

放射能標準とトレーサビリティ体系の確立

(Establishment of the Primary Standard and Traceability System of Radioactivity)

量子放射部

桒野良穂

The primary radioactivity standards have been established in ETL mainly with the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method. The liquid scintillation counters and multi-wire proportional counters are also used for pure-beta and surface emission rate standards, respectively.

To establish the traceability, we installed secondary standard equipments which should be stable and easy handling. Two sets of pressurized 4π ionization chambers with Ho-166m sealed sources were installed, and these chambers were calibrated with the ETL primary standard sources. The primary sources were also sent to the BIPM and neighboring countries for the inter-comparisons to keep the consistency of the national standards. These works were carried out by the radioactivity standardization group together with the Japan Radio Isotope Association (JRIA) and the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) in the framework of the “Fundamental Research for Standardization Promotion System” from 1997.

In this paper, outlines of the traceability system and equipments for secondary standardization of radioactivities, and the future plane of the radioactivity standardization group will be described.

1. はじめに

放射能の単位はベクレル(Bq)であり,これは単位時間あたりに原子核が自ら α 線や β 線を放出して他の原子核に変化(壊変/秒)する数である。計量法においても,政令で定める「物質の状態の量」で放射能の単位としてBq,関連する単位規則(省令)において,粒子フルエンス(率) $\text{m}^{-2}(\text{s}^{-1})$,放射能面密度 Bq/m^2 ,放射能濃度 Bq/m^3 , Bq/kg が取り入れられている。電総研は国の標準機関として,これらの量を精度良く値付けし,一次標準とそのトレーサビリティ体系の確立を行う必要がある。これまで電総研においては, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定法による絶対測定により,出来るだけ精度良く放射能の値付けを行い,その範囲の拡大には,加圧型電離箱やGe検出器等を用いて十分な信頼性と精度を保ちつつ,一次標準の供給を行ってきた¹⁾。これらの精度と国際的整合性は,既に多くの国際比較等により,確認されているところである²⁻⁶⁾。

一方,国際的な規格の整合性や標準の同等性が広く求められ,トレーサビリティが保証された標準の供給

体制確立の重要性が認識され,これら標準体系の確立を目指した知的基盤整備推進制度が実施された。放射能標準についても,科学技術振興調整費の知的基盤枠に物理標準の高度化の一環として新規計上され,「放射能標準トレーサビリティ体系の確立に関する研究」をテーマとし,電総研放射能標準ラボと日本アイソトープ協会,日本原子力研究所の3者の協力の下,平成9年度より13年度までの5年計画で研究を開始した。ここでは,この研究を通して実施された特定二次標準器類の整備と,電総研の一次標準の国際的整合性を確認するために実施した国際比較等に関するこれまでの成果と,新法人化後の今後の研究方針に関して報告する。

2. 放射能の標準用特定二次標準器等の整備

電総研においてこれまで,主に $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定により一次標準の値付けがなされてきたが,放射能は化学標準物質と同様に,長期に亘る作り置きが出来ず,また毎回絶対測定を行うのでは供給に限界がある。そこで,実際に標準の供給とそのトレーサビリティを保証

KEY WORDS: radioactivity, standardization, absolute measurements, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method, traceability, secondary standard, international comparisons, 4π ionization chamber, Ho-166m sealed source

するには、安定性と簡便性(一定の校正周期以内に測定値が変動しない。測定マニュアルに従えば、特殊な技術や経験を持たずとも良好な結果が得られる。等々)に優れた二次標準器が必要である。さらに、放射能標準の場合には、一次標準の値付け手法の $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時法は、測定可能な強度範囲が限られている。このため、さらに「十分な信頼性を持って、測定範囲が拡大できる」ことも必要な条件となる。これらの必要条件と、放射性核種の様々な形態とを勘案し、 γ 線核種放射能には、基準となる長半減期の線源と組み合わせた加圧型電離箱システム、密封小線源からの γ 線放出率には、Ge検出器等の γ 線スペクトロメータ、純 β 及び α 核種には液体シンチレーションカウンタ、面線源からの荷電粒子放出率にはマルチワイヤー式 2π 比例計数装置、放射能面密度及び電着小線源の放射能面密度には、Si表面障壁型検出器等の荷電粒子スペクトロメータをそれぞれ特定二次標準器に選択し、これらの整備と実際の校正を試みた。

2.1 加圧型電離箱の製作

電離箱は一定の空間に電位差を与え、放射線がその空間を横切る際に電離した電荷を集める装置である。 γ 線核種の放射能測定に用いられる電離箱は、測定効率を上げるため、線源を中心部に挿入する中空円筒型で、内部のガス圧を1~2MPa程度に加圧したものが主流である。内部に密封するガスは、窒素やアルゴン等の安定なものが選ばれている。この様な、 γ 線核種放射能測定用の加圧型電離箱は、密封した容器が物理的に変形したり、内部ガスが抜けない限り極めて安定である。しかも、 γ 線放出核種の場合、アンブルに入れたままで相対的な値付けが可能で、特別な測定技術も必要としない等、二次標準器に適した性質を持つ。さらに、電離箱の校正を長半減期の密封線源を用いて相対的な値付けとすれば、温度、気圧、バックグラウンドの変動、さらには電流計の読み値変化等の不可避的な変動をもキャンセルし、標準器としてのシステムの安定性が保証出来る。そこで、長半減期の基準線源と組み合わせた加圧型電離箱を γ 線核種の特定二次標準器とし⁷⁾、トレーサビリティの確保のため、全く同じ形状のものを2セット製作し、電総研と日本アイソトープ協会に設置することとした。図1に今回試作した電離箱の断面図を示す。

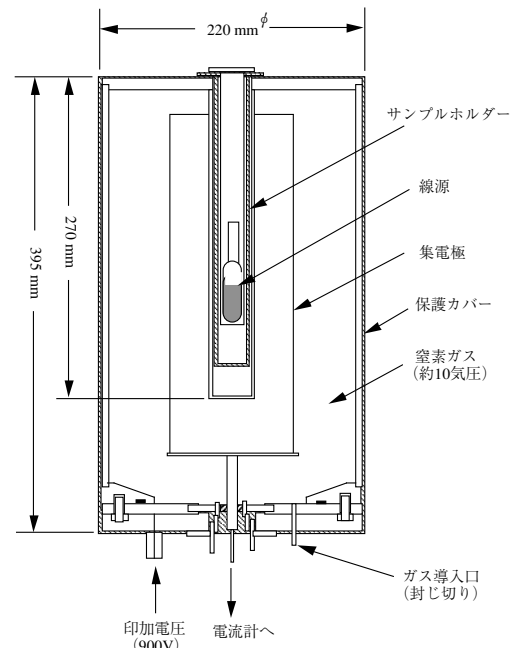


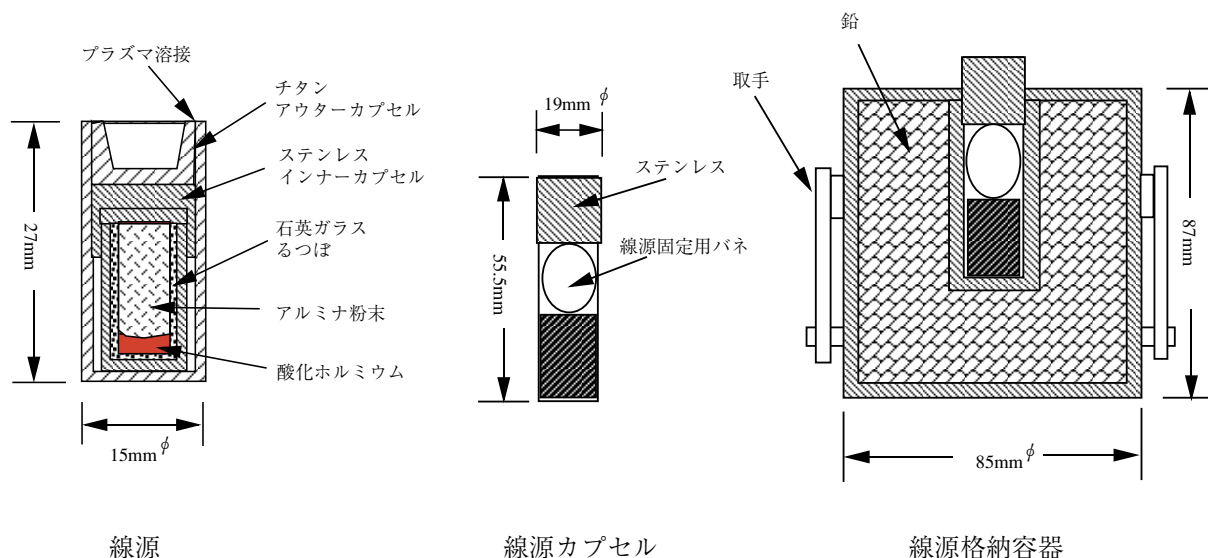
図1 今回試作した電離箱の断面図

2.2 基準線源の製作

電離箱の出力安定性を確認する長半減期の密封線源の作成も併せて試みた。一般に、これまでは入手しやすいラジウム(Ra-226)が用いられてきたが、ラジウムにはHeガスの蓄積やラドンのリーク等、種々の問題があることから、本研究では半減期1200年の $^{166\text{m}}\text{Ho}$ を選択した⁸⁾。 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 線源は、塩化ホルミウム溶液の化学形で米国のIPL社より購入し、これを原研のアイソトープ利用開発室で密封線源に加工した。図2に今回製作した線源の断面図を示す。線源は、もともとの強度が3.7MBq以下であるので、その保持や移動は特段の許可を必要としないが、この図に示す格納容器に入れた状態でGMサーベイメータを用いて実測した結果、周辺線量率は、容器直近で約 $8\mu\text{Sv/h}$ 、約15cm離れた所では約 $2\mu\text{Sv/h}$ と、保管や輸送における取り扱いで、これ以上特段の遮蔽を行う必要の無い線量であることが確認された。

線源は、この図に示されたように、3重の容器で密封されたうえ、さらに取り扱いを簡単にするためのホルダーに入れた状態で使用される。格納容器は、このホルダーを差し込むだけで、ワンタッチロック機能がある。全体の重量は約3kgで、容器ごと手で持ち運びが可能である。

我が国の放射能標準において、 γ 線核種については

図2 ^{166m}Ho 密封線源の断面図及び格納容器

今回試作した加圧型電離箱とHo-166m 基準線源により、基本的な部分はカバーできるものと考え⁷⁾。一方、近年標準のグローバル化と地域囲い込みが同時に進行しているが、我が国がアジア地区のAPMP (Asia Pacific Metrology Program) の活動に、この加圧型電離箱を用いてBIPM/SIRと同様のサービスを行うことも可能である。さらに、電総研と同じ線源を供与することで、電総研にトレーサビリティのとれた標準体系を形作ることも可能である。今後、積極的にこの様なサービスを行うことにより、我が国ばかりでなく、アジア地区全体の放射能標準のレベルアップにつながると期待される。

2.3 マルチワイヤーチャンバーの試作

放射能取扱施設の出入り管理に使用されているハンドフットモニタ等の校正には、 α 線や β 線を放出する核種を塗布した面線源が使用されており、放射能面密度(Bq/m^2)と、これらの線源からの荷電粒子放出率が標準として求められている。これに関しては、線源の表面から放出される荷電粒子をほぼ100%の効率で測定できる大面積の 2π ガスフローカウンタを、加圧型電離箱同様、日本アイソトープ協会と共同で設計・試作した。現在、CI-36線源の測定を行い、この線源を電総研、日本アイソトープ協会、NIST(米国)、INER(台湾)で持ち回り測定し、相互比較を実施しているところである。

3. 放射能標準のキーコンパリソン

国際的な標準の同等性を証明する手段の一つに、相互比較がある。特にBIPMまたは主要機関が主催し、各国の標準研究機関がオープンで参加し、それぞれの量についての指標となる機関比較をキーコンパリソンと呼ぶ。放射能に関するキーコンパリソンは、97年4月にBIPMで開催された電離性放射線諮問委員会第2分科会(CCRI-II)において、CCRI-IIが定期的(ほぼ3年に1度)に実施する国際比較と、BIPMの国際 γ 線核種放射能測定参照システム(International Reference System for Activity Measurements of Gamma-ray Emitting Nuclides; SIR)を仲介とした国際比較とすることで合意された⁹⁾。このSIRとは、1978年に国際度量衡局に設置された加圧型の電離箱で(セントロニクス社製IG11/N20, 2MPaの窒素ガスを封入してある。)各国の標準機関から随時送付される一次標準溶液を、BIPMの持つラジウム密封線源と相対測定を行い、その結果を公表するシステムである¹⁰⁾。これまで約50核種について500サンプルが送られ、測定結果の全リストが公表されている¹¹⁾。電総研からもCCRIの主催する国際比較以外にも、定期的に核種を選択してBIPM/SIRに試料を送付してきた^{12,13)}。表1に、最近電総研が実施・参加したキーコンパリソンを示す。また、図3に97年度に送付した ^{59}Fe の例を示した。

この図にある電総研の値は97年に送付したもので

表1 最近の10年に電総研が実施または参加した放射能標準のキーコンパリソン

比較核種	仲介検出器／比較物質	中核機関	参加メンバー
比放射能： Se-75 (1992)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	BIPM	CCRI-II
比放射能： Na-22, Cr-51, Mn-54 (1993)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	電総研	近隣アジア諸国 +BIPM/SIR
比放射能： Zn-65, Sr-85, Cs-137, Ce-139 (1994～5)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	電総研	近隣アジア諸国 +BIPM/SIR
比放射能： Ir-192 (1996)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	BIPM	CCRI-II
比放射能： Sr-90 (1996)	液体シンチレーションカウンタ／ 放射能線源（溶液）	BIPM	CCRI-II
比放射能： Co-57, Cd-109 (1996)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	電総研	近隣アジア諸国 +BIPM/SIR
比放射能： Tl-204 (1997～8)	液体シンチレーションカウンタ／ 放射能線源（溶液）	BIPM	CCRI-II
比放射能： Fe-59, I-125 (1997～8)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	電総研	近隣アジア諸国 +BIPM/SIR
比放射能： Ho-166m (1998～9)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	電総研	APMP +BIPM/SIR
比放射能： Eu-152 (1999～2000)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	BIPM	CCRI-II
比放射能： Co-58, Y-88 (April, 2000, on going)	SIR電離箱／ 放射能線源（溶液）	電総研	APMP +BIPM/SIR
比放射能： Sr-89 (June, 2000, on going)	液体シンチレーションカウンタ／ 放射能線源（溶液）	BIPM	CCRI-II

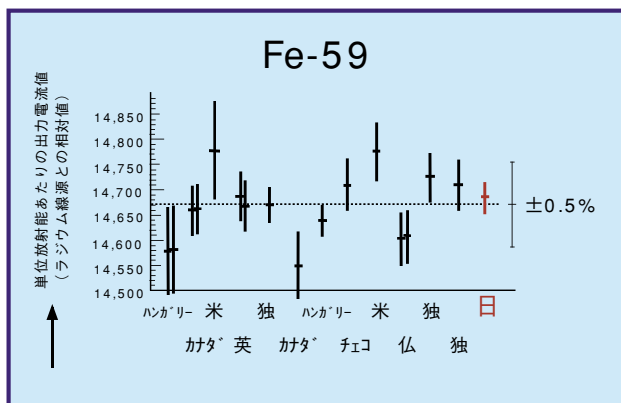


図3 ⁵⁹Fe放射能のSIRにおける比較例

あるが、それ以外は1978年以降随時各国の研究機関から送付されたものである。SIRでは、この様に各国から随時送付される線源を測定し、結果の公表を行っている。

4. 今後の放射能標準研究の進め方

これまでの研究の結果、 γ 線核種の機器校正線源強度から医療レベルまでの範囲に関しては、きちんとト

レーサビリティが保証された標準の供給体制が整備されたと考える。また、荷電粒子放出率に関しても、NISTと相互比較の最中ではあるが、ハードルはクリア出来たものと考えている。今後、 γ 線核種の極微量レベル及び純 α ・ β 核種標準に取り掛かる予定である。

特に、放射能核種の中には、全く γ 線を放出しない純 α 、 β 核種も多く含まれており、これらは γ 線を出さない故に、例えば体内の代謝検査等に用いられており、これらの核種についてもトレーサビリティを求められている。この様な要求に応えるため、現在国際度量衡局において液体シンチレーションカウンタを基準測定器としたシステムが立ち上げられつつあり、我が国からも、既にSr-90やTl-204と言った純 β 核種が送付されている。今後、 γ 線核種と同様、いくつかの代表的核種について国際比較を行い、我が国の標準の整合性を確認するとともに、液体シンチレーションカウンタによる二次標準供給体制も、併せて立ち上げてゆく予定である。また、環境レベルの極微弱放射能に関しても、近年トレーサビリティの取れた標準線源が求められている。12年度において、科振費により、従来のX線フィ

ルムの1000倍もの感度を有する、イメージングプレートが導入される予定であり、この装置の活躍が期待される。また、環境放射能で重要な成分であるラドンについても、電総研の保有するラジウム標準溶液を基にした線源作成からアプローチを開始しているところである。今後、これらの準備作業を着実に実施し、我が国の放射能標準トレーサビリティ確立に寄与したいと考えている。

5. 謝 辞

この研究は、科学技術振興費知的基盤整備推進制度の一環として実施された。標準トレーサビリティの未整備であった放射能も、この予算により整備が着実に進みつつある。

加圧型電離箱システム及びマルチワイヤーチャンバーの試作に関しては、日本アイソトープ協会に多くの協力を求めた。Ho-166m基準線源の製作にあたっては、原研東海研究所アイソトープ利用開発室に多大の援助を頂いた。また、国際比較においては、線源の発送に日本アイソトープ協会の協力を頂いている。ここに厚く感謝の意を表したい。

参考文献

- 1) 河田 燕, 由良 治: “放射能標準の現状と今後の課題”, 電総研彙報第47巻第9, 10号 797 (1983)
- 2) A. Rytz : "International comparison of activity measurements of a solution of ^{133}Ba (March 1984)", Rapport BIPM-85/11 (1985)
- 3) G. Ratel : "International comparison of activity measurements of a solution of ^{109}Cd (March 1986)", Rapport BIPM-88/4 (1988)
- 4) G. Ratel : "International comparison of activity measurements of a solution of ^{125}I (May 1988)", Rapport BIPM-90/3 (1990)
- 5) G. Ratel : "Results of the ^{75}Se full scale international comparison", CCEMRI-II report 93-14 (1993)
- 6) G. Ratel : "Results of an International Trial Comparison of Activity Measurements of a Solution of ^{192}Ir ", Appl. Radiat. Isot. Vol. 49, pp1437-1443 (1998)
- 7) 桧野良穂, 松井 真, 山田 崇, 竹内紀男, 他 : “加圧型電離箱による, γ 線核種放射能二次標準の確立”, 電総研彙

報, 第62巻9号(1998)

- 8) Y. Hino, S. Matui, T. Yamada, N. Takeuchi, K. Onoma, S. Iwamoto and H. Kogure: "Absolute measurement of 166mHo radioactivity and development of sealed sources for standardization of γ -emitting nuclides", Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, Vol.52, pp545-549 (2000)
- 9) 桧野良穂: “放射能標準におけるキーコンパリソン”, Isotope News 1998年8月号 pp 6-8 (1998)
- 10) A. Rytz : "The international reference system for activity measurements of γ -ray emitting nuclides", Int. J. Appl. Radiat. and Isotopes, Vol. 34, pp 1047-1056 (1983)
- 11) D.F.G. Reher : "Critical Evaluation of SIR Results : A First Step", IRMM report GE/R/RN/03/95 (1995)
- 12) Y. Hino and S. Wiryosumatro : "Absolute Measurement of ^{22}Na Radioactivity", 電総研彙報 Vol. 58 No. 4 pp 241-245 (1994)
- 13) 桧野良穂: “放射能の標準とトレーサビリティ”, フィルムバジニュース No. 254 (1998)

関連ラボ

放射能標準ラボ

(Radioactivity Standardization Lab.)

研究項目及び研究期間

放射能標準の高度化に関する研究
(平成9年度～13年度)