

技術報告

天然放射性核種を含有する市販試薬を用いた
放射線測定器の簡易点検法栄井修平¹, 吉年 勉², 藤野秀樹^{1,2,†}¹兵庫医科大学薬学部, ²兵庫医科大学大学院薬学研究科

†h-fujino@hyo-med.ac.jp

2024年10月23日 受付

2024年12月4日 受理

法令改正により, 放射線測定器の点検及び校正を1年毎に組み合わせて行うことが規定された。そこで, 天然放射性核種を含有する市販試薬を線源としたサーベイメータの簡易点検法を検討した。遮蔽試験による放射線の指数関数に従う減衰と, ⁴⁰K及び⁸⁷Rbの放射能濃度に対する計数値に良好な直線性と再現性が認められ, これらの評価に基づく簡易点検法を構築した。本法による放射線測定器の信頼性確保が期待される。

Key Words: potassium-40, rubidium-87, survey meter, commercially available reagent, inspection

1. はじめに

令和5年10月1日より「放射性同位元素等の規制に関する法律」施行規則第20条が改正され, 表面汚染検査等に使用する放射線測定器については点検及び校正を1年毎に適切に組み合わせて行うことが規定された¹⁾。校正は日本産業規格 (JIS) で推奨された校正線源を用いて実施することが求められているが²⁾, ⁶⁰Coや¹⁴⁷Pm等の使用許可を得ている事業所は少ない。そこで, 使用許可の不要な核種による簡易点検法の構築は, 放射線測定器の信頼性確保に有用と考えられる。放射線管理が不要な核種として, 市販試薬に含まれる天然放射性核種に着目した。市販試薬は入手が容易かつ同位体比率が高く, 有用な簡易点検用線源になりうる³⁾。本研究では, 種々の市販試薬に含まれる天然核種を放射線源とし, 放射線の遮蔽特性や計数値

の直線性に着目したサーベイメータの簡易点検法を提案する。

2. 方法

2.1 サーベイメータ

ラビットシンチレーション式サーベイメータとして LUCREST TCS-1319H, Geiger-Müller (GM) 計数管式サーベイメータとして TGS-146B (ALOKA, 東京) を各2台用いた。なお, 各1台は JIS に基づく校正点検後1年以内の計測器を用いた。

2.2 放射線源の作製

異なる化学形で⁴⁰Kや⁸⁷Rbを含有する複数の試薬を用いた。⁴⁰K含有試薬としてリン酸二水素カリウム (KH₂PO₄, 9.33 Bq/g), 臭化カリウム (KBr, 10.7 Bq/g), 硝酸カリウム (KNO₃, 12.6 Bq/g), 硫酸カリウム (K₂SO₄, 14.6 Bq/g), 塩化カリウム (KCl, 17.0 Bq/g) を用いた。また, ⁸⁷Rb含有試薬として臭化ルビジウム (RbBr, 464 Bq/g), 硝酸ルビジウム (RbNO₃, 519 Bq/g), 硫酸ルビジウム (Rb₂SO₄, 573 Bq/g), 塩化ルビ

ジウム (RbCl, 632Bq/g) を用いた。その他、酸化ルテチウム (Lu_2O_3 , ^{176}Lu , 45.0Bq/g) と、バックグラウンド用試薬として放射性核種を含まない塩化ナトリウム (NaCl) を用いた。なお、これらは富士フィルム和光純薬 (大阪) より特級試薬を入手した。さらに、同量の RbCl と NaCl を混合し、50% RbCl を調製した。これらの試薬をミルにて破碎して均質化し、試料皿 (内径 50×厚さ 6mm, 千代田テクノル, 大阪) に充填して、試料表面を 4 μm 厚のポリエステルフィルム (ルミラー, 東レ, 東京) で覆い、放射線源を作製した。この他、日本アイソトープ協会より ^{14}C 標準線源 (3.83kBq, 10×15cm, Eckert&Ziegler) を入手した。

2.3 遮蔽試験による半価層の評価

2.2 節で KCl から作製した ^{40}K 線源, RbCl から作製した ^{87}Rb 線源, ^{176}Lu 線源及び ^{14}C 標準線源を各サーベイメータのプロープ部と密着させて1分間計測した。さらにアルミニウム箔 (密度: 2.88mg/cm²) またはアルミニウム板 (62.0mg/cm²) を適宜重ねてプロープとの間に挟み同様の計測を行った。密度範囲は ^{14}C 及び ^{87}Rb で 2.88–8.64 mg/cm², ^{176}Lu で 11.5–34.5 mg/cm², ^{40}K で 62.0–186mg/cm² とした。得られた各密度における計数率の対数から傾き (Slope) を求め、半価層 ($D_{1/2}$) を算出した。

2.4 検出効率の評価

RbCl, Lu_2O_3 , KCl を 5cm 幅のポリプロピレンテープ (Scotch, スリーエムジャパン) に吸着させて秤量した。これらの表面をポリエステルフィルムで保護し、検出効率評価用の線源とした。また、既報⁴⁾ に従い ^{14}C 面線源 (367Bq/cm²) をインクジェットプリンタで印刷した。線源を 10cm 厚の鉛ブロック遮蔽材にて四方を囲い、校正済みのラギットシンチレーション式または GM 計数管式サーベイメータで 10 分間計測した。各試薬の計数率を試薬重量から求めた放射能 (dpm) で除算して検出

効率を求めた。また、メーカーが公表している各サーベイメータのエネルギー特性値⁵⁾ をデータ抽出ツール WebPlotDigitizer (URL: <https://automeris.io/WebPlotDigitizer/>) を用いて数値化した。さらに、これらを PK/PD 解析ソフト Phoenix WinNonlin[®] (version 8.4, CERTARA) でシグモイド関数にて解析し、核種の β 線最大エネルギー (E_{max}) と検出効率の関係式を導いた。

2.5 ^{40}K 及び ^{87}Rb の直線性評価

2.2 節で試薬から作製した ^{40}K 線源 (9.33–17.0Bq/g) 及び ^{87}Rb 線源 (316–632Bq/g) を鉛製シールドボックス内でイメージングプレート (IP, BAS-MS 2025, FUJIFILM, 東京) と 24 時間密着露光させた。その後、画像解析装置 (Amersham Typhoon scanner IP システム, Cytiva, 東京) で輝尽発光値 (PSL) を計測した。さらに、これらの線源をラギットシンチレーション式及び GM 計数管式サーベイメータのプロープ部と密着させて 3 分間計測した。得られた計数値と線源の放射能濃度について直線性を評価した。

2.6 サーベイメータの簡易点検法の構築

2.2 節で作製した 9.33 または 17.0Bq/g の ^{40}K 線源, 464 または 632Bq/g の ^{87}Rb 線源を校正済みサーベイメータのプロープ部と密着させて 3 分間計測を行った。また、17.0Bq/g の ^{40}K 線源と 632Bq/g の ^{87}Rb 線源にはそれぞれアルミニウム板 1 枚 (密度: 62.0mg/cm²), アルミニウム箔 2 枚 (密度: 5.76mg/cm²) を用いて遮蔽試験を行った。さらに、計数値の変動係数と核種毎の $D_{1/2}$, 放射能濃度と計数値の Slope について評価した。これらを 7 回繰り返し、それぞれの変動係数を求めた。

3. 結 果

3.1 遮蔽試験による半価層の評価

校正済みサーベイメータのプロープを ^{14}C 線源と密着させた際の計数率はラギットシンチ

レーション式で 355 ± 5 cpm に対して, GM 計数管式では 1036 ± 47 cpm であり相対的に高い値を示した。また, ^{87}Rb 線源ではそれぞれ 230 ± 5 , 386 ± 12 cpm であり, ^{14}C 線源と同様に GM 計数管式で高い計数率を示した。一方, ^{40}K ではそれぞれ 625 ± 6 , 654 ± 8 cpm であり Student's t 検定において有意な差は認められなかった。遮蔽試験では, いずれの核種においても設定した密度範囲で指数関数に従う放射線の減衰が認められた ($R^2 > 0.996$) (Fig. 1)。なお, 計数率の変動係数は7%未満であった。

さらに, 核種固有の $D_{1/2}$ が算出され, ^{87}Rb では校正済み (Calibrated) のラギットシンチレーション式サーベイメータで 5.14 ± 0.61 mg/cm², GM 計数管式では 5.16 ± 0.48 mg/cm² であり Student's t 検定においてサーベイメータ間で有意差は認められなかった (Table 1)。さらに ^{40}K の $D_{1/2}$ はそれぞれ 68.0 ± 3.72 , 67.0 ± 4.73 mg/cm² と同等であった。また, ^{14}C でも同様の結果であったが, ^{176}Lu では用いたサーベイメータ間にて異なる $D_{1/2}$ が得られた。

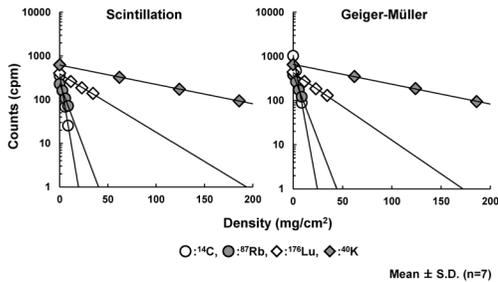


Fig. 1 Attenuation properties by shielding with aluminum.

Table 1 Half-value layer of radionuclides

| Half-value layer (mg/cm ²) | | ¹⁴ C | ⁸⁷ Rb | ¹⁷⁶ Lu | ⁴⁰ K |
|--|-------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| Scintillation | No.1 (calibrated) | 2.28 ± 0.17 [2.14-2.42] | 5.14 ± 0.61 [4.65-5.63] | 22.6 ± 2.36 [20.7-24.5] | 68.0 ± 3.72 [65.0-70.9] |
| | No.2 | 2.18 ± 0.26 [1.97-2.39] | 5.72 ± 0.87 [5.02-6.41] | 21.0 ± 1.66 [19.6-22.3] | 71.1 ± 1.69 [69.7-72.4] |
| Geiger-Müller | No.1 (calibrated) | 2.44 ± 0.11 [2.36-2.53] | 5.16 ± 0.48 [4.78-5.54] | 19.8 ± 1.59 [18.5-21.1] | 67.0 ± 4.73 [63.2-70.8] |
| | No.2 | 2.46 ± 0.20 [2.30-2.62] | 5.02 ± 0.39 [4.70-5.33] | 16.7 ± 1.21 [15.7-17.7] | 68.3 ± 3.32 [65.7-71.0] |

Mean ± S.D. [95% CI] (n=7)

3.2 検出効率の評価

^{14}C ではラギットシンチレーション式サーベイメータ ($0.053 \pm 0.001\%$) と比較して GM 計数管式 ($0.159 \pm 0.001\%$) で約3倍の検出効率が得られた。また, ^{87}Rb ではそれぞれ 0.805 ± 0.133 , $2.11 \pm 0.182\%$ と GM 計数管式で約2.6倍であった。一方, ^{40}K ではそれぞれ $55.4 \pm 4.26\%$ と $56.6 \pm 4.26\%$ であり検出器による検出効率の差は認められなかった (Fig. 2)。これらの結果から, E_{max} と検出効率についてシグモイド関数の関係式が導かれた (eq. (1))。

$$\text{Detection efficiency (\%)} = \frac{a \cdot E_{\text{max}} (\text{MeV})^c}{b^c + E_{\text{max}} (\text{MeV})^c} \quad (1)$$

Eq. (1) の a は最大検出効率, b は最大検出効率の50%の検出効率を示す E_{max} , c はシグモイド係数を表す。サーベイメータ間でbの値が異なり, ラギットシンチレーション式 (0.585 ± 0.0002 MeV) と比較して GM 計数管式 (0.558 ± 0.0003 MeV) では低値を示した。なお, これらの傾向はサーベイメータのエネルギー特性値でも同様であり, ラギットシンチレーション式と比較して GM 計数管式では b が低値を示した。

3.3 ^{40}K 及び ^{87}Rb の直線性評価

^{40}K 及び ^{87}Rb 線源からいずれも放射能濃度に比例したラジオリノグラムが得られ, 放射能

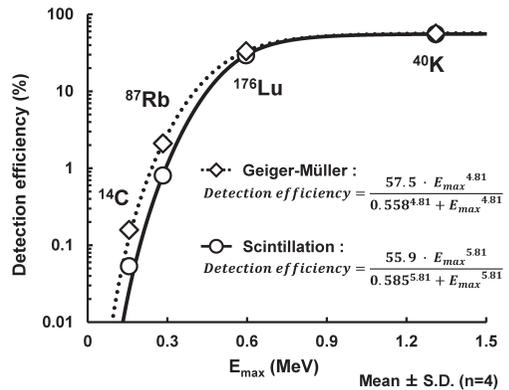


Fig. 2 Detection efficiency of radionuclides measured by survey meters.

濃度と PSL は決定係数0.991 以上の高い相関性が認められた (Fig. 3)。また、検量線の Slope の変動係数は1%未満、各線源の放射能濃度の真度は93-105%であった (data not shown)。

これらの線源をサーベイメータで計測して検量線を作製した。⁴⁰K 及び⁸⁷Rb のいずれも放射能濃度と計数値の相関が認められた (Fig. 4)。

放射能濃度と計数値は決定係数0.988 以上の相関性が認められた (Table 2)。さらに、Slope の変動係数は3.9%未満であり、Fig. 3 で示したラジオルミノグラフィ法による放射能濃度との直線性評価と同等の結果が確認された。また、⁴⁰K 検量線の Slope は検出器によらず同等であったが、⁸⁷Rb 検量線では GM 計数管式の Slope (1.87±0.05) に対してラギットシンチレーション式では約59%まで低下した。

3.4 サーベイメータの簡易点検法の構築

⁴⁰K 及び⁸⁷Rb 線源を用いた3分間の計測を7 回行った結果、各線源における計数値の変動係

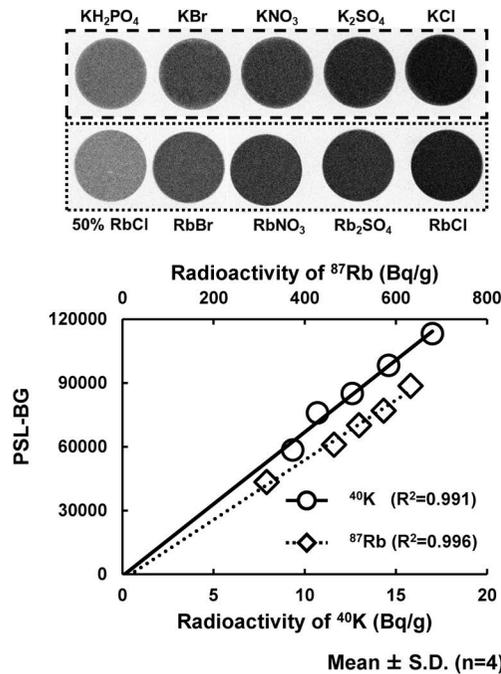


Fig. 3 Radioluminogram and calibration curves of ⁴⁰K and ⁸⁷Rb radiation sources.

数は4%未満であった (Table 3)。

計数値から算出した⁴⁰K 及び⁸⁷Rb の D_{1/2} はラギットシンチレーション式と GM 計数管式サーベイメータで類似した値を示した。また、放射能濃度と計数値の Slope は⁴⁰K では検出器によらず同等であったが、⁸⁷Rb ではラギットシンチレーション式サーベイメータで低下した。なお、これらの結果は Table 1 及び2 に示した D_{1/2} 及び Slope の2 標準偏差内であった。

4. 考 察

本研究では、市販試薬に含まれる天然放射性核種を用いた放射線測定器の点検法について検討した。本検討で用いた試薬に含まれる天然放

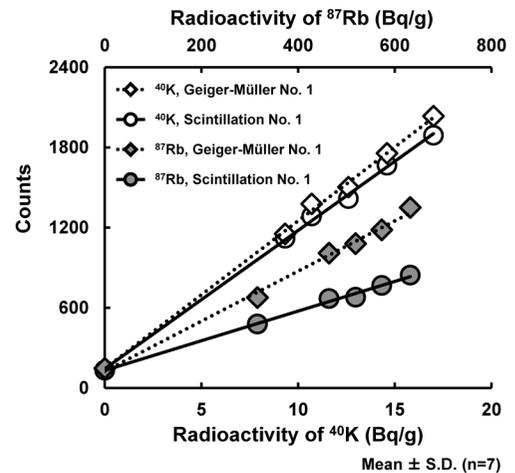


Fig. 4 Relationship between radioactivity and radiation counts.

Table 2 Linearity of calibration curves for ⁴⁰K and ⁸⁷Rb radioactivity

| | | Scintillation | | Geiger-Müller | |
|------------------|----------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| | | No.1 (Calibrated) | No.2 | No.1 (Calibrated) | No.2 |
| ⁴⁰ K | Slope | 103 ± 1.99 [102-104] | 106 ± 2.59 [104-108] | 110 ± 1.33 [109-111] | 109 ± 1.99 [108-110] |
| | R ² | 0.994 | 0.996 | 0.996 | 0.998 |
| ⁸⁷ Rb | Slope | 1.11 ± 0.03 [1.09-1.13] | 1.03 ± 0.02 [1.02-1.04] | 1.87 ± 0.05 [1.83-1.91] | 1.85 ± 0.04 [1.82-1.88] |
| | R ² | 0.988 | 0.993 | 0.993 | 0.992 |

Mean ± S.D. [95% CI] (n=7)

Table 3 Radiation counts, half-value layer, and linearity of radiation sources using ^{40}K and ^{87}Rb

| | Radiation source | Unit | Scintillation | Geiger-Müller |
|---|--------------------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| ^{40}K | KH_2PO_4 | | 1120 ± 33.5 (3.0) | 1153 ± 26.0 (2.3) |
| | KCl | Counts | 1890 ± 60.2 (3.2) | 2034 ± 26.9 (1.3) |
| | *KCl | | 1030 ± 37.8 (3.7) | 1084 ± 38.5 (3.6) |
| | Slope | | 103 ± 3.20 (3.1) | 111 ± 1.53 (1.4) |
| | $D_{1/2}$ | mg/cm ² | 64.2 ± 5.21 (8.1) | 61.4 ± 2.39 (3.9) |
| ^{87}Rb | RbBr | | 669 ± 19.3 (2.9) | 1009 ± 31.6 (3.1) |
| | RbCl | Counts | 845 ± 15.0 (1.8) | 1350 ± 24.4 (1.8) |
| | *RbCl | | 506 ± 17.7 (3.5) | 706 ± 20.3 (2.9) |
| | Slope | | 1.13 ± 0.02 (1.8) | 1.89 ± 0.04 (2.1) |
| | $D_{1/2}$ | mg/cm ² | 6.21 ± 0.57 (9.2) | 5.20 ± 0.13 (2.5) |
| KH_2PO_4 : 9.33 Bq/g, KCl: 17.0Bq/g RbBr: 464 Bq/g, RbCl: 632 Bq/g | | | *Shielding | |
| Mean ± S.D. (C.V.%) (n=7) | | | | |

放射性核種はいずれも 12.8 億年以上と長い物理学的半減期を有しており, 恒常的に放射線が放出される特性を利用した ^{40}K の距離や遮蔽による放射線の減衰についての教育が報告されている⁶⁾。

遮蔽試験による放射能の減衰は指数関数に従うことが知られており, 密度検量線から算出される $D_{1/2}$ は点検の評価指標として有用と考えられる。本検討で得られた $D_{1/2}$ は既報⁷⁾ でラジオルミノグラフィ法にて報告されている値 (^{40}K : 69.8 mg/cm², ^{87}Rb : 5.50 mg/cm²) と同等であり, サーベイメータを用いた遮蔽試験においても信頼性の高い $D_{1/2}$ の算出が可能であった。特に, ^{40}K と ^{87}Rb は β^- 壊変の割合が 89 及び 100% と高く, その他の放射性壊変の影響を受け難いことから測定器間で $D_{1/2}$ の誤差が少なく有用な点検用線源になりうる。一方, ^{176}Lu では検出器間で異なる $D_{1/2}$ が算出され, γ 転移の影響が考えられた。これらの結果から, β^- 線測定用サーベイメータの点検用線源には, β^- 壊変の割合が高く γ 転移の寄与が少ない核種が適することが示唆された。また, 核種の $D_{1/2}$ は β^- 線エネルギーと相関することが知られており⁸⁾, 遮蔽試験によって核種の β^- 線エネルギーに応じた計数率の減衰を検証可能である。一方, 表面汚染測定器として蛍光作用を利用したシンチレーション式と電離作用を利用した GM 計数管式サーベイメータ

が汎用されている^{9,10)} が, 一般に GM 計数管式と比較してシンチレーション式サーベイメータで低エネルギー核種の検出効率が低いことが知られている^{5,11)}。本検討からも検出原理が異なるサーベイメータ間で計数値を直接比較することは困難であることが示唆された。

さらに, ^{40}K または ^{87}Rb 含有試薬は分子量の異なる複数の試薬が容易に入手可能であることから, 放射能濃度に応じたサーベイメータの計数値の変化を検証可能と考えられる。特級試薬の純度は 98% 以上であり, 天然での放射性同位元素の存在比率から, 容易に放射能濃度が算出可能である。ラジオルミノグラフィ法によって ^{40}K 及び ^{87}Rb 線源の設定濃度内における計数値の直線性が確認され, これらの点検用線源としての有用性が示唆された。さらに, サーベイメータでの計測において, ラジオルミノグラフィ法と同等の直線性と良好な再現性が確認され, BG の 10 倍以上の計数値が得られたことから本線源はサーベイメータの点検に使用可能な放射線エネルギーと放射エネルギーを有すると考えられた。

点検法を構築するにあたり, 基準範囲の設定が必要である。一般に, 放射線測定器の計数値は正規分布に従うとされており¹²⁾, Table 3 から本検討における計数値の変動係数は 4% 未満であった。理論上の標準偏差は RbCl の遮蔽試験で得られた 506 counts の平方根から 22.5 counts, 計数値の相対誤差は 4.5% 以下と見積もられ, 確率分布に従う誤差以外の計数値への影響は少ないと考えられた。そこで, 包含計数を 2 として基準範囲を設定した簡易点検を提案する。校正済みサーベイメータによる計測から得られた $D_{1/2}$ 及び放射能濃度と計数値の Slope は本基準範囲内に含まれており, 基準範囲の設定は妥当と考えられる。

本法は同一試料の遮蔽による減衰, 及び同一核種での放射能濃度と計数値の直線性について確認可能である。また, 点検に要する時間は 30 分程度と比較的簡便に実施可能である。本点検法にて放射線測定器の信頼性確保が可能と考えられる。

5. 結 語

天然核種を含有する市販試薬を利用した放射線測定器の点検法が見出された。市販試薬は放射線管理が不要であり、放射線管理区域外での点検が可能である。本法による放射線測定器の信頼性確保が期待される。

著者情報

著者貢献内容

栄井修平：研究の実施と解析，論文の作成

吉年勉：データの取得

藤野秀樹：研究の統括と実施，論文の推敲

ORCID 番号

栄井修平：なし

吉年 勉：なし

藤野秀樹：なし

利益相反の開示

本論文に関連し、著者全員について開示すべき利益相反 (conflict of interest; COI) 関係にある企業等はない。

謝 辞

本研究に当たりご協力頂きました、兵庫医科大学薬学部の清水歌乃氏および松岡佳佑氏に感謝の意を表します。本研究は JSPS 科研費 JP22K02968, JP24K20186 の助成を受けたものです。

文 献

- 1) 原子力規制委員会，放射線障害予防規程に定めるべき事項に関するガイド，改正 令和4年3月16日 原規放発第22031617号 原子力規制委員会決定
- 2) 磯部理央，古川未来，大野紗綾，進藤遼太，他，シンチレータ式簡易測定器の諸特性に関する基礎検討，日本放射線安全管理学会誌，**22**，72–82 (2023)
- 3) 藤野秀樹，塩化カリウムを用いた密度測定及び放射線教育への利用について，*ISOTOPE NEWS*，**72**，34–38 (2014)
- 4) 藤野秀樹，永田瑛偲，インクジェットプリンタを用いた¹⁴C 面線源の作製とその応用，*RADIOISOTOPES*，**71**，29–33 (2022)
- 5) アロカ株式会社，LUCREST TCS-1319H 仕様書，<https://www.aloka.co.jp/usersupport/catalog/pdf/AR-020.pdf> (accessed July 12, 2024)
- 6) 河野孝央，塩化カリウム試薬で製作した放射線源を用いる分担測定法による高校生の放射線教育，*RADIOISOTOPES*，**62**，639–648 (2013)
- 7) 栄井修平，吉年 勉，藤野秀樹，天然放射性核種の新規医療利用への提案，*RADIOISOTOPES*，**73**，225–231 (2024)
- 8) 藤野秀樹，浦元沙和，小松理佳子，天然放射性核種を用いた放射線教育，*RADIOISOTOPES*，**71**，23–28 (2022)
- 9) 飯田治三，鎌田貴志，渡井勝範，天野 豁，他，動的予測サーベイメータの⁶⁰Co 汚染検査への応用，*RADIOISOTOPES*，**57**，669–677 (2008)
- 10) 山西弘城，杉浦紳之，表面汚染密度測定における走査条件と検出能力との関係，*保健物理*，**44**，304–312 (2009)
- 11) 大塚 巖，サーベイメータの特性と使用法(1)，*RADIOISOTOPES*，**33**，247–256 (1984)
- 12) 河野孝央，自然放射能線源を用いて行う放射線計数の統計的変動を理解するための測定実習，*RADIOISOTOPES*，**63**，345–354 (2014)

Abstract

A Simple Inspection Method for Radiation Measuring Instruments Using Commercially Available Reagents Containing Natural Radionuclides

Shuhei SAKAI¹, Tsutomu YODOSHI² and Hideki FUJINO^{1,2,†}:
¹School of Pharmacy, Hyogo Medical University, ²Graduate School of Pharmacy, Hyogo Medical University, †h-fujino@hyo-med.ac.jp

According to the revision of act on the regulation of radioisotopes in 2023, inspection and calibration of radiation measuring instruments has been obligated. In this study, inspection methods for survey meters using commercially available reagents containing natural radionuclides as a radiation source was investigated. As a result of shielding test, the linearity and reproducibility of attenuation was confirmed. Furthermore, correlation of radiation counts with concentration of ⁴⁰K and ⁸⁷Rb radioactivity was founded. Based on these results, a simple inspection method for survey meters was established.

(Received October 23, 2024)

(Accepted December 4, 2024)