

第 3 回

放射化学討論会

特別講演・パネル討論

予稿集

昭和34年10月8～10日

於静岡大学

共 催

日 本 化 学 会
日 本 原 子 力 学 会
日 本 分 析 化 学 会

この報文要旨印刷に際しては故仁科芳雄博士を記念する

仁 科 記 念 財 団

から多大の財政的御援助を頂きました。

同財団は記念事業として

仁科記念賞の授与

海外への留学生派遣

研究奨励金の交付

海外学者の招聘

講演会の開催

等の事業を行つておられます。対象とする学問分野は広い意味での原子物理学とその応用であり、故博士の幅の広い活動範囲が考えられて居ります。

放射化学およびラジオアイソトープ応用に関する研究は故博士の深い関心をもたれた分野であり、この討論会に財団から始めての例として援助を頂いたことは誠に意義深く、参会の会員諸君と共に厚く感謝の意を表したいと思ひます。

特 別 講 演

座長(立大理) 奥野久輝氏

「放射性廃棄物処理について」

(東大生産研) 山本 寛氏

特 別 講 演

座長(東大理) 斎藤信房氏

「トリチウムの化学」

(Kansas大) F.S.Rowland

この両特別講演は要旨を頂けませんでした。

各種シンチレーターとその特性

(東大核研) 菅 浩一氏

従来放射線検出用シンチレーターと言えばNaI(Tl)とAnthraceneがおもに使われて、 γ 線の検出であるとか、線量測定の場合にはたいして事欠かなかつた。この二三年の間にプラスチックシンチレーターが我が国でも生産される様になり、可成広範囲に使われているし、又放射線の性質について立入った研究をする場合には目的によつて各種シンチレーターを、うまく使い分けする事が必要になつて来る。この講演では、無機有機の各種シンチレーターについてその特長を、主に物理的に検討し乍ら各種実験に対する適応性を論ずるとともに、最近の諸問題についても話したいと思つている。

シンチレーターの特性をあらわす諸量として問題にすべきものを列挙すると：-

- (1) 蛍光波長分布 二三の例外を除いて光電増幅管の分光感度曲線は 3000\AA ~ 6000\AA にわたり、大体 4400\AA に最大感度をもつ。従つてこの分光感度曲線に近い蛍光波長分布をもつシンチレーターが能率が良い事になる。しかし特別な理由からこれと違つた蛍光波長分布をもつシンチレーターを、使う必要があるときには適当な分光感度曲線をもつ光電増幅管を選ばなければならない。
- (2) β 線に対する光量 厳密に言えば、min ionizationの粒子に対する光量と言う必要がある。この光量の多少がシンチレーターの良否を判定する基準になる。又陽子線、 α 線のエネルギーの低いものはionizationの量が多く、有機シンチレーターの場合には、エネルギー損失と光量が比例しなくなる場合があるから注意する必要がある。
- (3) 温度による蛍光能率の変化 シンチレーターの蛍光能率は、温度によつて変化する。従つて精密実験をする場合とか、長期間にわたつてデータを取る場合には考慮する必要がある。 1°C の変化あたりの蛍光能率の変

化は物理により0.05%~数%に及ぶ。

(4) 減衰時間 (decay time) シンチレーターによつて違い、 $1 \mu \text{sec} \sim 1 m \mu \text{sec}$ 位の間にわたる。減衰時間の短いものほど早い計数が可能で良いシンチレーターと言える。一つの物質について、減衰時間は必ずしも一通りでなくて、物質によつては幾通りもの減衰時間をもつ。例えば Anthracene では、ほとんどの光が $30 m \mu \text{sec}$ で出るがこの池に数%の光は $100 \mu \text{sec}$ 程度の長い減衰時間をもつて出る。NaI の場合には、 $250 m \mu \text{sec}$ のものの他に $1 \text{sec} \sim 13 \text{sec}$ にもおよぶ減衰時間の光を出す。従つて、発光量の多い実験の場合や、計数の非常に多い場合には重大な影響をもつから注意を必要とする。

(5) Figure of Merit 普通分解時間が $0.1 \sim 10 \mu \text{sec}$ 程度の計数をする場合には、シンチレーターと名前がついて使つている物質では、光電増幅管、増幅器を適当にえらぶ事によつて光量は大して問題にならない事が多い。しかし非常に早い計数 ($10^{-10} \text{sec} \sim 10^{-8} \text{sec}$) をする場合に光量が問題になる。予稿では詳しい事は省略するが、単に光量だけが問題になるのではなくて、光量÷減衰時間が重要な量となる。私は光量を、Anthracene を100として表わし、減衰時間を $m \mu \text{sec}$ で表わして求めたものをシンチレーターの Figure of Merit と呼ぶ事を提案したい。尚上に書いた諸特法の他に、シンチレーターの関連事項として次の様な問題にもふれたい。

- (A) シンチレーターの Wave-length-shifter としての応用
- (B) シンチレーターの光量、Figure of Merit はどの位迄あげうるであろうか。
- (C) 有機シンチレーターで γ 線 sensitive なものが出来ないであろうか。
- (D) 有機シンチレーターの特性を調べる事によつて、発光機構及至は化合物の構造に対して知識が得られないであろうか。
- (E) 気体シンチレーターの特性。
- (F) 液体、プラスチックシンチレーターの種々の応用。

第 1 表

無機シンチレーターの特性

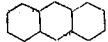

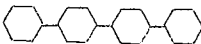
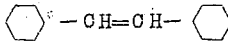

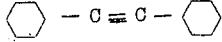
無機シンチレーター	NaI(Tl)	KI(Tl)	ZnS(Ag)	ZnS(O)	CaWO ₃	CaWO ₄	CsI(Tl)	CsF	LiI(Bi)
密度 (g/cm ³)	3.67	3.13	4.10	4.10	6.06	7.90	4.51	3.59	4.06
蛍光減衰時間 (τ) (μ sec)	0.25	> 1	~10	~10	~4	~6	0.55	0.005(β) 0.02(α)	1.4
上記以外の τ	200 μ sec, 1 sec~13 sec 90 sec	燐光性	最初 0.1 μ sec 後 10 μ sec				.220 sec の燐光		
蛍光量最大の波長 (Å)	4100	4100	4500	5200	4300	5200		3900	~4400
蛍光効率 ε*	100	25	~100	~100	~50	~65	~28	5	35
重い粒子に対する蛍 光量、比例度	β, P に対して は比例 α/β 0.5	β, P に対し ては比例 α/β 1.0	~180 (α)	~160 (α)	β に対し て比例 α/β 0.2		α/β 0.5	α/β 0.2	β, P に対し ては比例 n/β 0.95
其 他 の 特 性	吸湿性		多結晶性粉末	多結晶 性粉末	小結晶	小結晶	非吸湿性	吸湿性	Li ⁶ (D, α) H ³ によつて遅中 性子の検出 に適當
特別な長所と使用例	γ線 β線の測 定に最も広く 使われる		B ₂ O ₃ と混ぜて光 電管の表面にぬ つたり、ルサイト又は パラフィンと混ぜて モールドし中性子 の検出につかう				パルス高の問題に ならない時は、非 吸湿性のために NaI (Tl) の 代りによい	パルス高が低 が β に対し ては無機シ ンチレーター の中で τ が最 も短い	
蛍光の温度特性	詳細別記							+125 ~ -188 °C 程度 によらない	0.3~0.4 % /°C
融 点 (°C)	651	686	1850	1850	1535	1325	621	684	446

*アントラセンを100とした相対値、各表共通

151

第 2 表

有機結晶シンチレーターの特 性

有機結晶 シンチレーター	化学構造式	密度 (g/cm^3)	融点 ($^{\circ}C$)	蛍光量最 大の波長 (\AA)	蛍光減衰時間 ($\tau, m\mu s$)	蛍光効率 ϵ	重い粒子に対 する蛍光量、 比 例 度	蛍光温 度係数 ($\%/^{\circ}C$)	備 考
Anthracene		1.25	217	4,400	~30	100	$\beta > 125 \text{Kev}$ 比例 α/β 0.10	-0.54	大きい結晶は 得にくい。 よく使われる。
P - Terphenyl		1.23	213	3,900, 4,100	4~11	30~40		-0.40	きれいな結晶 ができる。
P,P-Quaterphenyl		-	318	4,350	4~8	76~94		-0.05	きれいな結晶 W. l. S とし も使う *
Trans-stilbene		1.16	124	3,850, 4,100	3~8	46~60	α/β 0.1	-0.31	良い結晶がで きる。非常に もろい。
Naphthalene		1.15	80	3,450	70~140	11		-1.06	ほとんど使わ ない。
Diphenylacetylene		1.18	625	4,000	3~7	25~45		-1.41	良い結晶がで きる。

* W. l. S ウェーブレングスシフター

第3表

有機液体シンチレーターの特性

溶 媒	溶 質 (g/l)	第二溶質 (g/l)	蛍光量最大の波長 (\AA)	蛍光減衰時間 ($\tau, \mu s$)	蛍光効率 ϵ	重い粒子に対 する蛍光量	蛍光温度 係数 ($\%/^{\circ}C$)	備 考
Toluene	TP, 5	0	3,550	2.2	3.5	$\alpha/\beta 0.09$		
Toluene	TP, 4	POPOP, 0.1	4,200, 4,400	2~4	6.0		-0.5	低温ではTPが 析出する
Toluene	TP, 5	α NPO, 0.02	4,150	≤ 3.2	4.2			
Toluene	PPO, 3	0	3,820	≤ 3.0	4.0			低温で使用可能 PPOはTPよ り溶解度大
Toluene	PBD, 8	0	3,700	< 2.8	4.9			
Pyrenyl-Chloroform	TP, 3	0	3,550	< 2.9	2.7			ルーサイト容器 に入れられる
Pyrenyl-Chloroform	TP, 3	DPH, 0.01	4,500	8.0	3.5			ルーサイト容器 に入れられる

TP; P-Terphenyl DPH, 1,6-diphenyl-1,3,5-hexatriene

PPO; 2,5-diphenyloxazole, PBD; 2-phenyl-5-(4 biphenyl)-1,3,4-oxadiazole

POPOP; P-di-(5-phenyl-2-oxazolyl)-benzene

第 4 表

プラスチックシンチレーターの特性

溶 媒	溶 質 (g^r/l)	第二溶質 (g^r/l)	蛍光量最大の波長 (\AA)	蛍光減衰時間 (τ , $m\mu\text{sec}$)	蛍光効率 (ϵ)	重粒子に対する 蛍光量 (α/β)	蛍光温度係数 ($\%/^{\circ}\text{C}$)	備 考
polystyrene	TP36	0	3,550	≤ 3.0	28	0.10		
polystyrene	TPB16	0	4,500	4.6	36	0.08		
polystyrene	TP36	TPB0.2	4,450	4.0	39	0.10		
polystyrene	TP10	POPOP0.3	4,200, 4,400	2~4	44~48	0.10	0.3	4200 \AA 以上の光 の mean free path 3m
polyvinyltoluene	TPB16	0	4,500	4.6	37	0.08		
polyvinyltoluene	TP36	TPB0.2	4,450	4.0	45	0.10		光の mean free path 2m
polyvinyltoluene	TP36	DPS0.9	~3,800	≤ 3.0	48	0.10		
polyvinyltoluene*	—	—	4,500	4	60	—		商 品

TPB; 1, 1, 4, 4-tetraphenyl-1, 3-butadiene; DPS; P, P-diphenylstilbene

* Nuclear-enterprises 社製品

屈折率; polystyrene~1.6, polyvinyltoluene 1.5

第 5 表

各種シンチレーターの Figure of Merit (ϵ/τ)

物 質	Scintillation efficiency(ϵ)	decay time (τ μsec)	figure of merit (ϵ/τ)	温度係数%/°C
NaI(Tl)	200	250	0.80	~1
ZnS(Ag)	200	10,000	0.02	/**
CaWO ₃	100	4,000	0.025	/
CsF	10	5	2.00	0
アントラセン	100	~30	3.3	-0.54
ナフタレン	11	70~140	0.16~0.08	-1.06
スチルベン	~50	~6	~8.0	-0.31
ダイフェニルアセチレン	~35	~5	~7.0	-1.41
ターフェニル	~35	~7.5	~4.7	-0.40
クォーターフェニル	~85	~6	~14	-0.054
トルエン+TP*+POPOP	60	2~3	~20~30	-0.5
ポリスチレン+TP+POPOP	40	2~4	~10~20	-0.3
ポリビニルトルエン+TP+DPS	50	~3	~16	/

TP* ターフェニル、** データのはつきり分っていないもの

放射化学における放射能測定

座長 (東大核研) 齋藤一夫氏

放射化学的立場から見たアルファ線の測定法

(立大理) 道家忠義氏

α 放射能の測定としては霧箱や、写真乾板等を使用することもあるがこゝでは主として Scintillation 及び Ionization を原理とするものについて述べたい。両者は何れの場合も検出部分として気相、液相、固相と全ての状態が利用可能である。しかし α 線の検出装置としての固相状態の ionization の利用は現在ではまだ困難な点が多く、又液相に於ける ionization 及び Scintillation の利用は実用的立場から余り一般性を持たないし、しいて利用する必然性も認められない。従つてこゝでは気体の Scintillation 結晶の ionization、気体の ionization の利用に主として着目したい。今 α 線測定に関して放射化学として特に望ましい点は、

- a、試料の放射能が微弱な場合が多く、その放射能の絶対測定の精度を上げるために、
 - i) background の計数が少いこと。
 - ii) 試料の面積が広くとれ、有効立体角が大きくとれること。
- b、energy による同位元素の識別が可能であるためには、
 - i) なるべく out-pulse height が入射 α 線の energy と比例していること。(linearity がよい)
 - ii) energy の分解能がすぐれていること。
 - iii) 動作(増巾率等)が安定なこと。等であろう。

こゝで a、i) は設計の方法、材料の選択等に関連しそれ自身固有のものでない場合が多いので、これに対する工夫は後に述べることとし、上記の測定法を他の諸点について比較してみたい。気体の Scintillation の利用は energy の分解能については余りすぐれているとは云えないが^{*} 2π に近い立体角を使用出来ること、fort count にも適していること等の特徴があり将来性に富むが現在の所安定性にかける面があり実用の域に達していない様に思われる。又結晶による Scintillation の利用としては潮解性が少く、linearity のよい CsI 等が有望であるが有効立体角を充分にとりにくい点及び分解能は 4% 程度でそれ程よいと見做されない等の欠点を挙げる事が出来よう。気体の ionization としては ion chamber (slow chamber)、proportional counter, grid 付 electron pulse chamber 等が挙げられるが ion chamber は slow pulse の技術を使用するため microphonics に感じ易く一般の使用は困難である。又 proportional counter は円筒型のものはその設計の如何によつてはかなりよい分解能を持つが、この場合は有効立体角を損し、又安定性も余りよくない。又 4π -counter 等として立体角を増す場合は energy の分解能の劣化を来し、上記の条件を十分に満たさない。結局何れの点から見ても grid 付 electron pulse chamber が放射化学の見地からは最適と云えよう。これは一般には平行板型の chamber に ion による electron collector の変動を遮蔽するための固定電位を持つ grid が挿入されたもので、そのため collector pulse は electron の charge にのみ依存する。こゝで注意すべき点は grid の遮蔽効果をよくし、又 grid による electron trap が生れる様に設計すると共に out-put pulse (signal) と noise の比 ($\frac{S}{N}$) を大きくするため chamber の out-put の容量、抵抗、pre-amp の真空管、main-amp の pass band 等の適当な選択が必要である。又気体として Ar の様に electron の drift velocity の小さい場合は amp の rise time を充分大きくし main amp の out-put の pulse height が chamber の out-put の pulse の rise time の変動の影響を受けぬ様にすることが望ましい。又気体としては $Ar+CH_4$ 、 $Ar+N_2$ の使用が望ましく、 $Ar+CO_2$ の使用はそれ程良いとは云えない。

^{*} energy 分解能の優劣は一応 5 Mev の α 線に対し 2% の性能を境として考えている。

分解能をよくすると云う点から云つても試料の厚さをじゆうぶんうすくする ($\sim 50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) 必要がある。しかし $\sim 1\%$ にするためにはかなり厳密な pre-amp 真空管の選択が必要である。又 0.5% (世界最高) 程度にするには特殊な source-collimation が必要である。 α 線の energy の測定には、なるべく energy 値の近い既知の α -emitter を利用することが望ましい。場合によつては energy の算出に当つて厚さ、grid の inscreening effect rise time effect 等の補正が必要である。d.p.m を算出する場合も厚さ、backscatter ($0\sim 2\%$) 等の補正を要するか (r, α) coincidence 等を用いて計数効率を直接求めることも出来る。

最後に low background chamber 特に試料の面積を広く ($100\text{cm}^2\sim 150\text{cm}^2$) とれる様工夫されたもの、又迅速に試料の挿入が出来 short life の α -emitter の energy 分析の出来る様工夫された chamber 等について二三の具体例を述べたい。

アルファ線測定試料の作成について

(東大理) 横山祐之氏

α 線の測定はラドンの同位体を除いては、一般に固体の薄層試料について行われる。ここでは固体薄層試料の作成について発言する。

α 線の特長は飛程が短いことである。たとえば ^{210}Po の α 線 (5.298MeV) はアルミニウム中で $6\text{mg}/\text{cm}^2$ 、金、鉛中で $14\text{mg}/\text{cm}^2$ の飛程を持つ、 ^{14}C の β 線 ($E_{\text{max}}=0.155\text{MeV}$) の最大飛程の 29mg に較べて、さらに短い。従つて軟 β 線を扱う時と同等の、というよりさらに厳密な注意が必要である。 α 線の測定には一般に非常に薄く、しかも均一で、さらに平滑な層を作ることが要求される。これらの条件がどの程度要求されるかは測定の目的 (α 計数か α エネルギー測定か)、測定装置 (2π カウンターか低ジオメトリーカウンタか) によつて異なる。

1. 測定装置 2π カウンターは一般に低ジオメトリーカウンターより層の厚さに敏感である。層の横の拡がりについては、丁度逆である。

2. α 計数の場合 α 線の自己吸収の影響を考えて見ると、 2π カウンターの場合、試料の厚さと計数損失の関係は $F=D/2R$ で表わされる。(F : 厚さ 0 の場合に較べた計数損失、 D : 試料の厚さ、 R : 有効な飛程)

D/R	1	0.1	0.01
F	50%	5%	0.5%

そこで α 線の飛程は一般に $10\text{mg}/\text{cm}^2$ 前後とみられるから、 $250\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以上は厚い試料とみなされる。これ以下で計数するのが望ましいが、薄い試料を得るのが困難な時は、無限の厚さの試料で計数するのも簡便である。

低ジオメトリーの時は D/R が 1 以下なら計数損失は無視できる。

3. α エネルギー測定の場合 自己吸収の影響が非常に大きい。試料を薄い吸収体でおとした場合のエネルギー損失(あらゆる方向に出た α 線を平均したもの)を示すと、 2π カウンターの場合には、

D/R	1	0.1	0.01
損失	100%	20%	2%

α エネルギーは 1% 位の半巾値で測定できるから、精密を要する実験では $50\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下にする必要がある。計数、エネルギー測定いずれの場合でも平均の厚さのほかに、厚さの均一性も必要である。 2π カウンターの場合は、試料の横の拡がり、均一な分散は多少悪くても良いが、局所的な厚いスポットは絶対さける。また試料表面、試料板表面の平滑性も特にエネルギー測定の場合、重要である。

4. 試料板 試料をのせる板は、表面が平滑で、化学的耐性の大きなものが要求される。白金板は最もよく用いられる。通常厚さ 50μ が良く用いられるが、 125μ の方が丈夫で扱い易い。蒸発法にはガラス、ステンレス、スチール、白金などが用いられる。石英、パイレックスも後方散乱が少ない点で具合が良い。電着法には、白金、ステンレススチール、stellite, monelなどが用いられる。真空蒸着法には、石英、金属ハク、プラスチックハクなど何でも良い。試料板はよく洗い、赤熱するなどにより、有機物の、film を取っておく必要がある。

5. 試料作成法 表にあげたような4種類の方法が用いられる。

方法	定量性	厚さ	均一性	容易
溶液蒸発法	◎	○	×	○
沈 澱 法	○	×	×	◎
電 着 法	×	○	◎	×
真空蒸着法	×	◎	◎	×

α 計数には溶液蒸発法ついで沈澱法が適し、エネルギー測定には、電着法、真空蒸着法が適する。とくにエネルギー測定装置の分解能を調べるような目的には、真空蒸着法が最も良い。

6. 溶液蒸発法 溶液の蒸発残留物が少ないことが必要である。共存塩類との分離が、溶媒抽出法、イオン交換樹脂法で定量的に行われる時に利用される。1~500 μ l の試料をマイクロピペットまたは重量法で測り取り、試料板上で乾固し、焼いて有機物を除去する。水溶液は均一な薄層になりにくいので、有際溶媒の溶液の方が良い。均一分散性を良くするのに TEG(tetra-ethylene glycol) が良く用いられる。

7. 沈澱法 イオン交換樹脂、溶媒抽出法で定量的に分離困難な時に利用される。一般に 0.3 mg 位の担体を加えて沈澱をつくり、かゆ状にして試料板上にマイクロピペットで移し、マイクロかきませ棒で拵げ乾燥する。また結晶性の沈澱は静かに沈降させることも行われる。沈澱がはがれやすい時は汚染を防ぐためにコロジオンの薄層(25~50 μ g/cm²)でおおおうと良い。

8. 電着法 ウラン、ネプツニウム、プルトニウムは何れも +6 価の状態から電着できる。アクチニウム、アメリシウム、キュリウムは水溶液からは電着できないが、アセトン-無水アルコール溶液から電着できる。いずれも妨害イオンがあると析出して厚い層になつたり、電着の効率を悪くする。上記6元素のうち、ウランだけが良好な条件下で 99% 以上の定量的な電着ができる。

9. 真空蒸着法 高真空中で加熱揮発させて、冷却した試料板上に蒸着させる。低温(150°C、10⁻⁵ mmHg)で出来るものはウランとプルトニウムのアセチルアセトン塩だけである。高温ではすべての塩、酸化物も可能であるが、高真空と 2,000°C 以上の高温装置を必要とする。

低エネルギー及び低レベル β 線の測定

(学習院大理)木越邦彦

講演予稿

低エネルギー及び低レベル β 線の測定について、エネルギーの測定を除外して一般的な問題点について検討してみたいと思います。

低エネルギーの β 線の効率のよい測定方法としては、ガイガーカウンターによる測定が常識的に言つて最もすぐれていると考えられます。試料をガス状にすることができ、しかもその気体を用いてガイガーカウンターを働かせることが出来る場合には、非常にエネルギーの低い β 線でもAuger電子でも100%の効率で測定することが可能であります。しかし、このような方法は特定の試料—例えば水素をアルゴン—アルコール混合気体と混ぜた場合とか、鉛を四メチル鉛としてカウンターチューブに入れた場合とか—にかぎられ一般的方法とは言えません。

試料を気体として測定する場合にはプロポーションナルカウンターとして β 線を測定する方法はかなり広い適用はんいがあると言えます。この場合 β 線のエネルギーがどの程度少さくなると数えおとしが出るかが懸念されます。これはカウンターの大きさ、電圧、パルスをどこまでひろうかによりますが、一般的に言つて約1 KeV以上のものは、高エネルギーの β 線がカウンター中でつくるイオン対と殆んど同じ数のイオン対をつくり、数えおとしの懸念はあまりないと言ひ得ます。忽論数百eV以下のエネルギーのもの、或は飛程のほんの一部しかカウンター中を通過しなかつた β 線は数えおとし可能性があり、この点ではガイガーカウンターと異り、多少計数効率が低下するわけがあります。

試料が固体である場合には、低エネルギーの β 線の計数には、試料の自己吸収が難点となつて現われて来ます。自己吸収の少ない試料をつくり4 π カウンター等を使用して低エネルギーの β 線を有効に測定することについては田中氏からくわしい説明が次にあります。

こゝでは固体試料を用いなくて、なるべく多量の試料からの β 線を有効に測定する方法として盛に行はれつゝある、シンチレーションカウンターによる

測定法の問題点をあげておきたいと思います。

シンチレーションカウンターによる測定は第一に試料をいかにして液体シンチレーターにとかしこむかという点で大きな問題があると思います。TBP或はDBPを用いてトルエンターフエニルの液体シンチレーターに金属イオンをとかしこむ方法等現在行われている方法以外にも個々の場合について可能性のある方法が種々あるものと思います。

次にシンチレーションカウンティングで問題になる点は、どの程度低いエネルギーの β 線まで測定し得るかという点で、例えばトルエンターフエニルの場合平均3KeV/e⁻の β 線まで測定されます。従つて弱いエネルギーの β 線では低エネルギーの部分に対する計数効率の低下を考慮する必要があります。この低エネルギーの所の計数効率の低下分を補正するために、積分計数の値を $N=0$ まで外挿して求める方法が取られている例がありますが、この方法の当否についてはかなり問題があるのではないかと思います。

低レベルの β 線の測定については問題の焦点はいかにしてバックグラウンドを下げるかという点になると思います。

固体試料を測定するための端窓型のプロポーションナルカウンター(窓面積5cm²)を5cmの厚さの鉛シールドでかこんだものでバックグラウンドは6~5CPm程度のものは容易につくることができます。このようなものでどの位の低レベルの放射能を正確に測定し得るかを表示すると次の表のようになります。

試料のCPmと標準偏差の表

試料のCPm	1CPm	2CPm	5CPm	10CPm
BK _g 5CPmのCounterで				
1時間測定したときの標準偏差、 $\pm\sigma$ 5CPm	0.32	0.35	0.40	0.50
BK _g 0CPmのCounter				
1時間測定したときの標準偏差、 $\pm\sigma$ 0CPm	0.13	0.18	0.29	0.40
σ_5/σ_0	2.5	1.9	1.4	1.25

この表から見られるように、1~2 CPmの試料について測定をするときはバックグラウンドの大きさが大きくきて来るが、数CPm以上のときは殆んどバックグラウンドをこれ以上低下させる必要がないことが予解されると思います。

試料の表面積を大きくしなければならないとき、或は多量の気体試料について測定をするとき、或は1~2 CPm以下の放射能を正確に測定するときにはバックグラウンドを低下させることが絶対に必要となります。そのためには反同時計数を用いてシールドだけで取りのぞき得ない宇宙線の成分を除去して、もとのバックグラウンドの約 $\frac{1}{100}$ 程度にすることができます。この種のカウンターは市販されているものがかかりあり、その作動及び原理についてはこゝで特に説明をする必要はないと思います。しかしこれらの装置を実際に組立てる場合、或は使用している場合多くの問題があると思いますので、そのような点についてもこれからの討論の議題として取り上げていたゞきたいと思います。

4 π 計数器による測定 of 技術

(東大核研) 田中重男

4 π Gas-flow Counterは β -emitterの放射能の絶対測定に対しては最も有効な武器と考えられます。Auger電子のような極めて低エネルギーの電子を多く放出する核に対しては絶対測定を行うのに避け難い困難があります。4 π Geometryということは絶対値ということと、関聯が深いわけです。ただ計数効率を増す目的でこの計数器を使おうとすると、不利な点と面倒な点が目立ちます。 β 線も γ 線も出さずAuger電子しか出さないような核の放射能を効率よく測るのに……と考えても、やはり他の方法に比して特に有利な点は見当りません。低エネルギー β 線の相対測定に関して4 π 計数器の果たす役割は少ないと思います。低レベル β 線についてはこの測定器は問題外ではないでしょうか。しかし β 線の絶対測定には欠かすことのできないものです。

β 線の絶対測定の為に私達の行っている技術を簡単に紹介します。この測定器に持ち込むには試料は Carrier-Free もしくは Carrier-Free に極めて近いことが要求されます。また試料は非常に少ない Portion しか採れないでしょう。次に試料保持膜は $50 \mu\text{G}/\text{cm}^2$ 程度に薄くし丈夫でなければなりません。膜に電導性を持たせることが必要な場合が多いでしょう。試料および保持膜の工夫は自己吸収・吸収・散乱などの現象を少なくする方向に努力しているのです。附言したいことに保持膜の酸に対する強度があります。また Flow-Gas は非常に重要な Point になつています。ガス増中機構もしくは放電機構はとても複雑らしく、私にはよくわかりませんが、いろいろなことが問題になります。

Proportional Counter および GM Counter としての問題は道家氏木越氏らの講演にありました通りでございます。

ガンマ線の測定

(東工試) 岡田実氏

γ 線¹⁾²⁾の特性および γ 線測定法の原理については成書に詳しいのでここには測定上の実さいなことがらを取り上げたい。

γ 線の利用すべき性質を考えてみるとつぎのようになるう。

1. 物質中で γ 線の吸収係数は比較的小さいから、RIを多く取ることによつて計数率を大きくすることが可能でありしかも放射体の幾何学的形を一定にしなくても再現性よく計数される。
2. γ 線のエネルギーは特定であり β 線のエネルギーのように連続ではないから、エネルギースペクトルの解析につごうがよい。
3. 核種により γ 線 abundance (1壊変あたりに放射される γ 量子の数)が異なり、また、2本以上の γ 線が同時に放射される場合それらの abundance の比は一定である。RIの定量には abundance の大きい γ 線を利用し、RIの同定には abundance の比を利用することができる。ただし、利用できるのは原子の外へ出てくる γ 線であるから内部転換率が大きいほど利用しにくくなる。原子の外へ放射される γ 線の abundance³⁾と β 線 abundance³⁾との比を、便宜上中性子照射によつて生ずるRIについてみると表1のとおりである。表1には核分裂生成物を省略した。

表1 中性子照射によつて生ずるRIの γ/β

γ/β	RI
∞	38 [?] Cl(10s), 46 ^m Sc, 51Cr, 69 ^m Zn, 73 ^m Ge, 75 ^m Ge, 75 ^m Se,
	77 ^m Se, 79 ^m Se, 81 ^m Se, 80 ^m Br, 79, 80 ^m Br(5.0s), 79 ^m Kr,
	81 ^m Kr, 81Kr, 83 ^m Kr, 86 ^m Rb, 85 ^m Sr, 85Sr, 87 ^m Sr,
	89 ^m Sr, 89 ^m Y, 93 ^m Nb, (95 ^m Nb), 97 ^m Nb, 93 ^m Mo, (99 ^m Tc),
	(97Ru), (97 ^m Tc), 103Rh, 105 ^m Rh, (103Pd), 103 ^m Rh, 107 ^m Pd,
	109 ^m Pd, 109 ^m Ag, 111 ^m Pd, 107 ^m Ag, 109 ^m Ag, 111 ^m Cd,
	(117 ^m Cd), (114 ^m In), 113In, 117 ^m Sn, 119 ^m Sn, 122 ^m Sb,
	(121 ^m Te), 121Te, 123 ^m Te, 125 ^m Te, 131 ^m Xe, 125 ^m Xe,
	(125 ^m Xe), 125I, 127 ^m Xe, 127Xe, 129 ^m Xe, 131 ^m Xe,

(^{133m}Xe), ^{135m}Xe , ^{137m}Ba , ^{131}Ba , (^{133m}Ba), ^{133}Ba ,
 ^{135m}Ba , ^{137m}Ba , ^{137m}Ce , ^{137}Ce , ^{139m}Ce , ^{139}Ce , (^{145}Sm),
 ^{145}Pm , ^{153}Gd , ^{157}Dy , ^{159}Dy , ^{163}Er , ^{165}Er , ^{167m}Er ,
 ^{169}Yb , ^{171m}Yb , ^{175}Hf , ^{178m}Hf , ^{179m}Hf , ^{180m}Hf , ^{181}W ,
 ^{183m}W , ^{185m}W , (^{188m}Re), ^{185}Os , ^{190}Os , (^{191m}Os), ^{191}Pt ,
 ^{193m}Pt , ^{195m}Pt , (^{197m}Pt), (^{197m}Hg), (^{197}Hg), ^{199m}Hg ,
 ^{207m}Pb , ^{210}Po , ^{239}Pu .

1000~100 { ^{60m}Co , (^{94m}Nb), (^{104m}Rh).

100~10 { ^{65}Zn , ^{79}Kr , ^{134m}Cs .

10~1 { ^{19}C , ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{56}Mn , ^{60}Co , ^{71m}Zn , ^{71}Zn , ^{72}Ga ,
 ^{77}Ge , ^{82}Br , ^{85}Kr (4.36h), ^{94}Nb , ^{101}Mo , ^{101}Tc , (^{105}Ru),
 ^{110m}Ag , ^{107}Cd , ^{115}Cd ?, ^{115m}In , ^{117}In , ^{124}Sb , ^{127m}Te ,
 ^{131m}Te , ^{134}Cs ?, ^{140}La , ^{149}Nd ?, ^{151}Nd ?, ^{151}Pm , ^{152}Eu
 (12.7y), ^{154}Eu , ^{161}Gd ?, ^{160}Tb , (^{165m}Dy), ^{166}Ho (>30y)?,
 (^{171}Er), ^{176}Lu , ^{181}Hf , ^{182}Ta , ^{193}Os ?, ^{192}Ir , ^{199}Pt ?,
 (^{239}Np).

1.0 { ^{27}Mg , ^{49}Ca , ^{51}Ti , ^{59}Fe , ^{75}Ge , ^{83}Se (70s), ^{83}Se (25m),
 ^{87}Kr , ^{97}Nb , (^{103}Ru), ^{125}Sn (9.5m), ^{131}I , ^{149}Pm ?, ^{155}Eu ?,
 ^{233}Pa .

10~0.1 { ^{16}N , ^{20}F , ^{23}Ne , ^{28}Al , ^{37}S , ^{38}Cl , ^{41}Ar , ^{40}K , ^{42}K ,
 ^{52}V , ^{65}Ni , ^{64}Cu , ^{77m}Ge , ^{76}As , ^{80}Br , ^{88}Rb , (^{95}Zr),
 (^{99}Mo), ^{110}Ag , (^{117m}In), ^{123}Sn (39.5m), ^{122}Sb , ^{129}Te ,
 ^{131}Te , ^{128}I , ^{138}Xe , (^{135}Xe), ^{139}Ba , ^{141}Ce , (^{143}Ce),
 (^{147}Nd), ^{151}Sm , ^{153}Sm , ^{152}Eu (9.2h), ^{159}Gd , ^{161}Tb ,
 ^{165}Dy , ^{166}Ho (27.3h), ^{169}Er , ^{175}Yb , (^{177}Yb), ^{176m}Lu ,
 ^{177}Lu , (^{182m}Ta), ^{187}W , ^{186}Re , ^{188}Re , (^{192m}Ir), ^{194}Ir ,
 ^{197}Pt , ^{198}Au , ^{203}Hg , ^{205}Hg , (^{239}U).

0.1~0.01 { ^{12}B , ^{66}Cu , ^{86}Rb , (^{97}Zr), ^{105}Rh , ^{104}Rh , ^{108}Ag , ^{115m}Cd ,
 ^{125}Sm (9.7d), ^{124m}Sb , ^{129}I , ^{142}Pr , (^{155}Sm), ^{171}Tm .

	(^{170}Tm , (^{233}Th)).
0.01~0.001	{ ^8Li , ^{70}Gd , ^{85}Kr (10.3y), (^{109}Pd), $^{113\text{m}}\text{Cd}$, ^{127}Te .
0.001~0.0001	{ ^{31}Si , ^{114}In
10^{-5} ~ 10^{-6}	{ ^{90}Y
0	{ ^3H , ^{10}Be , ^{14}C , ^{32}P , ^{33}P , ^{35}S ?, ^{36}Cl , ^{39}Ar , ^{45}Ca , ^{47}Ca , ^{49}Sc , ^{55}Cr , ^{69}Zn , ^{81}Se , (^{89}Sr), (^{93}Zr), ^{99}Tc , ^{107}Pd ?, ^{111}Pd ?, ^{116}In , $^{121\text{m}}\text{Sn}$?, ^{121}Sn , ^{123}Sn (136d), ^{135}Cs , (^{137}Cs), ^{137}Xe ?, ^{143}Pr , ^{147}Pm ?, ^{185}W ?, (^{191}Os), ^{204}Tl , ^{206}Tl , ^{209}Pb , (^{210}Bi)(5.013d), ^{210}Bi (2.6×10^6 y)?.

R I 各を()内に入れたものは γ/β の算出にあたってその娘核種の放射線を見捨てたことを示す。

?は γ -abundance を十分正確に得られなかつたことを示す。

(表1 終り)

表1から γ/β が1より大きい R I は相当多いことがわかる。

つぎに、 γ 線測定重点部分を占める γ スペクトロメトリーについて考えたい。 γ スペクトロメトリーの一般的なことは成書²⁾に委せ、筆者の気付いた点のいくつかをのべる。

1. 適当な時間間隔を置いてくりかえし γ スペクトロメトリーを行なう方法は (a) γ エネルギーの測定 (b) エネルギー別 γ 線の半減期測定 (c) 各 γ 線の計数率の測定、以上の3者を同時に行なうことになるので、R I の同定および定量的方法として有力である。
2. 測定試料が多すぎるとスペクトロメーターの飽和状態に近づいてスペクトルがひずむ。少なすぎれば統計誤差が大きくなる。これらのことから、試料分取量には最適値があると考えられる。筆者の使った R C L 社製 256 チヤネル波高分析器では、 γ エネルギーの全域に対する計数率として約 4×10^3 cps が最適値であつた。この値は各種 R I について

それぞれの検量線の直線部分の上端から求めた。

3. 測定対象 γ 線のエネルギーに応じてシンチレーターを選ぶことによって測定を正確にすることができる。ただし上記の分取方法を組み合わせることが必要である。
4. コンプリメントの装置を用いて γ 線スペクトルの一部を差引く場合、差引く部分が大いほどスペクトロメーターの安定度の高いことが必要になる。スペクトロメーター内の比例増巾器の利得が差引操作中に数%変化することはよくあり、その影響については Lee⁴⁾の報告にもものべられているが、十分な補正方法はないから定電圧装置の性能向上が必要であると思われる。

引用文献

- 1) 田島英三, アイソトープの物理学 P. 75-87 (昭31). 地人書館.
- 2) 矢島聖使, 放射化学分析法, 第3章 p. 147-226 (昭34). 共立出版.
- 3) Strominger, D., Hollander, J.M., Seaborg, G.T. Rev. Mod. Phys. 30, 585-904 (1958).
- 4) Lee, W., Anal. Chem. 31, 800-806 (1958).

γ 線測定関係文献

主として Meinke, W.W., Anal. Chem. 30, 686-728 (1958) による

- (1) シンチレーター自体の分解能. Lazar, N.H., Davis, R.C., Bell, P.R. Nucleonics 14, No. 4, 52-3 (1956).
- (2) 有機燐光体の γ 検出効率. Roulston, K.I., Naqvi, S.I.H., Nucleonics 15, No. 10, 86 (1957).
- (3) シンチレーション計数動作の向上. Nucleonics 14, No. 4, 46-7 (1956).
- (4) NaI バックグラウンドの減少. Miller, C.E., Marinelli, L.D.,

- Rowland R.E., Rose, J.E., *Nucleonics* 14, No.4, 40-3(1956).
- (5) 大きいプラスチックシンチレーターの製造. Clark, G.W., Scherb, F., Smith, W.B., *Rev.Sci.Instr.*28, 433-7(1957); U.S.Atomic Energy Comm., Rept.NP-6171.
 - (6) 大きいプラスチックは効率のよい γ カウンターになる. Hine, G.J., Miller, A., *Nucleonics* 14, No.10, 78(1956).
 - (7) シンチレーターの optical mounting の特性. Koechlin, Y., J. *phys.radium* 16, 849-53(1955).
 - (8) 井戸底容器は γ 計数操作を改善する. Dratz, A.F., *Nucleonics* 15, No.8, 83-5(1957).
 - (9) 光電増倍管が温度から受ける影響, Kinard, F.E., *Nucleonics* 15, No.4, 92-7(1957).
 - (10) シンチレーションを行なう系の温度計数, Ball, W.P., Booth, R, Mc Gregor, M., U.S.Atomic Energy Comm, Rept.URCL-4666, 1-10 (March 1956).
 - (11) シンチレーション検出器の電圧が計数率に与える影響, Brinkerhoff, J.M., *Tracerlog* No.61, Tracerlab, Inc.Waltham, Mass., 8-11 (1954).
 - (12) 暗闇に順応させれば光電増倍管の熱雑音は減少する. Gordon, B.E., Hodgson, T.S., *Nucleonics* 14, No.10, 64-5(1956).
 - (13) シンチレーションカウンターの光電増倍管の疲労, Vojinovic, M.M., *Bull.Inst.Nuclear Sci. Boris Kidrich (Belgrade)*6, 93-8(1956).

以下 スペクトロメトリー関係

- (14) γ 線スペクトロメトリーによる放射化学分析, Peirson, D.H., *Atomics* 7, 316-22(1956).
- (15) RIの分析に応用される γ 線スペクトロメトリーの発達, Peirson, D. H., Iredale, P., UNESCO International Conference on Radioisotopes in Scientific Research, Paris, 1957, Paper 53(UK).
- (16) γ 線シンチレーションスペクトロメトリー, Cook, C.S., *Am.Scienc-*

- tist 45, 245-62(1957).
- (17) シンチレーションスペクトロメトリーのためのNaI 結晶の絶対目盛定
めおよび原子炉解析問題への応用, Crouthamel, C.E., Rathbun, E.R.
Jr., 15th International Congress of Pure and Applied
Chemistry, Lisbon, 1956, Paper V-6(USA).
 - (18) 医学のシンチレーションスペクトロメトリー, Francis, J.E., Bell,
P.R., Harris, G.C., Nucleonics 13, No.11, 82-8(1955).
 - (19) γ - β シンチレーションスペクトロメーターの使用によるR I混合物分
析法, Leboeuf, M.B., Connally, R.E., U.S.Atomic Energy Comm.,
Rept.HW-27090, 1-37(Feb.1953);Nuclear Sci.Abstr.10 3637
(1956).
 - (20) 化学分析における γ 線シンチレーションスペクトロメーター使用例,
May.S., Martinelli, P, 15th International Congress of pure
and Applied Chemistry, Lisbon, 1956, Paper V-19(France).
 - (21) 簡単な記録式 γ 線スペクトロメーター, Venable, E.R., Jr., Nucle-
onics 15, No. 7, 84-6(1957).
 - (22) γ シンチレーションスペクトロメトリーにおける写真法, Chinaglia,
B, Demichelis, F., Nuovo ciments (10), 3, 51-8(1956)(英語).
 - (23) 波高が対数的に示される γ 線シンチレーションスペクトロメーター,
Maeder, D., Rev.Sci.Instr.26, 805-8(1955).
 - (24) シンチレーションスペクトロメーターの分解力, Barchuk, I.F.,
Galkin, E.M., Pasechnik, M.V., Pucherov, N.N., Izvest.Akad.
Nauk S.S.S.R.Ser.Fiz.19, 352-4(1955);AERE-Lib/Trans-656;
Nuclear Sci.Abstr.10, 7876(1956).
 - (25) 低エネルギー γ シンチレーションスペクトロメトリー, Borkowski, C.
J., IRE Trans.Nuclear Sci.NS-3, No.4, 71-6(1956).
 - (26) 低エネルギー制動輻射のシンチレーションスペクトロメトリー,
Ehrlich, M., J.Research Natl.Bur.Standards 54,107-18(1955).
 - (27) シンチレーションスペクトロメーターで得られた単エネルギー吸収ピーク,
Haskins, J.R., Rev.Sci.Instr.28, 425-6(1957).

- (28) シンチレーションスペクトロメーター統計学, Breitenberger, E., Progress in Nuclear Physics, Vol. IV, pp.56-94, Pergamon Press, London, 1955.
- (29) シンチレーションカウンターの物理学, Garlick, G.F.J., J.Sci. Instr. 32, 369-71(1955).
- (30) γ 線に対する“全吸収”スペクトロメーターの応答, Davis, R.C., Bell, P.R., Kelley, G.G., Lazar, N.H., IRE Trans.Nuclear Sci. NS-3, No. 4, 82-6(1956).
- (31) コンプトン効果をへらしたシンチレーションスペクトロメーター, Roulston, K.I., Naqvi, S.I.H., Rev.Sci.Instr. 27, 830-2(1956).
- (32) γ 線走査によるバンアップ(原子炉燃料の)測定, Forbes, S.G., Nyer, W.E., U.S.Atomic Energy Comm., Rept.IDO-16105, 1-15 (Oct.1953); Nuclear Sci.Abstr. 10, 2890(1956).
- (33) 物理化学の研究におけるシンチレーションスペクトロメーターの応用, Alekseev, N.G., Grigal, V.P., et al., Zhur.Fiz.Khim. 31, 915-19(1957).
- (34) γ 線測定による混合物分析, ^{227}Ac , ^{227}Th , ^{223}Ra への応用, Anthony, D.S., Campbell, J.E., Hagee, G.R., Robajdek, E.S., Radiation Research 4, 286-93(1956).
- (35) シンチレーションスペクトルにおけるコンプトンエッジと後方散乱ピークの場合, Crasemann, B., Easterday, H., Nucleonics 14, No.63 (1956).
- (36) 光を導く長い管を使つたシンチレーションスペクトロメトリー. Tove, P.A., Rev.Sci.Instr. 27, 143-6(1956).
- (37) タリウムで付活した CsI(シンチレーションスペクトロメトリー用), Beusch, W., Knoepfel, H., Loepfe, E., Maeder, D., Stoll, P., Nuovo cimento(10), 5, 1355-7(1957)(英語).
- (38) 円筒状 X線スペクトロメーター, Brentano, J.C.N., Physica 22, 705-6(1956).
- (39) 現今の波高分析器, Higinbotham, W.A., Nucleonics 14, No. 4,

61-4(1956).

- (40) 重い元素の放射化学に大きな効果をあげる波高分析, Glover, K.M., Brit. Atomic Energy Research Establishment, Rept. AERE-C/R-1358, 1-14(Jan. 1955); Nuclear Sci. Abstr. 9, 7448(1955).
- (41) “マルチチャネル波高分析器”. Koch, H.W., Johnston, S.W., Nuclear Science Series Rept. 20 National Research Council, National Academy of Science, Washington, D.C. (Sept. 1956); U.S. Atomic Energy Comm. Rept. NP-6313; Nuclear Sci. Abstr. 11, 8075 (1957).
- (42) 放射化分析の道具としての γ 線スペクトル差引き, Putman, J.L., Taylor, W.H., Intern. J. Applied Radiation and Isotopes 1, 315-6(1957).
- (43) 放射化分析のため γ シンチレーション検出器に付属させる衝撃選別器, Chauvin, R., Leveque, P., Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes 1, 115-22(1956).
- (44) RI混合物の γ 線存在度の直接測定, Complement Subtraction 法. Lee, W., Anal. Chem. 31, 800-6(1959).
- (45) ベータ線とガンマ線のスペクトロメトリ. Siegbahn, K., “Beta and Gamma-Ray” Spectroscopy, North Holland Publishing Co., Amsterdam, 1955(英語).