

# リアルタイムストロンチウム 90 カウンター性能評価の追試測定

2016 年 04 月 24 日

## 概要

福島県沖漁業復興、そして水道水や除染された汚染水のために開発されたリアルタイムストロンチウム 90 カウンターは現在の仕様では宇宙線除去しきれていないことがわかった。応急処置で面積 10 cm×10 cm のシンチレーションカウンターを 2 つ設置し宇宙線除去の補強をした。検出限界の議論だけでは弱く、定量下限についても議論すべきである指摘を受けた。誤差論について勉強し直し、1 時間測定を 10 回試行した統計誤差を採用し性能評価の結果を報告する。

## 1. はじめに

国際学会 iSRD2016 の proceedings の論文作成においてレフリーから測定結果の算出方法について、また検出限界の定義を明確化するように指摘された。著者本人と河合准教授も分析化学の領域については素人で定量下限と検出限界の違いなど気にしてはいなかったのだ。測定に関して Sr は放射能が強いから短時間で、Cs や KCl は弱いので長時間と測定したが、今回から測定方法を統一化し 1 時間測定を 10 回測定して統計誤差で評価する。放射能推定から始めて装置の絶対感度を評価するための規格式を定義しよう。

## 2. 追試測定セットアップ

ストロンチウム 90 カウンターの演算回路は  $SFT \otimes AC (M > 2) \otimes \overline{VETO}$  だが、PMT とファイバーの接続部が覆われていないことが BG 頻度を減らせない原因であることがわかった。面積 10 cm×10 cm のプラスチック検出器を左右に設置してそれぞれを veto1, veto2 と定義する。セットアップは図 1 に示した。演算回路が  $SFT \otimes AC (M > 2) \otimes \overline{VETO} \otimes \overline{VETO1} \otimes \overline{VETO2}$  の場合 BG 頻度は 0.048 cps が得られた。

1 時間測定を 10 回試行する測定は手動では現実的ではなく自動化する必要がある。データ収集システムとしては NIM による信号処理した後、CAMAC ADC GATE に入力し 1 時間でのトリガーイベント数をカウントするプログラムを実装した。図 2 にそのシステムの全体像を示す。



図 1.ベト-2 追加測定のセットアップ



図2. データ収集システムの外観

### 3. 線源放射能の見積もり

#### 3.1. 密封線源

線源入荷日から時間  $t$  年経た密封線源の放射能  $A(t)$  は

$$A(t) = A_0 \exp \{-t / \ln 2 \tau\}$$

$$\delta A = A \left| \frac{\partial A}{\partial t} \delta t \right|$$

$$= A / \ln 2 \tau$$

で定義される。ここで  $A_0$  は日本アイソトープ協会が定めた 37 kBq ( $\pm 20\%$  の信頼誤差)、 $\tau$  は物理学的半減期を示す。 $^{90}\text{Sr}$  線源について、物理学的半減期は約 29 年、購入日は 1997 年 10 月で現在 2016 年 4 月であるため、約 18 年 6 ヶ月たっている。誤差を  $\pm 1$  ヶ月とすると、式(1)から  $(23.8 \pm 1.0(\text{stat}) \pm 4.7(\text{sys}))$  kBq と評価できる。一方  $^{137}\text{Cs}$  は物理学的半減期 30 年、2001 年 1 月に購入しているため、約 15 年 3 ヶ月経過している。同様に計算すると、 $(26.0 \pm 1.0(\text{stat}) \pm 5.2(\text{sys}))$  kBq と評価できる。

#### 3.2 低比放射能線源

$^{40}\text{K}$  は自然のカリウムに約 0.012% 存在していると言われている。つまり 1 g あたりに 30.4 Bq である。半減期が  $1.29 \times 10^9$  年で、線源として時間の減衰を無視できる。比較的質量が安定な塩化カリウム (KCl)

は質量数 74.55 g/mol で、比放射能は 16.6 Bq/g である。サーベイメータで KCl の質量と正味のカウンtr頻度の線形性を観測し、<sup>90</sup>Sr 線源の放射能と比較して正味の計数頻度から放射能に校正した結果、15.5 ± 2.3 Bq/g の比放射能が得られた。この量は <sup>40</sup>K の崩壊分岐比を含んで導いている。今回線源として 4 g を使用したので KCl 線源の放射能は 62 ± 9 Bq である。

#### 4. 測定計数

この装置では 1 時間あたりの計数値から <sup>90</sup>Sr の放射能を推定する仕様だ。そのため、性能評価に関しても 1 時間における計数を試行回数繰り返し平均と統計誤差を導く。試行回数 n 回、試行番号 j における計数を  $N_j$  とすると、平均値  $\bar{N}$  は

$$\bar{N} = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n N_j,$$

標準偏差は

$$\sigma = \frac{1}{n-1} \sum_{j=1}^n (\bar{N} - N_j)^2,$$

で定義され、99% 信頼区間における最大誤差は

$$\delta N = t(0.99, n) \frac{\sigma}{\sqrt{n}}$$

と定義する。ここで  $t(0.99, n)$  は t 分布で 99% 信頼区間において 10 回の試行回数のとき  $t(0.99, 10) = 3.25$  である。線源を入れずに 1 時間測定を 10 回試行したときの計数は 190 ± 14 が得られた。<sup>90</sup>Sr 線源を装置中央に設置し、1 時間測定を 10 回試行したときの計数は 191752 ± 1738 が得られた。同様に <sup>137</sup>Cs 線源と <sup>40</sup>K 線源の計数はそれぞれ 309 ± 16 と 191 ± 32 が得られた。核種と BG のデータを表 1 に示す。

表 1 Number of counts in an hour at 10 times

Source	Activity	Number of counts	$\bar{N}$	$\delta N$
BG		221, 181, 200, 182, 182, 202, 176, 180, 179, 197	190	14
<sup>90</sup> Sr	23.8 kBq	195959, 193176, 191760, 191293, 191545, 190412, 191272, 191191, 190664, 190246	191752	1738
<sup>137</sup> Cs	26.0 kBq	293, 286, 299, 312, 299, 332, 336, 309, 321, 306	309	16
KCl 4 g	62 Bq	194, 207, 181, 209, 182, 212, 199, 209, 216	191	32

#### 5. 絶対感度 (absolute efficiency)

バックグラウンド計数を差し引いた正味の計数から線源の放射能  $A_x$  と測定時間  $T$  を割った値をこの装置の核種における絶対感度 (absolute efficiency) と定義し、以下に示す。

$$\eta_x = \frac{N_x - N_{BG}}{A_x T}$$

ここで $x$ は核種 ( $x=^{90}\text{Sr}, ^{137}\text{Cs}, ^{40}\text{K}$ ) を示す。測定時間 $T$ は 3600 sec を代入する。誤差は誤差の伝播により計算して以下で定義される。統計誤差と系統誤差をごっちゃにしないことに注意する。結果を表 2 に示す。

$$\begin{aligned}\delta\eta_x &= \sqrt{\left(\frac{\partial\eta_x}{\partial N_x}\right)^2 \delta N_x^2 + \left(\frac{\partial\eta_x}{\partial N_{BG}}\right)^2 \delta N_{BG}^2 + \left(\frac{\partial\eta_x}{\partial A_x}\right)^2 \delta A_x^2} \\ &= \frac{1}{A_x T} \sqrt{\delta N_x^2 + \delta N_{BG}^2 + \left(\frac{\delta A_x}{A_x}\right)^2}\end{aligned}$$

表 2 The absolute efficiencies

Absolute efficiency	value/ $\text{Bq}^{-1}\text{s}^{-1}$
$\eta_{Sr}$	$(2.24 \pm 0.02(\text{stat})_{-0.38}^{+0.56}(\text{sys})) \times 10^{-3}$
$\eta_{Cs}$	$(1.27 \pm 0.23(\text{stat})_{-0.22}^{+0.32}(\text{sys})) \times 10^{-6}$
$\eta_K$	$< 1.6 \times 10^{-4}$

## 6. $^{90}\text{Sr}$ 検出限界

試料は熱処理で体積が圧縮され厚さ 1 mm のペースト状に整形される。有効面積が 300  $\text{cm}^2$  なので密度 1  $\text{g}/\text{cm}^3$  の試料なら最大 30 g まで測定できる。ここでは試料が海産物と汚染水の 2 つの場合を想定して議論する。海産物の約 70% は水分なので熱処理して圧縮率は 0.3、汚染水のほぼ 99% 以上は水なので、圧縮率は 0.01 とする。この装置は厚労省が定めた基準 100  $\text{Bq}/\text{kg}$  の  $^{137}\text{Cs}$  たとえあったとしても動作してほしい。魚介類に含まれる  $^{40}\text{K}$  は約 150  $\text{Bq}/\text{kg}$ 、海水には約 12.1  $\text{Bq}/\text{kg}$  含まれているとする。この時装置に試料を入れた時のカウント数は

$$N = (\eta_{Sr}A'_{Sr} + \eta_{Cs}A'_{Cs} + \eta_KA'_K) m\varepsilon^{-1}T + N_{BG},$$

で表せる。ここではそれぞれ試料に含まれている核種の放射能、 $m$  は試料の質量 (30 g)、 $\varepsilon$  は圧縮率 (海産物: 0.3, 汚染水: 0.01)、 $T$  は測定時間 (3600 sec) を示す。バックグラウンド計数は

$$N'_{BG} = (\eta_{Cs}A'_{Cs} + \eta_KA'_K) m\varepsilon^{-1}T + N_{BG},$$

で表される。 $^{90}\text{Sr}$  が 99% 信頼区間で優位に測定できるための条件はある。この条件  $N > N'_{BG} + 2.58\sqrt{N'_{BG}}$  を

満たせる  $A'_{Sr}$  の最小値を  $^{90}\text{Sr}$  の検出限界  $A_{Sr}^{min}$  と定義し、以下に示す。

$$A_{Sr}^{min} = \frac{2.58\sqrt{N_{BG} + (\eta_{Cs}A'_{Cs} + \eta_KA'_K)m\varepsilon^{-1}T}}{\eta_{Sr}m\varepsilon^{-1}T}.$$

この結果、海産物の場合検出限界は 45  $\text{Bq}/\text{kg}$ 、汚染水の場合 1.6  $\text{Bq}/\text{kg}$  と評価できる。

## 7. $^{90}\text{Sr}$ 定量下限

この装置は 1 時間あたりの計数値から  $^{90}\text{Sr}$  の放射能を推定する。ただし放射性 Cs の放射能は 100  $\text{Bq}/\text{kg}$  以下であるとする。評価された  $^{90}\text{Sr}$  の絶対感度  $\eta_{Sr}$  と事前に測定されたバックグラウンド計数  $N_{BG}$  から推定される  $^{90}\text{Sr}$  の放射能は以下で表せる。誤差は 99% 信頼区間を示す。この定量値の誤差が定量値の

50%未満および 10%未満を保証する限界値はそれぞれ 50%定量下限(Lower limit of quantitation)、および 10%定量下限と呼ばれている。海産物と汚染水の 50%定量下限( $A_{Sr}^{LQ}(50\%)$ )および 10%定量下限( $A_{Sr}^{LQ}(10\%)$ )をそれぞれ表 3 に示す。

表 3 The Lower limit of quantitation

sample	$A_{Sr}^{LQ}(50\%)$	$A_{Sr}^{LQ}(10\%)$
seafood	$2.1 \times 10^2$ Bq/kg	$1.7 \times 10^3$ Bq/kg
sea water	7.0 Bq/kg	57 Bq/kg

## 8. 考察

ベトーカーを 2 つ追加したが、BG 頻度が  $0.053 \text{ sec}^{-1}$  であることは、まだまだ宇宙線ミューオンを抑制しきれていない立体角が存在することを意味し性能向上の余地が十分あることを示す。本装置の目標が海産物での検出限界が 1 Bq/kg、汚染水で 0.1 Bq/kg としている。 $N_{BG}$  が 1 時間で 1 カウント未満であるとき、カウント頻度は 0.0003 未満を示す。このとき検出限界の式に当てはめると、海産物で 10 Bq/kg、汚染水で 0.51 Bq/kg が推定できる。有効面積を拡張することも追加すると  $300 \text{ cm}^2$  から  $1,000 \text{ cm}^2$  へ面積拡張すると、検査可能なサンプル質量も 30 g から 100 g へ増加できる。そのときの性能も同様に計算すると、海産物で 5.3 Bq/kg、汚染水で 0.28 Bq/kg が推定される。面積拡張したことによる左右の信号処理演算式の改善による性能改善を今後は議論していくことになるだろう。

## 9. まとめと今後の予定

小玉さんに依頼している  $20 \text{ cm} \times 38 \text{ cm}$  のベトーカーを 2 つ完成まで見届けて、それができたら性能チェック。著者はその間、AC に使用している PMT の信号について波形解析して 1 p.e. に値する閾値電圧を個別に決定する必要がある。NIM Disc. の閾値下限が -17 mV だと思うが、そこからネガティブに上げていき、オシロの波形解析と整合性が取れているのか確認する。PMT ゲインと設定する閾値の関係を AC と SFT, VETO について決めておく必要がある。この方式で決定された閾値で再度測定した結果で性能向上しているのか確認する。また BRaoD モジュールを用いてどの程度性能が悪化しないか確認することも重要なことである。来週は BRaoD モジュールのソフトウェアに追加機能を載せて欲しい旨も含んだ打ち合わせを設けてもらっている。