

特 別 講 演

名大・I 渡 辺 銀

1 ま え が き

RIの放射能強度(崩壊率)の絶対測定の方法には標準線源又は校正線源を用いて未知試料の放射能強度と比較測定する方法があるが、この方法は簡便である反面標準線源が必ずしも入手できず、仮に入手できても標準線源の測定精度以上は望まれない。一方これから述べる絶対測定法は測定方法が複雑で装置も大掛りであり、測定に要する時間も長くかかるが、測定精度は必要に応じてある程度まで高くすることができ、充分な注意の下に測定を行えば0.1%程度の誤差で測定することが可能である。絶対測定法には大別して 1) 4π計数法、2) 同時計数法、3) その他、がある。それぞれの測定法に使用する検出器の構造はα、β放射体とX線放射体(軌道電子捕獲により崩壊するRI)とでは大要異なる。その他の中には³H、¹⁴Cなどのエネルギーの小さいβ線のみ出すRIの測定に適しE気体試料計数法および微小熱量計による方法などがある。以下これらの測定法の概略(主としてβ放射体)について述べ、つぎに測定に際して重要な技術である試料薄膜および測定試料の作り方などについて述べる。

2 4π計数法

4π計数管は試料を計数管の中に入れて試料からあらゆる方向に出る放射線を検出するようになっている。従って原理的には最も簡単な方法である。4π計数法の最大の特長は軌道電子捕獲により崩壊する(EC崩壊)RIを除いて崩壊型を殆んど考慮に入れずに崩壊率が測定できることであつて、後述の同時計数法が常に崩壊型を考慮せねばならぬ測定が必要であるに比較して大変使用し易い。何と云へば4π計数管の分解時間内は2個以上の放射線が試料から出て測定される数は1個である。従つてEと云はβ線に引續いて出るγ線は全く考慮しなくてもよい。この為には4π計数法を用いれば絶対測定が簡単にできるように思われるが、正しい測定を行うためには多くの注意が必要となる。現在最もよく用いられている4π計数管の構造を図1に示す。試料は上下の計数管の間にあつた棚板の中心におく。

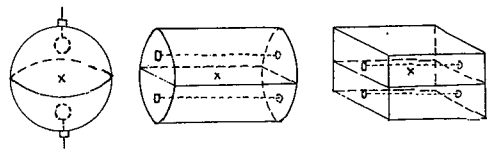


図1 各種4π計数管 ×線源

従つて線源の交換の度に空気を計数カスにおきかえなければならぬのでカスフロー形式になる。計数カスにPRカス又はメタンカスを用い比例計数管として動作させる場合と、Qカスを用いGM計数管として動作させる場合がある。何れも一長一短があるが計数率の低い前者として動作させる場合が多い。

4π計数管に要求される特性の第一は幾何学的効率が完全に1であることが大切である。棚板によつて試料から出るβ線の一部分が遮つていゝせめて効率が1より小さくなる場合があるので注意を要する。その第二はフラット特性である。フラットの長いことも必要であるが特に傾斜の小さいことが大切である。傾斜が大きいと動作電位の選定に困る。フラット特性の良否は

計数管自身の構造にも勿論よるが、それ以外に増幅器の過負荷特性、入力感度¹⁾、試料の状態(試料膜の導電性など)にも関連する。増幅器の過負荷特性は比例計数管として4π計数管

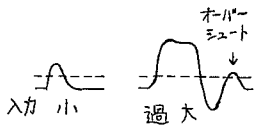


図2. 比例増幅器の過負荷

を動作させる場合は特に大抵で計数管より出る信号パルスの大いさは1~10V以上の範囲にわたるので大信号が入った場合にも増幅器が過負荷してオーバーシュート(図2)が出ないことが大切である。

4π計数法による絶対測定に際して最も大きな誤差を生ずるのはβ線の試料による自己吸収である。従ってできる限り自己吸収の少ない試料を作ることが必要である。このような試料の作り方は後に述べる。4π計数法自身では自己吸収量を知らずにはできないが、β-γ放射体では後述の同時計数法で求めることができる。又最近¹⁴C, ³⁵Sのような純β放射体に対して効率トレーサ法によって自己吸収を補正できるようになった。次は試料膜によるβ線の吸収による誤差でこの補正には2通りある。一つは上下計数法²⁾と呼ばれる方法で上および下側の計数管の計数率を N_t, N_b , 両方の計数管を並列に結んで実際の計数率を N_{tb} とすれば試料膜による吸収 A は次式で表わされる。

$$A = \frac{N_t - N_b}{N_{tb} - N_b} \quad (1)$$

ただし試料は上側の計数管に向けられている。従って真の計数率 N は次式で求められる。

$$N = \frac{N_{tb}}{1 - \frac{A}{2}} \quad (2)$$

別の方法はサニドイチ法³⁾と云われる方法で、第一回の計数で N_{tb} を求め、つぎに試料膜と同じ膜を線源の上に張って第二回の計数 N_{tb}' を求めれば A は次式で表えられる。

$$A = \frac{2(N_{tb} - N_{tb}')}{2N_{tb} - N_{tb}'} \quad (3)$$

最後に4π計数装置使用上の注意を述べる。多くの場合4π計数管は4000V前後で動作させるので陽極を支持する絶縁物の表面を通しての漏電、結合コンデンサー、デカップリングコンデンサーなどのコロナ放電に基く雑音が発生し易い。従って絶縁物の表面をきれいにしておくことは勿論であるが、計数管内外の湿度を小さく保つことが大切である。

3 同時計数法

2個の放射線例えばβ線と引續いてγ線を放射するRIの放射純度を求める方法の一種である。この方法の長所は試料中のβ線の吸収の影響を全然又は殆んど受けないことである。しかし崩壊型によって測定方法を変えなければならず複雑な崩壊型を示すRIでは測定が困難になる。図3にβ-γ同時計数装置のブロック線図を示す。

今 N を試料の崩壊率、 N_β, N_γ, N_c をそれぞれβ線、γ線、同時計数器の計数率とすれば図4の崩壊型を示すRIでは次式が成り立つ。

$$N_\beta = N \cdot \epsilon_\beta, \quad N_\gamma = N \cdot \epsilon_\gamma, \quad N_c = N \cdot \epsilon_\beta \cdot \epsilon_\gamma \quad (4)$$

上式中で $\epsilon_\beta, \epsilon_\gamma$ はそれぞれβ線、γ線検出器の全計数効率である。従って(4)式より次式が得られる。

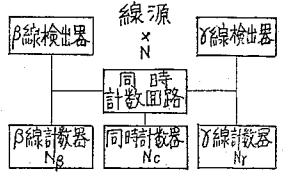


図3 β-γ同時計数装置

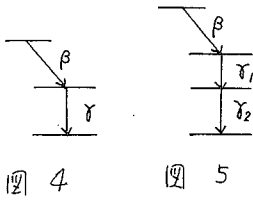


図 4

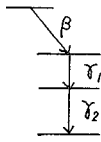


図 5

$$N = N_{\beta} \cdot N_{\gamma} / N_c \quad (5)$$

従つて ϵ_{β} , ϵ_{γ} がわからなくても N_{β} , N_{γ} , N_c を測定すれば試料の崩壊率が求められる。さらに(4)式より各検出器の計数効率が求められる。

$$\epsilon_{\beta} = N_c / N_{\gamma}, \quad \epsilon_{\gamma} = N_c / N_{\beta} \quad (6)$$

上述の関係式は図5のような崩壊型を示すRIにも適用できる。図6に示すRIでは(5)式に相当する式として次式が得られる。

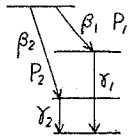


図 6

$$\frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}}{N_c} = N \left\{ 1 - \frac{P_1 P_2 (\epsilon_{\beta 1} - \epsilon_{\beta 2}) (\epsilon_{\gamma 1} - \epsilon_{\gamma 2})}{P_1 \epsilon_{\beta 1} \epsilon_{\gamma 1} + P_2 \epsilon_{\beta 2} \epsilon_{\gamma 2}} \right\} \quad (7)$$

また図4に示す崩壊型でも γ 線の内部転換が無視できない場合には次式になる。

$$\frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}}{N_c} = N \left\{ 1 + \frac{\alpha}{1+\alpha} \frac{\epsilon_{\gamma}}{\epsilon_{\beta}} (1 - \epsilon_{\beta}) \right\} \quad (8)$$

(8)式中 α は内部転換係数である。(7),(8)両式を見ると右辺括弧の中の第二項が崩壊型による補正項である。従つてもつ複雑な崩壊型を示すRIでは補正項も複雑になり N_{β} , N_{γ} , N_c の測定値のみでは N を求めることは困難になる。図3の γ 線検出器には現在検出効率の最も $N_{\beta 2}$ を用いたシンチレーション計数管が用いられる。一方 β 線検出器にはGM計数管又はアントラセンなどを用いたシンチレーション計数管がよく用いられる。しかし場合によっては $4\pi\beta$ 計数管も β 線検出器として用いる場合がありこの装置を $4\pi\beta$ - γ 同時計数装置⁴⁾ と云い、普通の β - γ 同時計数装置と比較して次に述べる利点があるため精密な絶対測定に使用される。すなわち $\epsilon_{\beta} \approx 1$ になり(7)又は(8)式に示す補正項が零に近くなる。又 $N_c \approx N_{\gamma}$ となり短時間で高精度の測定が可能になる。

4 試料膜の作りか

4π 計数法に使用される試料膜に要求される性質は薄くて機械的に強くさらに酸やアルカリなどの薬品に多少程度耐えられることが必要である。薄膜の材料には稀に金属が用いられるが多くの場合樹脂である。現在比較的よく用いられているのはVYNS⁵⁾ (Vinyle ChlorideとVinyle Acetateの共重合物)でこれを適当な溶媒(たとえばニトロベンゼン)に溶解し水面上で表面張力を利用して薄膜にする。水面上の薄膜を測定用の薄い金属環にすくい上げる。このような方法で $10\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 前後の薄膜を比較的容易に作る事ができる。この外薄膜の素材としてサホン⁶⁾、ニトロセルロースなども用いられる。殊に $4\pi\gamma$ 計数法では低原子番号の元素から構成される薄膜が必要になることがありこのような場合ニトロセルロースが用いられる⁷⁾。

上述のようにして作つた薄膜は導電性に乏しいので測定の際に帯電して悪影響を及ぼす。従つてこれを除くために薄膜の上に金、アルミニウムなどの金属を真空蒸着して導電性を与える。

図7は金蒸着によって計数の増加する様子を示す⁸⁾。この図

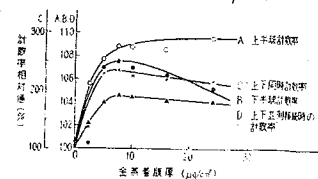


図7 蒸着膜厚と計数率(60Co)

より $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度の量を蒸着する必要があることがわかる。

5 測定試料の作り方

今まで述べたことから明らかのように測定装置が正しく調整された場合に於ては測定の際の誤差は殆んど測定試料の良否によって決まる。試料のもつ最も重要な質は β 線の自己吸収が少いことである。このためには試料溶液から生ずる結晶が微細且つ平坦して析出する必要がある。このような試料の作り方には種々あるが元素又は化合物によって異なり一般的な方法は無いようである。¹⁾ 最も簡単な方法は試料膜の上で溶液を滴下して乾燥する方法であるが、この方法で作った試料は結晶の一部が集って生成し易く良い試料は得難い。そこで上述のようにして出来た試料の上に更に蒸留水を一滴加えて結晶を溶解しアモニウム¹⁰⁾又は硫化水素などの密閉気中で乾燥する方法で比較的均一で細かい結晶が得られる場合がある (^{60}Co , ^{35}S , ^{203}Hg など)。この方法を用いてよい結果が得られる。¹¹⁾ さらに試料溶液にエチレン、ゴロ付状¹²⁾、テフロン¹³⁾、PVA 水溶液¹³⁾ を加えて乾燥することにより均一な試料が得られる。絶対測定により溶液の放射能濃度を求めようとする場合には試料膜に滴下した溶液の量を知る必要がある。この測定にはあらかじめ校正された C^{14} を用いたり、又滴下量を天秤で測る。前者は滴下する溶液量が少く ($\sim 0.01 \mu\text{l}$) ので精度を上げる必要がある。従って高精度の測定には秤量法が多く用いられているが秤量中の液の蒸発に対する補正が必要なる。

6 試料中の β 線の吸収量の測定方法

β 線に引續いて γ 線を放出する RI では前述のように同時計数法により自己吸収量が求められるが、 ^{14}C , ^{35}S の如き純 β 放射体では何らかの方法で自己吸収量を求めて補正を行う必要がある。この目的に対していくつかの試みがあるが最近よく行われているのは効率トレーサ法である。この方法は 1960 年 Campion, Merritt¹⁴⁾ によって考案され、Baerg¹⁵⁾, 河田¹⁶⁾ によって發展された。測定装置は $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数装置を用いる。まず絶対測定しようとする未知試料 (A) の溶液の一定量に別の RI (必ず γ 線を放出する) (B) で溶液の放射能濃度のわかっている溶液の一定量を加え両者の化合物を作る。試料 (A) 及び (B) の担体量を加減して自己吸収量の異なる測定試料を作る。各試料の自己吸収量は (B) の試料から出る γ 線を利用して $\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法を利用して測定する。このようにして自己吸収量と (A) の試料の計数率の関係を求め自己吸収量が零となる試料 (A) の計数率を外挿によって求めればこの試料 (A) の自己吸収を含まない値になる。この方法の妥当性を検討する為に ^{14}C の試料に ^{60}Co の γ 線を放出する RI を用い別に同時計数法で絶対値を求めこの値と効率トレーサ法による値と比較した結果より一致が見られた。(A) と (B) は化合物であることが必要であるが、均一性のよい試料であれば異なる混合試料でもよいとする報告¹⁵⁾ がある。トレーサとして用いる RI とは未知試料の出す β 線のエネルギーに近く、かつ崩壊型の簡単なものが好ましい。 ^{60}Co などと比較的によく使用される。

1) 山田周治他：第4回日本RI会談論文抄録集 (1961), 17

2) D. Pate, et al: Can. J. Chem., 33 (1955), 929

3) H. H. Seliger, A. Schwebel: Nucleonics, 12, (7), (1954), 54

- 4) 例題' P.J.Campion: Int.J.App.Rad.and Isotopes, 4, (1959), 232
- 5) B.D.Pate,etal: Can.J.Chem., 33, (1955), 15
- 6) B.P.Burt: Nucleonics, 5, Aug.(1949), 42
- 7) 富永洋他: 第14回応用物理連合講演会予稿集, (1967), 64
- 8) 河田燕: 原子力工業, 11, (6), (1965), 56
- 9) K.Siegbahn:" α -, β -, and γ -ray Spectroscopy" vol.1 (1965), 385
- 10) 浜田達他: Radioisotopes, 9, (2), (1960), 138
- 11) J.S.Merritt,etal: Can.J.Chem., 37 (1959), 1109
- 12) N.A.Hallden,etal: Int.J.App.Rad.and Isotopes, 14, (1963), 529
- 13) 富永洋他: 第7回日本RI会誌報文集, A/M-3, (1966)
- 14) P.J.Campion,etal: Int.J.App.Rad.and Isotopes, 8, (1960), 8
- 15) A.P.Baerg,etal: Int.J.App.Rad.and Isotopes, 15, (1964), 279
- 16) 河田燕: 応用物理, 36, (1967), 404

The Standardization of Radioisotopes.

Tamaki WATANABE

