

JAERI-M
7402

放射性同位体製造資料-1214

^{64}Cu の 絶 对 测 定

1977年 11 月

小林 勝利・石川 勇

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

^{64}Cu の絶対測定

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

小林 勝利・石川 勇

(1977年10月29日受理)

^{64}Cu は半減期 12.8 時間で、43% の電子捕獲、38% の陰電子崩壊および 18.4% の陽電子崩壊を行ない、その他に 0.55% の電子捕獲壊変につづいて γ 線を放出する。本報では、 ^{64}Cu について行なった $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法による絶対測定の検討結果について報告する。

β 線の放出に加えて、 $K-X$ 線またはオージェ電子が放出され 4π 比例計数管に検出される。ここでは、 β 線の自己吸収に対する補正は、陽電子の検出効率（同時計数値と消滅放射線の γ 計数値との比）を系統的に変えて外挿することにより行ない、実験は、オージェ電子を完全に吸収するアルミニウム吸収板ではさんだ線源に対する全 β 放出数を測定することによって行なっている。

均一な線源を得るため、 α 型フタロシアニン銅についてのチラルド・チャルマー法を適用して得た高比放射能 ^{64}Cu 溶液を用い、望ましい線源調製技術を検討した。

本法で報告する絶対測定法の精度は、 β 線分岐比などの核データの確度に依存するが、 ^{60}Co または ^{22}Na を用いた効率トレーサ法による ^{64}Cu の絶対測定法との比較を行なった結果は、1% 以内で一致した。

得られた結果を用いて、ラジオアイソトープ製品検査用井戸型電離箱の較正を行ない、較正定数を決定した。

Absolute measurement of ^{64}Cu

Katsutoshi Kobayashi and Isamu Ishikawa

Division of Radioisotope Production
Radioisotope Center, JAERI

(Received October 29, 1977)

This paper describes a $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence technique for measuring the disintegration rate of ^{64}Cu , which decays through negatron emission (38%), positron emission (18.4%) or electron capture (43%), in comparable proportion, and a small percentage (0.55%) of electron capture followed by γ ray emission. In addition to the β ray emission, K-X rays or some auger electrons emerge, which are detected by the 4π proportional counter.

By changing systematically the β counting efficiency for positrons (the ratio of the coincidence counts to the annihilation γ ray counts), the error due to the self absorption of the β rays could be estimated by extrapolation. And, experiments were made to measure the total β ray emission rate of a source sandwiched by aluminum foils for absorbing the whole auger electrons.

In order to obtain uniformity of the source, a ^{64}Cu solution of higher specific activity produced by Sxillard-Chalmer's method of copper phthalocyanine was used; a desirable source preparation technique is proposed.

Accuracy of the counting method was estimated to be better than 1% in comparison with the efficiency tracer method for ^{64}Cu using ^{60}Co and ^{22}Na as tracer nuclides, though there still remains some ambiguity in the decay parameters such as β emission rate.

The well type ionization chamber for inspection of radioisotope products was calibrated using thus standardized sample, and the calibration factor was determined.

Keywords: Copper 64, Absolute measurement, Efficiency tracer method, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method, Source preparation, Positron emission, Auger electron, Copper phthalocyanine.

目 次

1. 序 論	1
2. 実験方法	2
2.1 試料調製	2
2.2 実験装置	3
2.3 測定方法	4
2.3.1 4 π β 検出器に対する計数の補正	4
(1) オージェ電子の吸収	4
(2) 特性X線および γ 線の影響	5
2.3.2 4 π β - γ 同時吸収計数法	6
2.3.3 効率トレーサ法	7
2.3.4 電離箱校正定数の決定と各測定法の比較	8
3. 実験結果および検討	9
謝 辞	10
参考文献	11

1. 序 論

^{64}Cu は, ^{22}Na , $^{44}\text{Ti} - ^{44}\text{Sc}$, ^{58}Co , $^{68}\text{Ge} - ^{68}\text{Ga}$ などの核種とともに, ポジトロニウムの化学の研究や核医学の分野で広く利用されている。

^{64}Cu は, Fig.1 の崩壊図式に示すように, 43%のK電子捕獲, 38%の陰電子崩壊および18.4%の陽電子崩壊を行ない, その他にわずかに0.55%の電子捕獲壊変につづいて1347 keVの γ 線を放出する。

^{64}Cu の放射能測定は, 端窓型GM計数管やガスフロー計数管およびシンチレーション計数管などを用いる方法が一般的であるが, 絶対測定に関する報告例は非常に少ない。Andrzej Polaczek らは,²⁾ シングルチャンネル波高分析器の γ チャンネルのウィンドウを511 keVの光電ピークに設定した2台の γ スペクトロメーターを使い, いわゆる $\gamma - \gamma$ 同時計数法により, 1%以下の相対誤差で測定したと報告しているが, 彼らの得た崩壊率は, 生成量の予想値と約3%の差がある。

河田は,³⁾ 511 keVの光電ピークに γ チャンネルのウィンドウを設定した $4\pi\beta - \gamma$ 同時計数装置を用い, オージェ電子を完全に吸収する厚さのアルミニウムフィルムでサンドウィッチした線源を測定した。そして陽電子の検出効率 ϵ_{β^+} (同時計数値と γ 計数値の比より求めた値)について, β 計数管に対するX線のわずかな影響を補正後に ϵ_{β^+} を100%に外挿することによって全 β 放出率を求める方法を報告している。さらに, 実験値によく適合する電子捕獲分岐比(P ϵ c)として, Cook⁴⁾らの報告でもある55%の値を提唱し, 従来から適用されている43%の値は小さすぎると論評している。

^{64}Cu の絶対測定法としては, 次のようないくつかの方法が考えられる。

1) $4\pi e_{\beta} - \gamma$ 同時計数法: この方法では, オージェ電子の自己吸収を小さくするような試料調製に困難がある。また, 分岐比がわずかに0.55%と小さいため, 大型の γ 線検出器を用いて効率よく測定しない限り精度のよい結果は得られない。ただし, 分岐比の誤差を考慮しなくともよい利点がある。

ロ) $\gamma - \gamma$ 同時計数法: この方法では, 試料調製と γ 線検出器の幾何学的効率の解析などに複雑な手順を要する。

ハ) 液体シンチレーション法: この方法も原理的には考えられるが, クエンチング現象があったり, またシンチレーター溶液に均一に分散し得る適当な銅の化合物が見当たらないなどの問題があるため, 直ちに適用はできない。

ニ) $4\pi\beta$ 計数法: この方法は, β 線の自己吸収量を定量的に評価できないという致命的な欠点がある。

したがって, 一般に $4\pi\beta - \gamma$ 同時計数法より得られる自己吸収に関するデータをもとに, 担体濃度, 線源処理条件, β 線最大エネルギーなどを考慮しつつ, 経験的に類推して試料の自己吸収量を求めなければならない。Fig.2は, J.S.Merritt ら⁵⁾が1959年に報告し, その後多くの文献に引用されている代表的な例である。ここで曲線Aは, 単純な蒸発乾固による線

源、曲線Bは、コロイダルシリカで処理した線源で、それぞれ $2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の平均面密度を有する線源を示してある。 ^{64}Cu の場合、654 keV の最大エネルギーをもつ陽電子の自己吸収量は、線源の処理条件にかかわらず、0.1 ~ 0.2% の範囲にあり、曲線A、Bからも大きくはずれている。彼らは、この原因をクーロン斥力の影響によるものと推定しているが、吸収板で線源をサンドウィッチしない場合、 $4\pi\beta$ 検出器内のいたるところで陽電子が消滅し、見掛上広がった線源となって解析が複雑である。また、オージェ電子の試料中での自己吸収、あるいは特性X線の計数などの解析が問題となる。

このようなことから、本報告では、オージェ電子を完全にカットする厚さ $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以上のいろいろな厚さのアルミニウム吸収板で線源をサンドウィッチし、陽電子と陰電子を含めた総 β 計数に着目した $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法を採用した。最初に、試料の照射、分離、精製の手順および自己吸収量の小さい線源調製法について述べ(2.1項)、つぎに使用した実験装置の概要と性能を示す(2.2項)。さらに、サンドウィッチ法による $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法と、崩壊率を求める際に考慮すべき種々の補正項についての検討を詳述する(2.3.1項)。また、この測定法の精度を確認するため、 ^{60}Co および ^{22}Na の標準試料を用いた効率トレーサ法による ^{64}Cu の絶対測定を行ない、相互の値を比較した結果について報告する(2.3.3, 3.1項)。最後に、二次測定に使用している定常検定用井戸型電離箱(Tracerlab社製ソースキャリブレーション)の較正を行なった結果について述べる。

2. 実験方法

2.1 試料調製

^{64}Cu は、 ^{64}Zn (n, p) または ^{63}Cu (n, γ) などの反応によって生成する。前者の場合には、ターゲット中の ^{67}Zn (天然存在比; 4.11%) の (n, p) 反応により半減期 6.1 時間の ^{67}Cu が放射性不純物として生成する。後者の場合には、 ^{65}Cu (天然存在比; 30.9%) の (n, γ)、(n, p) 反応から ^{66}Cu ($T_{1/2}$; 5.1 m)、 ^{65}Ni ($T_{1/2}$; 2.56 h) が生成するが、照射後に十分な冷却時間をおくことにより、放射性不純物の少ない試料が得られる。本報では後者を採用し、ターゲットとして、(1) 金属銅(横沢化学製; 特級)を用いる方法と、(2) α 型フタロシアニン銅(市販工業用試薬を精製)を用いる方法⁶⁾ について検討した。JRR-4 の熱中性子束 $3 \times 10^{13} \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 1 時間照射の場合、直後の比放射能は、(1) で約 $1 \text{ mCi}/\text{mg}$ に対し、(2) ではその 300 倍に相当する値になり、なおかつ 99% 以上の放射化学的純度のものが得られる。

これらの照射済ターゲットは、それぞれ Fig. 3 に示すような分離、精製過程を経て、塩化第二銅溶液 (CuCl_2 0.1 N HCl soln) に調製した。フタロシアニン錯体の化学処理過程において、多量の濃硫酸を使用するため銅イオンが水酸化物として沈殿する際硫酸根が混入し、試料溶液の蒸発乾固時に残渣が生じる。これらを防止するため、溶液に塩化バリウムを滴下し

源、曲線Bは、コロイダルシリカで処理した線源で、それぞれ $2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の平均面密度を有する線源を示してある。 ^{64}Cu の場合、654 keV の最大エネルギーをもつ陽電子の自己吸収量は、線源の処理条件にかかわらず、0.1～0.2%の範囲にあり、曲線A、Bからも大きくはずれている。彼らは、この原因をクーロン斥力の影響によるものと推定しているが、吸収板で線源をサンドウィッチしない場合、 $4\pi\beta$ 検出器内のいたるところで陽電子が消滅し、見掛上広がった線源となって解析が複雑である。また、オージェ電子の試料中での自己吸収、あるいは特性X線の計数などの解析が問題となる。

このようなことから、本報告では、オージェ電子を完全にカットする厚さ $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以上のいろいろな厚さのアルミニウム吸収板で線源をサンドウィッチし、陽電子と陰電子を含めた総 β 計数に着目した $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法を採用した。最初に、試料の照射、分離、精製の手順および自己吸収量の小さい線源調製法について述べ(2.1項)、つぎに使用した実験装置の概要と性能を示す(2.2項)。さらに、サンドウィッチ法による $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法と、崩壊率を求める際に考慮すべき種々の補正項についての検討を詳述する(2.3.1項)。また、この測定法の精度を確認するため、 ^{60}Co および ^{22}Na の標準試料を用いた効率トレーサ法による ^{64}Cu の絶対測定を行ない、相互の値を比較した結果について報告する(2.3.3, 3.1項)。最後に、二次測定に使用している定常検定用井戸型電離箱(Tracerlab社製ソースキャリブレーション)の較正を行なった結果について述べる。

2. 実験方法

2.1 試料調製

^{64}Cu は、 $^{64}\text{Zn} (n, p)$ または $^{63}\text{Cu} (n, \gamma)$ などの反応によって生成する。前者の場合には、ターゲット中の ^{67}Zn (天然存在比; 4.11%) の (n, p) 反応により半減期 61 時間の ^{67}Cu が放射性不純物として生成する。後者の場合には、 ^{65}Cu (天然存在比; 30.9%) の (n, γ) 、 (n, p) 反応から ^{66}Cu ($T_{1/2}$; 5.1 m)、 ^{65}Ni ($T_{1/2}$; 2.56 h) が生成するが、照射後に十分な冷却時間をおくことにより、放射性不純物の少ない試料が得られる。本報では後者を採用し、ターゲットとして、(1)金属銅(横沢化学製; 特級)を用いる方法と、(2) α 型フタロシアニン銅(市販工業用試薬を精製)を用いる方法⁶⁾について検討した。JRR-4の熱中性子束 $3 \times 10^{13} \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ で1時間照射の場合、直後の比放射能は、(1)で約 $1 \text{ mCi}/\text{mg}$ に対し、(2)ではその300倍に相当する値になり、なおかつ99%以上の放射化学的純度のものが得られる。

これらの照射済ターゲットは、それぞれFig.3に示すような分離、精製過程を経て、塩化第二銅溶液 (CuCl_2 0.1 N HCl soln) に調製した。フタロシアニン錯体の化学処理過程において、多量の濃硫酸を使用するため銅イオンが水酸化物として沈殿する際硫酸根が混入し、試料溶液の蒸発乾固時に残渣が生じる。これらを防止するため、溶液に塩化バリウムを滴下し

白沈が完全に無くなるまで水洗を繰り返すなどの注意をはらった。

化学収率、再現性、操作の容易さという面では、金属銅をターゲットとする方法が優れているが、この場合の最終溶液中の銅の担体濃度は約 5 mg/ml であるのに対し、チラルドチャルマ一法による試料の場合 $0.02 \sim 0.05 \text{ mg/ml}$ であって、担体濃度に甚だしい差がある。 ^{64}Cu の β^+ 線に対する線源の自己吸収量と担体濃度の関係は、 1 mg/ml 、 0.01 mg/ml においてそれぞれ約 10% および 2% となり、自己吸収の少ない点からは明らかに後者がまさっている。

線源支持膜としては、Fig.4に示すように、アルミニウムリングに約 $15 \mu\text{g/cm}^2$ のビニール膜⁷⁾ (脚注*1参照)を張り、さらに導電性を与えるために平均面密度が約 $10 \mu\text{g/cm}^2$ になるような金またはアルミニウムを真空蒸着したものを用いた。

線源作成時の試料溶液の採取量は、直示天秤(島津製作所製;ML型,感量 $5 \mu\text{g}$)による重量法によって行なった。秤量中における滴下液の蒸発量は、天秤指示値の時間推移を滴下時に外挿して求めた。秤量値に対する浮力の補正は、ステンレス分銅と溶液の密度から換算し、見掛けの値に補正係数 1.00105 を乗じて補正した。

この滴下液を赤外ランプにより距離 40 cm で 30 分間ゆるやかに蒸発乾固した。この場合、結晶の大きさが不ぞろいとなり、また局在化して生成する傾向があるため不均一な分布の線源となる。(Photo 1参照)このような線源は、自己吸収効果が甚だしいので、固型分が薄く、結晶が均一に広がる方法として以下に示すようなイ) コロイダルシリカ処理法⁸⁾、ロ) アンモニア処理法⁹⁾、および、ハ) 最近吉田らが開発したアルミニウム蒸着膜-アンモニア処理法¹⁰⁾などを試みた。

イ) コロイド状シリカ(Ludox-SM) 1万倍希釈液 $10 \sim 15 \text{ mg}$ を蒸発乾固した金蒸着膜線源上に滴下し、デシケーター内で乾燥処理する方法

ロ), ハ), 高純度の蒸留水 $10 \sim 15 \text{ mg}$ を蒸発乾固した試料上に滴下してふたたび溶解し、デシケーター内のアンモニア雰囲気中で乾燥すると、アンモニア錯塩を形成し、大きさのそろった粒子がほぼ全面に広がる。この方法は、ロ) の場合金蒸着膜線源に適用し、ハ) の場合はアルミニウム蒸着膜線源に適用できる。後者の場合は、アルミニウム化合物の微粒子の働きにより不均一な結晶成長が抑えられる。しかしながら、アルミニウム蒸着膜はこわれ易いこと、しわわが生じ易いなどの欠点があり取扱いに注意を要する。

作成した線源試料の結晶の均一性の評価は、光学顕微鏡写真を用いて行ない、後に述べる測定結果とから相互比較した。(Photo.1~3参照)

2.2 実験装置

実験に用いた計数装置の構成をFig.5に示す。 $4\pi\beta$ 検出器は、内面に金メッキ仕上げを施した真ちゅう製の箱形($50 \text{ mm} \times 80 \text{ mm} \times 40 \text{ mmh}$)であり、その中心に直径 0.05 mm ϕ のタングステン線を直線状に張った陽極をもつ上下2つの $2\pi\beta$ 検出器からなっている。検出器の上下部は、 γ 線の透過をよくするため 0.2 mm 厚の薄いアルミニウム板でできている。

*1; ビニールクロライドとアセテートの共重合体である商品名カネビニールR-1108(鐘ヶ淵化学K-K)をシクロヘキサノンで溶解し、水面上に浮して、すくい上げた薄い膜。

計数ガス（本実験ではメタンガス；純度98%）は；シリカゲル乾燥剤を通して4πβ検出器内に流入する。上下2つの検出器からの信号（Topβ, Bottomβ）は、前置増巾器を経て過負荷特性のよい比例増巾器、波高選別器、遅延回路および計数器に導かれる。

γ線検出器として、1¼" φ×2" の大きさのNaI(Tl)シンチレーション検出器2ヶが4πβ検出器の上下に取付けられている。それぞれの出力信号は、前置増巾器を通して混合器で加え合わされたのち、比例増巾器、波高選別器を経て計数器とβ-γ同時計数回路に導かれる。β, γの検出器およびそれぞれの前置増巾器は、厚さ10cmの鉄製遮蔽箱内に設置されている。βチャンネルおよびγチャンネルの分解時間は3μsec, 同時計数回路の分解時間は1μsecに設定してある。

4πβ-γ同時計数装置の性能は、国際比較に用いられたBIPM(*2参照)の⁶⁰Co標準線源³⁾を用いて比較した結果、Table 1に示すように0.2%以内で一致している。Table 1の*印は、⁶⁰Coの光電ピークとコンプトン散乱ピークを含めた総γ計数から補正して求めた結果である。また、この線源を用いて測定した4πβ検出器のプラトー特性曲線をFig. 6に示す。装置の正常な動作を維持し、測定の都度確認するため、別に作製したチェックソース(⁶⁰Co)を用いて測定を行なっている。

2.3 測定方法

2.3.1 4πβ検出器に対する計数の補正

⁶⁴Cuの崩壊図式から明らかのように、4πβ検出器に応答する総β計数Nβは、次式のような計数の和で表わすことができる。

$$\begin{aligned}
 N\beta = N_0 [& P_{\beta}^{-} \cdot \epsilon_{\beta}^{-} + P_{\beta_1}^{+} \cdot \epsilon_{\beta_1}^{+} + P_{EC_1} (1 - \omega_k) \epsilon_{eA} + P_{EC_1} \omega_k \cdot \epsilon_{kX} + P_{EC_2} (1 - \omega_k) \epsilon_{eA} \\
 & + P_{EC_2} \omega_k \cdot \epsilon_{kX} + P_{\beta_1}^{+} (1 - \epsilon_{\beta_1}^{+}) (\epsilon_{\beta\gamma_1} + \epsilon_{\beta\gamma_1} (1 - \epsilon_{\beta\gamma_1})) \\
 & + P_{EC_2} (1 - \omega_k \cdot \epsilon_{kX}) \epsilon_{\beta\gamma_2}] \quad (1)
 \end{aligned}$$

ここで、それぞれの記号は、P = 分岐比, ε = 計数効率, ω = 蛍光収率, e_A = オージェ電子, X = X線を意味する。また、添字1はEC崩壊で直接基底状態に分岐する項, 添字2は0.55%のEC崩壊につづいてγ遷移に導かれる項を示す。ε_{βγ}は、4πβ検出器のγ線に対する検出効率を意味する。以下に各項の計数の4πβ検出器に対する寄与について述べる。

(1) オージェ電子の吸収

⁶⁴CuのK捕獲で発生した⁶⁴Niのオージェ電子は、6.54 keVのエネルギーをもつ鋭い線スペクトルとしてβ線の連続スペクトルと重なって観測され、β計数と区別できない。この程度に低いエネルギーの電子線においては、試料中での自己吸収が相当の割合となるため、自己吸収量の評価ならびに再現性のある試料調製が困難である。この困難を除くために、原子番号の低いアルミニウム吸収板で線源をサンドウィッチし、オージェ電子をカットした。これらオージェ電子の吸収曲線をFig. 7に示す。図からオージェ電子を完全にカットするに要するアルミニウム吸収板の厚さは、約100 μg/cm²以上である。また、種々の電子の飛程の実験式^{11)~18)}

*2; BIPM; Bureau International des Poids et Mesures.

を用いて求めた計算値を Table 2 に示す。これらの結果から、以下の測定においては常に約 $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のアルミニウム吸収板を用いている。したがって、(1)式のオージェ電子による計数項 $P_{EC1}(1-\omega_k)\epsilon_{eA}$ および $P_{EC2}(1-\omega)\epsilon_{eA}$ は消去することができる。

(2) 特性X線および γ 線の影響

^{64}Cu のK電子捕獲では、オージェ電子が放出されるか、または特性X線が放出される。 ^{55}Fe のような純電子捕獲壊変核種の場合、X線の 4π β 検出器に対する検出効率 ϵ_{kX} は、オージェ電子を完全にカットする厚さの膜で線源をサンドウィッチし検出効率100%の加圧型 4π X計数管の測定値との比から求めることができる。 ^{64}Cu の場合、純電子捕獲壊変核種ではないのでX線に対する検出効率の低いメタンガスを計数ガスとして用いてX線の寄与を小さくし、次のようにして ϵ_{kX} を求めた。

単一エネルギーのX線が吸収層を通過する間の減衰は、指数関数的に表わされることから、 4π β 検出器のK-X線検出効率を以下のように計算した。長さ l cm の検出器に J_0 ケのX線が入射した時、計数ガスの線吸収係数を $\mu \text{ cm}^{-1}$ とすると、 $J_0 \cdot e^{-\mu l}$ ケが計数ガスと相互作用しないで検出器の外に出ていく。したがって、検出器内でエネルギーを失なって計数されるX線の数は

$$J_0 - J_0 \cdot e^{-\mu l} = J_0 (1 - e^{-\mu l}) \quad (2)$$

である。すなわち、X線1ケ当たり検出する確率は

$$\frac{J_0 (1 - e^{-\mu l})}{J_0} = 1 - e^{-\mu l} \quad (3)$$

であるから、全立体角方向にわたって(3)式を数値積分して全立体角で除せば検出効率 ϵ_{kX} が求められる。ここでX線のエネルギー E と波長 λ の関係式

$$\lambda = \frac{12.39}{E} (\text{\AA}) \quad (4)$$

から、 λ に対するそれぞれの元素の質量吸収計数 $\mu_m \text{ cm}^2/\text{g}^{19)}$ を求め、メタンガスの密度 ρ ($6.5 \times 10^{-4} \text{ g}/\text{cm}^3$) より線吸収係数 μ を計算した。この条件によって、 ^{54}Mn (5.41 keV), ^{55}Fe (5.90 keV), ^{57}Co (6.40 keV), ^{59}Ni (6.93 keV) および ^{64}Cu (7.56 keV) の特性X線に対する検出効率を計算した結果と ^{54}Mn , ^{55}Fe の純電子捕獲壊変核種については実測値²⁰⁾を、それぞれ Fig. 8・印および○印に示す。

これらの結果から、 ^{64}Cu の特性X線に対する ϵ_{kX} は約1%であると結論した。 $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のアルミニウム吸収板の質量吸収係数を約 $130 \text{ cm}^2/\text{g}$ とすると、サンドウィッチした線源に対する吸収率はおよそ1.3%である。したがって、(1)式の特性X線が計数される割合は $\omega_k = 0.393$ とおくと次のようになる。

$$P_{EC1} \omega_k \epsilon_{kX} = 0.43 \times 0.393 \times (0.01 \times 0.987) \doteq 0.0017$$

$$P_{EC2} \omega_k \epsilon_{kX} = 0.55 \times 10^{-2} \times 0.393 \times (0.01 \times 0.987) \doteq 0.00002$$

γ 遷移に先行する β 壊変が検出されなかった場合のみ、 4π β 検出器に対する γ 線検出の影響が現われるので、 γ 線の寄与は実質上 $(1 - \epsilon_\beta)$ 倍に低減される。511 keV の消滅放射線が 4π β 検出器に計数される割合は、 $\epsilon_{\beta_1^+} > 95\%$, $\epsilon_{\beta\gamma_1} \doteq 0.2\%$ ²¹⁾ とすると、(1)式から

$$P_{\beta_1}^+ (1 - \varepsilon_{\beta_1}^+) \cdot (\varepsilon_{\beta\gamma_1} + \varepsilon_{\beta\gamma_1} (1 - \varepsilon_{\beta\gamma_1})) = 0.184(1-0.95) \{0.002+0.002(1-0.002)\} = 0.000037$$

となりほとんど無視することができる。同様に 1347 keV の γ 線の場合は, $\varepsilon_{\beta\gamma_2} \approx 0.3\%$ ²¹⁾ とすると

$$P_{\text{EC2}} (1 - \omega_k \cdot \varepsilon_{\text{kX}}) \varepsilon_{\beta\gamma_2} = 0.55 \times 10^{-2} \cdot (1 - 0.393 \times 0.01 \times 0.987) \times 0.3 \times 10^{-2} = 0.000016$$

となり無視できる。

以上のことから, $4\pi\beta$ 検出器に実質上計数される総 β 計数 N_β は次式のようになる。

$$N_\beta = N_0 [P_{\beta^-} \cdot \varepsilon_{\beta^-} + P_{\beta_1^+} \cdot \varepsilon_{\beta_1^+} + P_{\text{EC1}} \cdot \omega_k \cdot \varepsilon_{\text{kX}}] \quad (5)$$

2.3.2 $4\pi\beta - \gamma$ 同時吸収計数法

陽電子と消滅放射線による $4\pi\beta - \gamma$ 同時計数は, 種々の厚さのアルミニウム吸収板で線源をサンドウィッチし, γ チャンネルのウィンドウを 511keV の波高値に設定した γ 計数値 N_γ と β 計数値 N_β , および偶発同時計数値を差引いた同時計数値 N_c を測定する。ここでは点線源とみなすことはできないが, 線源の幾何学的条件が測定中に一定であれば N_γ , N_β , N_c の間に次のような同時計数式が成立する。²²⁾

$$\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c} = N_0 \left\{ 1 + \left(\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \right) \varepsilon_{\beta\gamma_1} \right\} \quad (6)$$

ここで ε_β は N_c/N_γ で与えられ, $\varepsilon_{\beta\gamma_1}$ は $4\pi\beta$ 検出器に応答する消滅放射線の感度を意味する。線源調製法および測定条件を同一に保った状態で, 約 $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のアルミニウム吸収板を用いて行なった測定では, 見掛けの $N_\beta \cdot N_\gamma / N_c$ と線源の重量との間に直線関係が成り立つことを Fig.9 に示す。また, 2.1 節で述べた種々の線源調製法に対する $N_\beta \cdot N_\gamma / N_c$ (cpm/mg) の値を Table 3 に示す。この結果と顕微鏡写真 (Photo 1, 2, 3) とを対応させると, 本実験に用いる線源は, 高比放射能の ^{64}Cu 希釈液をアルミニウム蒸着膜に滴下し, アンモニア処理する方法が最適である。Fig.10 に, この方法に従って調製した ^{64}Cu 線源に対する $4\pi\beta$ 検出器のプラトー特性曲線を示す。プラトーの長さは約 600V, 傾斜 (100V あたりの計数増加率) は 0.4% であり, 印加電圧は 3400V に設定した。

複雑な壊変をする核種の測定に際しては, 種々の補正因子を含む場合, いろいろな表示法で壊変率 N_0 を求める関係式²³⁾ がある。(6)式から, N_0 の統計相対標準偏差 σ は,

$$\sigma = \left[\frac{1}{N_c} (2\varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma - \varepsilon_\beta - \varepsilon_\gamma + 1) \right]^{\frac{1}{2}} = \sqrt{\frac{1}{N_c} + \frac{(1 - \varepsilon_\beta)(1 - \varepsilon_\gamma)}{N_c}} \quad (7)$$

より求めることができるので²⁴⁾ ε_β を 1 に近づければ σ は非常に小さい値となる。したがって, (6)式の補正因子について考慮しないで高精度の測定ができる。本実験ではアルミニウム吸収板を用いて陽電子の見掛けの検出効率 ε_β^+ を変え, ε_β^+ と見掛けの陽電子と陰電子の総 β 計数値を求める。一次式の最小二乗法により, $\varepsilon_\beta^+ \rightarrow 1$ の外挿値から ^{64}Cu の全 β 放出率を求めこれ

を β 線分岐比で除すことにより崩壊率を決定した。測定試料の計数は、総 β 計数の統計で0.2%以下になるようにし、測定中の減衰に対する計数値の補正をほどこした。これらの結果をFig. 11に示す。

2.3.3 効率トレーサ法

今まで述べたように、陽電子と消滅放射線の $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法では横軸に $1-\varepsilon_{\beta}^{+}$ 、縦軸に総 β 計数値を図示し、 $\varepsilon_{\beta}^{+} \rightarrow 1$ に外挿した点から ^{64}Cu の全 β 放出率を決定した。J. P. Perolatらは、²⁵⁾陽電子放出を伴う複雑な崩壊形の絶対測定法の総説で、511 keV消滅放射線の波高値に波高選別した同時計数法から ε_{β}^{+} は容易に求めることができると述べている。ただし、 γ 線検出器の γ 線検出効率(β 線検出器の γ 線感度も同様)は、陽電子が消滅した地点に依存するので新しい補正式が必要である。この問題に関していくつかの参考文献を挙げているが、原理的には補正が可能であるとしている。一方、消滅放射線が $4\pi\beta$ 検出器内のどの地点に生じるかによって γ 線検出器の検出効率は異なり、見掛上計数しても理論的に簡単な同時計数式が成り立たないという意見もある。前述のように本報ではたとえこのような場合でも、測定中に線源や検出器が動くなどの幾何学的条件が変化しなければ見掛上の γ 線検出効率 ε_{γ} が定義できるから、同時計数式は成り立つとして扱ってきた。

ここでは、これらの問題をさらに検討するため ^{64}Cu を純 β 線放出核種とみなし、絶対値既知の ^{60}Co または ^{22}Na をトレーサ核種とする効率トレーサ法⁸⁾による ^{64}Cu の絶対測定を行ない、実験的に確かめることを試みた。 ^{60}Co および ^{22}Na の崩壊図式をFig. 12, 13に示す。²⁶⁾

線源調製法は、高比放射能 ^{64}Cu 希釈液(CuCl_2 in 0.1 N HCl soln)と ^{60}Co 標準試料希釈液(CoCl_2 in 0.1 N HCl; RCC製^{*3})または ^{22}Na 標準試料希釈液(NaCl_2 in 0.1 N HCl; LMRI製^{*4})とを均一に混ぜ合わせた溶液(混合比を正確に求めておく)を、アルミニウム蒸着膜上に滴下し、アンモニア雰囲気中で乾燥処理した。 ^{64}Cu のみの線源の顕微鏡写真と比較し、均一性は劣るが粒子が局在化せずほぼ全面に広がっていることをPhoto 4に示す。

$^{64}\text{Cu} + ^{60}\text{Co}$ および $^{64}\text{Cu} + ^{22}\text{Na}$ の組み合わせについて、それぞれ $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数装置により測定を行ない、 γ チャンネルのウィンドウは前者は ^{60}Co 光電ピーク(1.17 + 1.33 MeV)、後者は ^{22}Na の消滅放射線および1.275 MeV光電ピークに合わせて設定した。 ^{60}Co 、 ^{22}Na は比較的単純な $\beta-\gamma$ 放出体で分岐比も精度よく求められているから、 $\beta-\gamma$ 放出体(トレーサ)についての検出効率 $\varepsilon_{\beta T}$ は、 γ チャンネルの計数値 N_{γ} と同時計数値 N_c との比 N_c/N_{γ} より容易に導くことができる。いま ^{64}Cu の β 計数値 $N_{\beta m}$ 、 ^{60}Co または ^{22}Na の壊変率 $N_o T$ 、および ^{64}Cu とトレーサ核種の総 β 計数値を N_{β} とすると次式²⁷⁾が成り立つ。

$$\varepsilon_{\beta T} = \frac{N_c}{N_{\gamma}} \quad (8)$$

$$N_{\beta m} = N_{\beta} - N_o T \cdot \varepsilon_{\beta T} \quad (9)$$

トレーサ核種の放射能濃度、溶液混合比および測定試料の滴下量とから、ここでは種々の厚さのアルミニウム吸収板を用いた場合について $\varepsilon_{\beta T}$ と $N_{\beta m}$ とを求め、 $\varepsilon_{\beta T}$ と単位質量当りの

*3; RCC; Radio Chemical Center.

*4; LMRI; Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants.

$N_{\beta m}$ とのプロットから、 $\epsilon_{\beta T} \rightarrow 1$ に外挿を行なって ^{64}Cu の全 β 放出数を求める方法について検討した。

Fig. 14 に ^{60}Co をトレーサ核種に用いた場合の効率トレーサ曲線を示す。 ^{60}Co の γ 線エネルギー 1.17, 1.33 MeV の光電ピークにウィンドウを設定した場合、 ^{64}Cu の γ 線エネルギー 1.34 MeV の光電ピークもこの範囲に含まれるが、わずかに 0.55% 程度の放出比であるから実際にはほとんど計数されない。このことは ^{64}Cu が完全に減衰した後、同一条件で ^{60}Co の壊変率を導き ^{64}Cu , ^{60}Co の減衰補正, 液体混合比および滴下量などを補正して得られた ^{64}Cu の崩壊率と(9)式から求めた結果とが良く一致していることから結論づけられる。

Fig. 15 に ^{22}Na をトレーサ核種に用いた場合の効率トレーサ曲線を示す。 ^{22}Na は 90% の陽電子壊変, および 10% の電子捕獲壊変事象につづいて 1.275 MeV の γ 線を放出して ^{22}Ne の基底状態になり, 他にわずかに (0.05%) β^- 線を放出する。この際 γ チャンネルには 511 keV の消滅放射線, 1.275 MeV γ 線およびそのサムピーク (511 + 1275 keV) が得られるが, 本装置の γ 線検出器が比較的小型であるためサムピークの計数は非常に少ない。したがって本実験では 2 台の波高選別器を用い, 511 keV および 1.275 MeV の光電ピークにウィンドウを設定し, 同一の条件で同時に 2 つの情報を得ることにより効率トレーサ法の応用の可否について検討した。Fig. 15 の点線は, ^{64}Cu が完全に崩壊した後同一の測定条件で ^{22}Na の壊変率を求め, ^{60}Co の効率トレーサ法で述べた手順と同様に ^{64}Cu の全 β 放出数を求めた結果であり, 相互に 0.6% 以内で一致している。この場合, ^{22}Na の壊変率を求める同時式は, 511 keV および 1.275 MeV 光電ピークにウィンドウを設定した時にそれぞれ次の様な簡単な式で表わすことができる。すなわち前者の場合, 分岐比を P (本実験では $P = 0.900^{26}$) を用いた) とおくと,

$$N_o = \frac{1}{P} \cdot \frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}(511)}{N_c} \quad (10)$$

であり, 後者の場合には

$$N_o = \frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}(1275)}{N_c} \quad (11)$$

となる。

大型の γ 線検出器を用いて, 1.786 MeV のサムピークにウィンドウを設定した場合には, 次の様な同時計数式から ^{22}Na の壊変率を求めた報告例がある。²⁸⁾

$$N_o = \frac{1}{P} \cdot \frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}(1786)}{N_c} \left[\frac{1 + \frac{1-\epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} (2\epsilon_{\beta\gamma}(511) + \epsilon_{\beta\gamma}(1275)) + \frac{1-P}{P \cdot \epsilon_{\beta}} \epsilon_{\beta\gamma}(1275)}{1 + \frac{1-\epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \epsilon_{\beta\gamma}(511)} \right]^{-1} \quad (12)$$

2.3.4 電離箱較正定数の決定と各測定法の比較

前項までに得られた ^{64}Cu の絶対測定の結果を基にして, 現在 RI 製品の放射能濃度測定に使用している井戸型電離箱²⁹⁾ (*5) の較正定数を決定した。

*5; Tracerlab 社製ソースキャリブレーション SC 56 No. 241, アルゴン密封で水銀柱 38 cm, 壁は 1.59 mm SUS, 内容積 2.57 l.

^{64}Cu 試料母液の放射能濃度 A_0 $\mu\text{Ci/g}$ は、

$$A_0 = N_0 \cdot \frac{D}{W \times 3.7 \times 10^4} \quad (13)$$

で与えられる。ここで、 D は希釈率、 W は滴下した線源の重量(g)、 N_0 (dps)は絶対測定で求めた壊変率を意味する。

井戸型電離箱による放射能測定は、絶対測定に用いた試料母液を一定量ガラスバイアルに採取・精秤ののち、規定の測定レンジにおいてのメータの読みから、 A' $\mu\text{Ci/g}$ を求める。減衰補正を行なって同じ測定時刻に直せば、電離箱の較正定数 (Correction Factor ; C.F.) を求めることができる。すなわち、

$$\text{C.F.} = \frac{A_0}{A' \times \text{Decay Factor}} \quad (14)$$

である。

$4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法および ^{60}Co または ^{22}Na をトレーサ核種として用いた効率トレーサ法の3つの方法は、いずれも手順が複雑で計数に時間がかかり、加えて ^{64}Cu の半減期が短いことなどから同一の ^{64}Cu 試料母液について異なる測定法を相互比較することが困難である。したがって、3つの測定法の精度は(14)式で導かれる較正定数を相互に比較することにより判定した。

3. 実験結果および検討

前章で述べた3つの相互比較の結果をFig.16に示す。図B(□印)で図示した ^{60}Co 効率トレーサ曲線は、線源調製に起因して ϵ_β を充分高くとれず測定点も少ない理由から、他の方法に比較し外挿範囲が広くバラツキが大きい。 $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法と ^{22}Na をトレーサ核種に用いた効率トレーサ法とは外挿値がよく一致している。

本報においては ^{64}Cu の全 β 放出率を求める際、分岐比は文献値¹⁾ をそのまま使用して壊変率との対応をつけた。 ^{64}Cu の核壊変パラメータは、大部分が1950年代のデータで文献値のばらつきが顕著である。例えば、主要なパラメータであるK電子捕獲壊変事象 $(\text{EC})_K$ に対する陽電子放出数 β^+ の比 $\{(\text{EC})_K/\beta^+\}$ は、その報告値が1.78 ~ 3.5⁴⁾ という範囲に亘っている。本報で使用した核壊変パラメータは1970年にORNLのNuclear Data Projectにおいて集録したNuclear Data Table¹⁾ から引用しているが、陽電子 (β^+ ; 18.4 ± 0.8%) および陰電子 (β^- ; 38 ± 2%) の分岐比の値には大きな誤差がある。これらの誤差を含めて評価すると崩壊率の推測値に付される誤差は非常に大きなものとなる。ここでは上記の誤差は評価の対象から除外してある。また異なった分岐比を用いた場合、例えば比較的広範囲に利用されているTable of Isotope, 6th ed.²⁶⁾ に集録されている値では最終結果は1%程度小さい値となる。

・前章で述べた3つの方法によって求めた電離箱の較正定数をTable 4に示す。 $4\pi\beta-\gamma$

^{64}Cu 試料母液の放射能濃度 A_0 $\mu\text{Ci/g}$ は、

$$A_0 = N_0 \cdot \frac{D}{W \times 3.7 \times 10^4} \quad (13)$$

で与えられる。ここで、 D は希釈率、 W は滴下した線源の重量(g)、 N_0 (dps)は絶対測定で求めた壊変率を意味する。

井戸型電離箱による放射能測定は、絶対測定に用いた試料母液を一定量ガラスバイアルに採取・精秤ののち、規定の測定レンジにおいてのメータの読みから、 A' $\mu\text{Ci/g}$ を求める。減衰補正を行なって同じ測定時刻に直せば、電離箱の較正定数 (Correction Factor ; C.F.) を求めることができる。すなわち、

$$\text{C.F.} = \frac{A_0}{A' \times \text{Decay Factor}} \quad (14)$$

である。

$4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法および ^{60}Co または ^{22}Na をトレーサ核種として用いた効率トレーサ法の3つの方法は、いずれも手順が複雑で計数に時間がかかり、加えて ^{64}Cu の半減期が短いことなどから同一の ^{64}Cu 試料母液について異なる測定法を相互比較することが困難である。したがって、3つの測定法の精度は(14)式で導かれる較正定数を相互に比較することにより判定した。

3. 実験結果および検討

前章で述べた3つの相互比較の結果をFig.16に示す。図B(□印)で図示した ^{60}Co 効率トレーサ曲線は、線源調製に起因して ϵ_β を充分高くとれず測定点も少ない理由から、他の方法に比較し外挿範囲が広くバラツキが大きい。 $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法と ^{22}Na をトレーサ核種に用いた効率トレーサ法とは外挿値がよく一致している。

本報においては ^{64}Cu の全 β 放出率を求める際、分岐比は文献値¹⁾ をそのまま使用して壊変率との対応をつけた。 ^{64}Cu の核壊変パラメータは、大部分が1950年代のデータで文献値のばらつきが顕著である。例えば、主要なパラメータであるK電子捕獲壊変事象 $(\text{EC})_k$ に対する陽電子放出数 β^+ の比 $\{(\text{EC})_k / \beta^+\}$ は、その報告値が1.78 ~ 3.5⁴⁾ という範囲に亘っている。本報で使用した核壊変パラメータは1970年にORNLのNuclear Data Projectにおいて集録したNuclear Data Table¹⁾ から引用しているが、陽電子 (β^+ ; 18.4 ± 0.8%) および陰電子 (β^- ; 38 ± 2%) の分岐比の値には大きな誤差がある。これらの誤差を含めて評価すると崩壊率の推測値に付される誤差は非常に大きなものとなる。ここでは上記の誤差は評価の対象から除外してある。また異なった分岐比を用いた場合、例えば比較的広範囲に利用されているTable of Isotope, 6th ed.²⁶⁾ に集録されている値では最終結果は1%程度小さい値となる。

・前章で述べた3つの方法によって求めた電離箱の較正定数をTable 4に示す。 $4\pi\beta-\gamma$

同時吸収計数法と ^{60}Co および ^{22}Na 効率トレーサ法とで得られた結果は、相対標準偏差 ($\pm \sigma$) 以内で一致している。特に前者と ^{22}Na 効率トレーサ法で求めた結果とは、0.7% 以内で良く一致した結果が得られている。本法の陽電子-消滅放射線の $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法は、効率トレーサ法に比べて次の点で優れている。

- イ) 試料調製、測定手順が比較的容易である。
- ロ) 計数の補正について吟味すべき項目が少ない。
- ハ) 高 γ 計数率が得られ、サム効果の影響が少ない。

一方、前章でも述べたような陽電子の消滅位置に依存する新たな補正式が必要かどうかの問題が残っている。このことに関しては、 ^{22}Na の陽電子-消滅放射線および 1.275 MeV γ 線の 2 つの光電ピークにウィンドウを設定した効率トレーサ法の結果が 1% 以内で一致していることから、上記の補正はこの誤差範囲内にあるとして特に新たな補正式をたてなかつた。

このほか線源試料、支持膜、吸収板などの散乱効果と吸収板の挿入によって生じる実効有感体積の変化によってもたらされる幾何学的効率の変化 (Geometrical effect) などで生じる測定値と真の値との偏りが予想される。本報ではその大きさを見積もるため、 ^{60}Co および ^{22}Na 標準試料を $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法と $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法で測定を行なったが、両者の間に系統的な変化は見られず、測定誤差の範囲内で一致したことから、この効果は無視できると結論された。

これまで述べてきた種々の補正を適用して得られた結果の信頼性を検討する場合、イ) 統計的誤差、ロ) 系統的誤差に分けて論じる必要がある。イ) については、(1) 計数およびバックグラウンドの統計的変動、(2) 電離箱のメータの振れのふらつき、などがある。母液から希釈し何個かの測定試料を測定したとき、前述の諸原因が重なって現われるが、ここではその平均値の相対標準偏差を以って表示した。ロ) については、(1) 補正の不適性に起因する誤差、(2) 他の放射性不純物の混入による影響、(3) 測定回路に起因する誤差、(4) 天秤の目盛の誤差および溶液の蒸発や器具への吸着による誤差、(5) 減衰補正における半減期の誤差、(6) 電離箱のメータの目盛の誤差などが含まれる。系統誤差の中で最も大きい誤差は、(4) と (6) でありそれぞれ $\pm 0.1\%$ 、 $\pm 0.5\%$ を見込んでいる。(5) は、Nuclear Data Table¹⁾ から引用した ^{64}Cu の半減期 12.8 時間を用いているが、その平均値の標準偏差 0.1 時間を含めると ^{64}Cu の崩壊率の推測値に付される誤差は非常に大きなものとなる。従って(5) は評価の対象からはずしてある。その他の系統誤差は 0.1% 以下と評価し無視した。

本法の $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法で得られた結果から、電離箱の較正定数は 3.06 ± 0.04 と定められた。

謝 辞

終りに、本実験を遂行するにあたり当部検査課の竹内紀男氏に種々の御助言、御協力をいただいた。また本稿をまとめる際、当部製造技術課馬場宏博士、検査課源河次雄氏ならびに前検査課長鈴木恭平氏に種々の御指導をいただいた。ここに記して感謝の意を表わす。

同時吸収計数法と ^{60}Co および ^{22}Na 効率トレーサ法とで得られた結果は、相対標準偏差 ($\pm \sigma$) 以内で一致している。特に前者と ^{22}Na 効率トレーサ法で求めた結果とは、0.7% 以内で良く一致した結果が得られている。本法の陽電子-消滅放射線の $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法は、効率トレーサ法に比べて次の点で優れている。

- イ) 試料調製、測定手順が比較的容易である。
- ロ) 計数の補正について吟味すべき項目が少ない。
- ハ) 高 γ 計数率が得られ、サム効果の影響が少ない。

一方、前章でも述べたような陽電子の消滅位置に依存する新たな補正式が必要かどうかの問題が残っている。このことに関しては、 ^{22}Na の陽電子-消滅放射線および 1.275 MeV γ 線の 2 つの光電ピークにウィンドウを設定した効率トレーサ法の結果が 1% 以内で一致していることから、上記の補正はこの誤差範囲内にあるとして特に新たな補正式をたてなかつた。

このほか線源試料、支持膜、吸収板などの散乱効果と吸収板の挿入によって生じる実効有感体積の変化によってもたらされる幾何学的効率の変化 (Geometrical effect) などで生じる測定値と真の値との偏りが予想される。本報ではその大きさを見積もるため、 ^{60}Co および ^{22}Na 標準試料を $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法と $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法で測定を行なったが、両者の間に系統的な変化は見られず、測定誤差の範囲内で一致したことから、この効果は無視できると結論された。

これまで述べてきた種々の補正を適用して得られた結果の信頼性を検討する場合、イ) 統計的誤差、ロ) 系統的誤差に分けて論じる必要がある。イ) については、(1) 計数およびバックグラウンドの統計的変動、(2) 電離箱のメータの振れのふらつき、などがある。母液から希釈し何個かの測定試料を測定したとき、前述の諸原因が重なって現われるが、ここではその平均値の相対標準偏差を以って表示した。ロ) については、(1) 補正の不適性に起因する誤差、(2) 他の放射性不純物の混入による影響、(3) 測定回路に起因する誤差、(4) 天秤の目盛の誤差および溶液の蒸発や器具への吸着による誤差、(5) 減衰補正における半減期の誤差、(6) 電離箱のメータの目盛の誤差などが含まれる。系統誤差の中で最も大きい誤差は、(4) と (6) でありそれぞれ $\pm 0.1\%$ 、 $\pm 0.5\%$ を見込んでいる。(5) は、Nuclear Data Table¹⁾ から引用した ^{64}Cu の半減期 12.8 時間を用いているが、その平均値の標準偏差 0.1 時間を含めると ^{64}Cu の崩壊率の推測値に付される誤差は非常に大きなものとなる。従って(5)は評価の対象からはずしてある。その他の系統誤差は 0.1% 以下と評価し無視した。

本法の $4\pi\beta-\gamma$ 同時吸収計数法で得られた結果から、電離箱の較正定数は 3.06 ± 0.04 と定められた。

謝 辞

終りに、本実験を遂行するにあたり当部検査課の竹内紀男氏に種々の御助言、御協力をいただいた。また本稿をまとめる際、当部製造技術課馬場宏博士、検査課源河次雄氏ならびに前検査課長鈴木恭平氏に種々の御指導をいただいた。ここに記して感謝の意を表わす。

参考文献

- 1) M.J.Martin and P.H.Blichert-Tofft.; Nucl.Data Tables, A-8, 47 (1970)
- 2) A.Polaczek and A.Altenberger; Nucleonika 12 [5] 355 (1967)
- 3) Y.Kawada; Reseaches of the Electrotechnical Laboratory No 730 (1972)
- 4) C.S.Cook and L.M.Langer; Phys.Rev. [74] 1241A (1948)
- 5) J.S.Merritt, J.G.V.Taylor and P.J.Campion; Can.J.Chem. [37] 1109 (1959)
- 6) 柴田長夫, 望月 勉, 田中吉左右, 海老原 寛, 黒沢清行, 加藤岑生; 第9回日本R I 会議報文集 A/P-3, 41 (1969)
- 7) 吉原賢二, 田中栄一; Radioisotopes [1] 5 (1956)
- 8) J.S.Merritt, J.G.V.Taylor, W.F.Merritt and P.J.Campion; Anal.Chem. [32] 310 (1960)
- 9) 浜田達二, 藤山知子; Radioisotopes [9] 138 (1960)
- 10) 吉田 真, 宮原 洋, 渡辺 鑽; Radioisotopes [24] 851 (1975)
- 11) R.Whiddington; Proc.Roy.Soc.(London) A 86 360 (1912)
- 12) H.M.Terrill; Phys.Rev. [22] 101 (1923)
- 13) L.Katz and A.S.Penfold; Revs.Modern Phys.Soc. [94] 960 (1954)
- 14) W.Ehrenberg and J.Franks; Proc.Phys.Soc.(London) [66] (1953)
- 15) R.O.Lane and D.J.Zarrarano; Phys.Rev. [94] 960 (1954)
- 16) J.R.Young; J.Appl.Phys. [27] 1 (1956)
- 17) A.Ia.Viatskin and A.F.Makhov; J.Tech.Phys. (USSR) [28] 740 (1958)
- 18) C.Feldman; Phys.Rev. [117] 455 (1960)
- 19) Philips K.K Data.
- 20) 柴田長夫, 榎本茂正, 富永 洋, 竹内紀男; 第8回日本R I 会議報文集 A/M-4, 91 (1968)
- 21) J.S.Merritt and J.G.V.Taylor; Symp.Standardization of Radionuclides, SM-79/66 Vienna (1966) IAEA.
- 22) P.J.Campion; Int.J.Appl.Radiat.Isotope [4] 232 (1959)
- 23) L.Grigorescu; Nucl.Instr.and Meth. [112] 151 (1973)
- 24) P.J.Campion and J.G.V.Taylor; Int.J.Appl.Radiat.Isotope [10] 131 (1961)
- 25) J.P.Pérolat; Nucl.Instr. and Meth. [112] 179 (1973)
- 26) C.M.Lederer, J.M.Hollander and I.Perlman; "Table of Isotopes", 6th ed, Wiley, N.Y. (1967)
- 27) 河田 燕; 日本原子力学会誌; [13] 190 (1971)
- 28) A.Williams; Nucl.Phys, [52] 324 (1964)
- 29) 木村健二郎, 柴田長夫, 渡辺 鑽; 第4回日本R I 会議報文集 P&C-9 522 (1961)

no.	ϵ_{β}	ϵ_r	N_0 (dps)	Mean / BIPM	
1	0.9576	0.1044	2285.612	—	BIPM
	0.9601	0.07176	2285.695	1.0000	E.T.L
	0.9564	0.0056	2290	1.000	JAERI
	0.9582	0.0878	22871	1.0007 x	
2	0.9590	0.1037	5215.573	—	BIPM
	0.9601	0.07148	5211.874	0.9993	E.T.L
	0.9573	0.0059	5222	1.0012	JAERI
	0.9583	0.0872	5215.0	0.9989 x	
3	0.9590	0.1037	8251.354	—	BIPM
	0.9646	0.0710	8245.319	0.9993	E.T.L
	0.9600	0.0056	8271	1.0024	JAERI
	0.9614	0.0873	8253.62	1.0003 x	

Table 1 Measurement of ^{60}Co sources.

Date of Reference : 0000GMT/1st/Nov/1971

Gas : CH_4 Counting Time : 1,000 sec

Investigator	Range Energy Expression	Range ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
Whiddington ¹¹⁾	$R = 167 E^2$	Average 192
Terrill ¹²⁾	$R = 91 E^2$	Average 105
Katz and Penfold ¹³⁾	$R = 158 E^{1.72}$	Extrapolated 81
Ehrenberg and Franks ¹⁴⁾	$R = (\%c)^2 + d$	—
Lane and Zaffarano ¹⁵⁾	$R = 210 E^{1.67}$	Extrapolated 131
Young ¹⁶⁾	$R = 420 E^{1.3}$	Extrapolated 130
Viatskin and Makhov ¹⁷⁾	$R = b E^{1.4}$	Maximum 175
Charles Feldman ¹⁸⁾	$R = 250(A/\rho Z^{n/2}) E^n$	Average 194

Table 2 Calculated values for the range of 6.54KeV auger electrons in aluminum absorber.

Sample	Preparation of Source	Counting Rate (cps/mg)
1	Gold Coating+Simple Evaporation	4.63×10^3
	Gold Coating+Ludox	5.07×10^3
2	Gold Coating+Ludox	9.59×10^3
	Aluminum Coating+Ammonium Treatment	1.01×10^4

Table 3 Difference in the deduced counting rates among various ^{64}Cu sample preparation methods.

No	Weight (mg)	Window (KeV)	N_β (cps/mg)	C.F.
A	19.49 ± 0.01	511	833 ± 10.4	3.06 ± 0.04
B	4.31 ± 0.01	1173+1333	1869 ± 64.2	3.02 ± 0.10
C	9.74 ± 0.01	511	1506 ± 8.9	3.04 ± 0.02
		1275	1488 ± 18.2	3.01 ± 0.04

Table 4 Counting results for ^{64}Cu sources according to several methods.

A: $4\pi\beta$ - γ absorption coincidence counting. ^{64}Cu
 B: Efficiency tracer counting method. $^{64}\text{Cu} + ^{60}\text{Co}$
 C: Efficiency tracer counting method. $^{64}\text{Cu} + ^{22}\text{Na}$

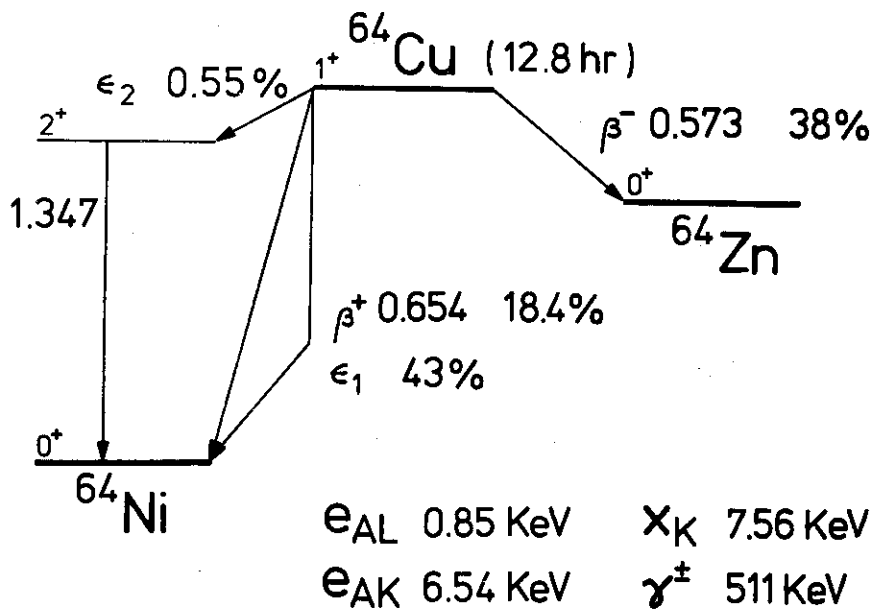
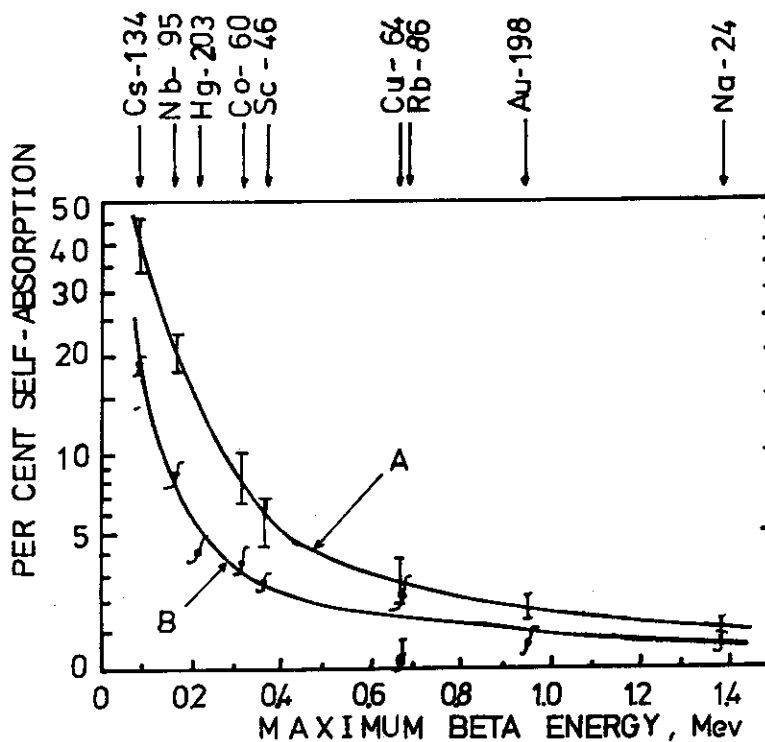


Fig. 1 Decay-scheme of ^{64}Cu



J.S Merrit et al: Can. J. Chem. 37,1109 (1959)

Fig. 2 Percent self-absorption as a function of beta end point energy for sources of mean superficial density of $2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Curves A and B represent sources prepared by the simple evaporation and colloidal silica methods respectively.

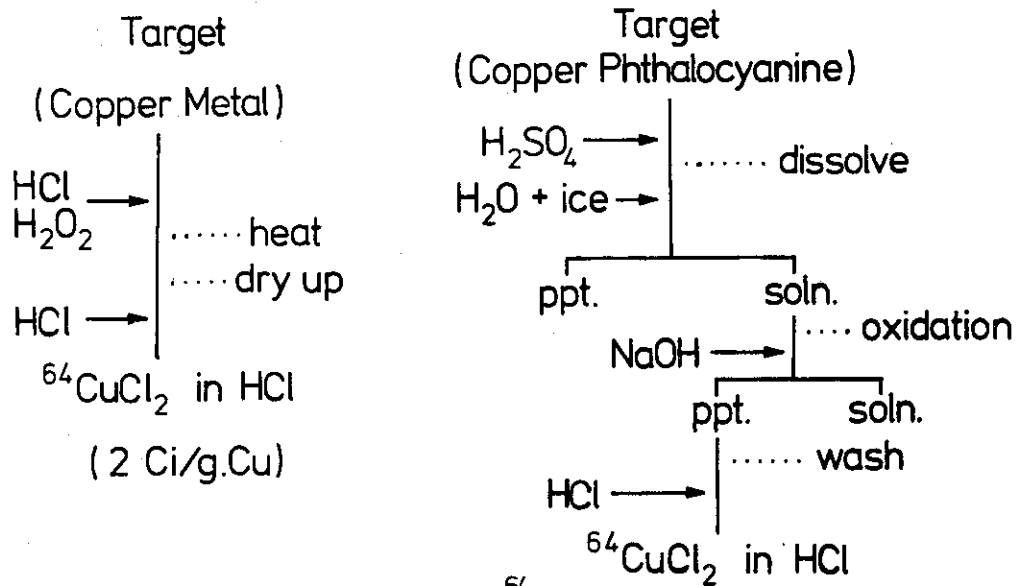


Fig. 3 Source preparation of ^{64}Cu (500 Ci/g Cu)

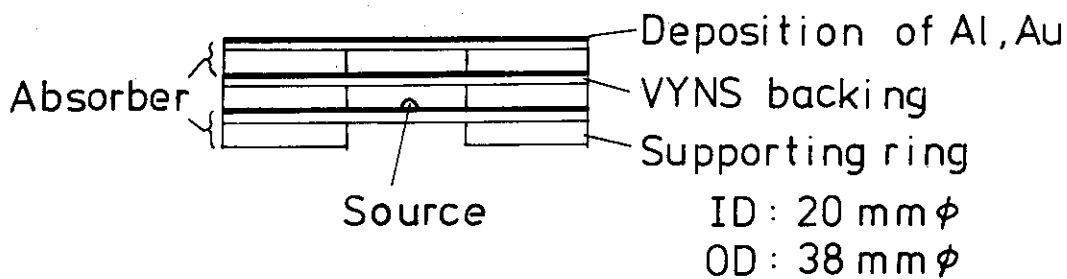


Fig. 4 Sectional view of a ^{64}Cu source used for the coincidence absorption method.

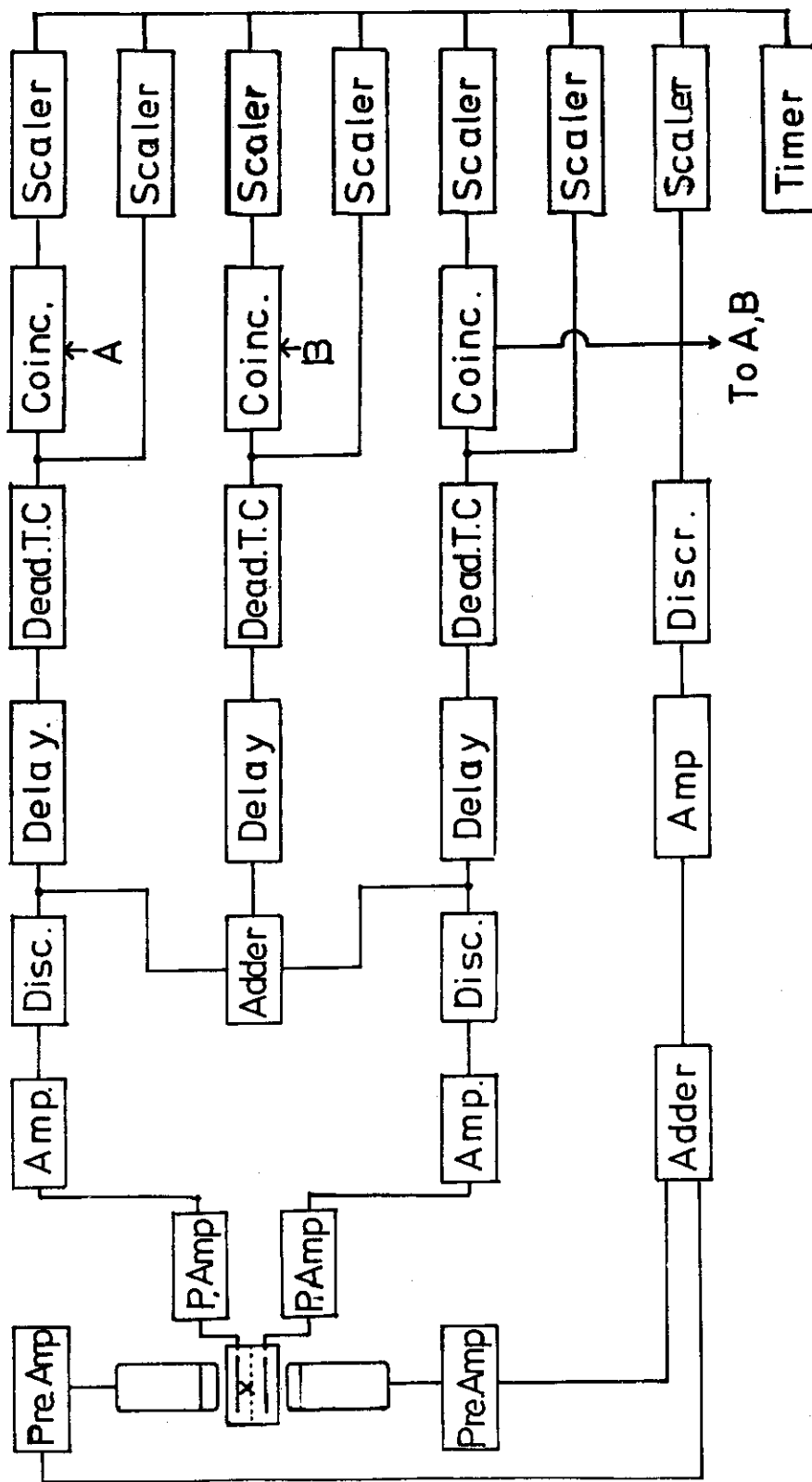


Fig. 5 Block diagram of the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting system.

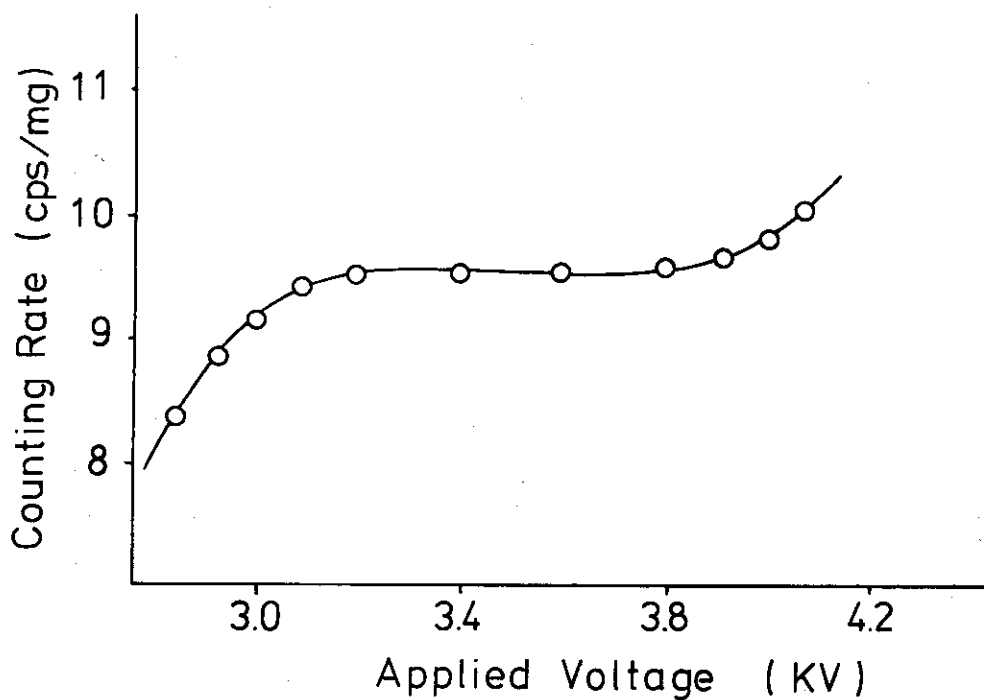


Fig. 6 Plateau curve of the $4\pi\beta$ counter for a ^{60}Co source deposited on gold coated VYNS backing.

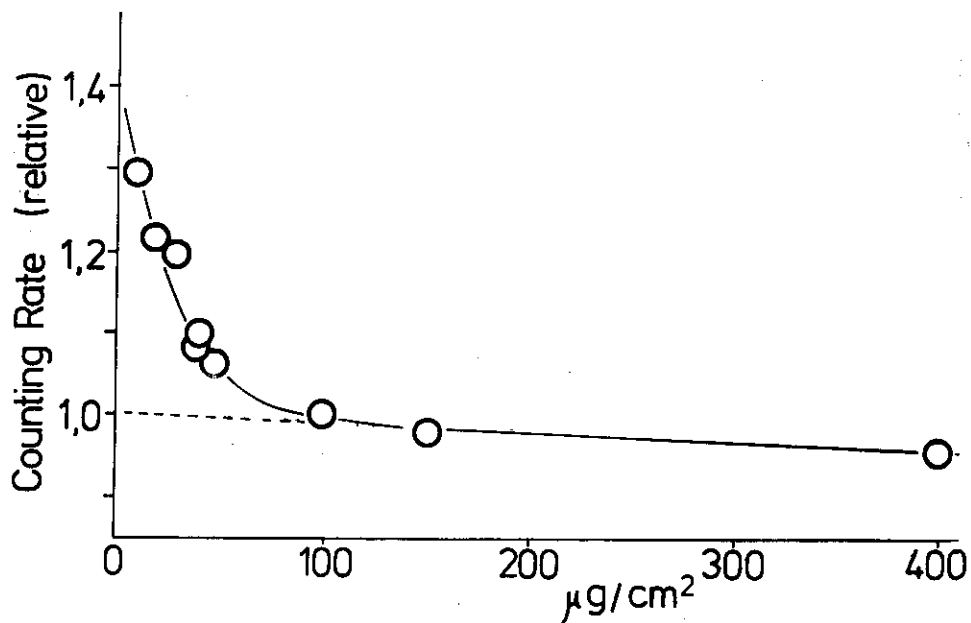


Fig. 7 Absorption curve of auger electrons, negatrons and positrons.

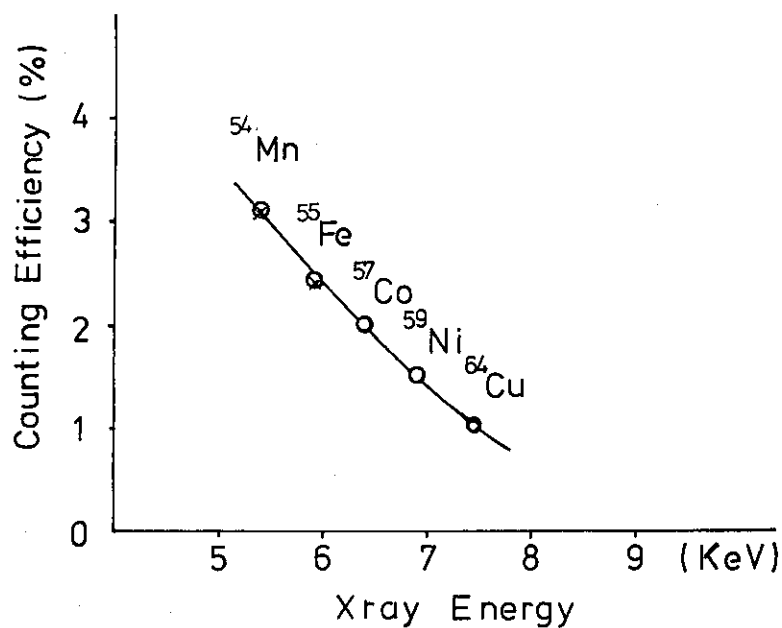


Fig. 8 Counting efficiency of the $4\pi\beta$ counter for various energies of X ray. The open circles are derived from the data for $4\pi e$ -X coincidence measurement, and the closed ones from the data for calculated method.

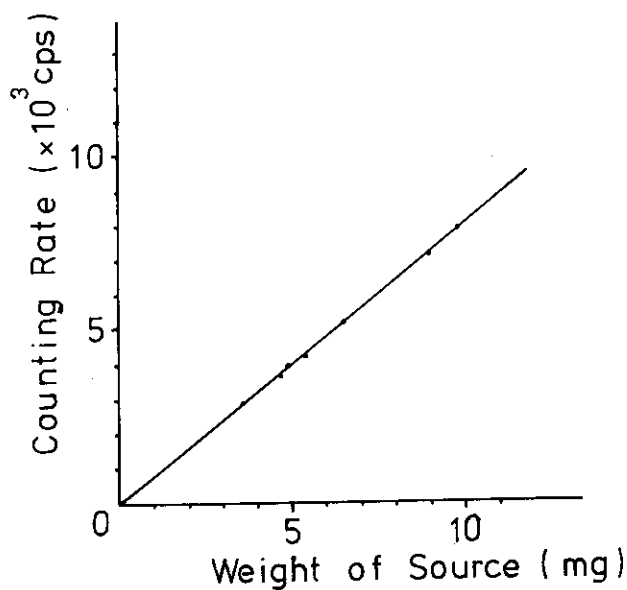


Fig. 9 Linearity of the counting rate v.s. weight of sources.

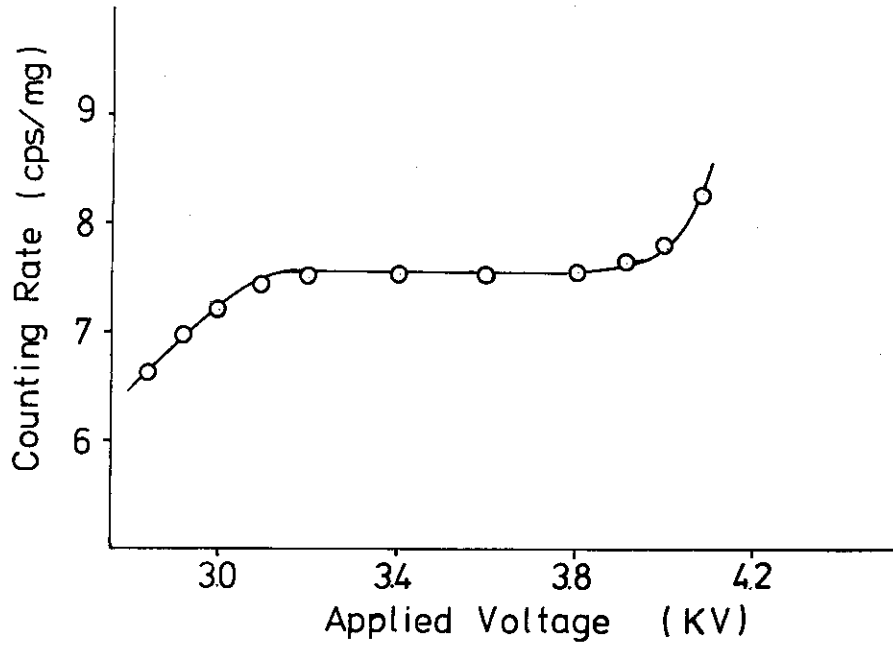


Fig.10 Plateau curve of the $4\pi\beta$ counter for a ^{64}Cu source deposited on aluminum coated VYNS backing.

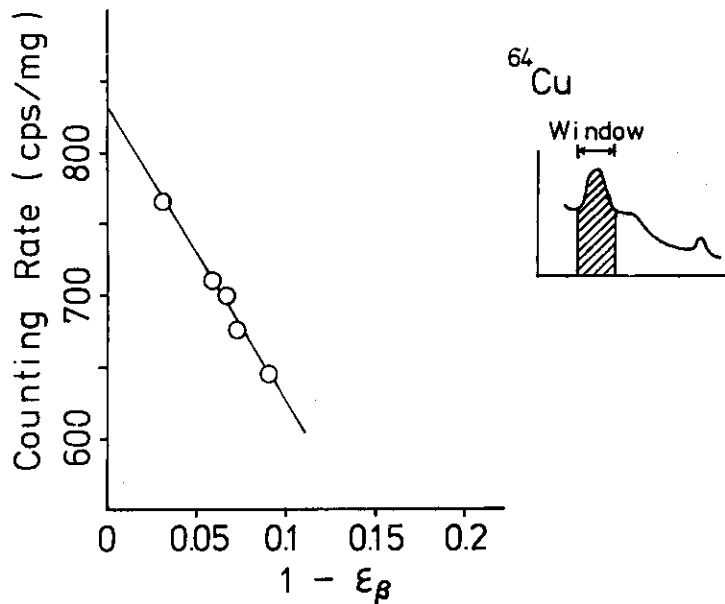


Fig.11 Counting rates due to negatrons and positrons as a function of the counting efficiency for the positrons.

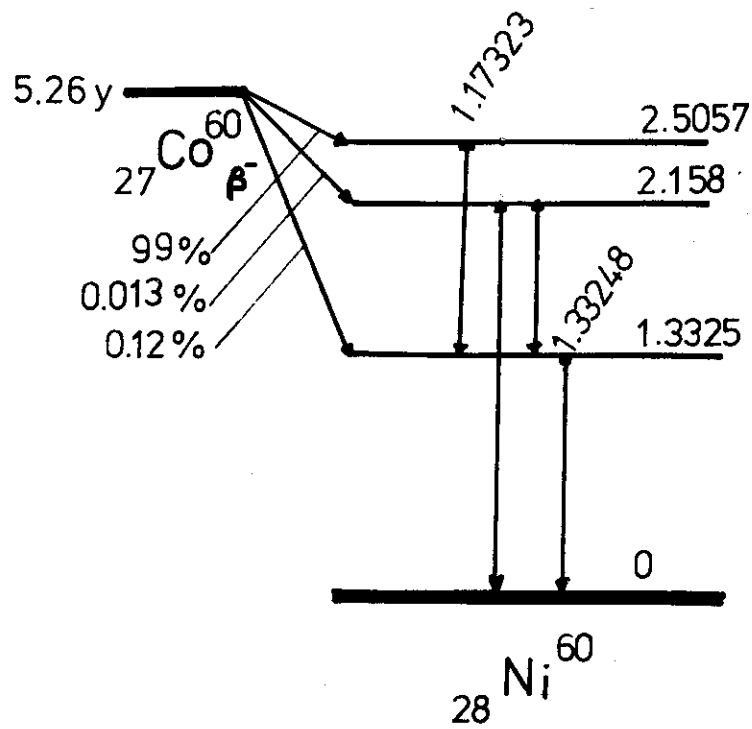


Fig. 12 Decay - scheme of ^{60}Co

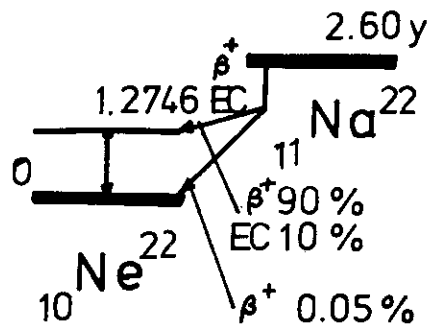


Fig. 13 Decay - scheme of ^{22}Na

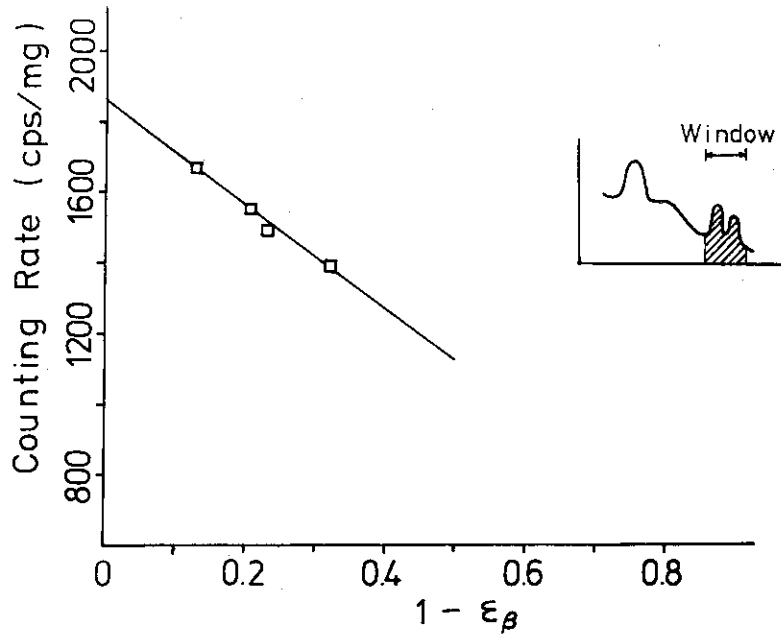


Fig. 14 Efficiency tracer curve for $^{60}\text{Co} + ^{64}\text{Cu}$, on the gating of 1173 KeV, 1332 KeV.

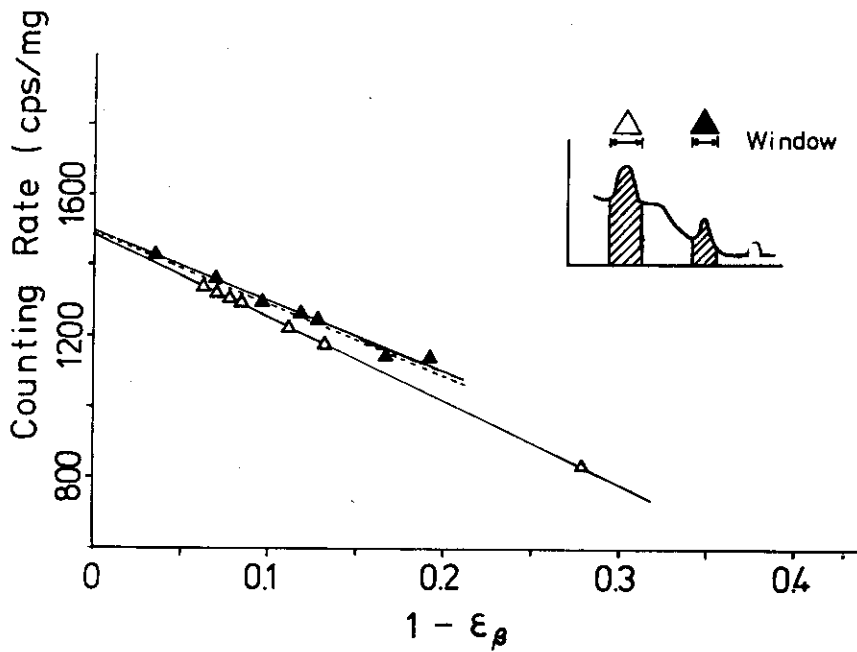


Fig. 15 Efficiency tracer curve for $^{22}\text{Na} + ^{64}\text{Cu}$, on the gating of 511 KeV, 1275 KeV.

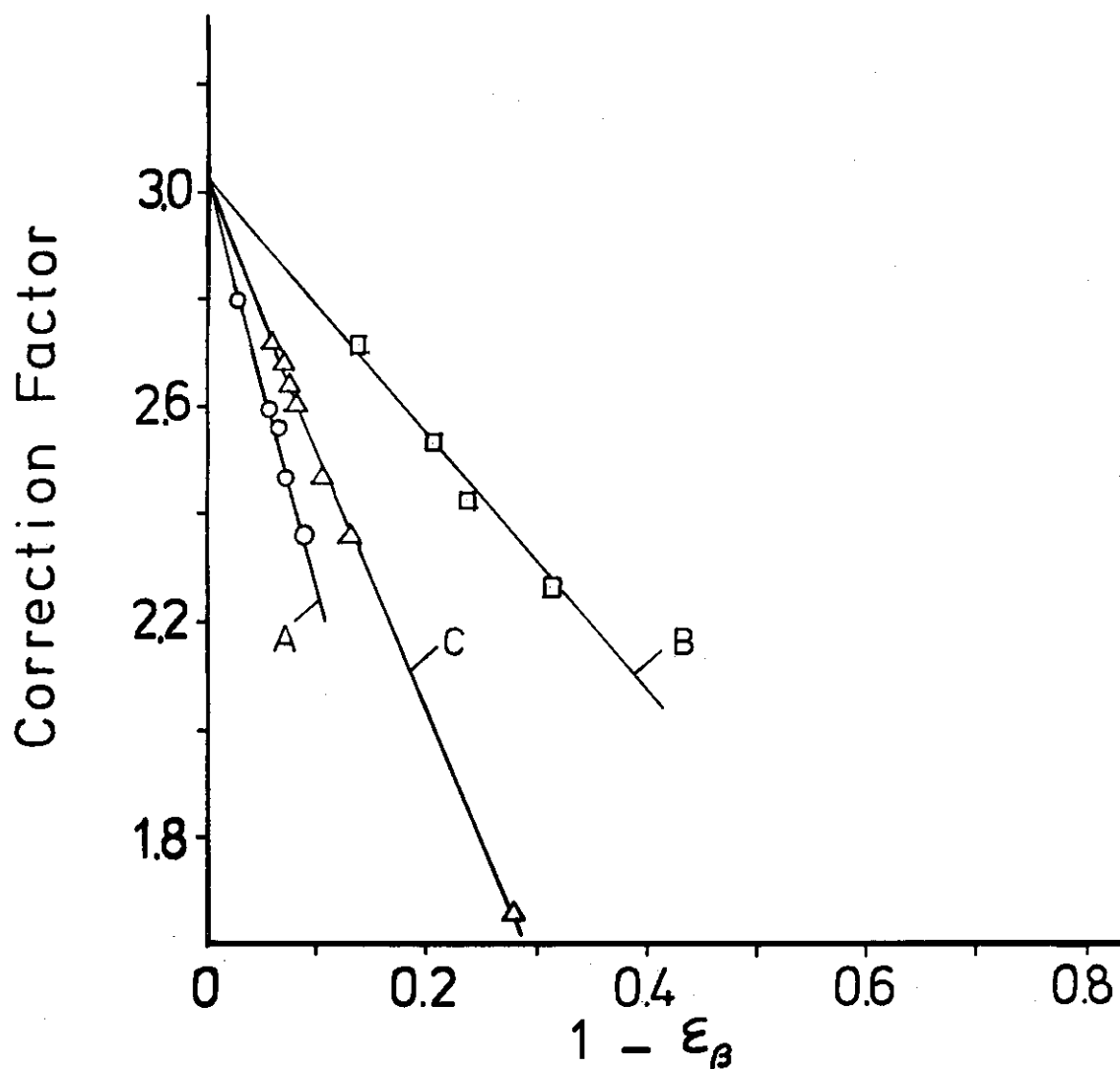


Fig. 16 Measured correction factor values for different counting method.

A: $4\pi\beta - r$ absorption coincidence counting. ^{64}Cu
 B: Efficiency tracer counting method. $^{64}\text{Cu} + ^{60}\text{Co}$
 C: Efficiency tracer counting method. $^{64}\text{Cu} + ^{22}\text{Na}$

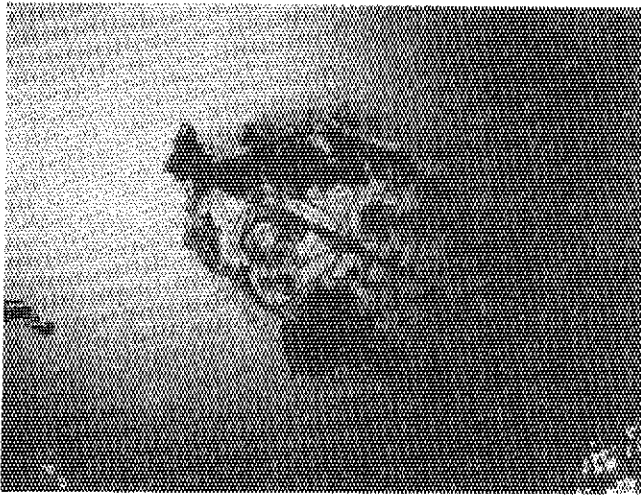


Photo. 1 ^{64}Cu , Aluminum Coated Film,
Simple Dry Up,
Magnification Factor, 7x4.

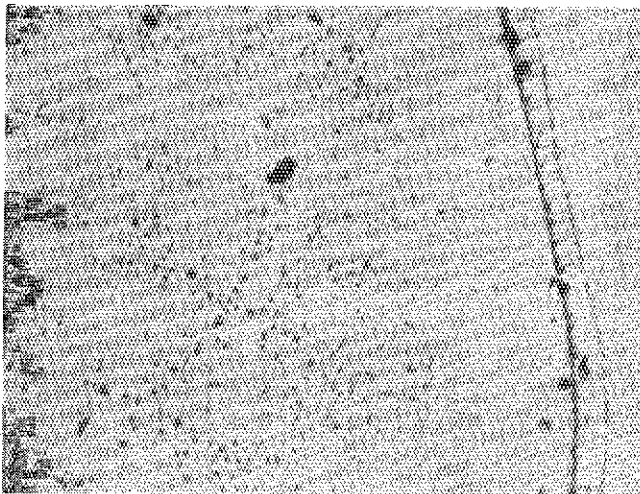
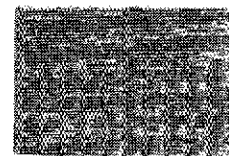
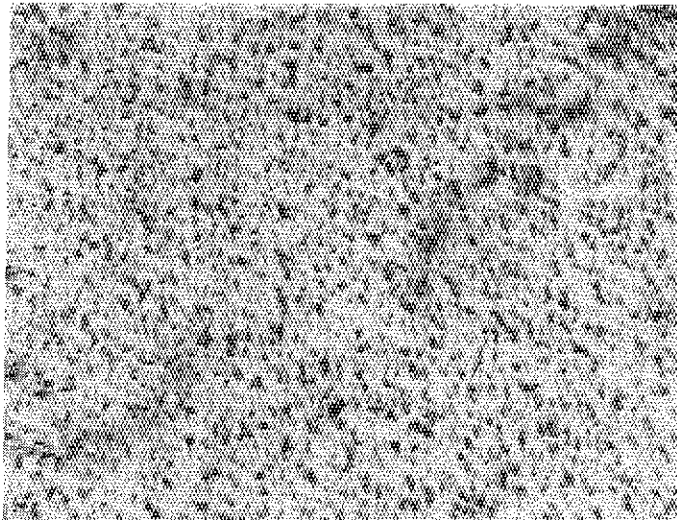


Photo. 2 ^{64}Cu , Gold Coated Film,
Ludox-SM Treatment,
Magnification Factor, 20x10.

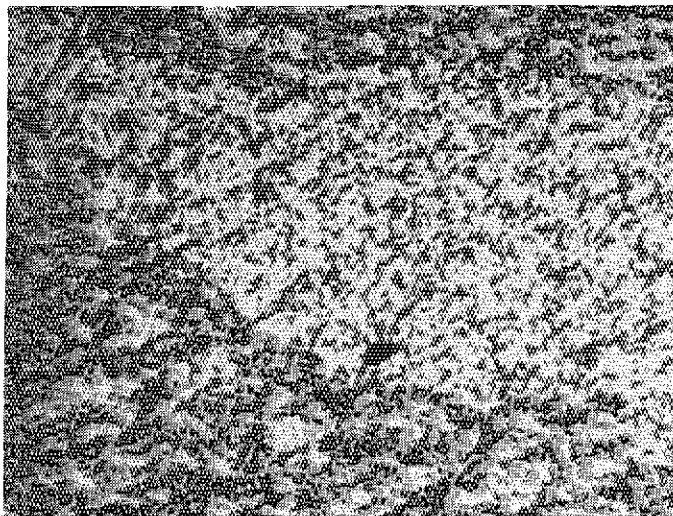


1 μm /div.



1 μ m/div.

Photo. 3 ^{64}Cu , Aluminum Coated Film,
Ammonium Treatment,
Magnification Factor, 20x10.



1 μ m/div.

Photo. 4 $^{64}\text{Cu}+^{64}\text{Co}$, Aluminum Coated Film,
Ammonium Treatment,
Magnification Factor, 20x10.