわす。ここで E_T は最大チャン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チャンネル程度の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。



第6.1図 積分直線性

微分直線性とは、チャン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ン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。

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(Tl)シンチレータの発光効率のエネルギー依存性: NaI(Tl)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図に示すごとく約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) ピークチャンネル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なのでこの測定には点線源を用いるか, B-Pの半値幅を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。

6.6 ルーチンチェック

これまでの述べた性能の試験は、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ン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ン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0.511 MeV, γ 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 γ 計数効率

7.1.1 計数効率

計数効率とは、着目したチャンネル領域の計数率(バックグラウンドを差引いたもの)と線源の壊変率 η_0 (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ンネル領域の計数 N_G をとった場合と特定の光電ピーク面積に対応する計数 N_P をとった場合とが実用上重要でそれぞれgross計数率 ϵ_{TG} 、 ϵ_{TP} と呼ぶ。

すなわち

$$\epsilon_{TG} = \frac{N_G}{\eta_0 t} \dots\dots\dots (7-1)$$

$$\epsilon_{TP} = \frac{N_P}{\eta_0 t} \dots\dots\dots (7-2)$$

である。ここで、 t は測定時間(秒)を示す。

7.1.2 γ 計数効率

γ 計数効率とは、着目したチャンネル領域に含まれる特定の γ 線による計数率とその γ 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ンネル領域の計数 N_G をとった場合と特定の光電ピーク面積に対応する計数 N_P をとった場合が実用上重要でそれぞれ総 γ 計数効率 ϵ_{TG} および光電ピーク γ 計数効率 ϵ_{TP} と呼ぶ。

すなわち、

$$\epsilon_{TG} = \frac{N_G}{\eta_0 a_{\gamma t}} \dots\dots\dots (7-3)$$

$$\epsilon_{TP} = \frac{N_P}{\eta_0 a_{\gamma t}} \dots\dots\dots (7-4)$$

である。ここで t は測定時間(秒)、 a_{γ} は着目した γ 線の放出比を示す。

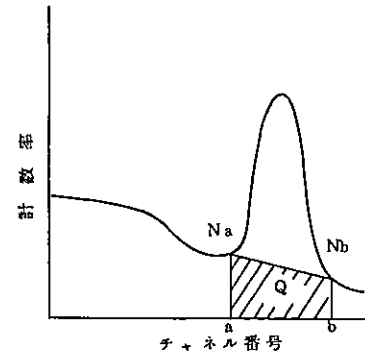
7.2 光電ピーク面積の求め方

光電ピーク面積の定義には、いろいろの考え方があり¹⁾更に光電ピ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ピーク面積の決定の手順は次の通りである。

7.2.1 ピークチャンネルを読みとる。

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	0.082	1.8	0.775
0.7	0.125	2.0	0.850
0.8	0.162	2.2	0.910
0.9	0.218	2.4	0.935
1.0	0.285	2.6	0.960
1.2	0.420	2.8	0.970
1.4	0.555	3.0	0.980



第7.2図 光電ピークと連続分布部分

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 線源を用いて 5.2 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、チャン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ンネル p を中心として左右に $l = 3 \times (\frac{\Gamma}{2})$ チャンネルずつとり (a および b 点)。この a, b 両チャンネルの間の各チャンネルの計数値 N_i の総和 P (カウント) を求める。

すなわち

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

7.2.4 a 点における計数値 N_a および b 点における計数値 N_b を読みとり次の計算を行なう。

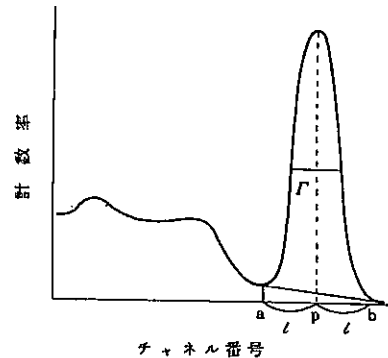
$$Q = (N_a + N_b) \left(l + \frac{1}{2} \right) \dots\dots\dots (7-6)$$

7.2.5 ピーク面積 N_p (カウント) は

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

として与えられる。

なお、他のピークコンプトンエッジなどの妨害により、ピークチャンネルを中心として左右に $l = 3 \times (\frac{\Gamma}{2})$ だけ



第7.1図 光電ピーク面積の求め方

をとることが困難な場合には、 l として適宜のチャンネル数を取り、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 N_p を求める。

7.3 γ 計数効率の求め方

7.3.1 標準試料の光電ピーク γ 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 N_G および特定の光電ピーク領域の計数値 N_p 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 N_p より標準試料の壊変率 n_0 (dps) および澄目した γ 線の放出比 a_i を用いて、(7-4) 式にしたがって、光電ピーク γ 計数効率 $\epsilon_{\gamma p}$ を算出する。入射エネルギーと γ 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。

- 1) 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た必要から光電ピ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。

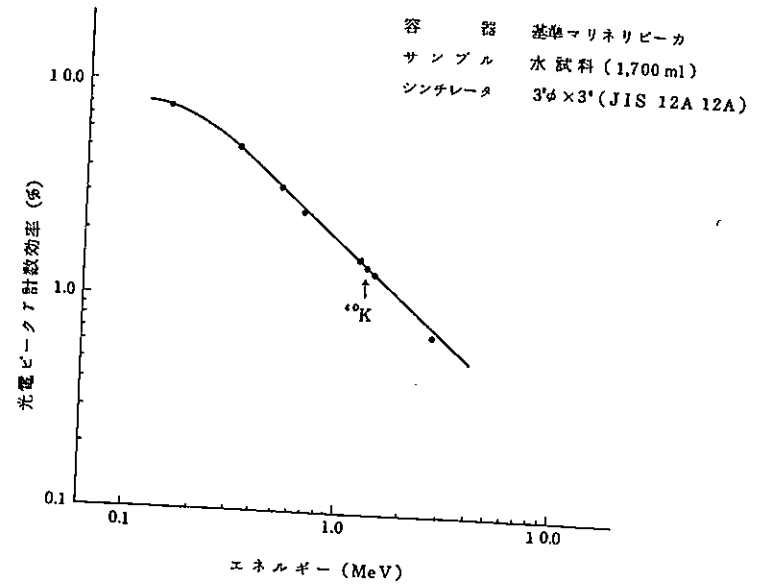
第7.2表 入射エネルギーとγ計数効率との関係を求めるのに適した核種

核種	γ線のエネルギー(MeV)	γ線放出比(%)	半減期
¹⁴¹ Ce	0.1454	48	33.1日
²⁰³ Hg	0.2791	77	46.9日
⁵¹ Cr	0.3201	9.8	27.8日
¹⁹⁸ Au	0.4118	95	2.7日
⁷ Be	0.4774	10.3	53.6日
¹³⁷ Cs	0.6616	86	30年
⁵⁴ Mn	0.8348	100	303日
⁶⁵ Zn	1.1154	49	245日
⁴⁰ K	1.460	(1.782γ/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
	1.3325	100	
²⁴ Na	1.3685	100	14.97時間
	2.7539	100	

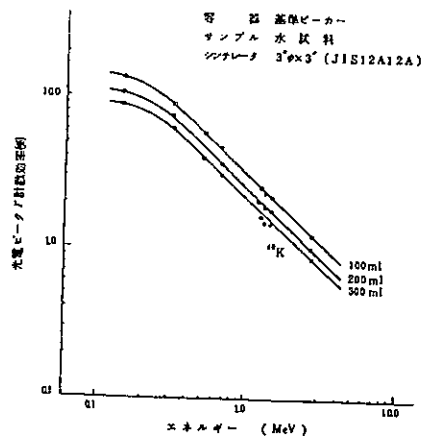
なお、これらの核種のうち、ナトリウム-22、イットリウム-88、コバルト-60およびナトリウム-24は複数本のγ線をカスケードに放出する。この場合注目するγ線が光電吸収をおこしても、もう1本のγ線が、シンチレータ中で同時に相互作用をおこすとサム効果によって光電ピークに対応するチャンネルより高いチャンネルに計数が記録されることになる。したがってこのサム効果によって見かけの光電ピーク面積は減少することになるので、減少分を補正する必要がある。例えばA、B二本のγ線をカスケードに放出し、それぞれの放出比が100%の場合、γ線Aに対する光電ピークγ計数効率(ε_{γp})_Aは次の式で与えられる。

$$(\epsilon_{\gamma p})_A = \frac{(N_p)_A}{N_0 t [1 - (\epsilon_{\gamma q})_B]} \dots\dots\dots (7-8)$$

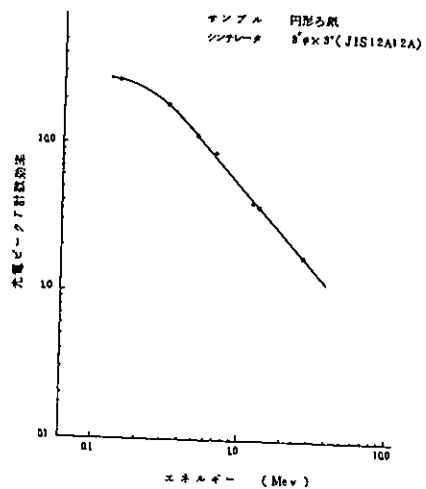
ここで(N_p)_Aはγ線Aに対応する光電ピーク面積、(ε_{γq})_Bはγ線Bに対する総γ計数効率である。



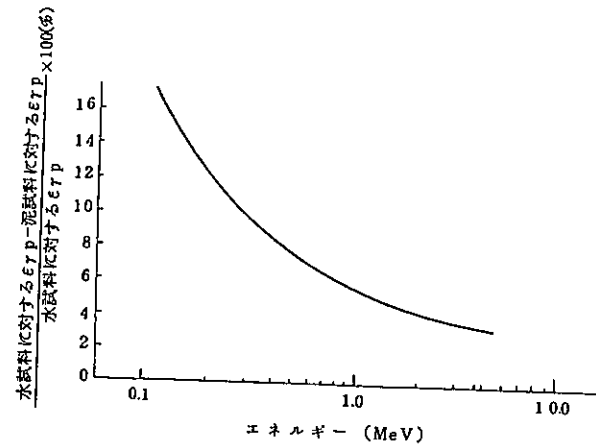
第7.3図 NaI(Tl)シンチレーション検出器のγ計数効率



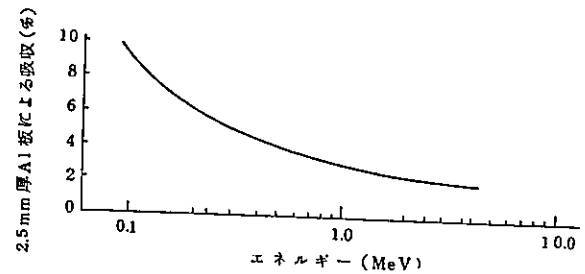
第7.4図 NaI(Tl)シンチレーション検出器の ^{40}K 計数効率



第7.5図 NaI(Tl)シンチレーション検出器の ^{40}K 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ピーク ^{40}K 計数効率の差



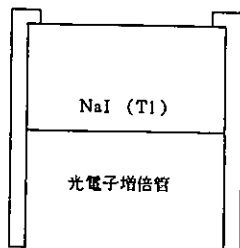
第7.7図 2.5mm Alによる吸収

7.4 規格化された容器に対する3インチ径×3インチNaI(Tl)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。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ー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い。一例として、マリネリピーカ

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、マリネリピーカの底を結晶上端に密着出来ないことがある。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。



第7.8図 検出器の構造の一例

7.5 KCl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KCl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KCl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。

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。KCl試薬1gあたりの γ 崩壊率は1.782r/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 ピークなどによる小容量試料については、第7.4図、マリネリピーカについては第7.3図のデータからカリウム-40の γ 線(1.460 MeV)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図に示す値に乘ずる。

なお、KCl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。

3) このデータは基準マリネリピーカーとNaI(Tl)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 γ 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。

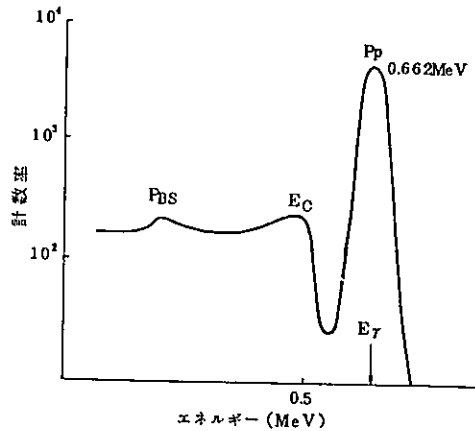
第8章 単一核種の波高分曲線と定性定量分析法

8.1 単一核種の波高分布曲線

γ 線がNaI(Tl)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(Tl)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ペクトルが表われる。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述べる。

8.1.1 光電ピーク

光電効果は入射した γ 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る。たとえばセシウム-137の単一エネルギーの γ 線(0.662 MeV)がNaI(Tl)シンチレータに入射した場合、光電効果により入射 γ 線エネルギー(E_γ)の全部を失うことにより光電ピーク(P_p)が現われる(第8.1図)。この光電ピークは入射 γ 線のエネルギーに対応するので波高分布曲線測定の際最も重要なものの一つである。また光電ピーク



第8.1図 セシウム-137の波高分布曲線

の形は近似的に正規分布として扱うことができる。

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NaI(Tl)シンチレータに与えたエネルギーの最大値(E_0)は次式で与えられる。

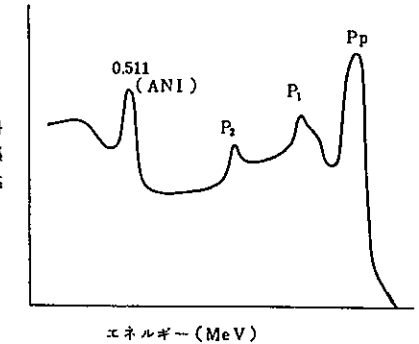
$$E_0 = \frac{2E_\gamma^2}{0.51 + 2E_\gamma} \text{ (MeV)} \dots\dots\dots (8-1)$$

E_0 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對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こったとき、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出す場合は、入射 γ 線エネルギーを E_γ とすると $E_\gamma - 1.02$ MeVの2光子エスケープピーク P_2 が現われる。



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 $E_\gamma - 0.511$ MeVの1光子エスケープピーク P_1 が現れる。 γ 線がNaI(Tl)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8.2図)

8.1.4 KX線エスケープピーク

一般に γ 線やX線がNaI(Tl)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こす確率が高い。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 γ 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 γ 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 γ 線

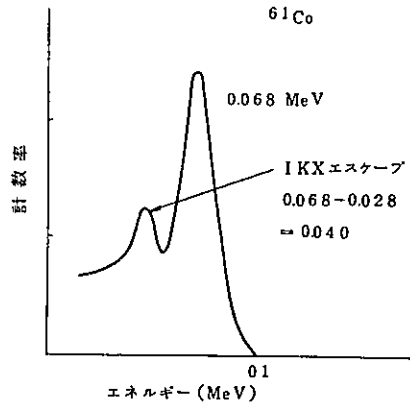
を測定の対象とすることは少ないのでKX線エスケープピークを考慮する必要はあまりない。

以上のものの組合わされたものが単一エネルギー γ 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 γ 線が同時または独立に放出される場合がある。

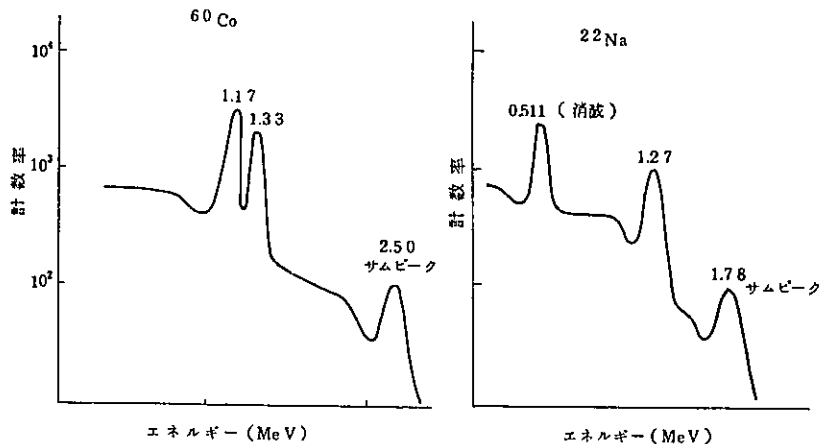
8.1.5 サムピーク

$E_{\gamma 1}$, $E_{\gamma 2}$ の2本の γ 線が同時にNaI (TI)シンチレータに入射すると、このスペクトルには、 $E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2}$ に対応する同時サムピークが現われる。

実際にはコバルト-60のような2本のカスケード γ 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)



第8.3図 I KX線エスケープ



第8.4図 カスケード γ 線同時サムピーク

第8.5図 消滅放射線同時サムピーク

と他の γ 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 γ 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 $2E_{\gamma}$ 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う。

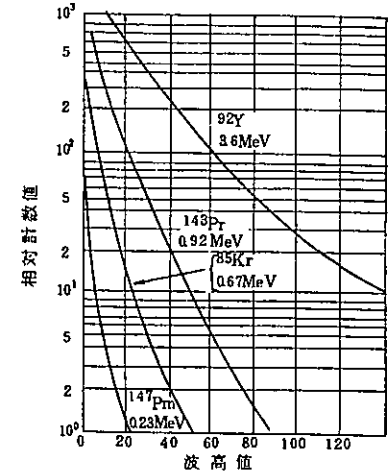
8.1.6 制動放射

測定試料中の核種は多くの場合 γ 線の他に β 線を放出している。この β 線が測定試料自体やNaI (TI)シンチレータの金属ケース或いは β 線カット用吸収体などと相互作用をし、制動放射線を放出する。この場合の波高分布曲線はゼロから入射電子のエネルギーまでの連続スペクトルとして現われる。(第8.6図)

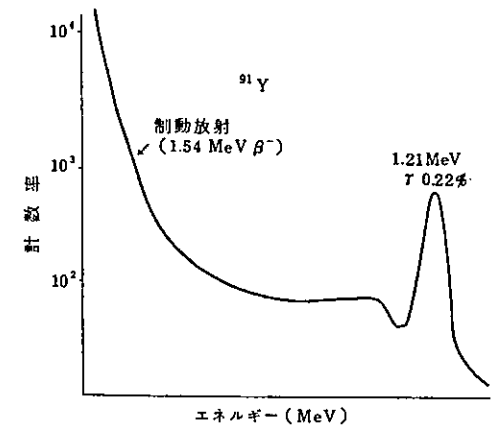
γ 線放出率が少ない β 線放出核種の波高分布曲線は第8.7図のようになる。

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Z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8.6図 制動放射線による波高分布曲線



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、 γ 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ンネルを 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 PHA 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)

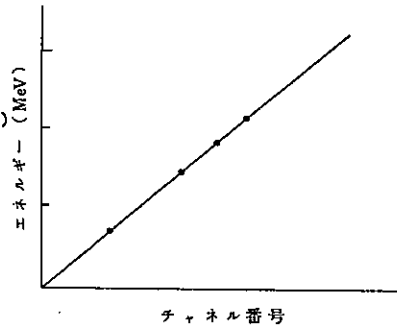
8.2.3 エネルギーの決定

測定試料を明確に光電ピークが判別できるまで測定する。光電ピークのピークチャンネル値を 5.5 に従って決め、ピークチャンネル値からエネルギー校正曲線を用いて光電ピークのエネルギー E_{γ} を正確に読みとりエネルギーを決定する。

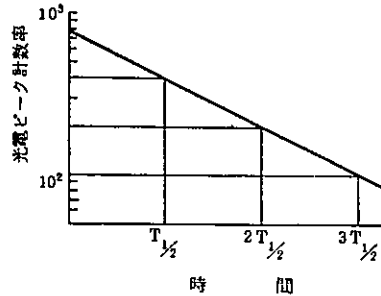
光電ピーク以外のピークでもエネルギーが明らかなもの同定に用いることが出来る。たとえば同時サムピークなどである。

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。この場合チャンネル幅、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ビー



第 8.8 図 エネルギー校正曲線



第 8.9 図 半減期の決定

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。半減期は光電ピーク計数率が $1/2$ 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、 γ 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 γ 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に短い場合、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ン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ン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グ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 Wiley & 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ン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

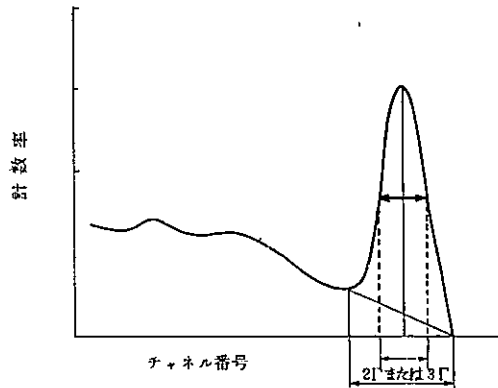
試料に含まれる核種の γ 線エネルギーによってエネルギー範囲をゼロより 1 MeV ~ 3 MeV になるように設定する。ライブタイムで測定時間を設定して測定する。試料の測定時間は試料中に含まれる核種の濃度によって異なるが、天然レベルのものは $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^4$ 秒の測定時間が必要である。

(3) 光電ピーク計数率

光電ピーク計数率は第 8.10 図に示すようにピーク値の $1/2$ 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ンネルの計数率の合計として求める(7.2参照)。この場合光電ピ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ピ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。



第 8.10 図 光電ピーク計数率

$$C = \frac{N_p}{3.7 \times 10^4 \epsilon_{\gamma p a_i t}} \cdot \frac{1}{V} (\mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \text{ または } \mu\text{Ci}/\text{g}) \dots (8-2)$$

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

$\epsilon_{\gamma p}$: 同一エネルギーの光電ピーク γ 計数効率

a_i : γ 線の放出比(9.4表を参照)

t : 測定時間(秒)

V : 測定試料の容量(cm^3)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濃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ピ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) 核種濃度

試料中の核種濃度は次式から求める。

$$C = \frac{P_s}{P_{std}} \cdot (n_o)_{std} \cdot \frac{1}{V} (\mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \text{ または } \mu\text{Ci}/\text{g}) \dots (8-3)$$

C = 試料中の核種濃度

$(n_o)_{std}$ = 標準試料の全放射能(μCi)

P_{std} = 標準試料の光電ピーク計数率または総計数率

P_s = 試料の光電ピーク計数率または総計数率

V = 測定試料の容量(cm^3)または重量(g)

4) 放射能は $10^2 \sim 10^3 \mu\text{Ci}$ が適当である。

第9章 混在核種の分離定量法

試料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わなければならない。

NaI (TI)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に含まれる核種のそれぞれの γ 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ピ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ピ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、かなりの経験が必要とする。また一般に、高いチャン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ンネルに影響する。このため高いチャンネルの積分計算(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ン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るなければならない。

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

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 γ 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。

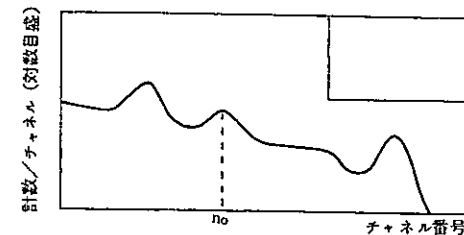
この方法による定量は、標準試料を用いなくて光電ピークのみに着目する場合は9.1.1にしたがって、また試料と同一形状の標準試料がある場合には9.1.2によって行なう。

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。

- (1) PHAの全チャンネル(100~400チャンネル)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/チャンネルに調整する。
- (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。

第9.1表 測定条件

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	
使用チャンネル	
チャンネル幅	
ゼロエネルギーのチャンネル または ゼロチャンネルのエネルギー	
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ンネルを n_0 とし、 n_0 を中心として左右に半値幅の2倍または3倍の範囲 ($\pm l$) の両端のチャンネルを $n_0 - l$ 、 $n_0 + l$ とする。

(7.2参照)

(5) i チャンネルの計数値 N_i について $n_0 - l$ チャンネルから $n_0 + l$ チャンネルまでの総和 P を求める。

$$P = \sum_{i=n_0-l}^{n_0+l} N_i \dots\dots\dots (9-1)$$

(6) $n_0 - l - 1$ チャンネルおよび $n_0 + l + 1$ チャンネルの計数値をそれぞれ N_a 、 N_b とし、 Q を次式によって求める。

$$Q = (N_a + N_b) \left(1 + \frac{1}{F}\right) \dots\dots\dots (9-2)$$

(7) ピーク面積 N_p は次式によって求める。

$$N_p = \frac{P - Q}{F} \dots\dots\dots (9-3)$$

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。

$$\Delta N_p = \frac{\sqrt{P + Q}}{F} \dots\dots\dots (9-4)$$

(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。

第9.2表 測定結果

	測定試料	標準試料
P		
$n_0 + l$		
$n_0 - l$		
$F(2l/F)$		
Q		
N_p	$N_{SA} =$	$N_{ST} =$
誤差	$\Delta N_{SA} =$	$\Delta N_{ST} =$
ピークチャンネル値(エネルギー)	(MeV)	(MeV)
測定時間	$t_{SA} =$	$t_{ST} =$
光電ピーク計数効率	$\epsilon_{TP} =$	
標準試料の放射能		$D_{ST} =$

(10) 試料放射能 D'_{SA} は

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

で求める。

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

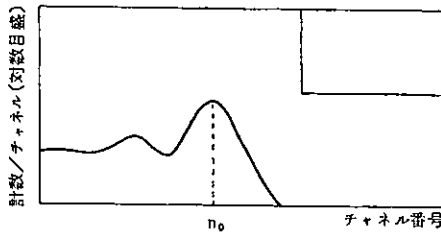
で求める。

N_{SA} : 試料のピーク面積 t_{SA} : 試料の測定時間
 $\epsilon_{\gamma P}$: 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の全チャンネル(100~400チャンネル)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/チャンネルに調整する。
- (3) 試料を測定し、その結果を第9.1図の如く片対数グ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プロットする。



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、そのピークチャンネルを n_0 とし、 n_0 を中心として左右に半値幅の2倍または3倍の範囲($\pm l$)の両端のチャンネル番号を $n_0 - l$ 、 $n_0 + l$ とする。(7.2参照)
- (7) 各チャンネルの計数値 N_i の総和Pを $n_0 - l$ チャンネルから $n_0 + l$ チャンネルまで求める。(9-1式参照)
- (8) $n_0 - l - 1$ チャンネルおよび $n_0 + l + 1$ チャンネルの計数値をそれぞれ N_a 、 N_b とし(9-2)式によってQを求める。

(9) ピーク面積 N_p 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。

(11) 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

$$D_{SA} = D_{ST} \cdot \frac{N_{SA}}{t_{SA}} \cdot \frac{t_{ST}}{N_{ST}} \dots\dots\dots (9-7)$$

で求める。

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

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 γ 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100.000~1000.000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}	ΔD_{SA}	$\epsilon_{\gamma P}$
		D_{SA}	ΔD_{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、不十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ンネル幅の変動の割合が0.5%以下であることが要求されるので、NaI(Tl)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核種以上の場合に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ンネル幅を5.1にもとづいて0.5%以下の精度で調整する。もし調整が不十分であったり未調整の場合はチャンネル領域を9.2.3によって校正しなければならぬ。

1 2核種 (I-131, Cs-137) を含む試料の例

ヨウ素-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 $N_{I,1}, N_{Cs,1}$ とし、Cs領域におけるIの寄与計数値を $N_{I,Cs}$ 、I領域におけるCsの寄与計数値を $N_{Cs,I}$ 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。

$$N_{I,Cs}/N_{I,1} = R_{I,Cs} \quad \dots\dots\dots (9-9)$$

$$N_{Cs,I}/N_{Cs,1} = R_{Cs,I} \quad \dots\dots\dots (9-10)$$

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値をヨウ素-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。

$$N_{S,I} = N_I + N_{Cs} \cdot R_{Cs,I} \quad \dots\dots\dots (9-11)$$

$$N_{S,Cs} = N_{Cs} + N_I \cdot R_{I,Cs} \quad \dots\dots\dots (9-12)$$

求める N_I, N_{Cs} は次の行列式となる。

$$N_I = \frac{\begin{vmatrix} N_{S,I} & R_{Cs,I} \\ N_{S,Cs} & 1 \end{vmatrix}}{\begin{vmatrix} 1 & R_{Cs,I} \\ R_{I,Cs} & 1 \end{vmatrix}} \quad \dots\dots\dots (9-13)$$

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

これより

$$N_I = \frac{N_{S,I} - R_{Cs,I} \cdot N_{S,Cs}}{1 - R_{Cs,I} \cdot R_{I,Cs}} \quad \dots\dots\dots (9-15)$$

$$N_{Cs} = \frac{N_{S,Cs} - R_{I,Cs} \cdot N_{S,I}}{1 - R_{Cs,I} \cdot R_{I,Cs}} \quad \dots\dots\dots (9-16)$$

となり、 N_I, N_{Cs} と光電ピーク計数効率から、それぞれの核種の放射能が得られる。

2 4核種 (I-131, Cs-137, Ba-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。

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

$$(Ba-140) \quad N_{S,Ba} = N_I \cdot R_{I,Ba} + N_{Ba} + N_{Cs} \cdot R_{Cs,Ba} + N_K \cdot R_{K,Ba} \quad \dots\dots\dots (9-18)$$

$$(Cs-137) \quad N_{S,Cs} = N_I \cdot R_{I,Cs} + N_{Ba} \cdot R_{Ba,Cs} + N_{Cs} + N_K \cdot R_{K,Cs} \quad \dots\dots\dots (9-19)$$

$$(K-40) \quad N_{S,K} = N_I \cdot R_{I,K} + N_{Ba} \cdot R_{Ba,K} + N_{Cs} \cdot R_{Cs,K} + N_K \quad \dots\dots\dots (9-20)$$

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

$$(I-131 \text{主領域}) \quad N_{S,I} = 1.000 N_I + 0.826 N_{Ba} + 0.339 N_{Cs} + 0.347 N_K \quad \dots\dots\dots (9-21)$$

$$(Ba-140 \text{主領域}) \quad N_{S,Ba} = 0.018 N_I + 1.000 N_{Ba} + 0.194 N_{Cs} + 0.229 N_K \quad \dots\dots\dots (9-22)$$

$$(Cs-137 \text{主領域}) \quad N_{S,Cs} = 0.066 N_I + 0.248 N_{Ba} + 1.000 N_{Cs} + 0.306 N_K \quad \dots\dots\dots (9-23)$$

$$(K-40 \text{主領域}) \quad N_{S,K} = 0.000 N_I + 0.125 N_{Ba} + 0.000 N_{Cs} + 1.000 N_K \quad \dots\dots\dots (9-24)$$

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。

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 \bar{A} を作る。

$$A = \begin{pmatrix} 1.000 & 0.826 & 0.339 & 0.347 \\ 0.018 & 1.000 & 0.194 & 0.229 \\ 0.066 & 0.248 & 1.000 & 0.306 \\ 0.000 & 0.125 & 0.000 & 1.000 \end{pmatrix} \dots\dots\dots (9-25)$$

$$\bar{A} = \begin{pmatrix} 1.0271 & -0.7852 & -0.1958 & -0.1167 \\ -0.0057 & 1.0789 & -0.2074 & -0.1816 \\ -0.0666 & -0.1745 & 1.0564 & -0.2602 \\ 0.0007 & -0.1349 & 0.0259 & 1.0227 \end{pmatrix} \dots\dots\dots (9-26)$$

この逆マトリックスから次式が作られる。

$$N_I = 1.027 N_{S,I} - 0.785 N_{S,Ba} - 0.196 N_{S,Cs} - 0.117 N_{S,K} \dots\dots\dots (9-27)$$

$$N_{Ba} = -0.006 N_{S,I} + 1.079 N_{S,Ba} - 0.207 N_{S,Cs} - 0.182 N_{S,K} \dots\dots\dots (9-28)$$

$$N_{Cs} = -0.067 N_{S,I} - 0.175 N_{S,Ba} + 1.056 N_{S,Cs} - 0.260 N_{S,K} \dots\dots\dots (9-29)$$

$$N_K = -0.001 N_{S,I} - 0.135 N_{S,Ba} + 0.026 N_{S,Cs} + 1.023 N_{S,K} \dots\dots\dots (9-30)$$

得られた N_I, N_{Ba}, N_{Cs}, N_K はそれぞれヨウ素-131, バリウム-137, カリウム-40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

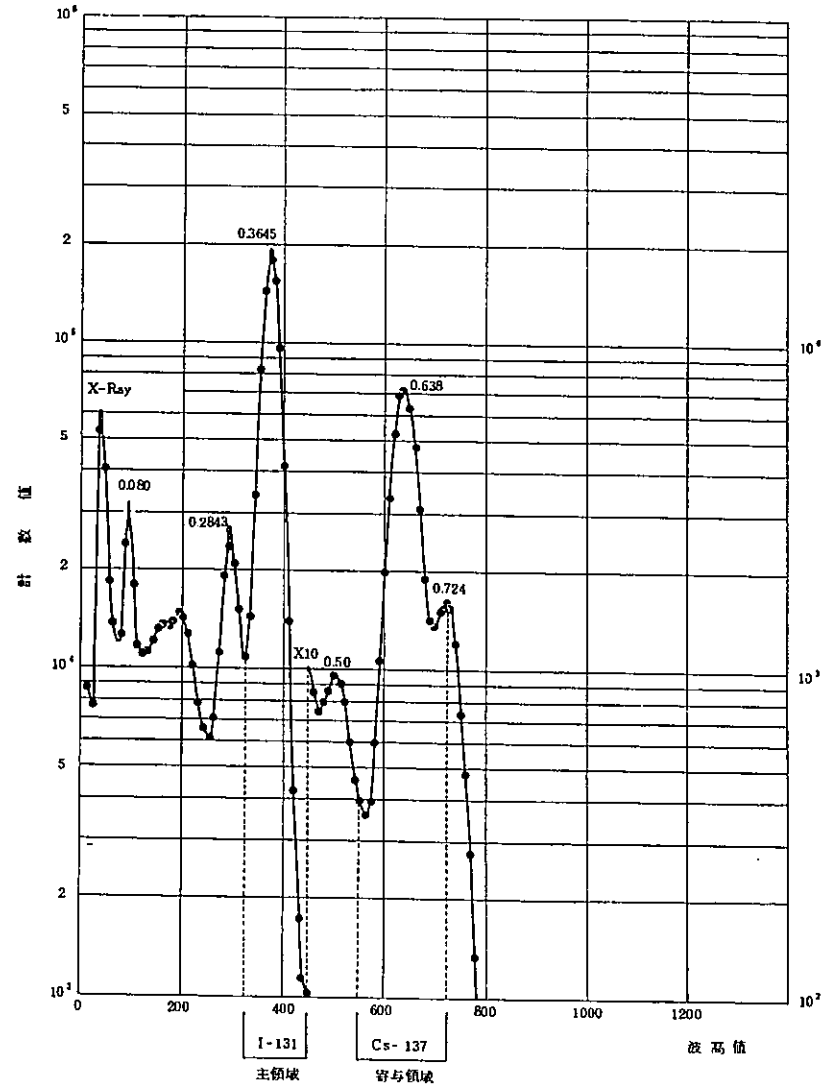
$$D_i = N_i / (\epsilon_{TP} \cdot t) \dots\dots\dots (9-31)$$

t : 計数時間(秒)

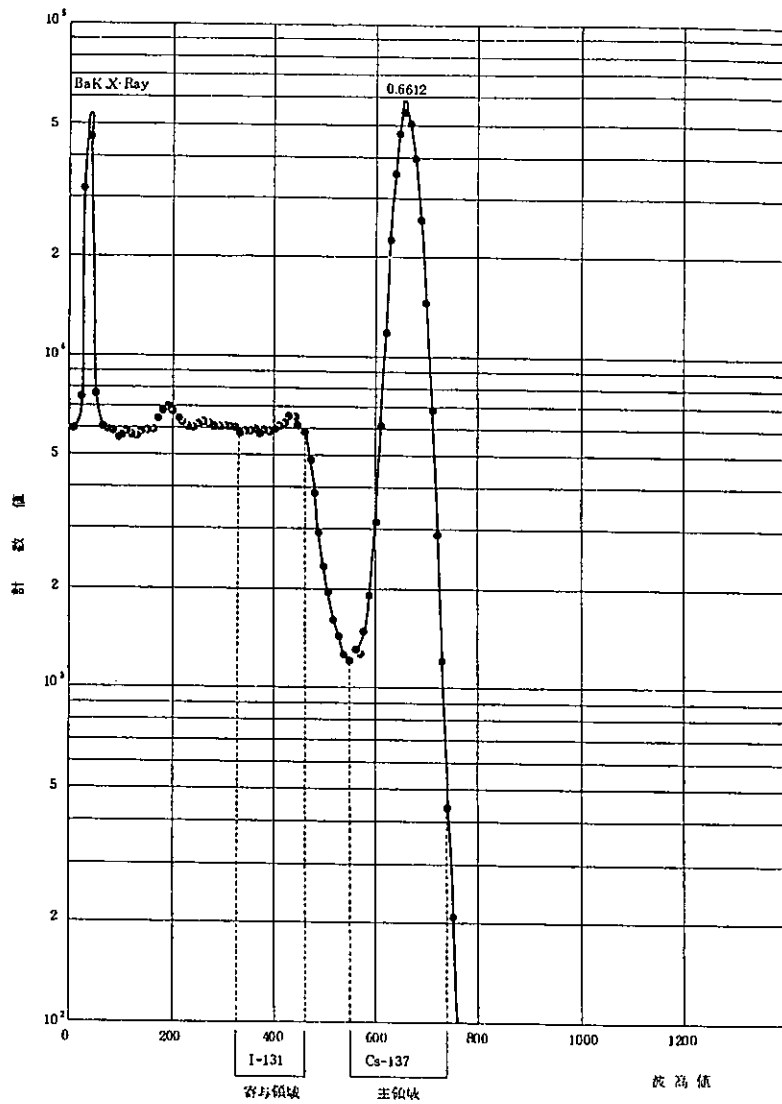
で求める。

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)

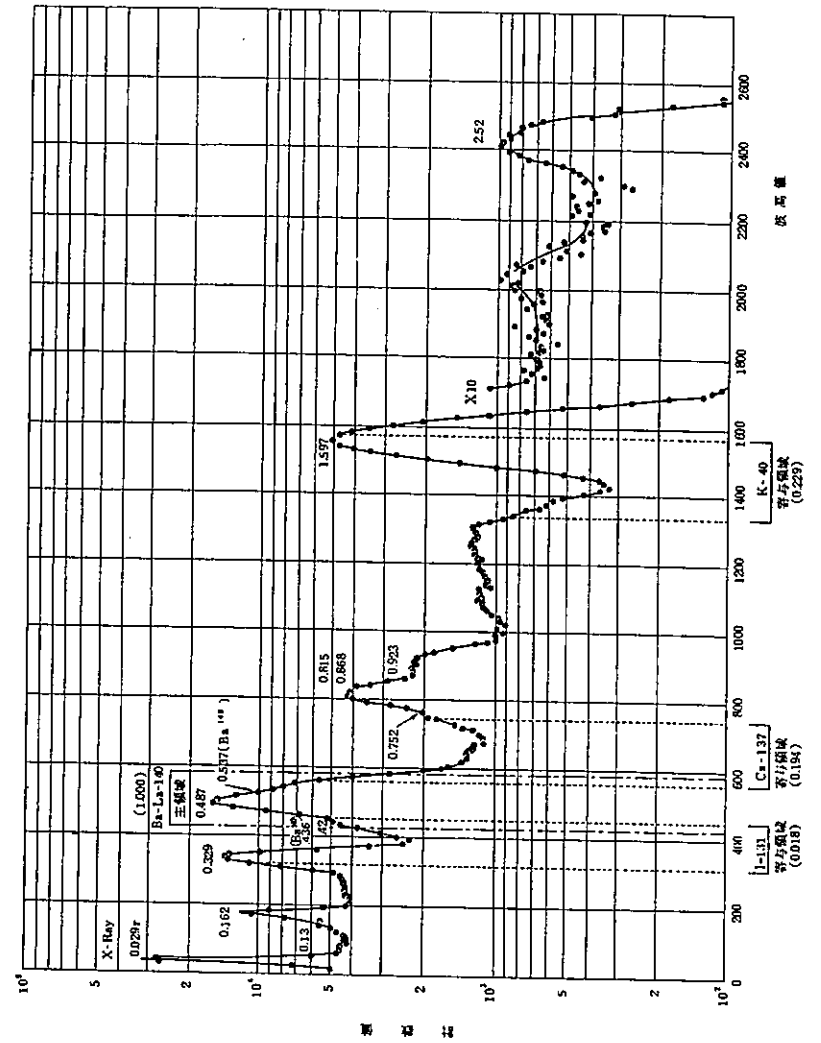
- 2) 連立方程式を解くには、あらかじめ各係数について逆マトリックスを作っておくと便利であり、逆マトリックスを作らない4元以上の式の場合には大変な労力がある。逆マトリックスは計算機(ミニコンピューター位で10元式位まで容易に行なえる)を用いて作ることができる。



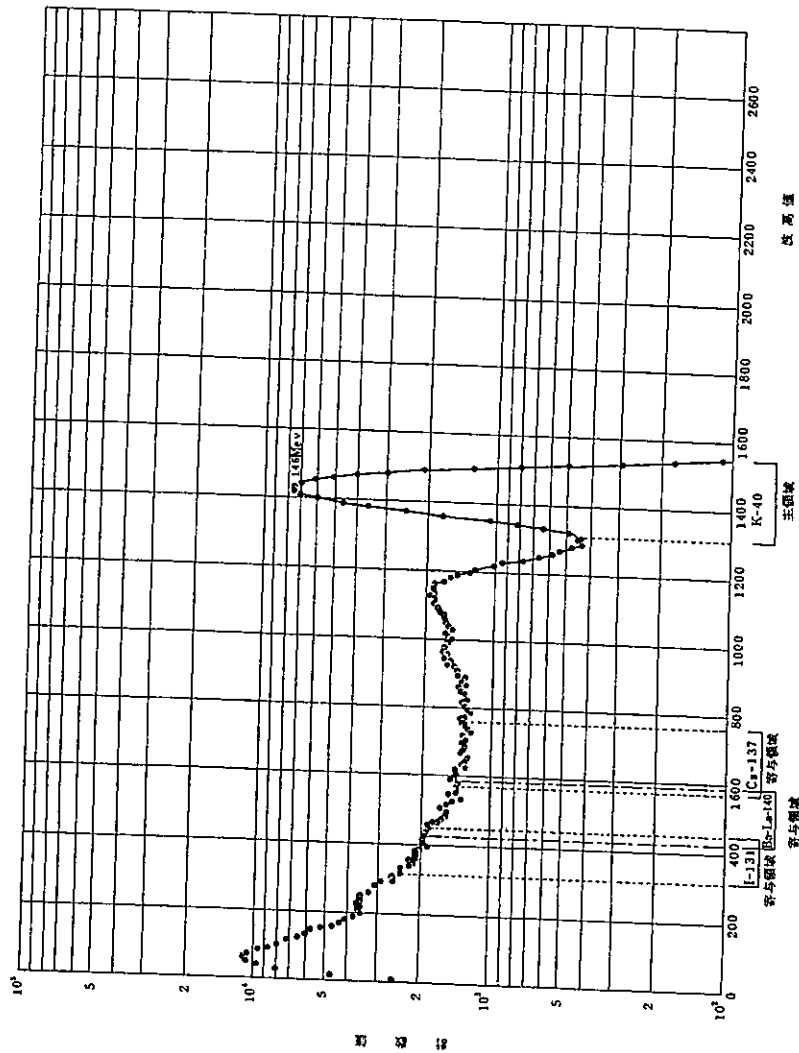
第9.3(1)図 ヨウ素-131の標準スペクトル



第 9.3 (2) 図 セシウム 137 の標準スペクトル



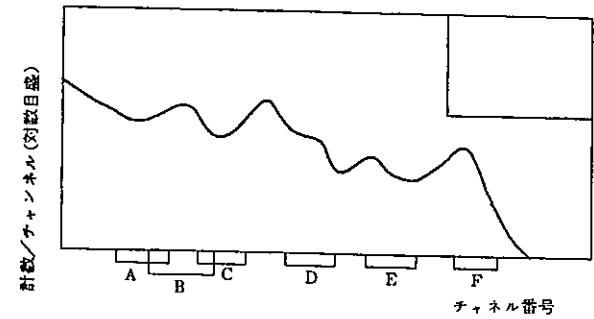
第 9.3 (3) 図 バリウム-ランタン-140 の標準スペクトル



第9.3(4)図 カリウム-40の標準スペクトル

9.2.1 連立方程式による混在核種の定量法

- (1) 5.3にしたがってチャン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、このチャンネル領域を第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ンネル(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)
^7Be	53.61日	0.4774(10.3)	0.39-0.53
^{22}Na	2.58年	{0.5110(180)} 1.2745(100)	1.21-1.35
^{24}Na	14.97時間	1.3685(100), 2.7539(100)	1.27-1.45
^{40}K	1.25×10^9 年	1.460(11)	1.39-1.53
^{42}K	12.52時間	0.3129(0.2), 1.5247(18)	1.43-1.61
^{46}Sc	83.9日	0.8892(100), 1.211(100), 2.04:Sum	0.81-0.95
^{51}Cr	27.8日	0.3210(98)	0.27-0.37
^{54}Mn	303日	0.8348(100)	0.75-0.89
^{57}Co	270日	0.0144(8.4), 0.1219(87), 0.1363(11)	0.07-0.19
^{59}Fe	45.1日	0.1424(0.85), 0.1922(2.8), 0.3348(0.7) 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	1.25-1.39
^{65}Zn	245日	{0.511(3.4)}, 1.1154(49)	1.03-1.17
^{76}As	26.4時間	0.5591(44.6), 0.657(6.3), 1.2162(3.4) 1.4394(0.26), 1.79(0.32), 2.0966(0.6)	0.49-0.63
^{86}Rb	18.66日	1.0788(8.8)	0.99-1.17
^{85}Sr	64.0日	0.5140(100)	0.43-0.57
^{88}Y	104日	{0.511(1.4)}, 0.8980(92), 1.8361(100) 2.74:Sum	0.83-0.97
^{95}Zr	65日	0.7242(4.3), 0.7567(54.6)	0.69-0.83
^{95}Nb	35日	0.7658(99)	0.69-0.83
^{99}Mo	66.0時間	0.0406(6.3), 0.1405(95), 0.1811(7.6) 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)	0.43-0.57
^{106}Rh	30秒	0.51180(20.5), 0.61620(0.81), 0.62180(9.76)	0.43-0.57

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)
^{124}Sb	60.9日	0.6027(98), 0.645(8), 0.7228(14) 0.9683(1.72), 1.0451(1.84), 1.3255(1.47) 1.3683(2.45), 1.45(2), 1.6910(45.7) 2.0912(5.2), 2.294:Sum	1.59-1.81
^{125}Sb	2.0年	0.0353(0), 0.1764(7.2), 0.4279(30.4), 0.4634(10.7), 0.6006(18.1), 0.6359(11.5)	0.37-0.49
^{131}I	8.08日	0.0802(2.6), 0.2843(5.4), 0.3645(82), 0.637(6.8), 0.723(1.6)	0.31-0.41
^{134}Cs	2.07年	0.3753(1.5), 0.5692(14), 0.5631(8), 0.6046(98), 0.7958(88), 1.0384(1.1), 1.1677(1.9), 1.3650(3.4)	0.73-0.87
^{137}Cs	30年	0.66160(86) 0.0532(1.95), 0.0810(3.6), 0.2763(7.5),	0.59-0.73
^{133}Ba	7.2年	0.3027(19.6), 0.3559(67), 0.3837(9.4), 0.436:Sum	0.31-0.43
^{140}Ba	12.8日	0.030(11), 0.1627(6), 0.3049(6), 0.4238(5), 0.4376(5), 0.5373(34)	0.43-0.57
^{141}Ce	33.1日	0.1454(48)	0.09-0.19
^{144}Ce	285日	0.0336(0.15), 0.0409(0.5), 0.0534(0.09), 0.0801(1.54), 0.1335(10.8)	0.09-0.19
^{147}Nd	11.06日	0.0911(30), 0.1967(0.1), 0.2754(1.5), 0.3194(2.9), 0.3982(1.6), 0.4103(0.1) 0.4398(1.9), 0.5310(1.5), 0.6859(1)	0.45-0.59
^{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

(5) 試料の測定結果の数値は、バックグラウンド計数値を差し引き、第9.5表の如く示す。

第9.5表 測定結果

チャンネル領域	計数値	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

i \ j	A	B	C	D	E	F
a	/						
b	/	/					
c	/	/	/				
d	/	/	/	/			
e	/	/	/	/	/		
f	/	/	/	/	/	/	
⋮							
⋮							
⋮							

第9.7表 第9.6表の逆マトリックス

i \ j	A	B	C	D	E	F
a	.						
b	.	.					
c	.	.	.				
d			
e		
f	
⋮							
⋮							
⋮							

- (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 k_{ij} 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の計数値を N_j とし、 $\sum_j k_{ij} N_j$ 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	計数効率
a	A	$\epsilon_{TP}(a)$
b	B	$\epsilon_{TP}(b)$
c	C	$\epsilon_{TP}(c)$
⋮	⋮	⋮
⋮	⋮	⋮
⋮	⋮	⋮

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

$$N_a = k_{aA}^{-1} \cdot N_A + k_{aB}^{-1} \cdot N_B + k_{aC}^{-1} \cdot N_C + k_{aD}^{-1} \cdot N_D + \dots \quad (9-32)$$

で求める

- (13) 計数誤差 ΔN_a は

$$\Delta N_a = \sqrt{k_{aA}^{-2} (N_A + B_A) + k_{aB}^{-2} (N_B + B_B) + \dots} \quad (9-33)$$

で求める。

N_A, N_B : i核種のチャン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

B_A, B_B : i核種のチャンネル領域におけるバックグラウンド計数値

- (14) 核種aの放射能 D_a は、

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

誤差 ΔD_a は、 $\pm \Delta N_a / (\epsilon_{TP}(a) \cdot t)$ 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ン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推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推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'_{Tj} を求める。
- (2) 標準試料の放射能を D'_j (μC_j) とし、単位放射能 (μC_j) 当りの全計数率値 N_{Tj} を

$$N_{Tj} = N'_{Tj} / D'_j \dots\dots\dots (9-35)$$

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 D_i とする。
- (4) 試料中に含まれる推定核種の全計数率値 N_T は

$$N_T = \sum_i N_{Tj} D_i \dots\dots\dots (9-36) \text{ で求める。}$$

- (5) 計数誤差 ΔN_T は

$$\Delta N_T = \sqrt{\sum_i (N_{Tj} \cdot \Delta N_j / N_i \cdot D_i)^2}$$

- (6) 試料の全計数率値 N'_T を求める。
- (7) N'_T と N_T 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 チャンネル領域の校正法

一般に γ 線スペクトルを表現する方法として、チャン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(チャンネル幅, 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ン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、チャン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、 $\Delta N_T > \Delta N'_T$

分布曲線から既知の γ 線エネルギーのピークチャンネル値を 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ン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ンネルと 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。

一般式としては、第9.5図の如く得られた波高分布曲線からピークチャンネル値 $P_1, P_2, P_3, \dots, P_i$ を求め、そのエネルギー、チャンネル番号をそれぞれ $E_1, E_2, E_3, \dots, E_i, n_1, n_2, n_3, \dots, n_i$ とする。また求めるエネルギー領域を (E_L, E_n) , チャンネルを (n_L, n_n) とする。

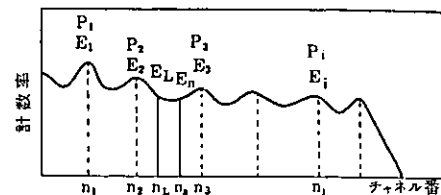
今エネルギー領域の下限 E_L および上限 E_n が E_2, E_3 間にあった場合には、内挿法によって次式によって n_L, n_n を求めることができる。

$$E_2 = kn_2 + \Delta n \dots\dots\dots (9-38)$$

$$E_3 = kn_3 + \Delta n \dots\dots\dots (9-39)$$

$$E_L = kn_L + \Delta n \dots\dots\dots (9-40)$$

$$E_n = kn_n + \Delta n \dots\dots\dots (9-41)$$



すなわち(9-38), (9-39)式より $k, \Delta n$ を求め(9-40), (9-41)に $k, \Delta n$ 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、

$$E_1 = kn_1^2 + k'n_1 + \Delta n \dots\dots\dots (9-42)$$

$$E_2 = kn_2^2 + k'n_2 + \Delta n \dots\dots\dots (9-43)$$

$$E_3 = kn_3^2 + k'n_3 + \Delta n \dots\dots\dots (9-44)$$

または、 $E_2 = kn_2^2 + k'n_2 + \Delta n \dots\dots\dots (9-45)$

$$E_3 = kn_3^2 + k'n_3 + \Delta n \dots\dots\dots (9-46)$$

$$E_4 = kn_4^2 + k'n_4 + \Delta n \dots\dots\dots (9-47)$$

のいずれかによって $k, k', \Delta n$ を求め

$$E_L = kn_L^2 + k'n_L + \Delta n \dots\dots\dots (9-48)$$

$$E_n = kn_n^2 + k'n_n + \Delta n \dots\dots\dots (9-49)$$

に $k, k', \Delta n$ 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、 n_L を切り上げたチャネル n_L' から、 n_n を切り捨てたチャネル n_n' までの積算値に n_L 、 n_n 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 Δn_L 、 Δn_n とし、 n_L' 、 n_n' 、 $n_L'-1$ 、 $n_n'+1$ の計数値 N_L' 、 N_n' 、 $N_L'-1$ 、 $N_n'+1$ とすれば次式により端数の計数値が求められる。

$$\sum_{n_L}^{n_L'} N = N_L' \times \Delta n_L + \frac{N_L'-1-N_L'}{2} \times \Delta n_L - \frac{3}{8} N_L' - \frac{1}{8} N_L'-1$$

$$\sum_{n_n}^{n_n'} N = N_n' \times \Delta n_n + (N_n'+1 - N_n') \times \Delta n_n \times \frac{1}{2} - \frac{3}{8} N_n' - \frac{1}{8} N_n'+1$$

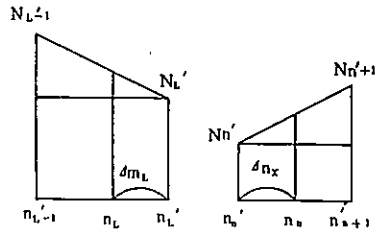
これを $\sum_{n_L'}^{n_n'} N$ に加算すれば、

E_L より E_n のエネルギー領域間の計数値が得られる。すなわち

$$\sum_{E_L}^{E_n} N \text{ は、}$$

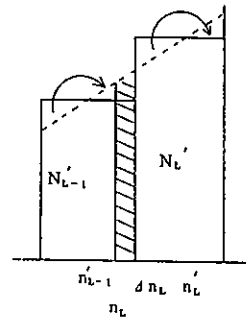
$$\sum_{E_L}^{E_n} N = \sum_{n_L}^{n_L'} N + \sum_{n_n}^{n_n'} N + \sum_{n_L'}^{n_n'} N$$

.....(9-52)



となる。

このように校正されたチャネル領域は、 γ 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。



4) 括弧内はマイナスになる場合もある。

1 0.1 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。

1. 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, データ読み取り方式など。

2. NaI(Tl)検出器

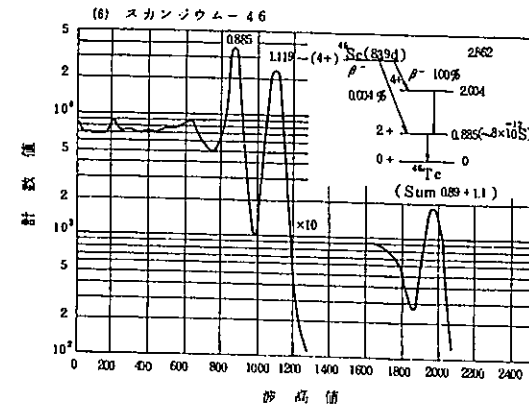
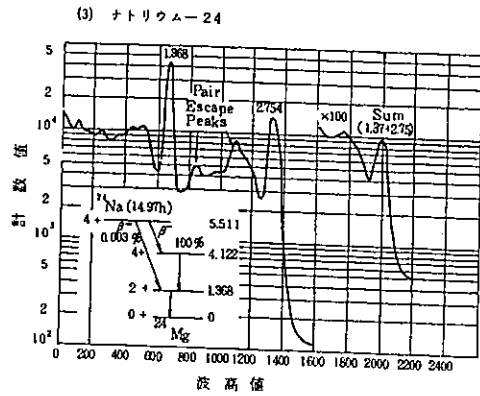
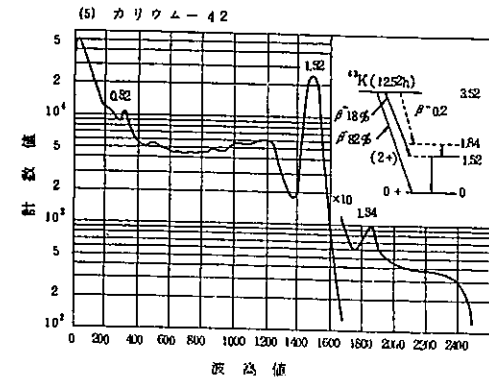
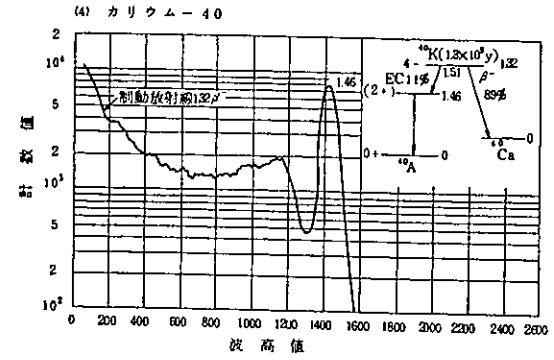
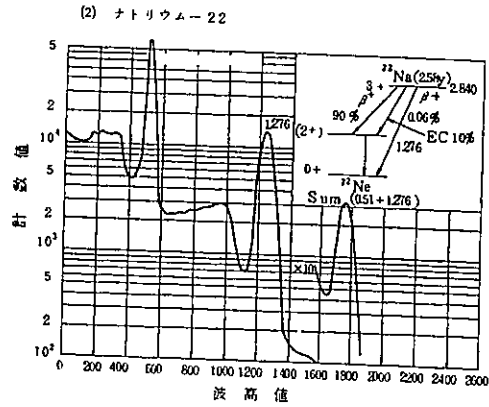
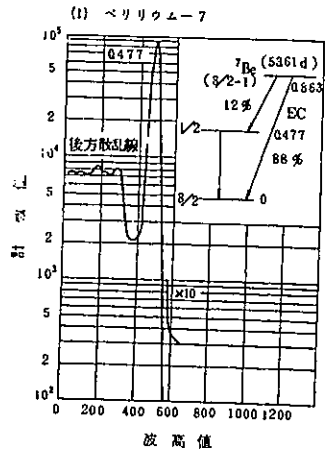
製造社名, シンチレーター(寸法, J I Sまたは型式), 光電子増倍管(型式, 寸法), 前置増幅器, シェパード体(厚さ, 寸法, 材質)

3. 測定条件

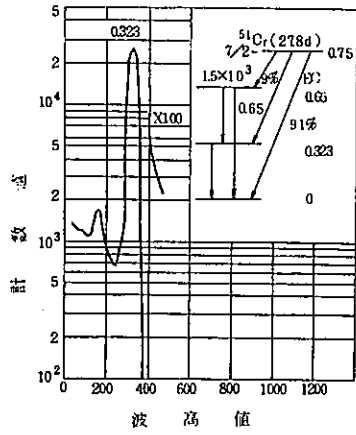
試料番号, 測定年月日, 試料名, 試料形状, 試料重量または容量, 試料容器, 測定開始時刻, 測定時間, 測定位置, 高圧印加電圧, 増幅度(ゲイン), パルス波型, 使用チャネル, チャネル幅, データ処理方法などである。

1 0.2 報告様式

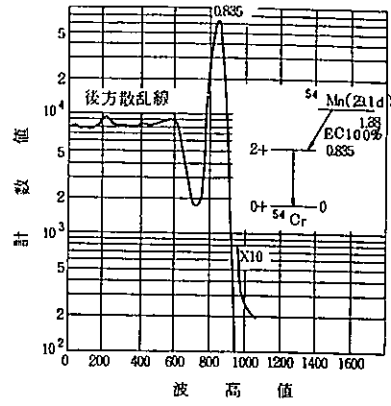
報告様式の一例を次に挙げる。



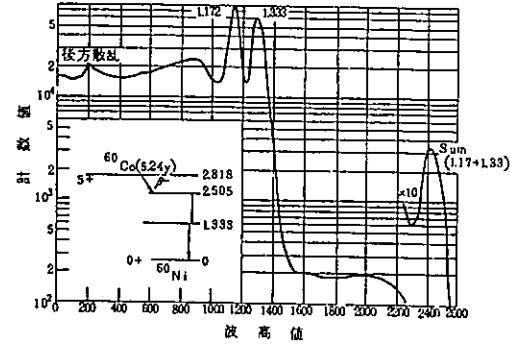
(7) クロム-51



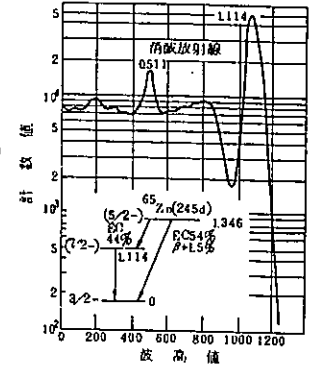
(8) マンガン-54



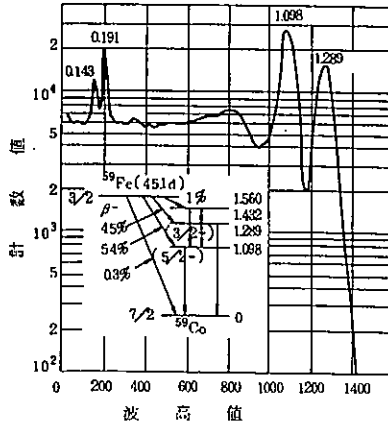
(9) コバルト-60



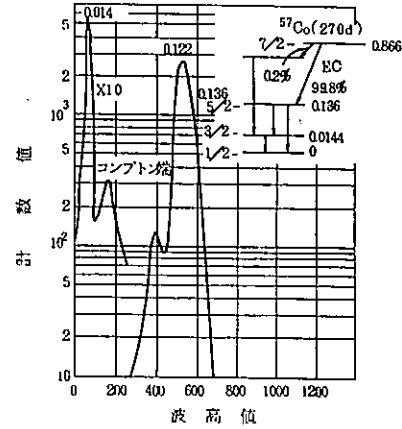
(10) 亜鉛-65



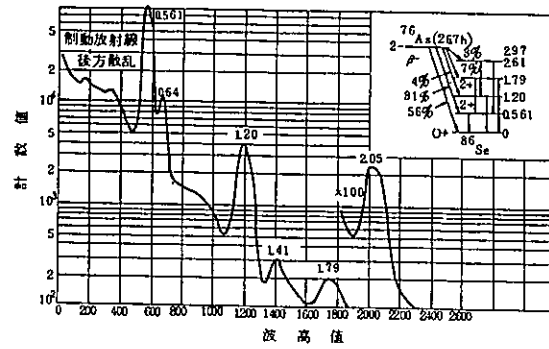
(11) 鉄-59



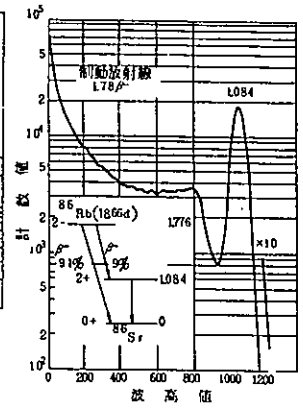
(12) コバルト-57



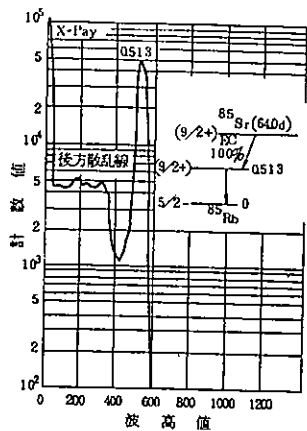
(13) ヒ素-76



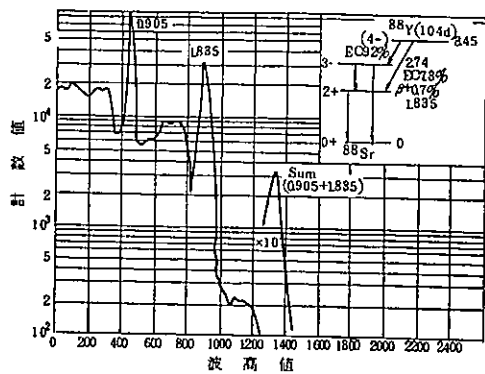
(14) ルビジウム-86



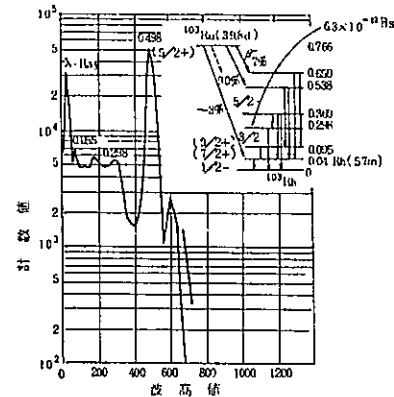
09 スズロニウム-85



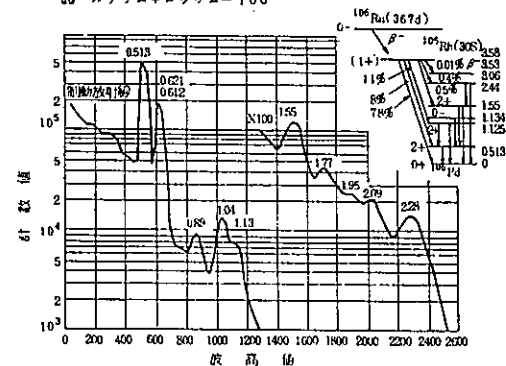
08 イットリウム-88



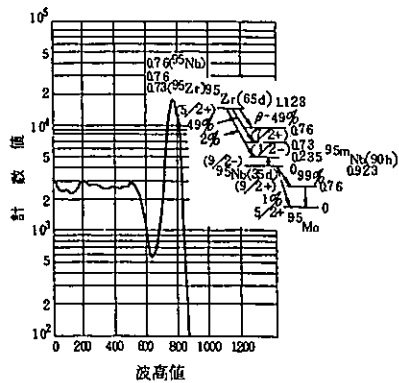
09 ルテウム-103



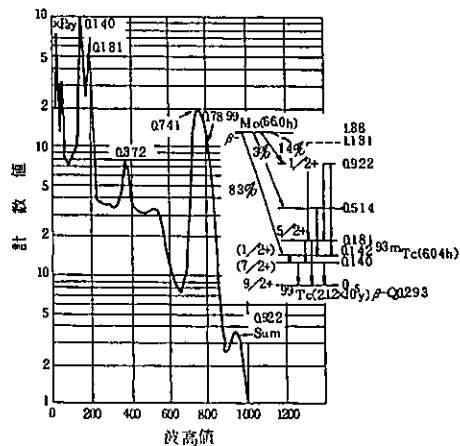
20 ルテウム+ロジウム-106



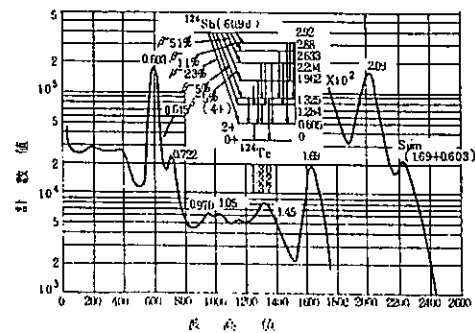
07 ジルコニウム+ニオブ-95



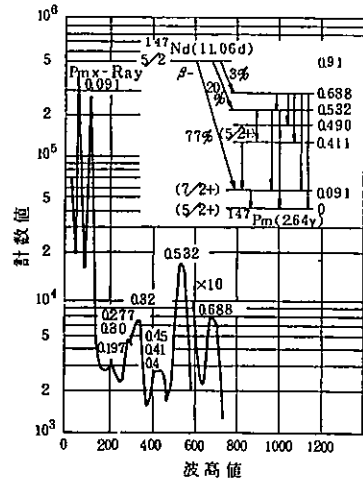
08 モリブデン-99



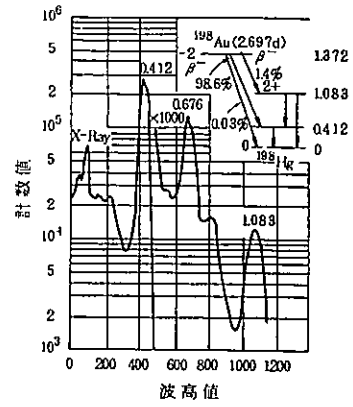
21 アンチモン-124



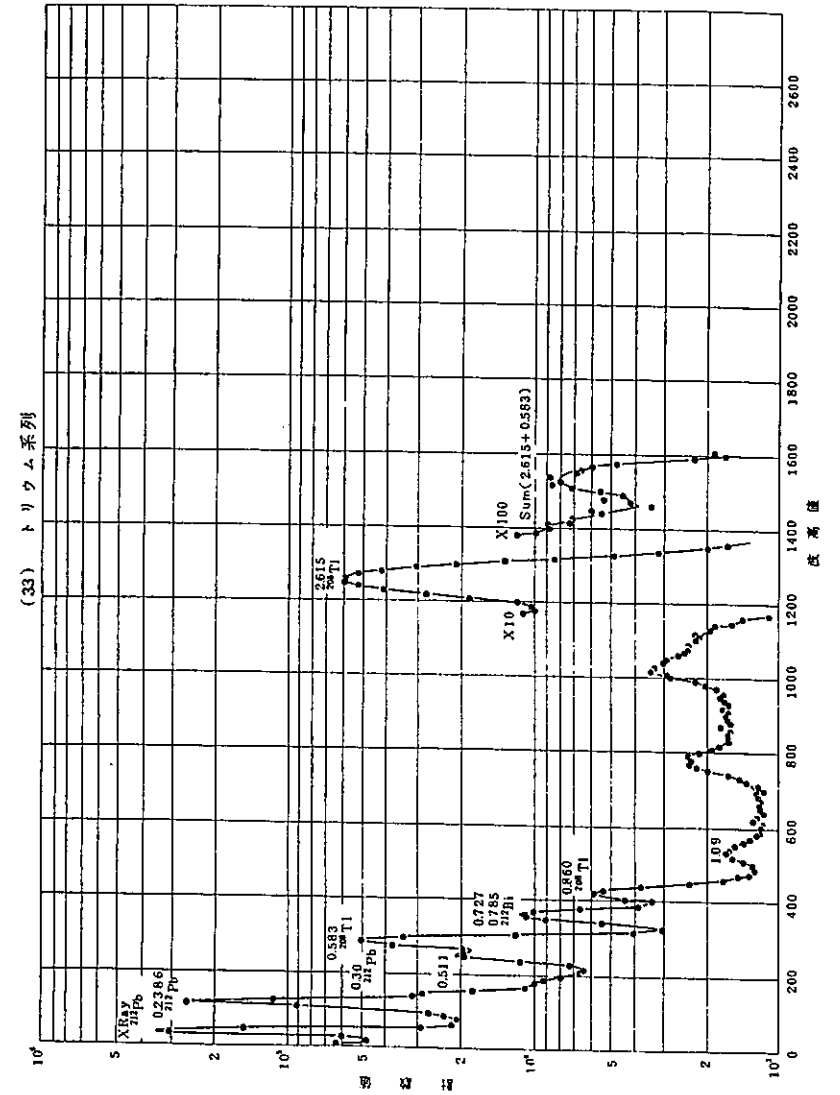
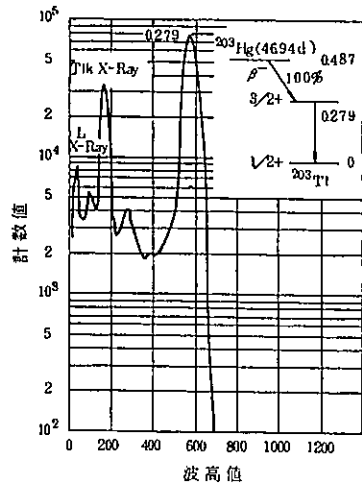
30) ネオジウム-147

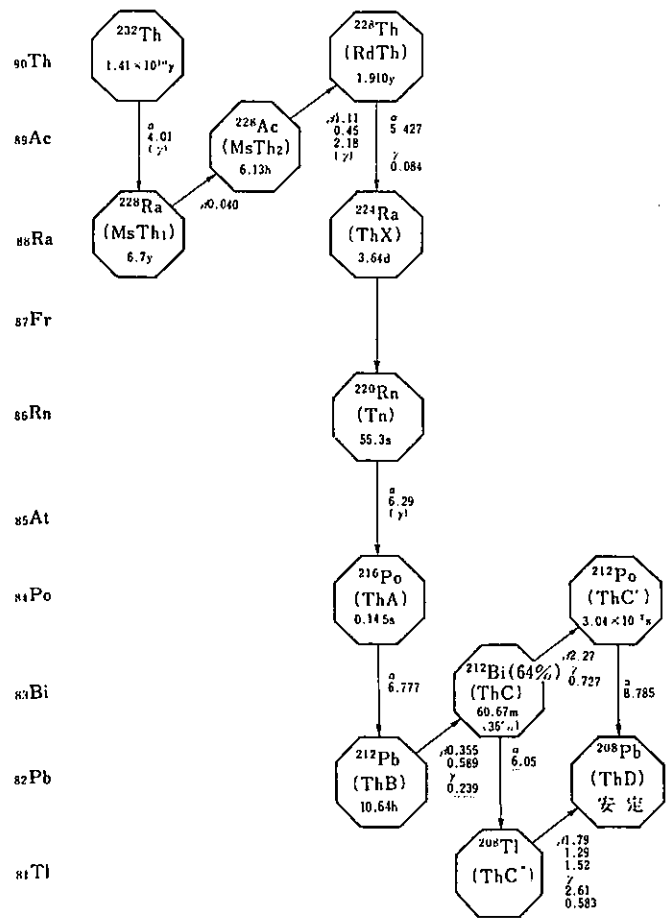


31) 金-198

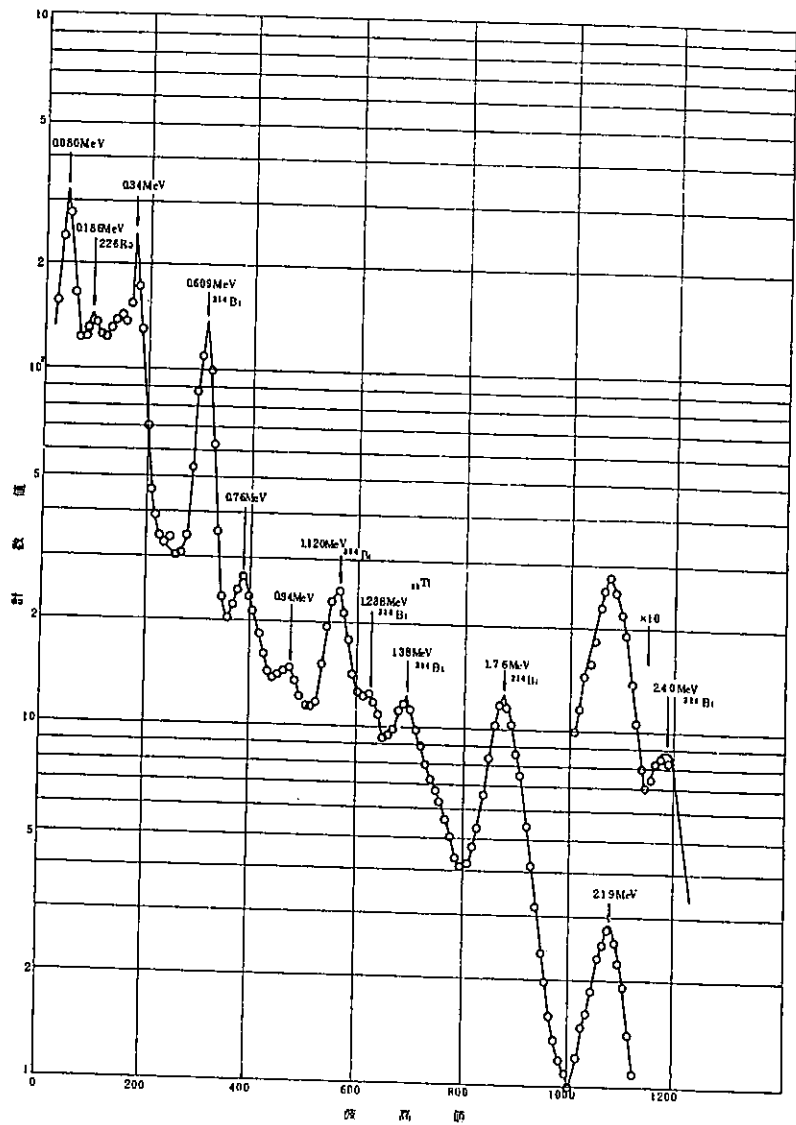


32) 水銀-203

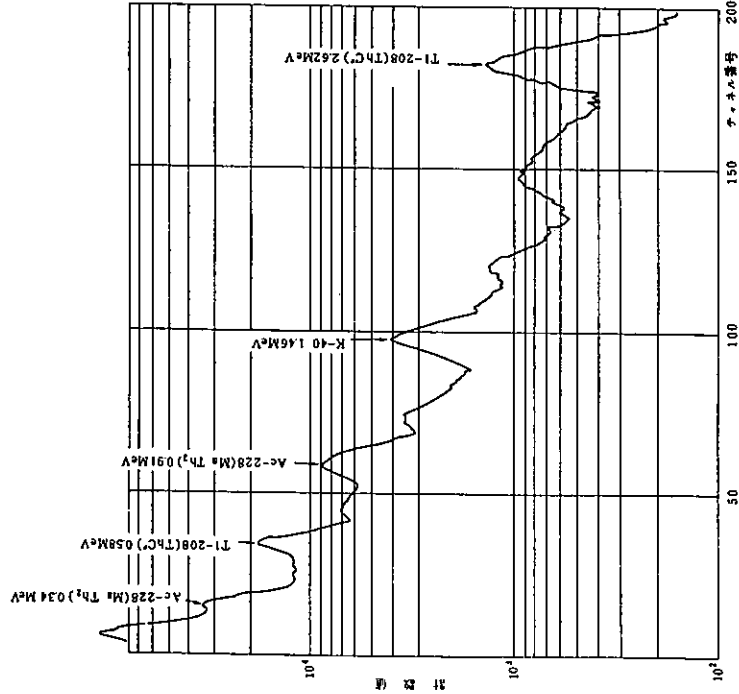




(84) ウラン系列



(2) 海底堆積物の放射能分布曲線 (例)



年月日	47年2月1日	氏名	
測定条件	Detector	NaI(Tl) 3"φ×3"	
	Exp-GAIN	B(-) SMALLX2	
	GAIN	BV1	0.8
	Zero L	"	0.03
	H.V	1010 V	
サンプル	Linear Amp		
	Time(Sec)	1 × 10 ⁴	
	サンプリング名	前底堆積物	
	形状	風乾土	
	容器	特殊マリネリビーカー	
重量	2.0 kg		
備考			

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訂)
2. 放射性ストロンチウム分析法 昭和58年 12月(3訂)
3. 放射性セシウム分析法 昭和51年 9月(1訂)
4. 放射性ヨウ素分析法 平成 8年 3月(2訂)
5. 放射性コバルト分析法 平成 2年 2月(1訂)
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 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訂)
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訂)
10. 放射性ルテニウム分析法 平成 8年 3月(1訂)
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)
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法 昭和57年 7月
14. ウラン分析法 平成14年 7月(2訂)
15. 緊急時における放射性ヨウ素測定法 平成14年 7月(1訂)
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訂)
18. 熱ルミネセンス線量計を用いた環境γ線量測定法 平成 2年 2月(1訂)
19. ラジウム分析法 平成 2年 2月
20. 空間γ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訂)
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γ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