

JAERI-M

8196

ガンマ線強度の精密測定

1979年5月

吉沢 康和*・加藤 敏郎**・岩田 洋世*

賀来 哲三*・飯沼 寧雄*・阮 建治***

小島 敏行***・河田 燕****

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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.

ガンマ線強度の精密測定

日本原子力研究所 東海研究所シグマ研究委員会

吉沢康和*・加藤敏郎**

広島大学理学部

岩田洋世・賀来哲三・飯沼寧雄

立教大学理学部

阮 建治・小島敏行

電子技術総合研究所

河田 燕

(1979年3月9日受理)

この報告は、核燃料の非破壊検査をはじめ、種々の分野から要求されているガンマ線強度の精密測定を行ったものである。ゲルマニウム検出器を用いて 280 ~ 2750 keV の領域で相対強度を測定した。 $4\pi\beta-\gamma$ または $4\pi X-\gamma$ 同時計数法により、標準線源を作成し、検出器の検出効率の校正をした。実験条件を吟味、改善し、注意深く解析を行い、 ^{56}Co , ^{88}Y , ^{110m}Ag , ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{192}Ir , ^{207}Bi のガンマ線を測定した。その結果、強いガンマ線については誤差約 0.5 % で測定することができた。大部分のものについては相対強度の測定値から崩壊あたりの強度を求めた。

* 広島大学理学部

** 名古屋大学工学部

この報告書は、シグマ研究委員会活動の一環として行われた研究成果を利用されやすい形にまとめたものである。また、この研究は昭和 50 年度及び 51 年度に日本原子力研究所より広島大学に委託した調査 (JAERI - M 7567 参照) の延長線上にも位置するものである。

Precision Measurements of Gamma-Ray Intensities

Yasukazu YOSHIZAWA* and Toshio KATOH**

Japanese Nuclear Data Committee, JAERI, Tokai

Yosei IWATA, Tetuzo KAKU and Yasuo IINUMA

Faculty of Science, Hiroshima University, Hiroshima

Jian-zhi RUAN and Toshiyuki KOJIMA

Faculty of Science, Rikkyo University, Tokyo

Yasushi KAWADA

Electrotechnical Laboratory, Tanashi, Tokyo

(Received March 9, 1979)

To determine relative intensities of gamma rays in the region of 280 to 2750 keV, Ge(Li) detectors were calibrated with standard sources and cascade gamma-ray sources. Decay rates of the standard sources were determined by means of the $4\pi\beta-\gamma$ or $4\pi X-\gamma$ coincidence method. Experimental conditions were improved and spectra were carefully analyzed.

Relative gamma-ray intensities of ^{56}Co , ^{88}Y , ^{110m}Ag , ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{192}Ir and ^{207}Bi were determined within the accuracy of about 0.5 % for strong gamma rays. Intensities per decays were obtained from the relative intensities for most of the nuclides.

Keywords: Gamma-ray Intensity, Precision Measurement, Cobalt-56, Yttrium-88, Silver-110m, Barium-133, Cesium-134, Europium-152, Europium-154, Iridium-192, Bismuth-207, Coincidence Method

* Faculty of Science, Hiroshima University, Hiroshima

** Faculty of Engineering, Nagoya University, Nagoya

Summary

Precision measurements of gamma-ray intensities have been requested for the non-destructive nuclear fuel investigation. Recently Debertin et al.^{1~5)}, Gehrke et al.⁶⁾ and Meyer⁷⁾ have performed precision measurements of relative intensities. Purpose of our experiments is to determine relative gamma-ray intensities of various nuclides with errors less than 1 % in the energy region 280~2750 keV. Standard sources were prepared at Electrotechnical Laboratory in Tokyo, and gamma-ray measurements were performed at Hiroshima University and Nagoya University.

Calibration sources. Standard sources were made from eight nuclides ^{22}Na , ^{46}Sc , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{134}Cs and ^{203}Hg , and cascade gamma-ray sources were from four nuclides ^{24}Na , ^{52}Mn , ^{90}Nb and $^{108\text{m}}\text{Ag}$. These calibration sources are listed in Table 1. Ten standard sources were made for each nuclide, and cascade gamma-ray sources of 1~4 were also made. All the samples of about 1 μCi were mounted on plastic capsules and covered by plastic sheets of 0.5 mm thickness shown in Fig. 1. The standard sources were made from solution (20~30 $\mu\text{Ci/g}$), and density of solution was determined by means of the $4\pi\beta-\gamma$ or $4\pi X-\gamma$ coincidence method. Four parts of solution were diluted by 3~4 times and about 10 samples were made from each diluted solution. These samples were measured with the coincidence system of a box type 4π counter and two 3" x 3" NaI(Tl) detectors at Electrotechnical Laboratory. The reliability of this system is already established by the international intercomparison measurement⁸⁾. Examples of coincidence absorption curves and sample concentrations are shown in Figs. 2 and 3. An example of error estimation for the standard source are shown in Table 2. Errors of all the standard sources are listed in Table 3.

Evaluated values of intensities per decays for the calibration sources are listed in Table 1. These values were obtained from decay schemes, internal conversion coefficients and relative intensities of weak gamma rays^{9, 10)}. Most of these gamma rays are more than 99 % per decay, and others are more than 80 %.

Gamma-ray measurements. In Hiroshima and also in Nagoya, measurements were performed with Ge(Li) spectrometers of which specifications and block diagrams are shown in Table 4 and Figs. 4 and 5, respectively. The distance from the detector case to the source was always 20 cm. The detector was shielded by lead in Nagoya, and the most of measurements were done without shield in Hiroshima.

Following points were taken care of for measurements:

- a) Absorption effect. Absorption of the plastic cover of the source capsule is about 0.8 % for 279 keV gamma rays and covers of the detectors are thicker. But the same capsules were used for gamma-ray sources and the measurements were done under the same condition. Therefore, the absorption effect is included in the detector efficiency.
- b) Source position effect. In our efficiency measurements four sources (three for one case) were used at the same time. Sources were placed at 3 cm (Hiroshima) or 2 cm (Nagoya) from

the detector axis on a plastic plate which was at 20 cm from the surface of the detector case as shown in Fig. 6. Really counting rates were different for source positions on the plate. The maximum difference was about 0.7 % as shown in Fig. 7. Since the source positions were changed by cyclic order, this effect was canceled in our measurements.

c) Source to detector distance. Accuracy of the distance is within 0.2 mm, and ambiguity of the average position of source material in the capsule is also within 0.2 mm. Therefore, error of the counting rate originated from ambiguity of the distance is within 0.2 %.

d) Dead time and counting loss. To compensate this effect, four sources were measured at the same time. Two or three common gamma rays were measured for different energy range. Integrated peak counts were normalized by integrated peak counts of these common gamma rays. Then, the pulser technique ¹¹⁾ was not used for the dead time correction. Since pulse shapes are probably a little different for pulses with different energies, we were afraid that the dead time and the counting loss depend a little on the gamma-ray energy. Ratios of the counting rates of ⁴⁶Sc gamma rays to ⁶⁰Co ones were measured together with a strong ⁵⁴Mn source and without this source. This effect is negligible (<0.3 %) as shown in Table 5.

The detector efficiencies were measured by using 12 kinds of the calibration sources in Hiroshima and by 9 kinds of ones in Nagoya. For each measurement four sources (three for some cases) were placed at four source positions, and combinations of sources are shown in Table 6. Spectra were taken three times in Hiroshima and once in Nagoya in the same condition. The sources were changed by cyclic order for four positions and five standard sources were used for each nuclide. Therefore, measurements of one kind of spectrum were 60 times in Hiroshima and 20 times in Nagoya. Total integrated peak counts were about 6×10^6 in Hiroshima and 2×10^6 in Nagoya. Examples of the spectra are shown in Figs. 8 and 9.

Relative gamma-ray intensities of ⁸⁸Y and ²⁰⁷Bi were measured in Hiroshima and Nagoya. Those of ⁵⁶Co, ^{110m}Ag, ¹³³Ba, ¹³⁴Cs, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu and ¹⁹²Ir were also determined in Hiroshima. Source combinations and the number of measurements are listed in Table 7.

Gamma-ray spectra were analyzed by PDP 11/05 in Hiroshima and spectra taken in Nagoya were analyzed by a electronic computer FACOM 230-25 at Rikkyo University. Data analyses were performed as follows:

a) Background subtraction. First, several gamma-ray peaks with low background were measured and ratios of tail heights to the peak height, k_1 and k_2 were determined at 12 keV and 6 keV lower than the peak center, respectively (see Fig. 10). Energy dependences of k_1 and k_2 were obtained from these measurements (see Fig. 11). Background subtraction was done by a straight line or a quadratic curve and the shape of the response function was reproduced by using values of k_1 and k_2 .

b) Subtraction of close-lying peak. Weaker gamma-ray peak was subtracted by using the shape of a stronger close-lying gamma-ray peak (see an example in Fig. 12).

c) Integration of peak area. After background subtraction, channel counts higher than 1/50 of the peak center counts were integrated. The peak center counts were determined by Gaussian

fitting. To examine whether fluctuation of integral counts is statistical or not and also to see correlation between the integral counts and integrals of the fitted Gaussian functions, ratios of the integrated counts of the 1332 keV peak to those of the 1173 keV peak of ^{60}Co vs ratios of the Gaussian integrals were plotted in Fig. 13. Points of 63 % are in the standard deviation σ . But only 55 % data are in the standard deviation for the fitted Gaussian integrals. Therefore, we adopted the integral counts instead of the Gaussian integral.

d) Sum effect. Though the source to detector distance was 20 cm, the sum effect was not negligibly small as shown in Fig. 14. To correct this effect, the spectra of single gamma rays ^{54}Mn , ^{85}Sr and ^{203}Hg were measured and total spectra were integrated. In Fig. 15 solid circles shows total efficiency and the curve indicates the total absorption coefficient¹²⁾ normalized at experimental points. Integral of total spectrum of two gamma rays of ^{60}Co minus the value at 1173 keV on the curve is plotted at 1332 keV. Similarly, the value of ^{24}Na is obtained at 2754 keV. Since these values are in good agreement with the curve, this curve was used for correction of the sum effect. The angular correlation effect is small, but it is also corrected with the attenuation factor¹³⁾. The sum effect of cascade gamma rays were corrected for the cross over gamma rays. In addition, the sum effect with X rays was tested. For $^{108\text{m}}\text{Ag}$ the sum peak with the X rays was not observed at the source to detector distance of 20 cm, but the sum peak was observed at about 1 cm as shown in Fig. 14. For ^{133}Ba the sum peak with the X rays was observed at 20 cm (see Fig. 16). Therefore the correction is necessary to heavier elements.

Efficiency curves. Observed detector efficiencies are listed in Table 8 and plotted in Fig. 17. An example of error estimate is shown in Table 9. Ratios of efficiencies in Hiroshima to those in Nagoya are almost constant except ^{203}Hg (Table 8). Efficiency times energy is plotted in Fig. 18. These curves are zig zag type, but deviations from the average are only within $\pm 3\%$. Many efficiency curves have been proposed¹⁴⁻²⁰⁾. However these curves (Eqs. (1)~(6) in text) are not satisfactory for precision measurement. Curves given by polynomials (Eqs. (7)~(10)) are also examined (see Fig. 19), and the efficiencies divided into three parts are fitted by Eq. (5). To prove validity of the efficiency curve, χ^2 was calculated as shown in Table 10. The best fitted curve is Eqs. (9) and (10). Curves fitted by Eq. (10) are shown by broken curves in Figs. 20 and 21.

The final efficiency curves in Figs. 20 and 21 are obtained from Eq. (10) and graphical corrections. Though the high energy part looks a strange shape in the figure, the curve is smoothly interpolated in the semi-logarithmic scale as illustrated in Fig. 22. The detector efficiencies were determined with the errors of less than 0.5 % shown in Fig. 23. Our efficiency curves are compared with other efficiency curves in Fig. 24.

Experimental results. Experimental results of relative intensity measurements for ^{88}Y and ^{207}Bi are listed in Table 11 and 12, respectively. Both values of Hiroshima and Nagoya agree within experimental errors. An example of error estimate is shown in Table 13. The average values are obtained from the weighted mean, where the weights are given by the number of measurements. In addition, relative intensities of ^{56}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu and ^{192}Ir were measured

in Hiroshima. Observed gamma-ray spectra are shown in Figs. 25~31, and experimental results are listed in Tables 14~20.

Intensity balances between feeding transitions and outgoing transitions were calculated for five levels as shown in Table 21, in order to examine reliability of our measurements. The largest deviation is 0.6 % and the average is 0.32 %. Therefore our errors are reasonable.

Our results are compared with previous measurements in the tables and also in Figs 32~36. Values in figures are normalized with the sums of several strong gamma-ray intensities. Deviations are seen at 1038 keV and 2599 keV in ^{56}Co , at 1038 keV in ^{134}Cs and at 411 keV and 1086 keV in ^{152}Eu . However, our results agree with the most of values of Debertin et al. and Gehrke et al. within their experimental errors.

Gamma-ray intensities per decay are evaluated from our results of relative intensities and internal conversion coefficients ^{9, 10)} by using the well established decay schemes. These values are shown in Table 22.

In conclusion we succeeded in determining relative intensities with errors of about 0.5 % for strong gamma rays.

目 次

Summary	III
1. 序 論	1
2. 標準線源	3
2.1 標準線源の調製	3
2.2 母液の放射能濃度の測定	3
2.3 結果の算出方法	4
2.4 崩壊あたりの強度の評価値	5
3. ガンマ線の測定	7
3.1 測定器と線源	7
3.2 測定の要点	7
3.3 検出効率の測定	8
3.4 ピークの解析	9
3.5 相対強度の測定	10
4. 検出効率曲線	12
5. 実験結果と討論	15
5. 結 語	18
References	19
Tables	21
Figures	39

Contents

Summary	III
1. Introduction	1
2. Standard Sources	3
2.1 Preparation	3
2.2 Measurement of Solution Densities	3
2.3 Calculation Method	4
2.4 Evaluated Values of Gamma-Ray Intensities	5
3. Measurements of Gamma Rays	7
3.1 Instruments and Sources	7
3.2 Method of Measurements	7
3.3 Measurements of Detector Efficiencies	8
3.4 Analysis of Gamma-Ray Peaks	9
3.5 Measurements of Relative Intensities	10
4. Efficiency Curves	12
5. Experimental Results and Discussion	15
6. Conclusion	18
References	19
Tables	21
Figures	39

Figure captions

- Fig. 1. Capsule used for the gamma-ray source.
- Fig. 2. Coincidence absorption curve of ^{134}Cs .
- Fig. 3. Concentration determination of ^{60}Co solution used for standard source preparation. Nine or ten sources were made from each deluted solution.
- Fig. 4. Block diagram of the detector system used in Hiroshima.
- Fig. 5. Block diagram of the detector system used in Nagoya.
- Fig. 6. Source holder and Ge(Li) detector. Source positions are six at Hiroshima as shown in this figure and four at Nagoya.
- Fig. 7. Counting rate dependence on the source position.
- Fig. 8. Gamma-ray spectrum of standard sources observed in Hiroshima.
- Fig. 9. Gamma-ray spectrum of standard sources observed in Nagoya.
- Fig. 10. Peak shape of ^{22}Na 1275 keV gamma rays.
- Fig. 11. Tail parameters k_1 and k_2 of the gamma-ray peak observed in Hiroshima.
- Fig. 12. Subtraction of ^{134}Cs 802 keV gamma rays.
- Fig. 13. Ratios of peak areas of 1332 keV gamma rays to those of 1173 keV gamma rays. Plots indicate correlation between integrated channel counts and fitted Gaussian integral.
- Fig. 14. Sum spectrum of three ^{108m}Ag gamma rays, and sum of 723 keV gamma rays and X-rays (corner). The source to detector distance is 20 cm for the former and about 1 cm for the latter.
- Fig. 15. Total efficiency curve measured in Hiroshima.
- Fig. 16. Sum of 356 keV gamma rays and X rays in ^{133}Ba .
- Fig. 17. Efficiency curves in the logarithmic scale.
- Fig. 18. Efficiencies times energy curve.
- Fig. 19. Efficiency curve fitted by various empirical curves. a. Three logarithmic functions, Eq. (5). b. Linear combination of three exponential functions, Eq. (9). c. Exponential function, Eq. (8).

- Fig. 20. Final efficiency curve in Hiroshima.
- Fig. 21. Final efficiency curve in Nagoya.
- Fig. 22. High energy part of the final efficiency curve of Hiroshima in semi-logarithmic scale.
- Fig. 23. Errors of efficiency curves.
- Fig. 24. Comparison between efficiency curves.
- Fig. 25. Gamma-ray spectrum of ^{56}Co .
- Fig. 26. Gamma-ray spectrum of $^{110\text{m}}\text{Ag}$.
- Fig. 27. Gamma-ray spectrum of ^{133}Ba .
- Fig. 28. Gamma-ray spectrum of ^{134}Cs .
- Fig. 29. Gamma-ray spectrum of ^{152}Eu .
- Fig. 30. Gamma-ray spectrum of ^{154}Eu .
- Fig. 31. Gamma-ray spectrum of ^{192}Ir .
- Fig. 32. Comparison between relative intensity measurements for ^{56}Co .
- Fig. 33. Comparison between relative intensity measurements for $^{110\text{m}}\text{Ag}$.
- Fig. 34. Comparison between relative intensity measurements for ^{133}Ba .
- Fig. 35. Comparison between relative intensity measurements for ^{134}Cs .
- Fig. 36. Comparison between relative intensity measurements for ^{152}Eu .

1. 序 論

最近，ガンマ線強度の精密測定に関する要望が強く，特に核燃料の非破壊検査のためには高い精度が要求されている。その外，精密測定が可能になれば，核燃料の燃焼率測定，核分裂断面積の測定をはじめ，核分光学，中間子原子のX線分光，放射化分析などへの応用が期待される。

ガンマ線強度と言われているものには，崩壊あたりの強度，相対強度，試料ガンマ線強度の3種類がある。

ガンマ線の相対強度は最近の2，3のものを除き，通常3～5%で測定されている。1%程度の誤差が付けられているものもあるが，それらは誤差の見積りが不完全な場合が多い。しかし，最近1%程度のガンマ線の相対強度の測定が2，3行われた。ドイツのPTBのDebertinら¹⁻⁵⁾，米国のIdahoのGehrkeら⁶⁾，LivermoreのMeyerら⁷⁾の測定である。Debertinらは，この報告でのべるものと同じような方法で測定しており，信頼性が高いと推測される。

この報告では280 keV～2750 keVの領域において，誤差1%以下を目指としたガンマ線強度の精密測定についてのべる。このような精密測定の要点は，次にのべる3点にある。

- 1) 検出効率の校正のため信頼性のある校正用線源を作ること。
- 2) 測定方法に細い注意をはらい精度を上げること。
- 3) 測定した検出効率を内挿して効率曲線をつくること。

ガンマ線の検出効率の校正方法として，一般に次の方法が考えられる。

- 1) 崩壊強度のわかっている標準線源を用いる。
- 2) 強度が100%に近いカスケードガンマ線を用いる。
- 3) 相対強度がすでに測定され，わかっている線源を用いる。
- 4) 検出効率の計算値を用いる。
- 5) 別の検出器で校正した試料を用いる。

これらのいずれかの方法か，2，3の組合せで検出器の校正を行う。2)は賢明な方法のように思われるけれども，精密測定に利用できるものはそう多くなく，いくつかのカスケードを組合せるときに検出効率曲線の形に關係するので，補助的手段としてはよいが，この方法のみにたることはできない。3)は今までの測定値を利用するため，それ以上精度を上げることができない。4)では計算値の基礎となる電子の波動関数の精度がよくないので，ガンマ線の吸収係数の精度はあまり期待できない。それ故，1%以下の精密測定に4)は用いられない。100 keV以下は別として，検出効率の正確にわかっている検出器はないので，5)も結局は4)と同じ程度になる。古くから用いられて来たNaIの検出効率もピーク対コンプトン比もそれほど信頼性の高いものではないので，精密測定には用いられない。

最近，崩壊強度は世界のいくつかのところで0.5%以下の精度で測定されるようになり，電総研の測定が非常によいことが明らかになった。⁸⁾ それ故，もっとも信頼性の高い測定を行うためには，崩壊あたりのガンマ線強度が100%に近い核種で，崩壊強度が精密に測定された試料を沢山用意して検出効率を校正する方法がもっとも優れている。この方法は，検出効率曲線の形に

も影響されず、相対強度のみでなく、試料ガンマ強度を求めることができる。われわれは、この方法に2)を補助的に使って測定を行った。

測定にあたっては、特に次の点に注意をはらい、測定方法を改良した。

- 1) 線源の位置による検出効率の違い
- 2) 計数損失（dead timeなど）
- 3) バックグラウンドの差引
- 4) サム効果

また、検出効率曲線についても種々のものを検討した。この検出効率曲線を使って数種の核種のガンマ線相対強度を測定し、279～1332 keV の領域の強いガンマ線では0.3～0.5 % の精度の値をえた。信頼性を高めるために、広島と名古屋の2ヶ所で、それぞれ別の測定器で同じ方法で測定した。

2. 標 準 線 源

2.1 標準線源の調製

ガンマ線強度の精密測定にとって第一に重要なことは、正確な標準線源を得ることである。今回の測定に使用した標準線源は表1の ^{24}Na , ^{52}Mn , ^{90}Nb , $^{108\text{m}}\text{Ag}$ を除く8種類である。放射能濃度をあらかじめ測定した溶液の一部を図1に示すようなプラスチック製カプセルの中央のくぼみに滴下、乾燥したのち、ラッカーで固定し、さらに0.5 mm厚のプラスチックでカバーしたものを標準線源として用いた。線源自体の大きさは直径5 mmである。滴下した溶液体量は、精密直示天秤（スイス Mettler 社M 5型、感度1 μg ）を用いてピクノメータ法により求めた。この溶液体量と溶液の放射能濃度とから各線源の放射能の値を知ることができる。なお、ピクノメータ法によれば蒸発の影響が軽微であるから、比較的高い精度で滴下溶液体量を秤量することが期待できる。溶液の放射能濃度は20～30 $\mu\text{Ci/g}$ 程度のものを準備したが、線源1個あたりの放射能はおおむね1 μCi となるよう滴下量を加減した。このような手順により核種ごとにそれぞれ10個の線源を調製し、このうち5個を名古屋で、5個を広島で使用した。これらの線源強度とガンマ線のピーク計数の総和から求めた線源強度比の精度は0.5%以内である。 ^{54}Mn と ^{88}Y については、名古屋で測定した5個の線源を広島でも測定し、ガンマ強度を比較した。試料ガンマ強度の平均値は非常によい一致をしめた。

半減期などの関係から標準線源を作ることが困難であった ^{24}Na , ^{52}Mn , ^{90}Nb , $^{108\text{m}}\text{Ag}$ は相対線源として使用した。 ^{24}Na は、広島では広島大学原爆放射能医学研究所の線型加速器を用いて作ったものを使用し、名古屋では立教大学原子炉で作ったものを使用した。 ^{52}Mn は東京大学原子核研究所のFMサイクロトロンと大阪大学核物理研究センターのAVFサイクロトロンを用いて作った。 ^{90}Nb は原子核研究所のFMサイクロトロンで作った。 $^{108\text{m}}\text{Ag}$ は10数年前に購入した $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の線源の残ったものである。使用した線源は ^{24}Na が2個、 ^{52}Mn が4個、 ^{90}Nb が4個、 $^{108\text{m}}\text{Ag}$ が1個である。

2.2 母液の放射能濃度の測定

a) 母液の稀釀

標準線源の調製に用いた放射性溶液（母液）の放射能濃度の決定には、 $4\pi\beta-\gamma/4\pi X-\gamma$ 同時計数法を採用した。母液の放射能濃度が20～30 $\mu\text{Ci/g}$ もあるため、この溶液から測定試料を作製した場合には計数率が高くなりすぎ、正確な測定が保証されない。そのため、母液の一部を塩酸溶液（担体濃度0.05 mg/g）で3～4倍に稀釀して1核種につき4本の稀釀液を作り、それぞれの稀釀液から $4\pi\beta-\gamma/4\pi X-\gamma$ 計数用の試料を作製した。稀釀は、蒸発の影響を最小限にとどめるため、上部が極端にしぶられたポリエチレン製のバイヤル中で行った。稀釀率は重量法により決めた。稀釀液を4本も作る理由は、稀釀の際の誤まりを回避するとともに、稀釀率の精度を求めるためである。

b) $4\pi\beta-\gamma / 4\pi X-\gamma$ 測定用試料の作製

この稀釀液の一部をシリコン処理したピクノメータにとりわけ、ピクノメータから溶液を試料マウント ($15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ VYNS の両面に $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度の金を真空蒸着したもの) に滴下するとともに、ピクノメータの重量の差分を直示天秤によって秤量することにより、滴下溶液量を決定した。この際、天秤分銅と水溶液の空気浮力の違いによる影響も考慮し、補正を行った。滴下溶液量は $30 \sim 40 \text{ mg}$ 程度である。溶液をマウントに滴下したのち、展開剤として Ludox - SM 10^4 倍液を加え、デシケータ中で乾燥した。ただし、 ^{203}Hg の場合には硫化水素の雰囲気中で乾燥し、不溶性の硫化水銀の沈殿の生成をはかった。なお、作製した線源は、1稀釀液につき約 10 個、すなわち 1 核種につき 40 個である。

c) 計 数

$4\pi\beta-\gamma / 4\pi X-\gamma$ 計数は電総研 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数装置により行った。この装置の検出器部は箱型の 4π 計数管と 2 本の $3'' \phi \times 3''$ NaI (Tl) シンチレーション計数管とからなり、その性能は国際比較などで充分確認されているものである。 4π 計数管のフローガスには、 β 線を放射する核種については高純度メタンガス (99.98%)、電子捕獲の核種については PR ガスを用いた。NaI のシングルチャンネル分析器の窓は光電ピーク位置に設定した。複数のガンマ線を放出する場合にはエネルギーの高いピークに設定した。

計数は原則として 300 秒 づつ 7 回くり返し、統計的検定を行った。崩壊率の算出にあたっては、偶発同時計数不感時間、内部変換電子、 β 計数管の γ 感度等に関する基本的な補正を行った。また ^{134}Cs については同時計数吸収法により複雑な崩壊による影響を補正した。図 2 に ^{134}Cs の同時計数吸収曲線のデータの一例を示す。また、 ^{22}Na については消滅 γ 線と 1.27 MeV ガンマ線とのサム効果による影響をガンマ線計数管のジオメトリーを変化させることによって求め、これを補正した。なお、放射性不純物については、アンチコンプトン型 Ge (Li) スペクトロメータにより検査を行った。

2.3 結果の算出方法

ひとつの稀釀液について 10 個程度の試料の計数を行い、 j 番目の稀釀液から作った i 番目の壞変率測定結果を $(\text{No})_{ij}$ [Bq] とする。この線源の溶液量を M_{ij} [mg] とすれば、この線源の計数から得た母液の放射能濃度 A_{ij} は

$$A_{ij} = \frac{(\text{No})_{ij}}{M_{ij}} \rho_j \quad [\text{Bq}/\text{mg}]$$

となる。ここで ρ_j は稀釀液 j の稀釀率である。図 3 に ^{60}Co についての測定データを示す。 j 番目の稀釀液から作った M 個の試料による測定値の荷重平均 $(\bar{A}_j)_j = A_j$ は

$$A_j = \frac{\sum_{i=1}^M W_{ij} A_{ij}}{\sum_{i=1}^M W_{ij}}$$

で表わされる。荷重 W_{ij} は

$$W_{ij} = \left(\frac{N_c}{2 \epsilon_\beta \epsilon_\gamma - \epsilon_\beta - \epsilon_j + 1} \right)_{ij}$$

である。ただし、 N_c は i 番目の線源の同時計数の総計数、 ϵ_β はベータ計数効率、 ϵ_γ はガンマ計数効率である。

最終結果は 4 つの稀釀液のデータの荷重平均をとる。ここに荷重 W_j は各稀釀液についてのデータの標準偏差の 2 乗の逆数とする。すなわち

$$W_j = \frac{1}{\sigma_j^2}$$

$$\sigma_j = \frac{1}{(\bar{A}_i)_j} \left[\frac{\sum_{i=1}^M \left\{ W_{ij} (A_{ij} - (\bar{A}_i)_j)^2 \right\}}{\sum_{i=1}^M W_{ij} (M-1)} \right]^{1/2}$$

である。最終結果の統計誤差としては、

$$\sigma_1 = \frac{1}{\bar{A}_j} \left[\frac{\sum_{j=1}^4 W_j (A_j - \bar{A}_j)^2}{\sum_{j=1}^4 W_j (4-1)} \right]^{1/2}$$

$$\sigma_2 = \left[\sum_{j=1}^4 \left(\frac{1}{\sigma_j^2} \right) \right]^{-1/2}$$

を求め、 σ_1 と σ_2 の大きい方を採用した。

系統誤差は、放射性不純物、 $\beta - \gamma$ 同時計数のタイミング、溶液量の秤量誤差、溶液の蒸発の影響、アフターパルス、半減期の誤差の影響、 β 計数管の γ 感度の不確かさの影響などの各成分を求めた。これらの値の一例を表 2 に示す。全系統誤差は、これらの各成分の算術和により求めた。全統計誤差は、原液の放射線と各線源の標準偏差の 2 乗和より求めた。核種別にこれらの全系統誤差と全統計誤差を表 3 に示した。これとは別に核種ごとの全系統誤差と線源ごとの統計誤差の 2 乗和を求めたものを表 1 の線源強度の欄に記した。

2.4 崩壊あたりの強度の評価値

われわれが用いた標準線源は、ガンマ線の崩壊あたりの強度が 100 % に近く、崩壊形式も確立したものである。表 1 に示した ^{85}Sr 以外の崩壊あたりの強度は内部変換係数と弱いガンマ線の強度から求めたもので、誤差 0.1 % 以下で崩壊あたりの強度 (^{108m}Ag では相対強度) が決

定されている。^{9, 10)}そのため内部変換係数、弱いガンマ線強度が誤差の2倍程度違いがでてきても、今回の測定に影響を及ぼさない。すなわち、信頼性の高い標準線源を使用したところにも今回の測定の特徴がある。

⁸⁵Sr は基底状態への電子捕獲転移の強度の測定ができないため、誤差が大きい。500 keV 付近に適当なものがないので、⁸⁵Sr を使用せざるを得なかった。

²⁴Na は半減期が短いために標準線源として使用しなかったが、1369 keV ガンマ線は、⁶⁰Co とエネルギーが近いため相対線源として利用できた。⁶⁰Co の 1332 keV と ²⁴Na の 2754 keV ガンマ線の間には、⁸⁸Y の 1836 keV ガンマ線以外に適当な標準線源がない。われわれは ⁵²Mn の 1434 keV と ⁹⁰Nb の 2319 keV ガンマ線を相対線源として利用することを試みた。そのため、⁵²Mn と ⁹⁰Nb のガンマ線の相対強度の測定を行い、弱いガンマ線の相対強度から、目的とする強いガンマ線の相対強度を求めた。これらの測定については別の機会に発表する予定である。その結果、相対強度の線源としては利用価値の高いものとなった。

^{108m}Ag は ^{110m}Ag の古い溶液を使用した。そのため比放射能はあまりよくなかったが、ガンマ線源として十分使用できるものである。また相対強度の評価値は精度がよいが、崩壊あたりの強度の評価値は精度がよくないので現在のところ精度の高い標準線源として使用できない。そのため相対強度の線源として利用した。

3. ガンマ線の測定

3.1 測定器と線源

測定は広島と名古屋でそれぞれ ORTEC 製 57 cm^3 True Coaxial 型と CANBERRA 製 55 cm^3 Closed - end 型の Ge (Li) 検出器を用いて測定した。検出器の性能を表 4 に示す。名古屋では検出器を鉛でシールドしたが、広島では大部はシールドせず一部はシールドして測定した。広島と名古屋の測定系をそれぞれ図 4 と図 5 にしめす。増巾器には ORTEC 製 472 を使用し、名古屋ではバイアス増巾器 408 をも使用した。広島の ADC は 8192 チャンネル、名古屋は 4096 チャンネルである。広島大学のデータ整理は、この PDP - 11/05 を使用した。名古屋大学のデータは立教大学の計算機 FACOM 230 - 25 で整理した。

線源はすべて同じカプセルを使用した。図 1 に示す直径 25 mm のプラスチックカプセルの中央直径 5 mm のくぼみで溶液を蒸発させ、線源とした。検出器のケースの表面から 20 cm のところに図 6 に示すような線源台を置き、検出器ケースに対して固定した。広島では中心から 3 cm、名古屋では 2 cm 中心からはなれたところに線源を置いた。測定にあたっては線源台の円形にくぼんだところに 3 ~ 4 個の線源を置き、位置の精度ができるように、線源はスプリングで固定し、同時に測定した。

3.2 測定の要点

測定にあたって特に次の点に注意した。

a) 吸収効果 線源の吸収がすべて同じになるように、同じ線源カプセルを使用した。カプセルの前面の厚さ 0.5 mm のプラスチックによる吸収は ^{203}Hg の 279 keV ガンマ線で約 0.8 % である。検出器のケースなどの吸収は、より大きいが、同じ条件ですべての測定を行い、吸収は検出効率に含めて考えたので、補正はしなかった。

b) 線源位置効果 検出器が完全には軸対称にできていないため、線源が検出器から一定の距離でも検出器の軸からはなれるとその方向により検出効率がわずかではあっても変化する。われわれの方法では、後でのべる dead time の問題をさけるため、同時に数個の線源の測定を行わねばならない。そのため、この効果をさける工夫が必要となる。測定は、先にのべたように検出器から 20 cm の距離で 3 ~ 4 個の線源を置き、これを順次おきかえて測定した。線源の場所の違いによる検出効率の差の測定結果を図 7 に示す。この差は 434 keV ガンマ線で最大約 0.7 % であった。われわれの測定では、常に線源を置き換え、それぞれの線源を 4 か所で測定し、その計数の和を用いたので、この効果は打ち消されている。

c) 線源位置不確定による誤差 線源の位置の再現性は 0.2 mm 以内であるようにした。広島では、検出器のケースと線源の距離を測定、補正した。カプセルによりわずかの差があり、またカプセル中の試料のつき工合も線源により少しほう違っている。そのための位置の誤差は 0.2

mm以内である。それ故、線源位置のための計数によれば誤差は0.2%以内である。

d) 計数損失 測定系のdead timeとサムによる計数損失について考えてみると次のようなことが言えるだろう。通常dead timeとしては波高分析器のdead timeのみが考えられ、波高分析器のlive timeを使用して測定されている。しかし、このlive timeの精度はあまり期待できないし、検出器と増巾器のdead timeも無視できない。検出器と増巾器ではrise timeまたはshaping time以内に2つのパルスがきたとき、1つのsum pulseとなる。それ故、これはdead timeというよりむしろ計数損失であろう。

パルサーを使ってlive timeを測定する方法¹¹⁾があるので、これをテストした。その結果約0.05%のバラつきがあった。パルサーのピークとガンマピークは半値巾と低エネルギーのテールが異なるので、ピークの面積積分の方法にも問題が残っている。それ故、パルサーによる方法を今回は使わなかった。

今回の実験ではdead timeの補正をさけるために、3~4個の線源を同時に測定した。エネルギー領域の違う測定を行うときにも必ず2本以上の同じガンマ線を両方のスペクトルで測定し、それらのガンマピークの面積で校正した。また、計数損失が多くなると2次効果の心配もあるのでdead timeを3%以下におさえた。

ガンマ線のエネルギーが違うとわずかではあるがパルスの形が変る。そのため、エネルギーの違うピークがうける計数損失が異なる可能性がある。通常このような影響は無視されているが、次のような方法でこの影響を測定した。⁴⁶Scと⁶⁰Coの1μCiの線源をおき、4μCiの⁵⁴Mnを追加したときと、それがないときで、889 keVと1332 keVのピークの計数損失に変化がないかをしらべた。それぞれ6回の測定の平均を表5に示す。その結果は誤差0.3%以内(すれ0.04%)で一致しているので、エネルギーによりピークがうける計数損失に差はない結論される。

3.3 検出効率の測定

先づ表1の²⁴Na、⁵²Mn、⁹⁰Nbを除く8種類の標準線源と^{108m}Ag(広島のみ)を使って、279 keV(²⁰³Hg)から1836 keV(⁸⁸Y)の間の検出効率の測定を広島と名古屋で行った。後に広島では²⁴Na、⁵²Mn、⁹⁰Nbを用い、名古屋では²⁴Naのみにより高いエネルギー領域の検出効率を測定した。

これらの測定は、先に述べた条件で測定をくり返した。4種類の線源を4か所(又は3種類を3か所)に置き、広島では3回づつ、名古屋では1回づつ測定し、線源の位置を順次サイクリックに動かし測定をくり返した。また、1つの核種で5個づつ線源があるので、4種類を5組に分けて測定をくり返した。そのため広島では $3 \times 4 \times 5 = 60$ 回、名古屋では $1 \times 4 \times 5 = 20$ 回の測定となった。エネルギー領域として広島では6領域、名古屋では4領域で測定した。そのため、広島では合計341回、名古屋では96回の測定となった。これらの測定の条件を表6にまとめた。

広島で測定したスペクトルの例を図8に、名古屋で測定したスペクトルの一部を図9に示す。強いピークの計数は約10⁴/channelで、ピークあたりは約10⁵である。ひとつのガンマ線あた

り広島で 60 回、名古屋で 20 回測定をくり返しているので、ピークあたりの計数合計は、それぞれ 6×10^6 と 2×10^6 となる。

3.4 ピークの解析

広島と名古屋で測定した数多くのガンマ線スペクトルを次のようにして解析した。解析方法は広島と名古屋で同じであるが、広島ではフロッピーディスクに納めたデータを PDP 11/05 で解析し、名古屋では、紙テープに打ちだし、その後、磁気テープに移し、立教大学の電子計算機で整理した。

a) バックグラウンドの差引 ピークのバックグラウンド差引は特に留意した。前もって单一ガンマ線を何本か測定し、図 10 に示すように低エネルギー側のテールを 2 か所定め、ピークとの比を k_1, k_2 とした。ピーク中心から 6 keV と 12 keV 低いところの前後 11 チャンネルの平均で k_1, k_2 を求めた。 k_1 と k_2 のガンマ線エネルギー依存を図 11 に示す。この曲線から求めた k_1 と k_2 により、ガンマ線スペクトルのピークとテールの形が再現するようにバックグラウンドを差引した。バックグラウンドはピークの付近で 2 次曲線と直線で近似したが、直線のほうがよい結果をあたえる場合が多かった。われわれの検出器では K_1 と K_2 は小さいので、 K_1 と K_2 の誤差と直線の引き方がピーク面積におよぼす誤差は小さい。

b) 接近したピークの差引 目的とするガンマ線に接近して他のガンマ線がある場合は、バックグラウンドの差引の他にピークの差引を行った。この第 2 のガンマ線が弱いときは目的とするガンマ線のピークの形を利用して第 2 のガンマ線を差引した。 ^{134}Cs の 796 keV ガンマ線の場合を図 12 に示す。この他、 ^{46}Sc の 889 keV と ^{88}Y の 898 keV のガンマ線の場合、および ^{85}Sr の 514 keV と消滅ガンマ線の場合について名古屋のスペクトルでは差引をした。広島では ^{88}Y を同時に測定しなかったのでその必要はなかった。

c) 面積積分 バックグラウンドの差引をした後でピークの 1/50 以上のチャンネルを加え合せた。両端のチャンネルには端数を考えた。ピークの高さを決めるために、ティルの部分を除きピークをガウス関数で適合させ、その中心値を採用した。このようにして求めた積分のバラツキが統計的なもののみかどうかをしらべるため、図 13 に ^{60}Co の 1332 keV と 1173 keV ガンマ線のピーク面積の比を横軸に、2 つのピークに適合したガウス関数の積分の比を縦軸にプロットした。この図からわかるように両者は相関はあるが、単純な比例関係ではない。また、ピーク面積がポアソン分布するとして求めた標準偏差の範囲を点線で表した。この範囲に入るデータはピーク面積を取った方が 63%，ガウス積分が 55% であった。期待される値は 68% であるから、われわれはチャンネルごとの計数を加え合せる方法を採用した。

d) サム効果 サム効果をできるだけさけるために、線源を検出器から 20 cm 遠ざけて測定した。しかし、サム効果を無視することはできないので、先づサムスペクトルを測定した。 ^{108m}Ag のスペクトルを図 14 に示す。サムピークは約 10^{-3} である。しかし、サム効果は、ピーク同志のサムのみでなく、ピークとコンプトンのサムが大きいから、サム効果の補正をするためには、全検出効率を求める必要がある。全検出効率は単一ガンマ線である ^{54}Mn , ^{85}Sr , ^{203}Hg について全スペクトルを測定し、低エネルギー部の数 10 チャンネルを外挿し、それを

積分して求めた。これら3つの値を全吸収断面積¹²⁾に係数をかけ内挿した。この曲線を図15に示す。高いエネルギーの単一ガンマ線がないので、⁶⁰Coの2つのγ線の全検出効率の和を求め、1173 keV ガンマ線については曲線上の値をとり、測定値との差を1332 keV ガンマ線の全検出効率とした。図15に示すように、この値は曲線とよく一致している。²⁴Naについても同様なことを行い、1369 keV ガンマ線の値を曲線上に仮定し、2754 keV の値を求めた。それ故、図15の曲線を全検出効率に利用した。同様の方法で鉛シールドをしたときの全検出効率も測定した。

2本続けて放射されるガンマ線と平行にクロスオーバ・ガンマ線が放射されるとき、2本のガンマ線のサムピークがクロスオーバ・ガンマ線のピークのところにくる。それ故、クロスオーバ・ガンマ線の強度を求める際にこの分を差引しなければならない。特にクロスオーバ・ガンマ線が弱いとき、この効果は相対的に大きくなる。なお、この補正はピーク面積とピークの検出効率の積から求められる。この効果は標準線源では考える必要はないが、相対強度測定では無視することができないことがある。

サム効果の補正には角相関を考慮しなければならない。角相関は

$$W(\theta) = 1 + \frac{J_2}{J_0} G_2 A_2 P_2(\cos \theta) + \frac{J_4}{J_0} G_4 A_4 P_4(\cos \theta)$$

で表わされる。A₂, A₄は角相関係数、G₂, G₄は核外場による減衰係数、J₂/J₀, J₄/J₀は検出器の大きさのための減衰係数である。線源は塩化物を蒸発したものが多く、中間状態の寿命が短いので、G₂ ≈ 1, G₄ ≈ 1とみなすことができる。J₂/J₀, J₄/J₀は計算値¹³⁾を用いた。 $\theta = 0$ における角相関は $4^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 0^+$ 転移で $W(0) \approx 1.11$ である。それ故、角相関の影響は無視できる程度である。

通常、考慮されていないが、原子番号が大きいものでは、電子捕獲のとき、および強い内部変換がカスケードにあるときはX線とのサム効果も無視することはできない。原子番号が50以下のものはX線エネルギーが低く、吸収が大きいので、この効果を無視することができる。^{108m}Agの場合、検出器から20 cmに線源を置いてもX線とのサムは観測できなかった。しかし、線源を約1 cmに近づければ、約1/300のサムが測定された。これを図14の右上に示す。¹³³Baの356 keV ガンマ線とX線とのサムピークが測定された。線源を検出器から20 cmの距離においていたときのスペクトルを図16に示す。その強さは0.08 %で、¹³³Baでは補正が必要である。しかし、²⁰³Hgの場合は β^- 崩壊であり、²⁰⁷Bi 1064 keV ガンマ線の場合は異性体転移でX線はサムとならないので、補正の必要はない。

3.5 相対強度の測定

検出効率の測定に引きつづき、多くのガンマ線の相対強度の測定を行った。先ず、⁸⁸Yと²⁰⁷Biのガンマ線の相対強度を広島と名古屋で行った。⁸⁸Yは名古屋では検出効率の測定と同時に測定した。この外、広島において^{110m}Ag, ¹³³Ba, ¹³⁴Cs, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ¹⁹²Irの相対強度の測定を行った。測定方法は、標準線源の場合と同じであるが、¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu

^{207}Bi の線源は1種類1個である。また、 ^{56}Co の測定を広島と名古屋で行ったが、現在広島のデータのみ整理を終ったところである。

各測定における線源の組み合せと測定の回数を表7に示す。標準線源と同じ場所に線源を順次置き換えて測定したので、広島の測定は合計828回、名古屋では64回におよんだ。

測定は、2年以上の年月を費した。その間に検出器の検出効率が変化する可能性があるが、この期間を通じて誤差の範囲内で ^{60}Co の検出効率の変化は認められなかった。

4. 検出効率曲線

Ge (Li) 検出器の場合、ガンマ線のエネルギーと検出効率の両者の対数が直線に近いことは、よく知られており、検出効率の内挿には、いわゆる log - log 直線が利用されて来た。しかし、200 keV 以下と 2 MeV 以上で、この直線性からずれることは今までの多くの実験から明らかである。理論的に log - log 直線になる理由は明らかではないし、むしろ指数関数に近い形になる方が当然のように考えられる。

Ge (Li) 検出器の効率曲線については、現在まで多くの論文が発表されている。検出効率を計算した論文も沢山あるが、検出効率を測定し、経験的あるいは半経験的に効率曲線を求めたものも数多くある。これらについてここでは詳細に検討する余裕はないが、代表的なものについて以下にのべておこう。

初期の実験では Freeman and Jenkin¹⁴⁾ が、次のような半経験式を使って実験とよい一致をしめしている。

$$\epsilon \propto \tau + \sigma A \exp(-BE) \quad (1)$$

τ は光電効果、 σ はコンプトン効果の吸収係数、E はガンマ線エネルギー、A と B はパラメータである。また Kane and Mariscotti¹⁵⁾ は

$$\ln \epsilon = bx + cx^2 \quad (2)$$

$$x = \ln(a/E)$$

で、log - log 直線に近い曲線を表している。Mowatt¹⁶⁾ は

$$\epsilon \propto \frac{\tau + f\sigma}{\tau + \sigma} [1 - \exp \left\{ -(\tau + \sigma)P \right\}] \quad (3)$$

を提案している。f は fraction、P は thickness でパラメータとしてつかえる。East¹⁷⁾ は

$$\epsilon = \alpha_1 \exp(\beta_1 E) + \alpha_2 \exp(\beta_2 E) \quad (4)$$

を用いており、Hajnal and Klusek¹⁸⁾ はより複雑な半経験式を使用している。その他、もっともよく使われる経験式

$$\epsilon = aE^{-b} \quad \text{or} \quad \log \epsilon = \log a - b \log E \quad (5)$$

の 2 次式として

$$\log \epsilon = A + B \log E + C (\log E)^2 \quad (6)$$

がしばしば用いられている。また、(4) に E^{-2} の項が付け加えられることがある。

これら多くの提案された式について Mc Nelles and Campell¹⁹⁾ および Singh²⁰⁾ がくわしい検討を行っている。しかし、これらの式と測定値の間には 1 ~ 5 % のずれがあり、パラメータが多い割に満足できるものではなく、1 % 以下の精密測定には利用できない。

広島と名古屋で標準線源を測定し、先の章で述べた方法により求めた検出器の検出効率を表 8 に示す。その誤差は、それぞれの線源で誤差の成分を求め、その 2 乗和により計算した。⁶⁰Co の場合の例を表 9 に示す。線源の系統誤差と統計誤差は表 2 で求めたものである。表 9 の評価が

ンマ線強度は、表1の崩壊あたりの強度の誤差である。半減期の項は、線源強度を測定してからガソマ線測定をした日までに期間があるため、表1に示した半減期の誤差から生じたガソマ線強度の誤差である。ピーク面積の項は、ピークのテールの形を決める係数 k_1 と k_2 の誤差、ピークの計数の統計誤差、バックグラウンドの差引における形と計数の誤差に分けた。線源と検出器の距離の項は、カプセル中の試料の位置の誤差、カプセルと検出器の距離の誤差を含めた。サムの補正の誤差は主として図15の曲線の誤差である。われわれの測定は、表5に示すように、何回にも分けて測定している。各測定に共通のガソマ線が2本以上あるので、その計数値により規格化した。その誤差が最後に示したものである。これらの誤差のなかで一番大きいのは、線源の誤差と線源と検出器の距離の誤差である。

^{108m}Ag , ^{52}Mn , ^{90}Nb , ^{24}Na は相対強度を求め、それぞれ 614, 936, 1129, 1369 keV ガソマ線の効率を検出効率曲線上にとり、他方のガソマ線の効率を求めた。 ^{24}Na 以外は広島のみの測定である。 ^{203}Hg を除けば、広島と名古屋の測定値の比は全エネルギーの領域ではとんど一定であり、表8の値の ^{203}Hg を除く平均は 1.1776 ± 0.0064 であった。これは、検出効率のエネルギー依存性が非常に似ていることをしめしている。この傾向をしめすために2つの検出効率の対数を図17に示した。名古屋の ^{203}Hg の測定値は誤差が大きいので、この付近の広島と名古屋のずれについては何とも言えない。

われわれも、先に述べた半経験式のいくつかについて今回の測定値を適合させてみたが、あまりよい一致はえられなかった。驚くべきことには、 ϵE は全領域にわたって $\pm 3\%$ 程度しか変化しない。すなわち

$$\epsilon = a E^{-1}$$

により、わずか1つのパラメータで表わされることを示している。このことは $\log - \log$ 直線がこのエネルギー領域で数%の精度で成立していることを意味している。よりくわしい傾向をみるために、図18に広島と名古屋の ϵE をプロットした。この図からわかるように曲線はジグザグ型である。

検出効率曲線を1%よりよい精度で求めるためには、経験的に求める以外によい方法がないので、次にいくつかの経験式による適合を試みた。その代表的なものを次に示す。

$$\epsilon = a_0 + a_1 E + a_2 E^2 + a_3 E^3 + a_4 E^4 \quad (7)$$

$$\epsilon = a_0 \exp(a_1 E + a_2 E^2 + a_3 E^3 + a_4 E^4) \quad (8)$$

$$\epsilon = a_1 \exp(b_1 E) + a_2 \exp(b_2 E) + a_3 \exp(b_3 E) \quad (9)$$

$$\epsilon = \exp\left[\frac{a_{-1}}{E - b} + a_0 + a_1(E - b)\right] \quad (10)$$

これらの中では(7)式の一致が一番よくなかった。(8)式を広島の値と最小2乗法で適合させたものを図19に示す。測定値とのずれは明らかで、その大部分は系統的なものであり、パラメータが多い割にはあまり満足すべきものではなかった。(9)式は図19に示すように ^{203}Hg と ^{88}Y 付近を除き、よい一致を示した。(10)式は図20と図21の点線で示すように ^{88}Y 付近を除き実験値によく適合させることができた。次に図18の ϵE がジグザグ型をしていることか

ら、全領域を 280～500 keV, 500～1400 keV, 1400～2740 keV の 3 領域に分け、それを (5) 式で合せた。その結果を図 19 に示した。その結果は比較的よい。

これらの曲線と測定値の一致の具合をみるために χ^2 を求めた。式 (5), (8), (9), (10) と 3 分割の式 (5) により適合を試みたときの χ^2 を表 10 に示した。広島の χ^2 値が名古屋より大きいものが多いのは、測定値が多いためである。広島の χ^2_{ν} 値が大きいものが多いのは、 ^{46}Sc の 889 keV の値がずれていることと名古屋にない ^{90}Nb の値が適合しにくいためである。 χ^2_{ν} 値を見るかぎりでは、式 (9), (10) と 3 分割した式 (5) の間で大差はない。また、図 19～21 を見れば、3 者とも系統的なずれが残っている。3 分割したものには無理があるし、式 (9) は 400 keV 以下で曲り過ぎているように思われる。それ故、最終的には、(10) 式をグラフ上で補正したものを使用した。広島と名古屋の最終的な検出効率曲線をそれぞれ図 20, 図 21 に実線で示した。1100 keV 以下は式 (10) の曲線をグラフ上で少しずらせたものである。なお、1400 keV 以上の曲線は奇妙な形をしていると思われるかも知れないが、図 22 に示すように E-log ε グラフでは滑らかな曲線である。2100 keV 以上では log ε は直線で、それ以下では直線から次第にずれる。名古屋のこの部分は測定値が少ないので、広島の曲線に近い形になるように検出効率曲線を決めた。図 20 では ^{46}Sc の 889 keV と ^{22}Na の 1275 keV ガンマ線の測定値が曲線からずれており、図 21 では、 ^{46}Sc の 1121 keV が下にずれ、同じ傾向がみられる。

こうして求めた検出効率曲線の誤差は、次のようにして決めた。標準線源の誤差を統計誤差と系統誤差に分け、系統誤差は標準線源相互に独立ではないとみなし、それぞれの標準線源の検出効率を ϵ_i 、その系統誤差を δ_i 、求めるガンマ線エネルギーにおける検出効率を ϵ とすれば、その系統誤差 δ は

$$\delta = \sum_{i=1}^n \frac{\partial \epsilon}{\partial \epsilon_i} \delta_i$$

で表わされる。ここに標準線源の数を n とする。 δ_i は表 3 の系統誤差を使用した。 $\partial \epsilon / \partial \epsilon_i$ は次のようにして求めた。(10) 式の a_{-1}, a_0, a_1 は ϵ_i の関数で表わされる。この a_{-1}, a_0, a_1 を(10) 式に代入し、 ϵ を ϵ_i の関数で表し、 ϵ_i で偏微分した。標準線源の統計誤差を σ_i とすれば、求めるガンマ線エネルギーの統計誤差 σ は

$$\sigma^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \epsilon_i} \right)^2 \sigma_i^2$$

となる。それ故、検出効率の誤差は $\Delta \epsilon = \sqrt{\sigma^2 + \delta^2}$ で与えられる。この検出効率曲線の誤差がどの程度か明らかにするため、広島と名古屋の場合について系統誤差、統計誤差、その 2 乗和をそれぞれ図 23 に示した。

この検出効率と他の人のものを比較するために、図 24において Debertin et al.²⁾ と Gehrke et al.⁶⁾ のものと比較した。Debertin et al. と Gehrke et al. のものはよく似ており、広島と名古屋のものはよく似ている。この傾向は、検出器の形と大きさによるものと推定される。また、検出効率曲線の確かさは、信頼性のある標準線源を多く使用しているかどうかにかかっている。

5. 実験結果と討論

検出効率は、標準線源により誤差 0.5 % 以下の精度で決定することができた。前節で述べたように、これを内挿して検出効率曲線図 20, 図 21 を求めた。この曲線には理論的裏づけはないが、比較的パラメータが少くて、測定値を再現する関数(10)式をグラフ上で修正したものである。この検出効率曲線を使用して多くの核種のガンマ線相対強度を求めた。広島と名古屋の検出効率曲線は図 18 にみられるように非常によく似た傾向を示している。

次に広島と名古屋における ^{88}Y と ^{207}Bi の測定結果をそれぞれ表 11, 表 12 に示す。両者は実験誤差の範囲でよく一致している。誤差の求め方の例として ^{207}Bi の 569 keV ガンマ線の場合を表 13 に示す。これは先に表 9 に示した ^{60}Co の誤差と同じ考え方であるが、この場合は検出効率曲線の誤差も含まれている。相対測定であるから線源と検出器の距離の誤差は含まれない。表に示されている広島と名古屋の平均値は、測定回数を荷重とした平均である。現在までの測定値とわれわれの結果を比較すれば、 ^{88}Y では Schötzig et al.¹⁾ はほぼ一致しているが、Ardisson et al.²¹⁾ のそれは大きい。 ^{207}Bi では Rao et al.²²⁾ の測定値のそれは大きいが誤差の範囲内であり、Jardine²³⁾ との一致はよい。

また、広島において測定した ^{56}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{192}Ir のガンマ線スペクトルをそれぞれ図 25～図 31 に示す。また、その結果を表 14～表 20 に示す。強いガンマ線は誤差 0.5 % 以下で測定することができた。これらの誤差は、先の表 13 と同様な方法で求めた。しかし、これらの崩壊図式が複雑なために、サム効果の補正は比較的大きくなる。例えば、 ^{56}Co の 847 keV ガンマ線で 0.34 %, 2276 keV で -5.3 %, ^{152}Eu の 1408 keV で 0.23 % の補正を行った。 ^{56}Co の 2276 keV ガンマ線の補正が負の大きな値になったのは、強いカスケード・ガンマ線のためである。なお、 ^{152}Eu と ^{154}Eu では電子捕獲と内部変換にともなう X 線のサム効果の補正も行った。例えば、その大きさは、 ^{152}Eu の 1408 keV ガンマ線で 0.12 %, ^{154}Eu の 1274 keV ガンマ線で 0.03 % であった。

これらの γ 線の誤差は、強いもので 0.3～0.5 % である。これが正しいかどうかを吟味するため、ひとつのレベルへ落めるガンマ線と内部変換電子の相対強度の和とそのレベルからでていくものの相対強度の和を求めた。 ^{56}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{134}Cs が崩壊した ^{56}Fe , ^{110}Cd , ^{134}Ba の 5 つのレベルについて両者を比較したものを表 21 に示す。内部変換電子の相対強度は、ガンマ線の相対強度に全内部変換係数の実験値または理論値を掛けたものである。この結果は、 ^{56}Fe と ^{110}Cd の 658 keV レベルで一方の誤差を上まわるそれが認められるが、両者の誤差の 2 乗和の範囲内である。また、この 5 つの場合のそれの 2 乗和の平均は 0.32 % である。それ故、われわれの測定の誤差の正当性が裏づけられたと言えるだろう。

われわれの結果と他の人の値を比較するため、 ^{56}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{152}Eu について、われわれの値からのそれを図 32～図 36 にしめした。これらの図では、それぞれの測定者のガンマ線強度の和が等しくなるよう規格化してある。ただし、弱いガンマ線は除いた。相対強度を比較するとき、一つのガンマ線強度を 100 に規格化するとその誤差のために系統的なず

れとなる。強いガンマ線の強度の和で規格化すれば、系統的な誤差が入らず、その傾向を見るのに都合がよい。

表 14 に示すように ^{56}Co の測定値と今までの測定値を比較すれば、Katou²⁴⁾の値は比較的よいが、弱いガンマ線ではかなりずれているものがある。Hautala et al.²⁵⁾の値は強度の強いものの中に誤差の何倍かのずれが認められる。彼らの論文には詳細が記されていないので正確なことはわからないが、誤差の見積が不十分なためであろう。Gehrke らの値は図 32 からわかるように、3 本のガンマ線でわずかではあるが誤差を越えてずれている。Meyer の値は強いものでもあまり一致していない。図 32 では、1038 keV と 2599 keVにおいて、特にちらばりが大きい。1038 keV はコンプトンの肩にあり、バックグラウンドの差引がむつかしく、2035 keV と 2599 keV は標準ガンマ線の ^{88}Y の 1836 keV と ^{24}Na の 2754 keV の間にあり、効率曲線を決めるににくいところである。われわれは、この間に ^{90}Nb の 2319 keV を校正に使用しているので、信頼性が高いのではなかろうか。 ^{56}Co については Debertin らの精密測定がないので、残念ながらわれわれの値と比較できない。

表 15 の ^{110m}Ag では、われわれの値は Gehrke ら⁶⁾の値と誤差の範囲でよく一致しているが、Debertin ら²⁶⁾の値とは 885 keV と 1384 keV においてずれがみられる。また、Meyer⁷⁾の値はズレているものが多い。しかし、強いガンマ線の平均で合わせた図 33 では Debertin らの 1384 keV、Meyer の 1505 keV を除き、よく一致している。

^{133}Ba の結果を Schötzig et al.⁵⁾、Gehrke et al.⁶⁾の値と比較すれば、表 16 に示すように三者はよく一致している。Meyer⁷⁾の値もほぼ誤差の範囲にある。図 34 においても、Schötzig et al.(PTB) の値は、われわれの値とよく一致している。他の Gehrke らと Meyer の値は誤差の範囲内ではあるが、系統的ずれがあることを示している。

表 17 の ^{134}Cs の場合、1038 keV ガンマ線を除き Debertin et al.⁴⁾の値と大きなずれはない。1038 keV のずれは、強度が弱いために生じた誤差ではないかと思われる。Meyer⁷⁾の値は Hise et al.²⁷⁾とほとんど変らず、誤差の範囲でわれわれの値と一致している。しかし、図 35 にみられるように、 ^{134}Cs の 1000 keV 以上の 3 本の弱いガンマ線では 1% 程度の系統的なずれがある。1168 keV と 1365 keV におけるずれは、カスケードガンマ線のサム効果の補正とちょうど同程度である。他の 3 グループの論文にはサム効果の補正についてはふれていない。それ故、このずれはサム効果の未補正のためではないかと思われる。

^{152}Eu では表 18 に示すように Debertin et al.³⁾と全領域でよく一致している。Gehrke et al.⁶⁾と比較すれば、相対強度が 20% 以下のものではずれが顕著である。Debertin²⁸⁾の値は、Debertin et al.³⁾とくらべ誤差が小さいが、われわれの値との一致はよくない。これは国際的協力により 20 数か所に試料を配布し、測定した結果を Debertin が荷重平均したものである。よくない測定値が含まれているため誤差が小さい割にずれが大きいのではないかろうか。

Meyer⁷⁾の値もあまりよく一致していない。最後の図 36 の ^{152}Eu は、411 keV と 1086 keV を除き、よく一致している。1086 keV の散らばりは、この近くに 1090 keV があり、その差引が影響している可能性がある。 ^{56}Co の 1038 keV と ^{134}Cs の 1038 keV とともに ^{152}Eu の 1086 keV に測定値の散らばりが大きいことは、この付近の検出効率曲線の決め方に問題があることを示している。しかし、411 keV と 1086 keV ではともにわれわれの値と Debertin et

al. の値は誤差の範囲で一致している。

^{154}Eu の場合、表 19 に示すように Riedinger et al.²⁹⁾ の値は、誤差が大きいが、その範囲で一致している。 ^{154}Eu には精度の高い測定がないので十分な比較ができない。

表 20 の ^{192}Ir では、Gehrke³⁰⁾ と 485 keV 以下でよく一致しているが、489 keV 以上では大きなずれがみとめられる。また、Prasad et al.³¹⁾ の値は誤差が大きい上にそれも大きい。 ^{192}Ir では外に精度の高い測定がないので、十分な比較ができない。

以上のように、精度が高いと思われる Idaho の Gehrke らと ^{56}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{152}Eu について、PTB の Debertin らとは ^{88}Y , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{152}Eu について比較することができた。その結果をまとめれば、Gehrke らの値と ^{56}Co の 3 本でわずかなずれがあり、 ^{152}Eu の 411 keV でもそれが認められる。他の強いガンマ線では、誤差の範囲で一致している。Debertin らの値とは、 ^{88}Y の 898 keV, $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の 1384 keV, ^{134}Cs の 1038 keV, ^{152}Eu の 444 keV の 4 本を除き、誤差の範囲で一致している。 ^{88}Y のそれは 4 捨 5 入の範囲であり、 ^{152}Eu の 444 keV は、図 36 ではわずかに彼らの誤差を越えているが表 18 では誤差の範囲内である。残りの 2 本も図から見れば、それはさほど大きいものではない。Gehrke らの値と比較した強いガンマ線は 24 本、Debertin らと比較できたものは 28 本、そのうち誤差を越えてずれているのは、それぞれ 4 本と 2 本であった。次にこのガンマ線の相対強度の核種ごとの和を合せるようにし、その相対強度について χ^2 を求めた。われわれの値と Gehrke らの値との差では $\chi^2 = 9.45$ (自由度 20) を、Debertin らの値との差では $\chi^2 = 5.87$ (自由度 23) をえた。

それ故、われわれの値と Gehrke らおよび Debertin らの値とは強いガンマ線ではよく一致していると結論される。

次に、今回の相対強度の測定値から、崩壊あたりの強度を求めた。内部変換係数の理論値、場合によっては実験値^{9, 10)} を使い、崩壊図式に従って、 ^{56}Co , ^{88}Y , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{134}Cs , ^{207}Bi について求めた結果を表 22 に示す。

6. 結 語

われわれは、279 keV から 2754 keV の領域でガンマ線の強度の精密測定を試み、初めの目的である 1 % の精度は十分満す誤差約 0.5 % の測定に成功した。この測定方法はさほど困難なものではなく、われわれの測定方法を使って今後 0.5 % 程度の測定は比較的容易に行うことができるであろう。われわれが使用したような精度の高い標準線源を多数得ることは容易ではないが、今回測定した 7 つの核種の相対強度の値と今後われわれが測定する値を使えば、約 0.5 % の精度で検出効率の校正を行うことができる。

今後に残された問題は 279 keV 以下と 2754 keV 以上の測定である。279 keV 以下 100 keV 付近までは今後この程度の測定を行うことが期待できるが、100 keV 以下と 2754 keV 以上の領域では、正確な標準線源がえられないで、誤差 1 % 以下の精密測定は非常にむつかしいだろう。

References

- 1) U. Schötzig, K. Debertin and H. M. Weiss, PTB-Mitteilungen 83 (1973) 307
- 2) K. Debertin, U. Schötzig, K. F. Walz and H. M. Weiss, Ann. Nucl. Energy 2 (1974) 37
- 3) K. Debertin, U. Schötzig and H. M. Weiss, PTB-Mitteilungen 85 (1975) 187
- 4) K. Debertin, U. Schötzig and K. F. Walz, PTB-Jahresbericht 87 (1977) 22
- 5) U. Schötzig, K. Debertin and K. F. Walz, Int. J. Appl. Rad. Isotopes 28 (1977) 503
- 6) R. J. Gehrke, R. G. Helmer and Greenwood, Nucl. Inst. Meth. 147 (1977) 405
- 7) R. A. Meyer in Table of Isotopes, 7th edition, Appendices compiled by C. M. Lederer et al. (1978); Lawrence Livermore Laboratory (1978) M-100
- 8) A. Rytz, Bureau International des Poids et Mesures, BIPM-77/4 (1977)
- 9) Y. Yoshizawa, H. Inoue, M. Hoshi, K. Shizuma and Y. Iwata, Japan Atomic Energy Research Institute JAERI-M 7567 (1978)
- 10) Y. Yoshizawa, H. Inoue, M. Hoshi, K. Shizuma and Y. Iwata, to be submitted
- 11) K. Debertin and U. Schötzig, Nucl. Inst. Meth. 140 (1977) 337
- 12) G. T. Chapman, Nucl. Inst. Meth. 52 (1967) 101
- 13) D. C. Camp and A. L. Van Lehn, Nucl. Inst. Meth. 87 (1970) 147
- 14) J. M. Freeman and J. G. Jenkin, Nucl. Inst. Meth. 43 (1966) 269
- 15) W. R. Kane and M. A. Mariscotti, Nucl. Inst. Meth. 56 (1967) 189
- 16) R. S. Mowatt, Nucl. Inst. Meth. 70 (1969) 237
- 17) L. V. East, Nucl. Inst. Meth.
- 18) F. Hajnal and C. Klusek, Nucl. Inst. Meth. 122 (1974) 559
- 19) L. A. McNelles and J. L. Campbell, Nucl. Inst. Meth. 109 (1973) 241
- 20) R. Singh, Nucl. Inst. Meth. 136 (1976) 543
- 21) G. Ardisson, S. Laribi and C. Marsol, Nucl. Phys. A223 (1974) 616
- 22) P. V. Rao, R. E. Wood, J. M. Palms and R. W. Fink, Phys. Rev. 178 (1969)

- 23) L. J. Jardine, Phys. Rev. C11 (1975) 1386
- 24) T. Katou, Nucl. Inst. Meth. 124 (1975) 257
- 25) M. Hautala, A. Anttila and J. Keinonen, Nucl. Inst. Meth. 150 (1978) 599
- 26) K. Debertin, U. Schötzig, K. F. Walz and H. M. Weiss, ERDA symposium
on X- and Gamma-Ray Sources and Applications, (1976) Ann Arbor
- 27) J. R. Van Hise, D. C. Camp and R. A. Meyer, Z. Phys. A274 (1975) 383
- 28) K. Debertin, Nucl. Inst. Meth. 158 (1979) 479
- 29) L. L. Riedinger, Noah R. Johnson and J. H. Hamilton, Phys. Rev. C2 (1970)
2358
- 30) R. J. Gehrke, Nucl. Phys. A204 (1973) 26
- 31) R. Prasad, L. Chaturvedi, S. N. Chaturvedi and A. K. Nigam, Nucl. Phys.
A243 (1975) 317

Table 1. Evaluated values of calibration gamma rays
and observed strengths of standard sources.

Nuclide	Half-life	Gamma-ray energy (keV)	Intensity per decay (%)	Source strength (Bq)	
				Hiroshima	Nagoya
²⁴ Na	15.03 h	2754.0 1368.6	99.8758 ± 0.0034 99.9922 ± 0.0010		
⁹⁰ Nb	14.6 h	2319.1 1129.1	81.76 ± 0.21 94.19 ± 0.09		
⁸⁸ Y	106.61 ± 0.02 d	1836.1	99.24 ± 0.07	31752 ± 109 41411 ± 138 37253 ± 126 39497 ± 133 36765 ± 124	27745 ± 97 34977 ± 119 34910 ± 118 39595 ± 133 39414 ± 132
⁵² Mn	5.67 d	1434.3 935.5	99.9931 ± 0.0007 94.89 ± 0.03		
⁶⁰ Co	5.2721 ± 0.0024 y	1332.5 1173.2	99.9813 ± 0.0015 99.89 ± 0.02	22609 ± 49 30177 ± 64 29421 ± 62 25987 ± 55 24854 ± 53	20391 ± 45 26510 ± 56 26258 ± 56 34555 ± 72 32140 ± 67
²² Na	2.602 ± 0.002 y	1274.5	99.94 ± 0.02	27339 ± 68 29762 ± 74 25365 ± 63 24604 ± 61 26700 ± 66	26996 ± 67 27450 ± 68 27891 ± 69 23047 ± 58 21679 ± 54
⁴⁶ Sc	83.82 ± 0.03 d	1120.5 889.3	99.9875 ± 0.0011 99.9829 ± 0.0017	41170 ± 93 31368 ± 73 35518 ± 82 30016 ± 71 34223 ± 79	28552 ± 68 32752 ± 76 31189 ± 73 36387 ± 83 29984 ± 71
⁵⁴ Mn	312.38 ± 0.18 d	834.8	99.976 ± 0.003	42775 ± 152 46615 ± 163 44768 ± 158 39062 ± 141 43702 ± 154	58861 ± 201 45680 ± 160 33877 ± 125 37223 ± 135 45331 ± 159
¹³⁴ Cs	2.062 ± 0.005 y	795.8 604.7	85.52 ± 0.05 97.64 ± 0.06	46702 ± 240 51438 ± 263 40178 ± 207 48426 ± 248 51495 ± 264	57309 ± 293 52879 ± 271 41720 ± 215 54808 ± 281 44433 ± 228
^{108m} Ag	127 y	722.9 614.3 434.0	100.00 ^{a)} 99.88 ± 0.04 ^{a)} 99.36 ± 0.09 ^{a)}		
⁸⁵ Sr	64.93 ± 0.15 d	514.0	98.4 ± 0.4	26097 ± 131 30776 ± 154 27522 ± 138 27737 ± 139 28595 ± 143	31740 ± 159 31883 ± 160 29751 ± 149 28253 ± 142 29778 ± 149
²⁰³ Hg	46.68 ± 0.11 d	279.2	81.48 ± 0.08	48333 ± 161 45764 ± 154 45817 ± 154 44611 ± 151 47628 ± 159	56661 ± 185 45420 ± 153 44632 ± 151 36276 ± 128 45945 ± 155

a) Relative intensity.

Table 2. Error estimate for decay rates of ^{60}Co standard sources.

Item	Error (%)	
	Hiroshima	Nagoya
Systematic error		
Radioactive impurity	+0.1	
Coincidence timing	± 0.03	
Measurement of solution	± 0.04	
Background	± 0.007	
After pulse	± 0.05	
Gamma efficiency of beta counter	± 0.01	
Total systematic error	± 0.201	
Statistical error		
Activity of original solution		± 0.031
Measurement of solution		
Source no. 1	± 0.073	± 0.080
Source no. 2	± 0.054	± 0.062
Source no. 3	± 0.056	± 0.062
Source no. 4	± 0.063	± 0.047
Source no. 5	± 0.066	± 0.051
Average	± 0.028	± 0.028
Total statistical error	± 0.042	± 0.042

Table 3. Errors of the standard sources

Nuclide	Systematic error (%)	Statistical error (%)	
		Hiroshima	Nagoya
²² Na	0.246	0.021	0.021
⁴⁶ Sc	0.214	0.042	0.044
⁵⁴ Mn	0.324	0.070	0.072
⁶⁰ Co	0.201	0.042	0.042
⁸⁵ Sr	0.496	0.046	0.045
⁸⁸ Y	0.315	0.084	0.085
¹³⁴ Cs	0.481	0.168	0.168
²⁰³ Hg	0.307	0.065	0.067

Table 4. Specifications of Ge(Li) detectors

Item	Hiroshima	Nagoya
Type	True coaxial	Closed-end coaxial
Size	41.8 mm	43.5 mm
Diameter	48.1 mm	37.5 mm
Length	57.4 cm ³	55 cm ³
Active volume	1.0 mm	0.5 mm
Diffusion depth	24 pF	22 pF
Capacitance	+4800 V	+3000 V
Bias voltage	2.0 keV	2.0 keV
FWHM at 1332 keV	37/1	35/1
Peak/Compton ratio for 1332 keV γ rays	10.4 %	10.1 %
Efficiency compared with 76mm ϕ \times 76mm NaI(Tl)		

Table 5. Test of counting loss. Ratio of counting rates of 889 keV to 1332 keV peaks with and without strong 835 keV gamma-ray counting rates.

Gamma-ray source	True time (s)	Live time of MCA (s)	Peak areas		Area ratio 889.3/1332.5
			^{46}Sc	^{60}Co	
$^{46}\text{Sc}-1$	7200	7122	0	30078 ± 84	27471 ± 75
$^{60}\text{Co}-1$					1.095 ± 0.004
$^{46}\text{Sc}-1$	7200	7032	322390 ± 255	29734 ± 83	27146 ± 75
$^{60}\text{Co}-1$					1.095 ± 0.004
$^{54}\text{Mn}-1 \sim 4$					

Table 6. Combination of sources and number of measurements for efficiency calibration.

Place of measurement	Source nuclide	Energy range (keV)	Number of source sets	Number of source positions	Number of runs	Period for each run
Hiroshima	^{54}Mn , ^{108}mAg , ^{203}Hg	250 ~ 850	5	4	60	2 h
	^{54}Mn , ^{85}Sr , ^{108}mAg	400 ~ 850	5	4	60	2 h
	^{46}Sc , ^{54}Mn , ^{85}Sr , ^{134}Cs	500 ~ 1150	5	4	60	2 h
	^{22}Na , ^{46}Sc , ^{54}Mn , ^{60}Co	800 ~ 1350	5	4	60	2 h
	^{52}Mn	700 ~ 1500	4	4	12	2 h
	^{22}Na , ^{60}Co , ^{88}Y	1150 ~ 1850	5	3	45	2 h
	^{90}Nb	800 ~ 2400	4	4	12	2 h
	^{24}Na , ^{60}Co	1300 ~ 2800	2	4	32	1 h
Nagoya	^{203}Hg , ^{85}Sr , ^{54}Mn	250 ~ 900	1	4	4	2 h
	^{85}Sr , ^{54}Mn , ^{46}Sc , ^{60}Co	500 ~ 1350	1	4	4	2 h
	^{46}Sc , ^{88}Y , ^{22}Na , ^{60}Co	500 ~ 1350	2	4	8	2 h
	^{46}Sc , ^{88}Y , ^{22}Na , ^{60}Co	1100 ~ 1850	4	4	16	2 h
	^{85}Sr , ^{46}Sc , ^{88}Y , ^{60}Co	500 ~ 1350	4	4	16	2 h
	^{85}Sr , ^{46}Sc , ^{88}Y , ^{60}Co	1100 ~ 1850	1	4	4	2 h
	^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{88}Y , ^{60}Co	500 ~ 1350	5	4	20	2 h
	^{24}Na	1300 ~ 2800	4	4	16	2 h

Table 7. Combination of sources and number of measurements for relative intensities.

Place of measurement	Source nuclide	Energy range (keV)	Number of source sets	Number of source position	Number of runs	Period for each run
Hiroshima	^{56}Co	0 ~ 1850	1	4	36	2 h
	^{56}Co	1000 ~ 2700	1	4	36	2 h
	^{56}Co	2000 ~ 3650	1	4	36	2 h
	^{88}Y , ^{60}Co , ^{54}Mn	800 ~ 1850	5	4	60	2 h
	^{207}Bi , ^{46}Sc , ^{85}Sr	500 ~ 1150	1, 5 ^{a)}	4	60	2 h
Nagoya	^{56}Co , ^{60}Co	600 ~ 1500	1	4	4	20000 s
	^{56}Co , ^{60}Co	1100 ~ 2100	1	4	4	20000 s
	^{56}Co , ^{60}Co	1700 ~ 2700	1	4	4	20000 s
	^{56}Co , ^{60}Co	2500 ~ 3500	1	4	4	20000 s
	^{88}Y , ^{46}Sc , ^{22}Na , ^{60}Co	500 ~ 1350	2	4	8	2 h
	^{88}Y , ^{85}Sr , ^{46}Sc , ^{60}Co	500 ~ 1350	4	4	16	2 h
	^{88}Y , ^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co	500 ~ 1350	5	4	20	2 h
	^{207}Bi , ^{60}Co	500 ~ 1350	1	4	4	13 h
Hiroshima	^{110m}Ag	0 ~ 1000	2	4	48	2 h
	^{110m}Ag	800 ~ 1800	2	4	48	2 h
	^{110m}Ag	1000 ~ 2000	2	4	48	2 h
	^{133}Ba	0 ~ 600	4	4	12	2 h
	^{134}Cs	500 ~ 1200	5	4	60	2 h
	^{134}Cs	700 ~ 1400	5	4	24	2 h
	^{152}Eu	100 ~ 900	1	4	36	2 h
	^{152}Eu	400 ~ 1200	1	4	36	2 h
	^{152}Eu	800 ~ 1600	1	4	36	2 h
	^{154}Eu	100 ~ 900	1	4	36	2 h
	^{154}Eu	400 ~ 1200	1	4	36	2 h
	^{154}Eu	800 ~ 1600	1	4	36	2 h
^{192}Ir	^{192}Ir	0 ~ 700	1	4	48	2 h
	^{192}Ir	550 ~ 1400	1	4	96	2 h

a) One source for ^{207}Bi while five sources for ^{46}Sc and also for ^{85}Sr .

Table 8. Detector efficiencies measured with standard sources.

Nuclide	Gamma-ray energy (keV)	Efficiencies $\times 10^4$		Efficiency ratio Hiroshima/Nagoya
		Hiroshima	Nagoya	
²⁴ Na	2754.0	0.8438 \pm 0.0028	0.7103 \pm 0.0024	1.188 \pm 0.003
⁹⁰ Nb	2319.1	1.028 \pm 0.005		
⁸⁸ Y	1836.1	1.296 \pm 0.005	1.099 \pm 0.005	1.179 \pm 0.004
⁵² Mn	1434.3	1.659 \pm 0.006		
⁶⁰ Co	1332.5	1.787 \pm 0.005	1.517 \pm 0.005	1.178 \pm 0.003
²² Na	1274.5	1.859 \pm 0.005	1.583 \pm 0.005	1.174 \pm 0.003
⁶⁰ Co	1173.2	2.015 \pm 0.005	1.707 \pm 0.005	1.181 \pm 0.003
⁴⁶ Sc	1120.5	2.098 \pm 0.006	1.769 \pm 0.005	1.186 \pm 0.003
⁴⁶ Sc	889.3	2.599 \pm 0.007	2.203 \pm 0.010	1.180 \pm 0.005
⁵⁴ Mn	834.8	2.732 \pm 0.010	2.324 \pm 0.009	1.176 \pm 0.003
¹³⁴ Cs	795.8	2.862 \pm 0.015	2.437 \pm 0.013	1.174 \pm 0.004
^{108m} Ag	722.9	3.135 \pm 0.013		
¹³⁴ Cs	604.7	3.733 \pm 0.020	3.182 \pm 0.018	1.173 \pm 0.004
⁸⁵ Sr	514.0	4.391 \pm 0.029	3.771 \pm 0.027	1.165 \pm 0.008
^{108m} Ag	434.0	5.280 \pm 0.024		
²⁰³ Hg	279.2	8.54 \pm 0.03	7.42 \pm 0.08	1.150 \pm 0.013

Table 9. Error estimate of ^{60}Co 1332 keV gamma rays

Item		Errors (%)	
		Hiroshima	Nagoya
Source	Systematic	0.201	0.201
	Statistical	0.042	0.042
Evaluated gamma-ray intensity		0.002	0.002
Half-life		0.002	0.002
Peak area	Tail k_1, k_2	0.02	0.02
	Counts	0.045 ~ 0.116	0.073
	Background shape	0.01 ~ 0.04	0.01 ~ 0.04
Source-detector distance		0.14	0.14
Sum correction	Total efficiency	0.005	0.013
	Angular correlation	0.001	0.002
Normalization of counts	^{a)}	0.030	0.154
Total		0.261	0.303

a) Normalization of integrated peak counts for different energy range spectra.

Table 10. χ^2 for various efficiency curves. χ_v^2 means the reduced χ^2 value, $\chi_v^2 = \chi^2/v$, where v is freedom. The last expression shows the final efficiency curve, where Δ means the graphical correction.

Efficiency curve	Hiroshima		Nagoya	
	χ^2	χ_v^2	χ^2	χ_v^2
$a E^{-b}$	362	2.6	212	2.1
$\exp(a_0 + a_1 E + a_2 E^2 + a_3 E^3 + a_4 E^4)$	358	3.3	55	7.9
$a_1 e^{b_1 E} + a_2 e^{b_2 E} + a_3 e^{b_3 E}$	9.0	0.9	7.2	1.2
$a_i E^{-b_i}$ ($i=1, 2, 3$)	2.1	2.1	5.1	0.9
$\exp(a_{-1}/(E-b) + a_0 + a_1(E-b))$	2.6	2.2	1.3	1.7
$\exp(a_{-1}/(E-b) + a_0 + a_1(E-b)) + \Delta$	9.2		2.8	

Table 11. Relative intensities of ^{88}Y gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)				
	Present			Schötzig et al. ¹⁾	Ardisson et al. ²¹⁾
	Hiroshima	Nagoya	Average		
898.0	94.3 \pm 0.3	94.5 \pm 0.4	94.37 \pm 0.26	94.9 \pm 0.5 ^{a)}	92.0 \pm 0.7 ^{a)}
1836.1	100.0 \pm 0.3	100.0 \pm 0.5	100.00 \pm 0.26	100	100

a) Obtained from intensities per decay

Table 12. Relative intensities of ^{207}Bi gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)				
	Present			Rao et al. ²²⁾	Jardine ²³⁾
	Hiroshima	Nagoya	Average		
569.7	100.0 \pm 0.4	100.0 \pm 0.4	100.0 \pm 0.3	100	100
897.3	0.122 \pm 0.013		0.122 \pm 0.013	0.150 \pm 0.015	0.14 \pm 0.02
1063.6	75.79 \pm 0.25	75.51 \pm 0.26	75.72 \pm 0.20	78.7 \pm 4.0	75.5 \pm 2.3

Table 13. Example of error estimate for relative intensity measurement of ^{207}Bi 569 keV gamma rays

Item	Errors	
	Hiroshima	Nagoya
Efficiency curve	0.366	0.435
Peak area	0.024	0.02
Tail k_1 , k_2	0.038	0.06
Counts	0.05	0.05
Background shape	0.005	0.01
Sum correction	0.001	0.002
Total efficiency	0.003	0.006
Angular correlation		
X-ray efficiency		
Total	0.372	0.443

Table 14. Relative intensities of ^{56}Co gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)				
	Present	Katou ²⁴⁾	Gehrke ⁶⁾ et al.	Hautala et al. ²⁵⁾	Meyer ⁷⁾
486.5	0.061 ± 0.010				0.055 ± 0.005
733.6	0.193 ± 0.012	0.219 ± 0.007		0.143 ± 0.013	0.200 ± 0.010
787.8	0.305 ± 0.013	0.311 ± 0.012		0.34 ± 0.03	0.310 ± 0.010
846.8	100.0 ± 0.3	100	100.0 ± 1.0	100	100
896.6	0.095 ± 0.018	0.089 ± 0.011		0.077 ± 0.010	0.070 ± 0.005
977.4	1.435 ± 0.016	1.386 ± 0.015	1.426 ± 0.015	1.38 ± 0.04	1.440 ± 0.015
996.9	0.129 ± 0.014			0.17 ± 0.014	0.112 ± 0.006
1037.8	14.14 ± 0.05	13.922 ± 0.116	14.04 ± 0.14	13.5 ± 0.2	14.00 ± 0.010
1089.1	0.05 ± 0.03			0.06 ± 0.02	0.050 ± 0.010
1140.3	0.131 ± 0.021	0.107 ± 0.003		0.117 ± 0.013	0.150 ± 0.010
1160.0	0.095 ± 0.014	0.095 ± 0.006		0.08 ± 0.010	0.100 ± 0.010
1175.1	2.241 ± 0.012	2.180 ± 0.024	2.28 ± 0.02	2.11 ± 0.10	2.280 ± 0.020
1198.8	0.051 ± 0.009			0.044 ± 0.008	0.050 ± 0.010
1238.3	66.06 ± 0.21	66.366 ± 0.742	66.4 ± 0.7	65.1 ± 0.4	67.6 ± 0.7
1272.0	0.025 ± 0.008			0.035 ± 0.004	0.020 ± 0.002
1335.5	0.130 ± 0.006	0.120 ± 0.003		0.12 ± 0.02	0.125 ± 0.005
1360.2	4.265 ± 0.017	4.189 ± 0.052	4.24 ± 0.04	4.24 ± 0.15	4.33 ± 0.04
1442.7	0.172 ± 0.007	0.172 ± 0.004		0.195 ± 0.010	0.200 ± 0.010
1462.3	0.084 ± 0.006	0.078 ± 0.003			0.077 ± 0.005
1640.4	0.070 ± 0.011	0.062 ± 0.003		0.050 ± 0.010	0.060 ± 0.010
1771.4	15.48 ± 0.05	15.369 ± 0.241	15.65 ± 0.16	15.26 ± 0.15	15.70 ± 0.15
1810.7	0.656 ± 0.023	0.665 ± 0.023	0.650 ± 0.007	0.59 ± 0.03	0.640 ± 0.010
1963.8	0.708 ± 0.011	0.667 ± 0.021	0.724 ± 0.008	0.70 ± 0.02	0.720 ± 0.015
2015.4	3.029 ± 0.014	3.025 ± 0.072	3.09 ± 0.05	2.97 ± 0.03	3.08 ± 0.03
2034.9	7.775 ± 0.028	7.694 ± 0.146	7.95 ± 0.12	7.64 ± 0.06	7.89 ± 0.07
2113.3	0.364 ± 0.007	0.375 ± 0.017	0.387 ± 0.008	0.34 ± 0.02	0.385 ± 0.005
2213.0	0.389 ± 0.008	0.387 ± 0.018	0.406 ± 0.009	0.39 ± 0.02	0.350 ± 0.010
2276.1	0.124 ± 0.007	0.146 ± 0.007		0.15 ± 0.02	0.110 ± 0.005
2373.5	0.083 ± 0.011			0.050 ± 0.006	0.080 ± 0.010
2523.8	0.068 ± 0.011			0.084 ± 0.009	0.060 ± 0.005
2598.6	16.96 ± 0.06	16.642 ± 0.220	17.34 ± 0.26	17.19 ± 0.15	16.90 ± 0.15
2657.4	0.021 ± 0.006			0.029 ± 0.004	

Table 15. Relative intensities of ^{110}mAg gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)			
	Present	Debertin et al. ²⁶⁾	Gehrke et al. ⁶⁾	Meyer ⁷⁾
365.4	0.091 ± 0.019			0.102 ± 0.008
387.1	0.08 ± 0.04			0.055 ± 0.001
396.9	0.06 ± 0.03			0.043 ± 0.001
446.8	3.955 ± 0.028		3.862 ± 0.039	3.89 ± 0.04
620.4	2.965 ± 0.019		2.927 ± 0.030	2.94 ± 0.05
626.3	0.228 ± 0.014			0.248 ± 0.004
657.8	100.0 ± 0.4	100.0 ± 0.7	100.0 ± 1.0	100.
676.6	} 11.09 ± 0.08			0.15 ± 0.01
677.6			11.31 ± 0.11	11.2 ± 0.1
687.0	6.80 ± 0.06		6.85 ± 0.07	6.83 ± 0.05
706.7	} 17.66 ± 0.10	17.5 ± 0.1	17.67 ± 0.18	17.28 ± 0.15
708.3				0.29 ± 0.02
744.3	5.000 ± 0.027		4.92 ± 0.05	4.93 ± 0.08
763.9	23.55 ± 0.09	23.7 ± 0.2	23.60 ± 0.24	23.6 ± 0.2
818.0	7.76 ± 0.04		7.73 ± 0.08	7.71 ± 0.05
884.7	76.76 ± 0.26	77.5 ± 0.5	76.9 ± 0.8	77.1 ± 0.6
937.5	36.31 ± 0.12	36.6 ± 0.3	36.22 ± 0.36	36.3 ± 0.3
997.2	0.142 ± 0.005			0.132 ± 0.004
1085.4	0.066 ± 0.012			0.071 ± 0.002
1117.5	0.041 ± 0.006			0.052 ± 0.001
1125.7	0.038 ± 0.008			0.030 ± 0.002
1163.2	} 0.079 ± 0.012			0.079 ± 0.007
1164.9				0.050 ± 0.005
1251.0	0.024 ± 0.007			0.026 ± 0.001
1300.0	0.025 ± 0.008			0.021 ± 0.001
1334.4	0.149 ± 0.006			0.149 ± 0.005
1384.3	25.66 ± 0.08	26.1 ± 0.2	25.70 ± 0.26	26.1 ± 0.5
1421.0	0.039 ± 0.003			
1475.8	4.220 ± 0.017		4.21 ± 0.04	4.24 ± 0.08
1505.0	13.77 ± 0.05	13.9 ± 0.1	13.84 ± 0.14	14.01 ± 0.12
1562.3	1.085 ± 0.007		1.250 ± 0.013	1.26 ± 0.02
1592.6	0.0221 ± 0.0013			0.022 ± 0.001
1629.7	0.0061 ± 0.0011			0.0046 ± 0.0005
1775.4	0.0067 ± 0.0011			0.0063 ± 0.0004
1783.4	0.0103 ± 0.0011			0.0092 ± 0.0003
1903.5	0.0158 ± 0.0015			0.016 ± 0.001

Table 16. Relative intensities of ^{133}Ba gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)			
	Present	Schötzig et al. ⁵⁾	Gehrke et al. ⁶⁾	Meyer ⁷⁾
276.4	11.53 ± 0.06	11.41 ± 0.14	11.7 ± 0.4	11.3 ± 0.2
302.8	29.48 ± 0.14	29.43 ± 0.33	29.76 ± 0.30	29.2 ± 0.3
356.0	100.0 ± 0.4	100.0 ± 0.9	100.0 ± 1.0	100.0 ± 0.3
383.8	14.39 ± 0.06	14.33 ± 0.13	14.36 ± 0.14	14.5 ± 0.2

Table 17. Relative intensities of ^{134}Cs gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)			
	Present	Hise et al. ^{27) a)}	Debertin et al. ^{4) a)}	Meyer ⁷⁾
563.1	8.57 ± 0.03	8.59 ± 0.05	8.55 ± 0.12	8.59 ± 0.09
569.2	15.78 ± 0.06	15.82 ± 0.11	15.76 ± 0.23	15.8 ± 0.2
604.7	100.0 ± 0.4	100.00 ± 0.33	100.0	100.0 ± 0.3
795.8	87.5 ± 0.3	87.58 ± 0.39	87.4 ± 0.9	87.5 ± 0.8
801.8	8.89 ± 0.03	8.95 ± 0.04	8.85 ± 0.12	8.95 ± 0.09
1038.4	1.008 ± 0.005	1.03 ± 0.01	1.023 ± 0.013	1.02 ± 0.02
1167.7	1.827 ± 0.008	1.850 ± 0.027	1.844 ± 0.020	1.85 ± 0.03
1365.0	3.074 ± 0.013	3.12 ± 0.04	3.09 ± 0.03	3.11 ± 0.04

a) Obtained from intensities per decay

Table 18. Relative intensities of ^{152}Eu gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)					Meyer ⁷⁾
	Present	Debertin et al. ³⁾	Gehrke et al. ⁶⁾	Debertin ^{28) a)}		
295.9	2.14 ± 0.04					2.11 ± 0.05
329.4	0.711 ± 0.014					0.59 ± 0.01
344.3	127.9 ± 0.6	128.3 ± 1.2	127.2 ± 1.3	127.5 ± 0.8	127.5 ± 1.9	
367.8	4.16 ± 0.04		4.19 ± 0.04			4.05 ± 0.08
411.1	10.90 ± 0.05	10.79 ± 0.16	10.71 ± 0.11	10.71 ± 0.05	10.7 ± 0.1	
443.9	15.06 ± 0.06	14.90 ± 0.14	15.00 ± 0.15	14.97 ± 0.07	14.8 ± 0.2	
488.7	2.031 ± 0.015		1.984 ± 0.023			1.95 ± 0.02
503.5	0.768 ± 0.018					0.73 ± 0.01
564.0	2.43 ± 0.04					2.36 ± 0.05
566.6	0.64 ± 0.06					0.62 ± 0.01
586.3	2.19 ± 0.08		2.24 ± 0.05			2.20 ± 0.05
656.5	0.71 ± 0.05					0.69 ± 0.01
674.6	0.94 ± 0.05					0.89 ± 0.05
678.6	2.28 ± 0.05		2.296 ± 0.028			2.21 ± 0.04
688.6	4.20 ± 0.04		4.12 ± 0.04			4.00 ± 0.08
719.3	1.67 ± 0.03					1.56 ± 0.03
764.8	0.95 ± 0.05					0.84 ± 0.04
778.8	62.16 ± 0.22	62.0 ± 0.5	62.6 ± 0.6	62.16 ± 0.27	61.9 ± 0.8	
810.4	1.56 ± 0.04					1.52 ± 0.02
841.5	0.837 ± 0.023					0.78 ± 0.01
867.3	20.33 ± 0.10		20.54 ± 0.21			19.9 ± 0.4
901.2	0.40 ± 0.05					0.44 ± 0.03
919.3	2.08 ± 0.06					2.09 ± 0.05
926.2	1.38 ± 0.06					1.27 ± 0.04
930.5	0.37 ± 0.06					0.35 ± 0.04
963.3	70.14 ± 0.23	70.0 ± 0.6	70.4 ± 0.7	70.12 ± 0.19	69.2 ± 0.9	
964.0			3.57 ± 0.07			3.10 ± 0.01
1005.1	3.078 ± 0.024					
1085.8	48.15 ± 0.16	48.0 ± 0.7	48.7 ± 0.5	48.73 ± 0.17	46.5 ± 0.7	
1089.7	8.35 ± 0.04		8.26 ± 0.09			8.2 ± 0.1
1108.9	1.00 ± 0.05					0.88 ± 0.02
1112.0	64.67 ± 0.21	64.8 ± 0.6	65.0 ± 0.7	65.04 ± 0.18	64.9 ± 0.9	
1212.9	6.85 ± 0.05		6.67 ± 0.07			6.70 ± 0.08
1249.9	0.875 ± 0.024					0.88 ± 0.05
1292.7	0.46 ± 0.03					0.49 ± 0.03
1299.2	7.80 ± 0.05		7.76 ± 0.08			7.8 ± 0.1
1408.0	100.0 ± 0.3	100.0 ± 0.7	100.0 ± 1.0	100.00 ± 0.27	100.0 ± 0.3	
1457.6	2.391 ± 0.029		2.52 ± 0.09			2.33 ± 0.03
1528.1	1.344 ± 0.013					1.27 ± 0.03

a) Obtained from intensities per decay

Table 19. Relative intensities of ^{154}Eu gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)	
	Present	Riedinger et al. ²⁹⁾
444.5	1.624 ± 0.020	1.69 ± 0.15
591.7	14.35 ± 0.06	14.8 ± 0.8
625.2	0.927 ± 0.021	0.89 ± 0.12
676.5	0.47 ± 0.05	0.43 ± 0.11
692.4	5.182 ± 0.025	4.97 ± 0.30
723.2	58.19 ± 0.21	60.1 ± 3.1
756.8	13.18 ± 0.07	12.9 ± 0.6
815.5	1.51 ± 0.05	1.38 ± 0.18
845.4	1.687 ± 0.021	1.60 ± 0.22
850.7	0.692 ± 0.023	0.60 ± 0.13
873.1	35.18 ± 0.12	34.8 ± 1.7
892.8	1.497 ± 0.026	1.31 ± 0.10
904.1	2.62 ± 0.03	2.42 ± 0.17
996.2	30.09 ± 0.12	29.4 ± 1.5
1004.7	52.04 ± 0.19	50.6 ± 2.5
1140.7	0.671 ± 0.014	0.69 ± 0.10
1241.4	0.38 ± 0.05	0.30 ± 0.07
1246.2	2.49 ± 0.04	2.40 ± 0.22
1274.4	100.0 ± 0.3	100
1494.2	2.056 ± 0.016	1.88 ± 0.09
1596.7	5.238 ± 0.026	5.15 ± 0.26

Table 20. Relative intensities of ^{192}Ir gamma rays

Gamma-ray energy (keV)	Relative intensities (%)		
	Present	Gehrke ³⁰⁾	Prasad et al. ³¹⁾
283.3	0.303 \pm 0.022	0.320 \pm 0.008	0.39 \pm 0.08
295.9	34.62 \pm 0.17	34.64 \pm 0.35	35.6 \pm 1.3
308.4	35.84 \pm 0.18	35.77 \pm 0.36	37.1 \pm 0.08
316.5	100.0 \pm 0.5	100	100
374.5	0.861 \pm 0.008	0.875 \pm 0.015	0.79 \pm 0.03
416.5	0.800 \pm 0.010	0.802 \pm 0.015	0.89 \pm 0.64
420.5	0.078 \pm 0.009	0.070 \pm 0.006	
468.1	57.50 \pm 0.23	58.0 \pm 0.9	59.7 \pm 2
484.6	3.810 \pm 0.018	3.81 \pm 0.05	4.1 \pm 0.21
489.1	0.525 \pm 0.009	0.480 \pm 0.010	0.36 \pm 0.12
588.6	5.398 \pm 0.021	5.52 \pm 0.10	5.46 \pm 0.20
593.4	0.052 \pm 0.003	0.045 \pm 0.003	0.01 \pm 0.003
604.4	9.75 \pm 0.04	10.04 \pm 0.26	10.9 \pm 0.06
612.5	6.336 \pm 0.025	6.55 \pm 0.13	6.7 \pm 0.4
884.5	0.3419 \pm 0.0024	0.364 \pm 0.007	0.45 \pm 0.03
1061.5	0.0631 \pm 0.0011	0.067 \pm 0.003	0.07 \pm 0.004
1089.9	0.0010 \pm 0.0005	0.0020 \pm 0.0007	0.003 \pm 0.0002
1378.0	0.0016 \pm 0.0005	0.0015 \pm 0.0007	0.002 \pm 0.0004

Table 21. Intensity balances between feeding and outgoing transitions.
 Symbols β , γ and ce indicate intensities of beta, gamma and internal conversion transitions, respectively.

Feeding transition				Outgoing transition			
Energy (keV)		Relative intensity (%)		Energy (keV)		Relative intensity (%)	
^{56}Fe 846.8 keV level							
1238.3	γ	66.06	± 0.21	846.8	γ	100.00	± 0.34
	ce	0.0076	± 0.0008		ce	0.030	± 0.003
1810.7	γ	0.656	± 0.023				
2113.3	γ	0.364	± 0.007				
2276.1	γ	0.124	± 0.007				
2523.8	γ	0.068	± 0.011				
2598.6	γ	16.96	± 0.06				
	ce	0.00051	± 0.00005				
3009.7	γ	1.031	± 0.025				
3202.2	γ	3.269	± 0.021				
3253.5	γ	8.03	± 0.04				
3273.2	γ	1.922	± 0.015				
3451.4	γ	0.970	± 0.010				
3548.1	γ	0.202	± 0.005				
3611.7	γ	0.0081	± 0.0012				
Total		99.67	± 0.31			100.03	± 0.34
^{110}Cd 657.8 keV level							
2235	β	0.059		657.8	γ	100.0	± 0.4
818.0	γ	7.76	± 0.04		ce	0.271	± 0.010
	ce	0.0141	± 0.0014				
884.7	γ	76.76	± 0.26				
	ce	0.111	± 0.006				
1125.7	γ	0.038	± 0.008				
1421.0	γ	0.039	± 0.003				
1505.0	γ	13.77	± 0.05				
	ce	0.0068	± 0.0008				
1562.3	γ	1.085	± 0.007				
	ce	0.00024	± 0.00012				
1592.6	γ	0.0221	± 0.0013				
1629.7	γ	0.0061	± 0.0011				
1775.4	γ	0.0067	± 0.0011				
1903.5	γ	0.0158	± 0.0015				
2004.7	γ	0.0011	± 0.0002				
Total		99.7	± 0.4			100.3	± 0.4

Table 21. Continued.

Feeding transition			Outgoing transition		
Energy (keV)		Relative intensity (%)	Energy (keV)		Relative intensity (%)
¹¹⁰ Cd 1475.8 keV level					
603.1	γ	0.0042 \pm 0.0009	818.0	γ	7.76 \pm 0.04
687.0	γ	6.80 \pm 0.06		ce	0.0141 \pm 0.0014
	ce	0.0181 \pm 0.0023	1475.8	γ	4.220 \pm 0.017
744.3	γ	5.000 \pm 0.027		ce	0.0020 \pm 0.0003
	ce	0.0114 \pm 0.0013			
774.8	γ	0.002 \pm 0.001			
957.4	γ	0.008 \pm 0.001			
1085.4	γ	0.066 \pm 0.012			
1186.7	γ	0.0015 \pm 0.0005			
Total		11.91 \pm 0.09			11.99 \pm 0.06
¹¹⁰ Cd 1542.4 keV level					
620.4	γ	2.965 \pm 0.019	884.7	γ	76.76 \pm 0.26
	ce	0.0108 \pm 0.0015		ce	0.111 \pm 0.008
677.6	γ	11.09 \pm 0.08			
	ce	0.032 \pm 0.003			
708.3	γ	0.29 \pm 0.02			
937.5	γ	36.31 \pm 0.12			
	ce	0.049 \pm 0.005			
997.2	γ	0.142 \pm 0.005			
1018.9	γ	0.015 \pm 0.001			
1117.5	γ	0.041 \pm 0.006			
1163.2	γ	0.079 \pm 0.012			
1164.9	γ				
1251.0	γ	0.024 \pm 0.007			
1300.0	γ	0.025 \pm 0.008			
1334.4	γ	0.149 \pm 0.006			
1384.3	γ	25.66 \pm 0.08			
	ce	0.0162 \pm 0.0018			
Total		76.90 \pm 0.30			76.87 \pm 0.26
¹³⁴ Ba 604.7 keV level					
1454	β	< 0.005	604.7	γ	100.0 \pm 0.4
563.1	γ	8.57 \pm 0.03		ce	0.59 \pm 0.06
	ce	0.068 \pm 0.003			
795.8	γ	87.5 \pm 0.3			
	ce	0.264 \pm 0.026			
1038.4	γ	1.008 \pm 0.005			
	ce	0.00203 \pm 0.00012			
1365.0	γ	3.074 \pm 0.013			
	ce	0.00292 \pm 0.00029			
Total		100.5 \pm 0.4			100.6 \pm 0.4

Table 22. Intensities per decays of ^{56}Co , ^{88}Y , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{133}Ba , ^{134}Cs and ^{207}Bi gamma rays

Nuclide	Gamma rays		Nuclide	Gamma rays	
	Energy (keV)	Intensity per decay (%)		Energy (keV)	Intensity per decay (%)
^{56}Co	486.5	0.061 ± 0.010	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	706.7	16.70 ± 0.12
	733.6	0.193 ± 0.012		708.3	
	787.8	0.305 ± 0.013		744.3	4.73 ± 0.03
	846.8	99.920 ± 0.007		763.9	22.26 ± 0.13
	896.6	0.095 ± 0.018		818.0	7.33 ± 0.05
	977.4	1.434 ± 0.016		884.7	72.57 ± 0.41
	996.9	0.129 ± 0.014		937.5	34.33 ± 0.20
	1037.8	14.13 ± 0.07		997.2	0.134 ± 0.005
	1089.1	0.05 ± 0.03		1085.4	0.062 ± 0.012
	1140.3	0.131 ± 0.021		1117.5	0.039 ± 0.005
	1160.0	0.095 ± 0.014		1125.7	0.036 ± 0.007
	1175.1	2.239 ± 0.014		1163.2	0.075 ± 0.011
	1198.8	0.051 ± 0.009		1164.9	
	1238.3	66.0 ± 0.3		1251.0	0.023 ± 0.007
	1272.0	0.025 ± 0.008		1300.0	0.024 ± 0.008
	1335.5	0.130 ± 0.006		1334.4	0.141 ± 0.005
	1360.2	4.262 ± 0.022		1384.3	24.25 ± 0.14
	1442.7	0.172 ± 0.007		1421.0	0.037 ± 0.003
	1462.3	0.084 ± 0.006		1475.8	3.990 ± 0.024
	1640.4	0.070 ± 0.011		1505.0	13.02 ± 0.07
	1771.4	15.47 ± 0.07		1562.3	1.03 ± 0.08
	1810.7	0.655 ± 0.023		1592.6	0.0209 ± 0.0012
	1963.8	0.707 ± 0.011		1629.7	0.0058 ± 0.0010
	2015.4	3.027 ± 0.017		1775.4	0.0063 ± 0.0010
	2034.9	7.77 ± 0.04		1783.4	0.0097 ± 0.0010
	2113.3	0.364 ± 0.007		1903.5	0.0149 ± 0.0014
	2213.0	0.389 ± 0.008	^{133}Ba	276.4	7.15 ± 0.03
	2276.1	0.124 ± 0.007		302.8	18.28 ± 0.06
	2373.5	0.083 ± 0.011		356.0	62.00 ± 0.14
	2523.8	0.068 ± 0.011		383.8	8.92 ± 0.04
	2598.6	16.95 ± 0.08	^{134}Cs	563.1	8.37 ± 0.05
	2657.4	0.021 ± 0.006		569.2	15.40 ± 0.08
^{88}Y	898.0	93.7 ± 0.4		604.7	97.64 ± 0.06
	1836.1	99.24 ± 0.07		795.8	85.52 ± 0.05
				801.8	8.68 ± 0.04
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	365.4	0.086 ± 0.018		1038.4	0.984 ± 0.006
	387.1	0.07 ± 0.03		1167.7	1.783 ± 0.010
	396.9	0.06 ± 0.03		1365.0	3.001 ± 0.017
	446.8	3.739 ± 0.027	^{207}Bi	569.7	97.74 ± 0.03
	620.4	2.803 ± 0.019		897.3	0.119 ± 0.012
	626.3	0.216 ± 0.013		1063.6	74.0 ± 0.3
	657.8	94.54 ± 0.20			
	676.6	10.48 ± 0.09			
	677.6				
	687.0	6.43 ± 0.06			

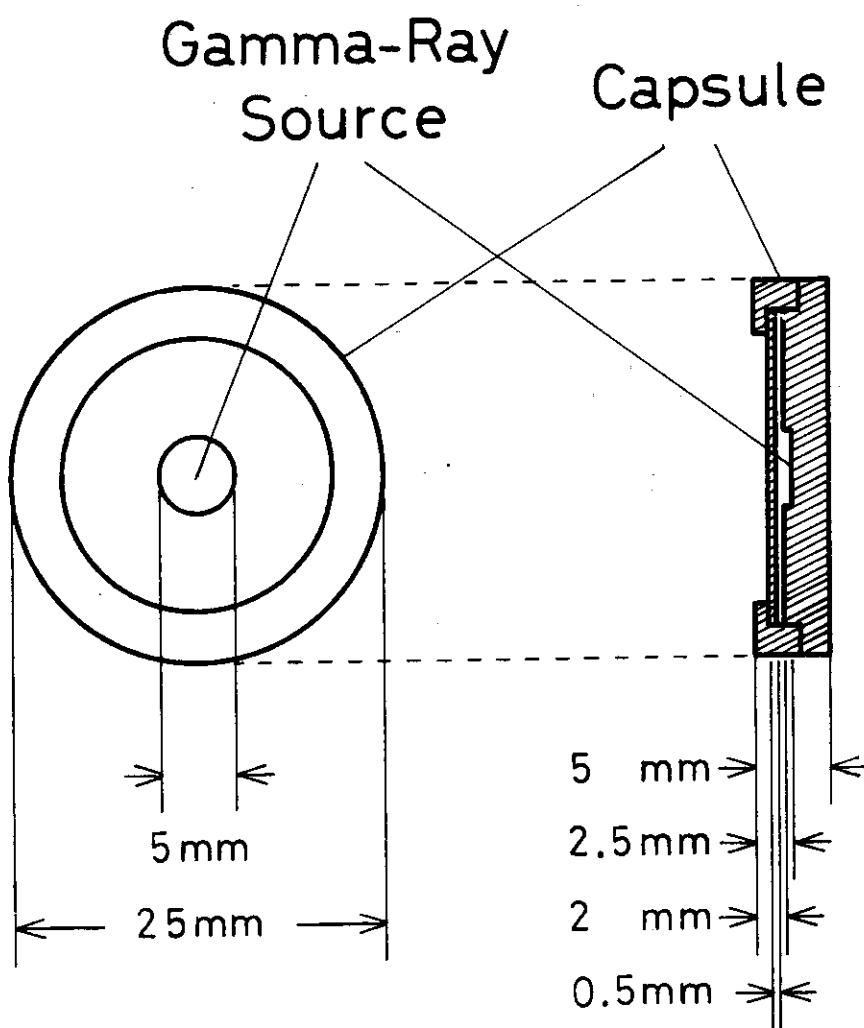
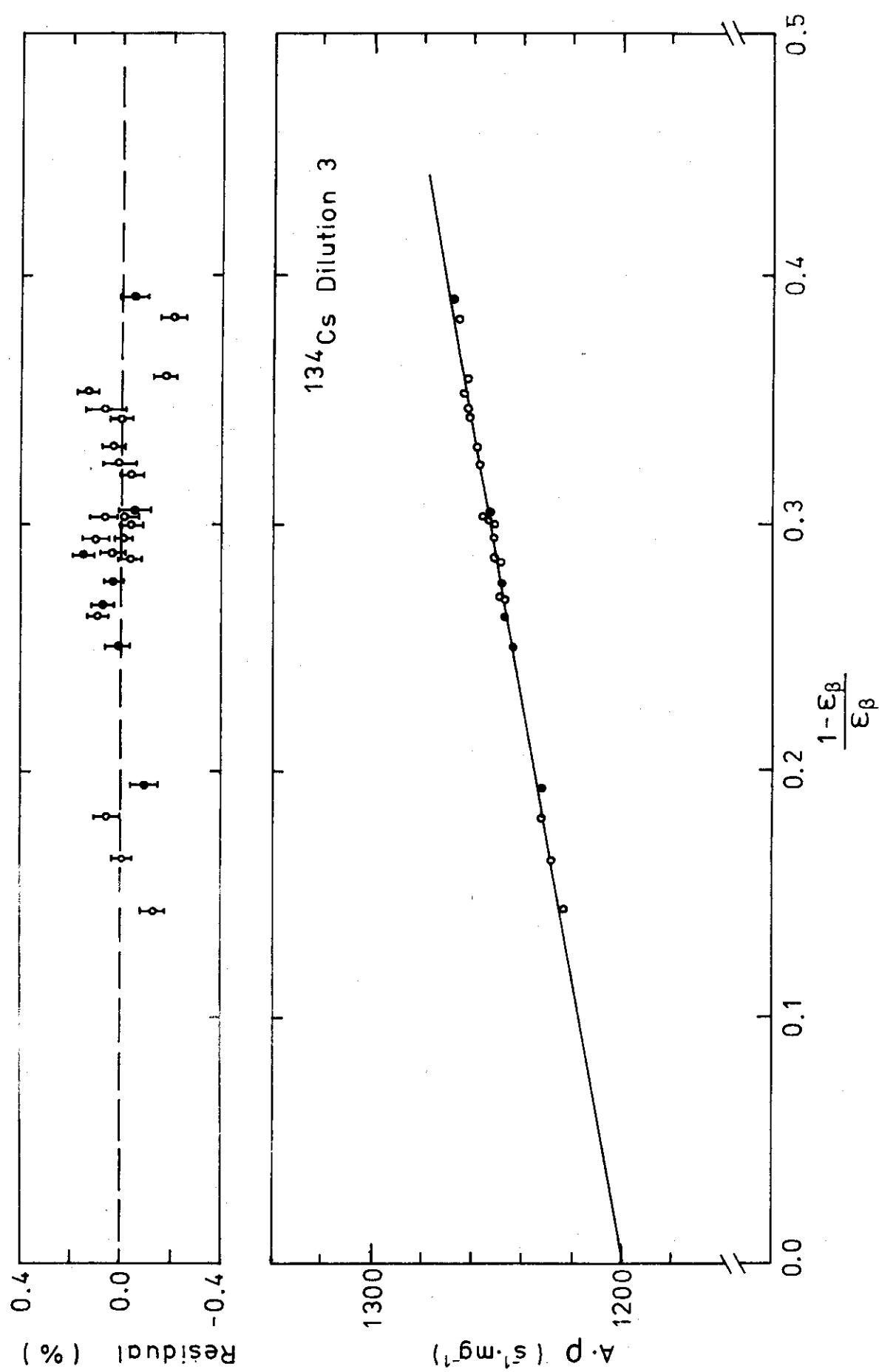


Fig. 1. Capsule used for the gamma-ray source.

Fig. 2. Coincidence absorption curve of ^{134}Cs .

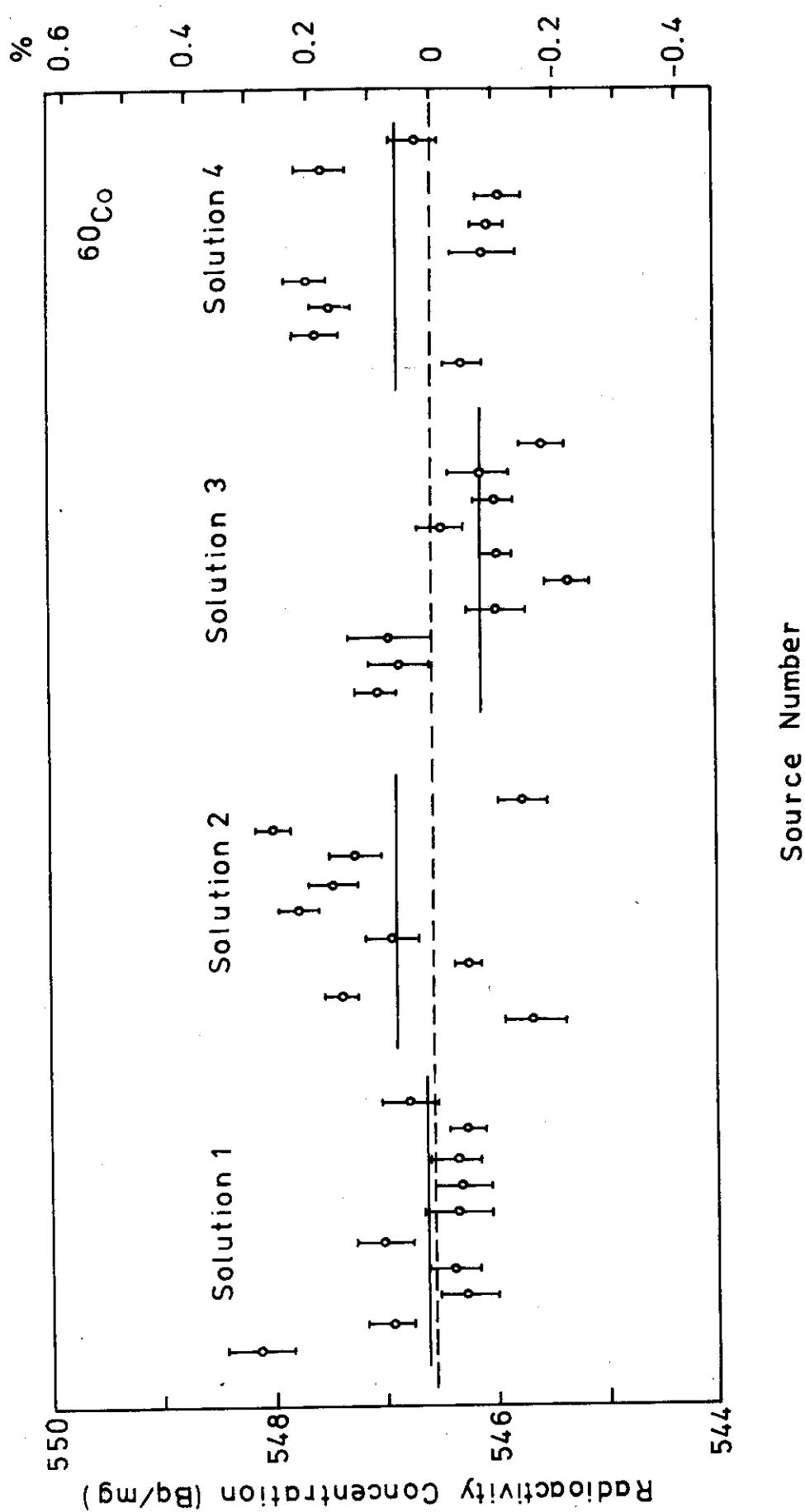


Fig. 3. Concentration determination of ^{60}Co solution used for standard source preparation. Nine or ten sources were made from each deluted solution.

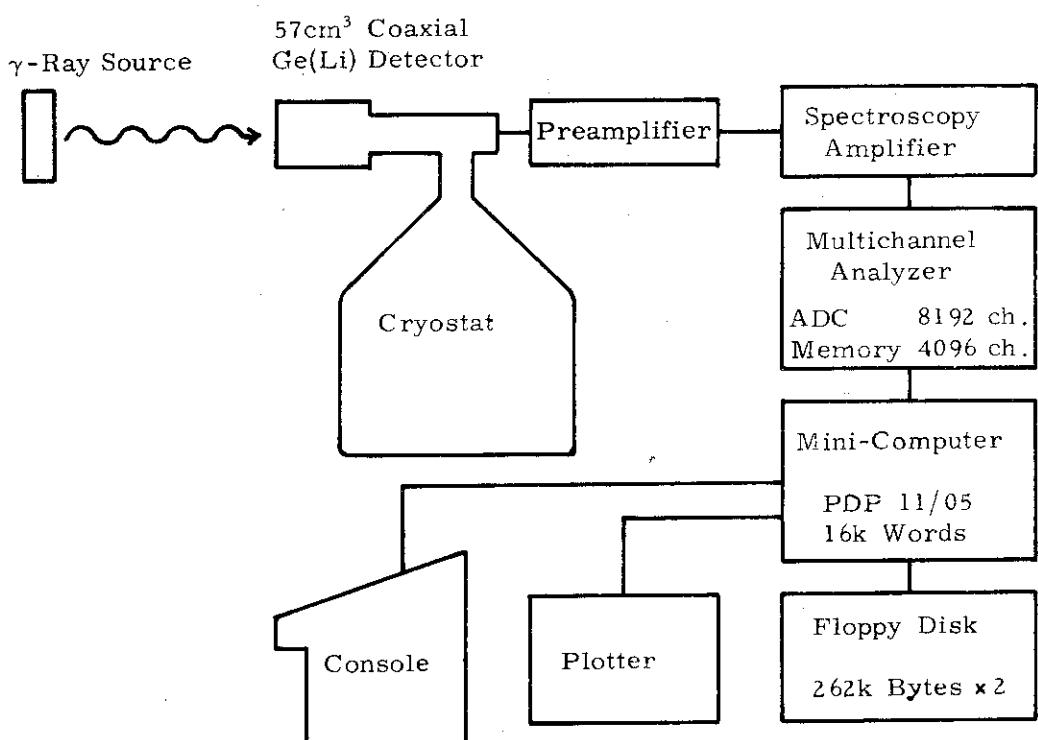


Fig. 4. Block diagram of the detector system used in Hiroshima.

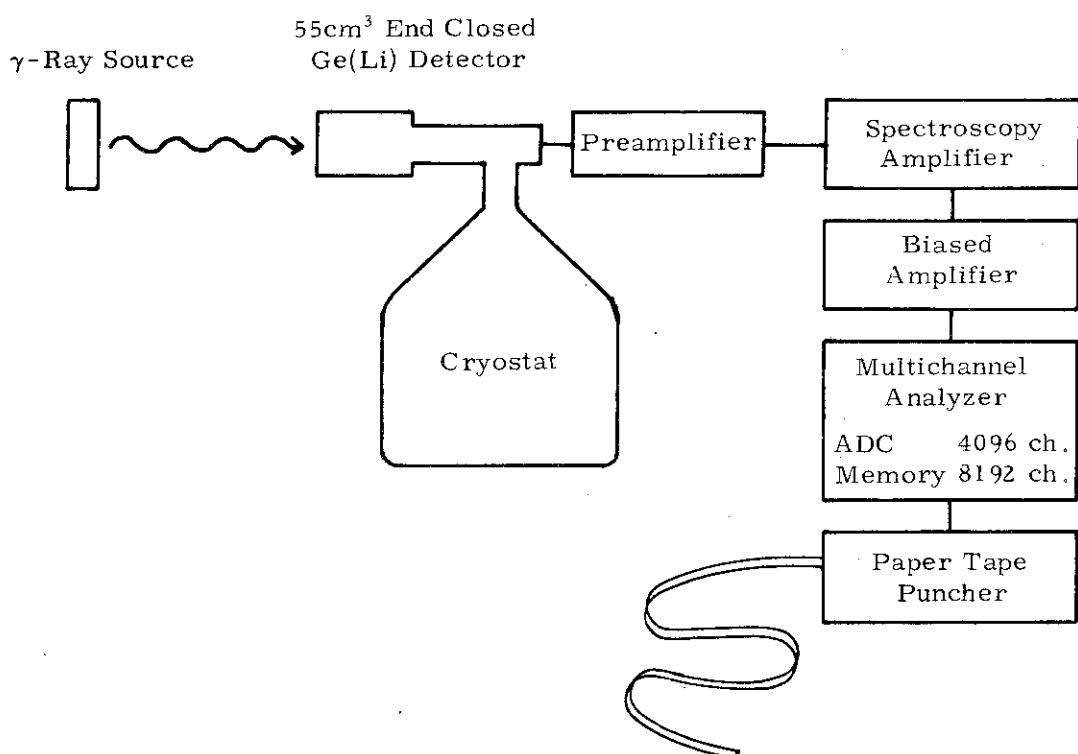


Fig. 5. Block diagram of the detector system used in Nagoya.

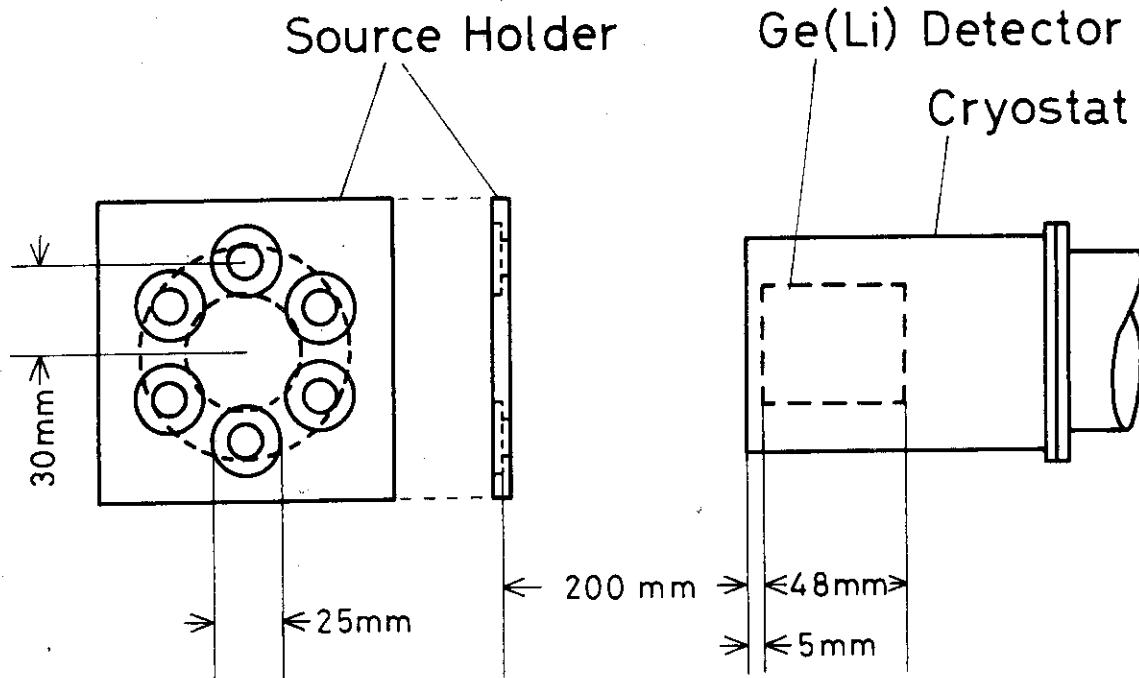


Fig. 6. Source holder and Ge(Li) detector. Source positions are six at Hiroshima as shown in this figure and four at Nagoya.

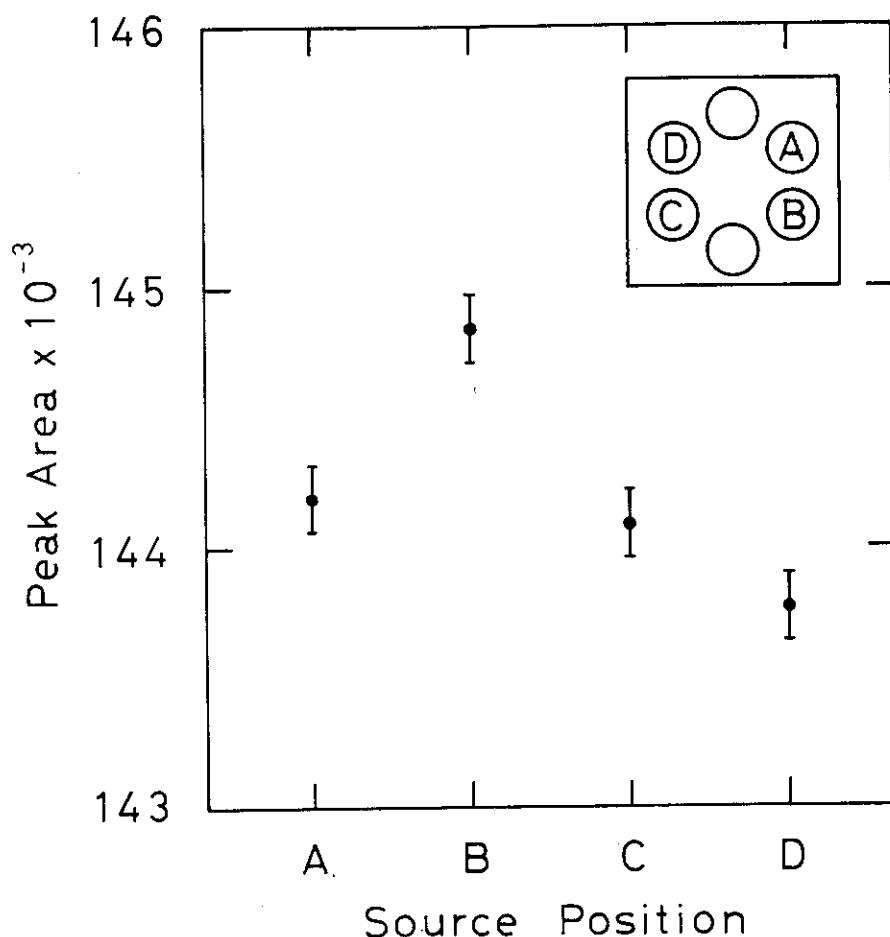


Fig. 7. Counting rate dependence on the source position.

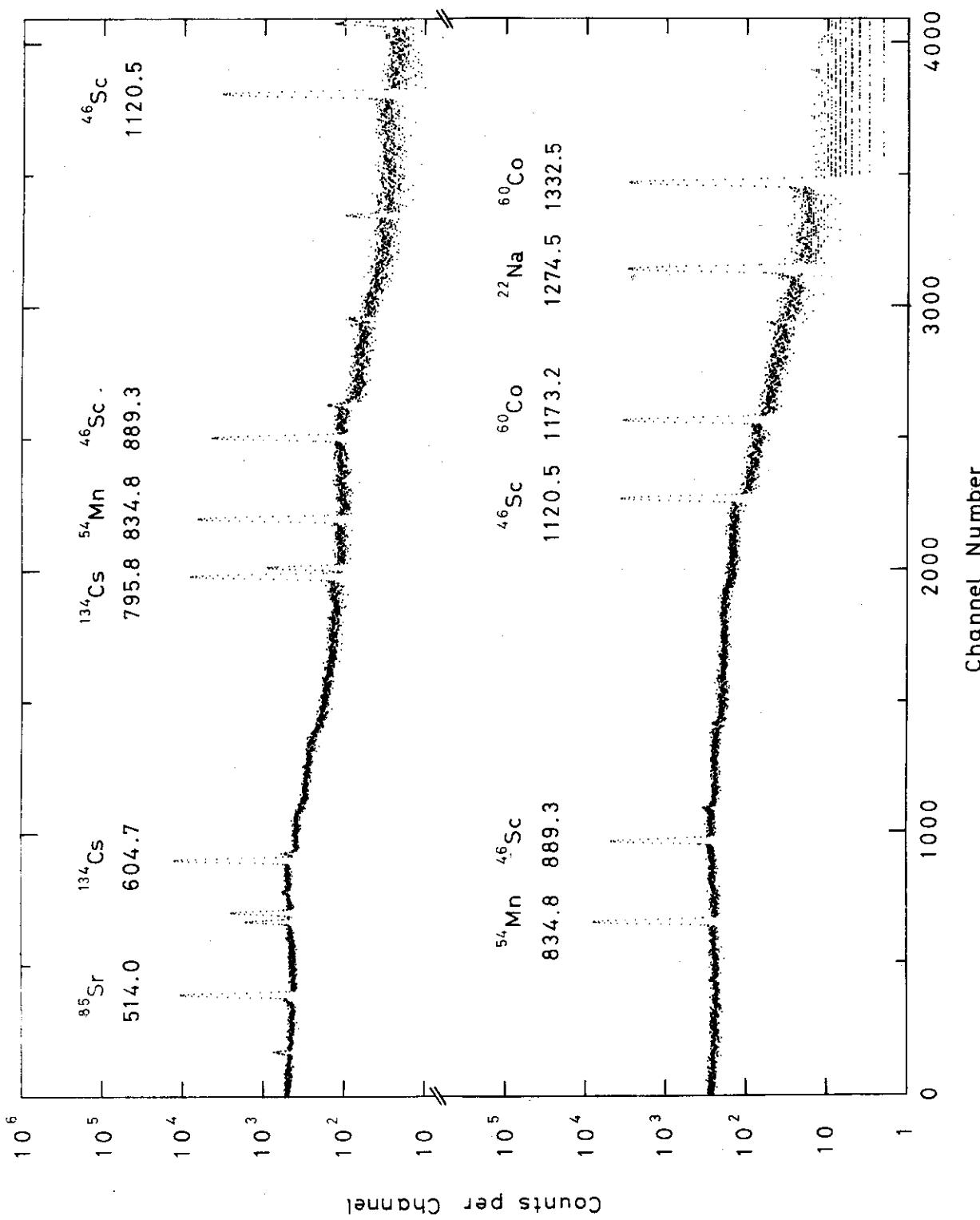


Fig. 8. Gamma-ray spectrum of standard sources observed in Hiroshima.

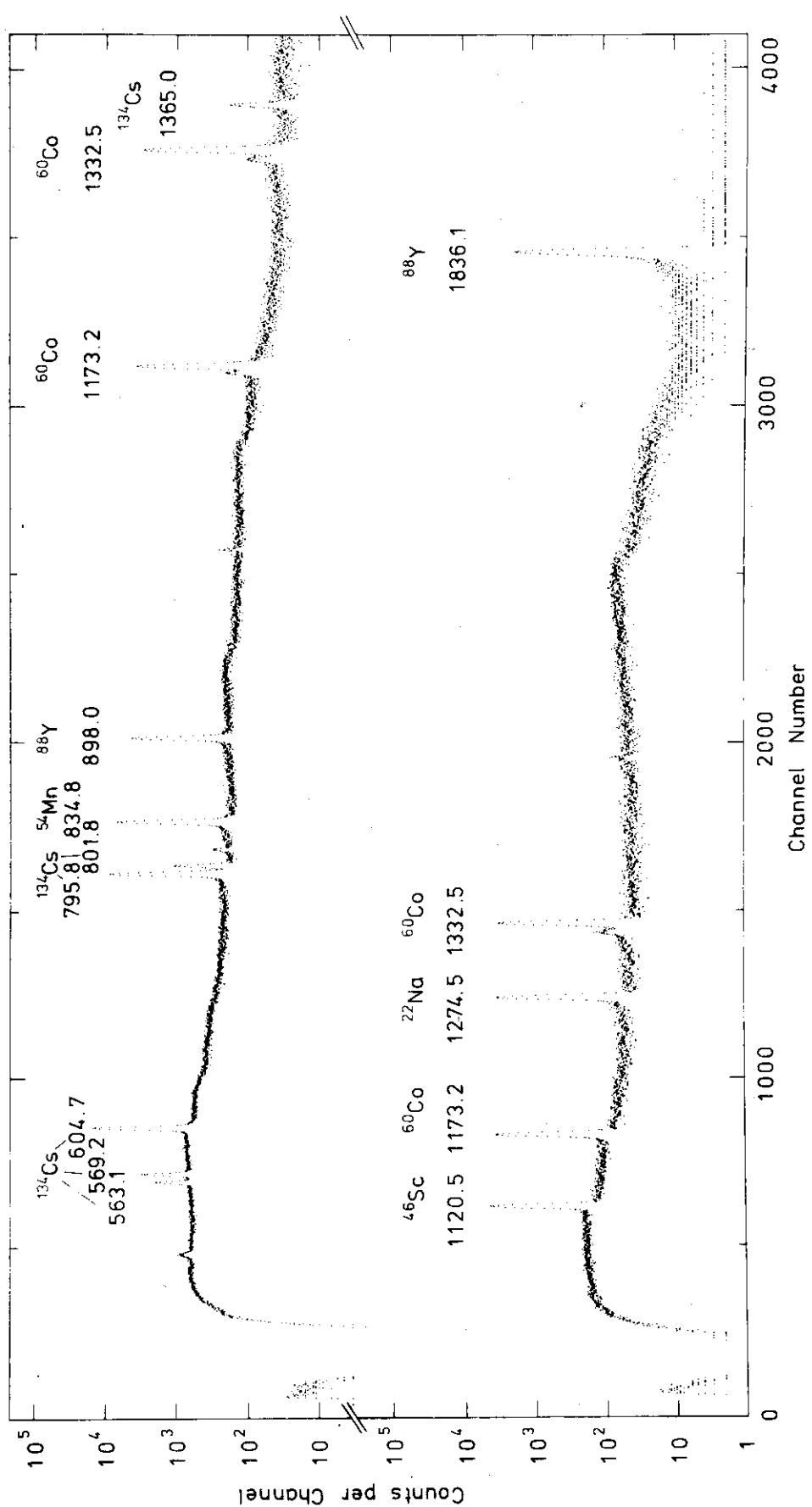
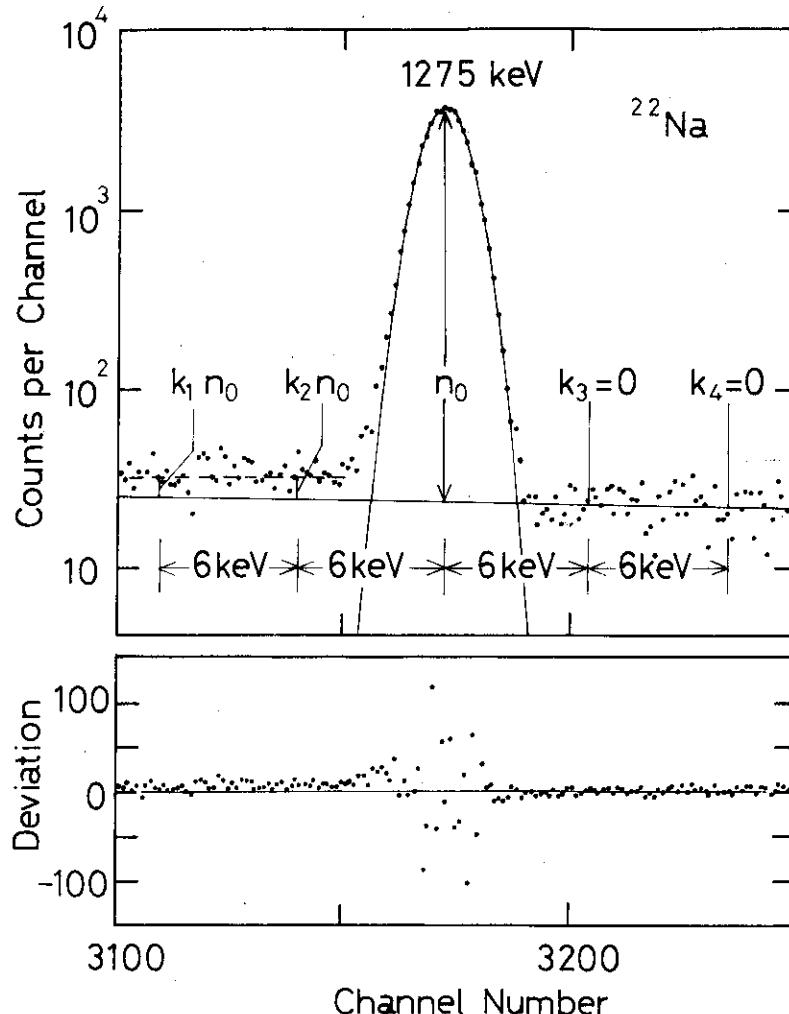
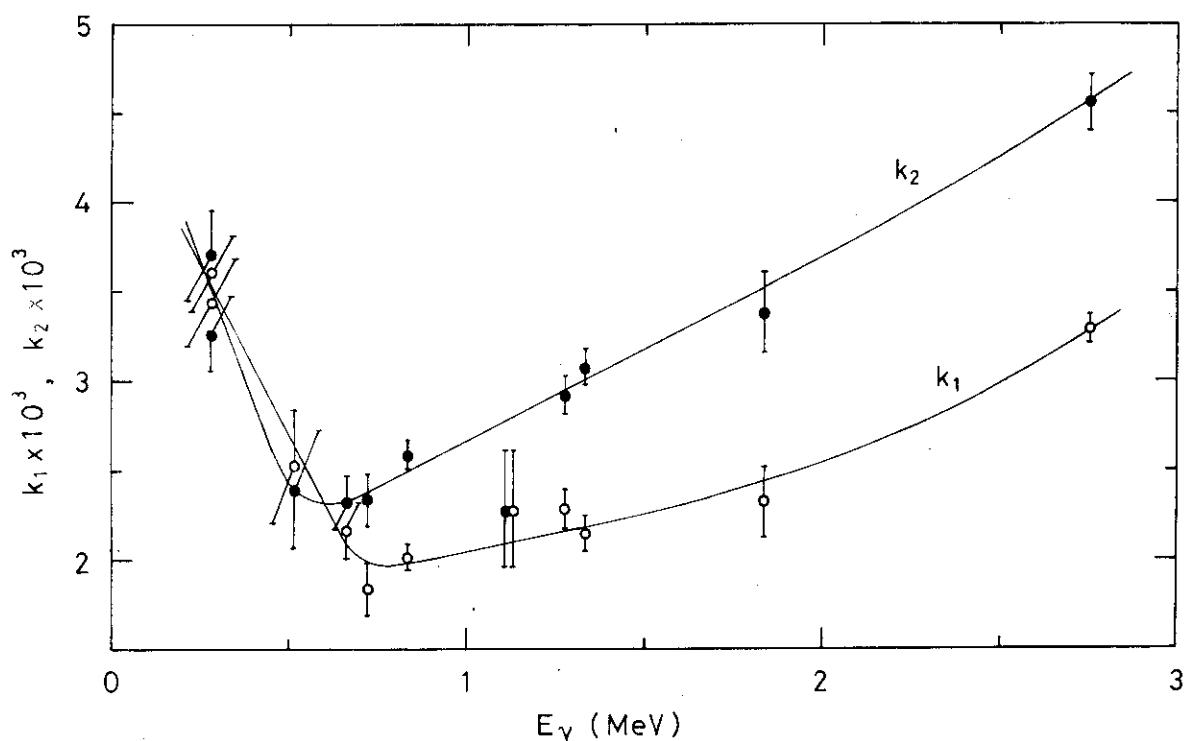


Fig. 9. Gamma-ray spectrum of standard sources observed in Nagoya.

Fig. 10. Peak shape of ^{22}Na 1275 keV gamma rays.Fig. 11. Tail parameters k_1 and k_2 of the gamma-ray peak observed in Hiroshima.

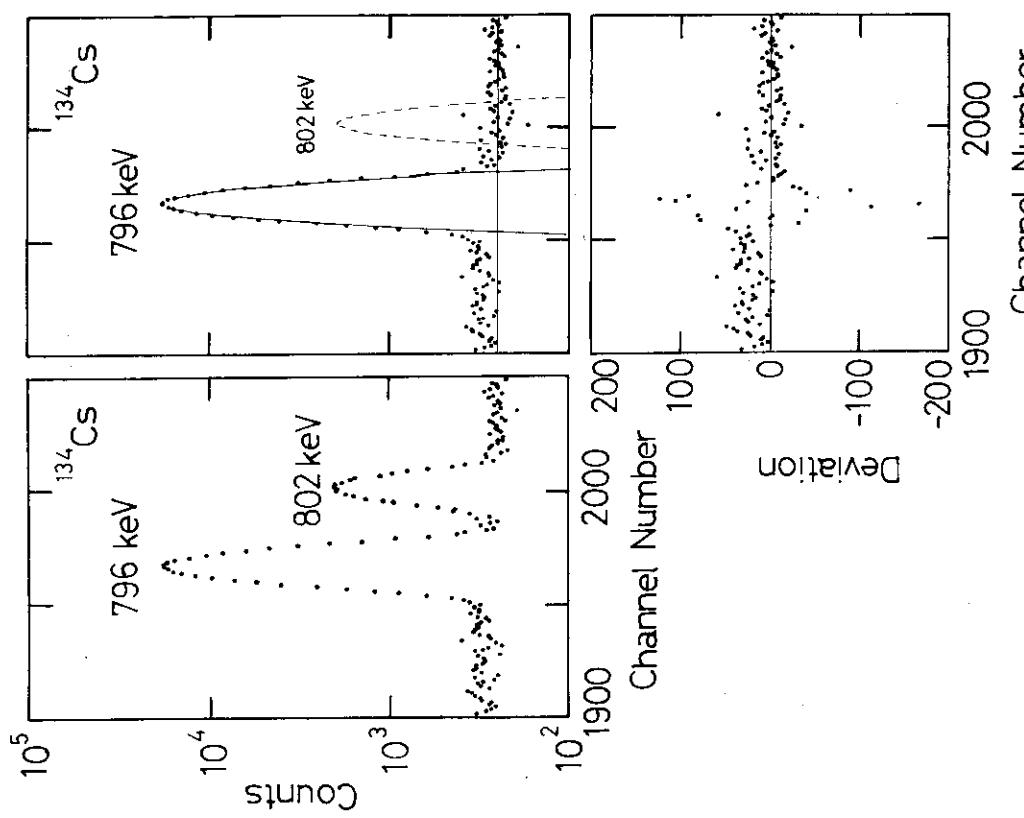
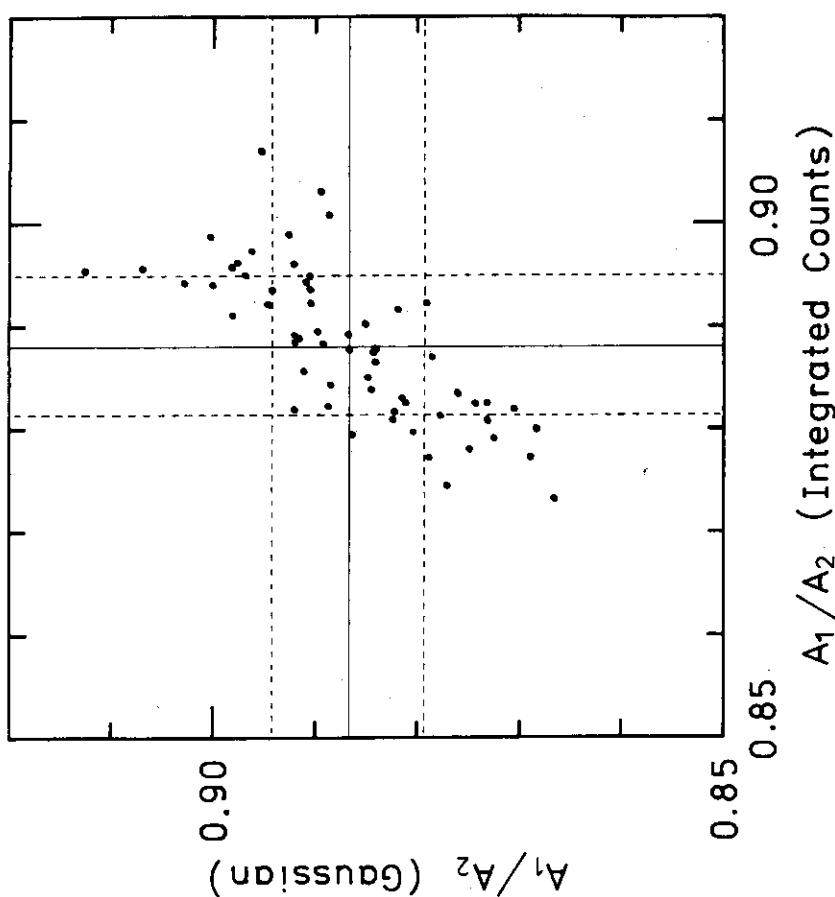
Fig. 12. Subtraction of ^{134}Cs 802 keV gamma rays.

Fig. 13. Ratios of peak areas of 1332 keV gamma rays to those of 1173 keV gamma rays.
Plots indicate correlation between integrated channel counts and fitted Gaussian integral.

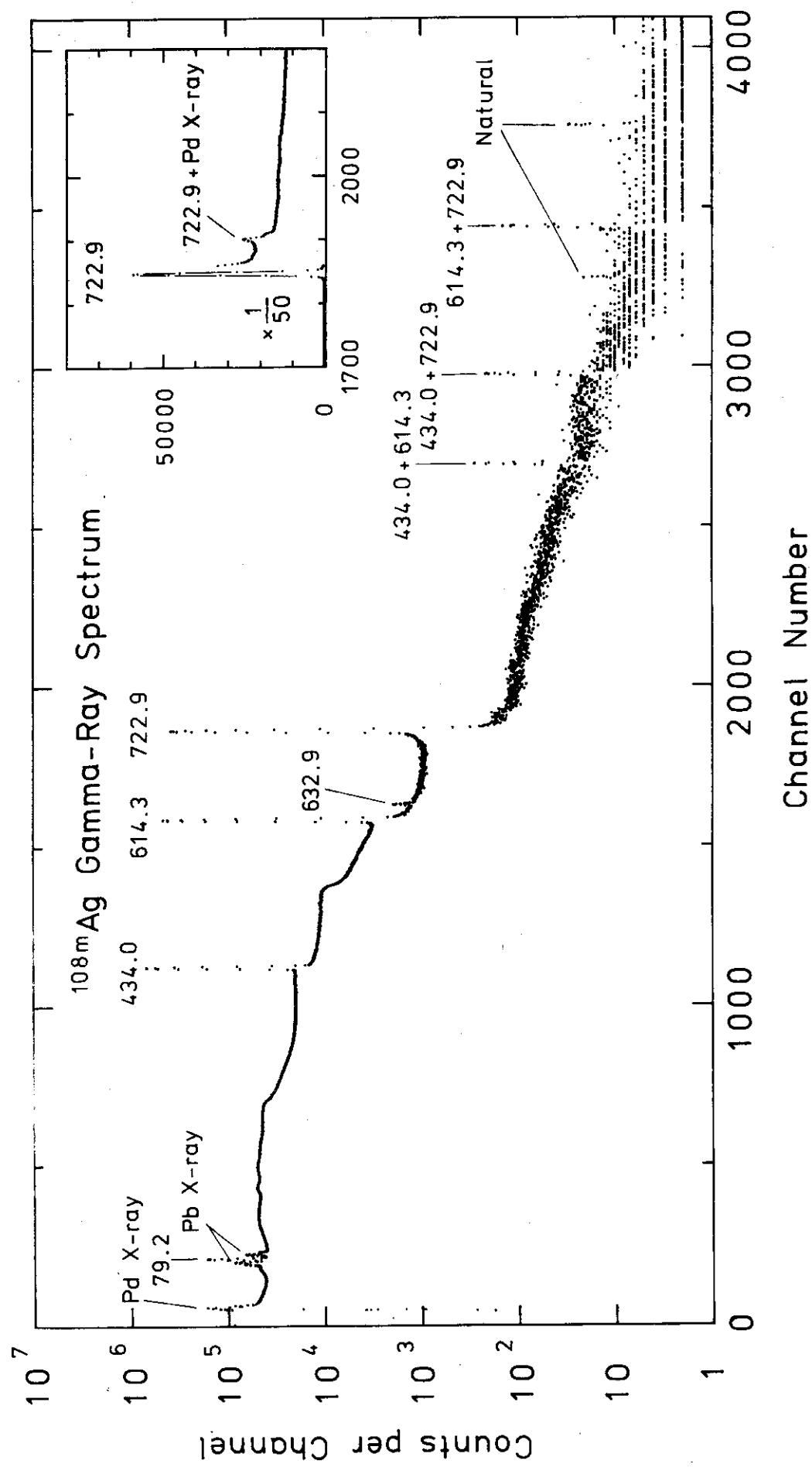


Fig. 14. Sum spectrum of three ^{108m}Ag gamma rays, and sum of 723 keV gamma rays and X-rays (corner). The source to detector distance is 20 cm for the former and about 1 cm for the latter.

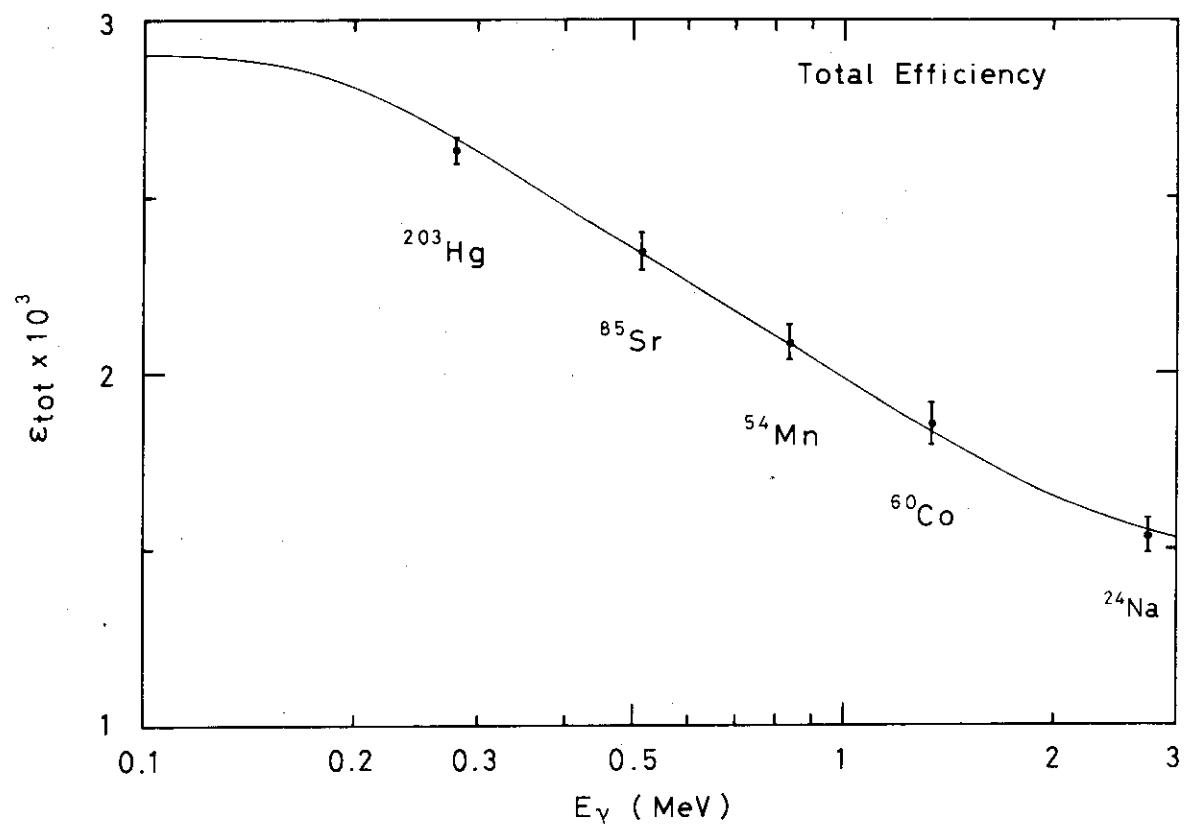


Fig. 15. Total efficiency curve measured in Hiroshima.

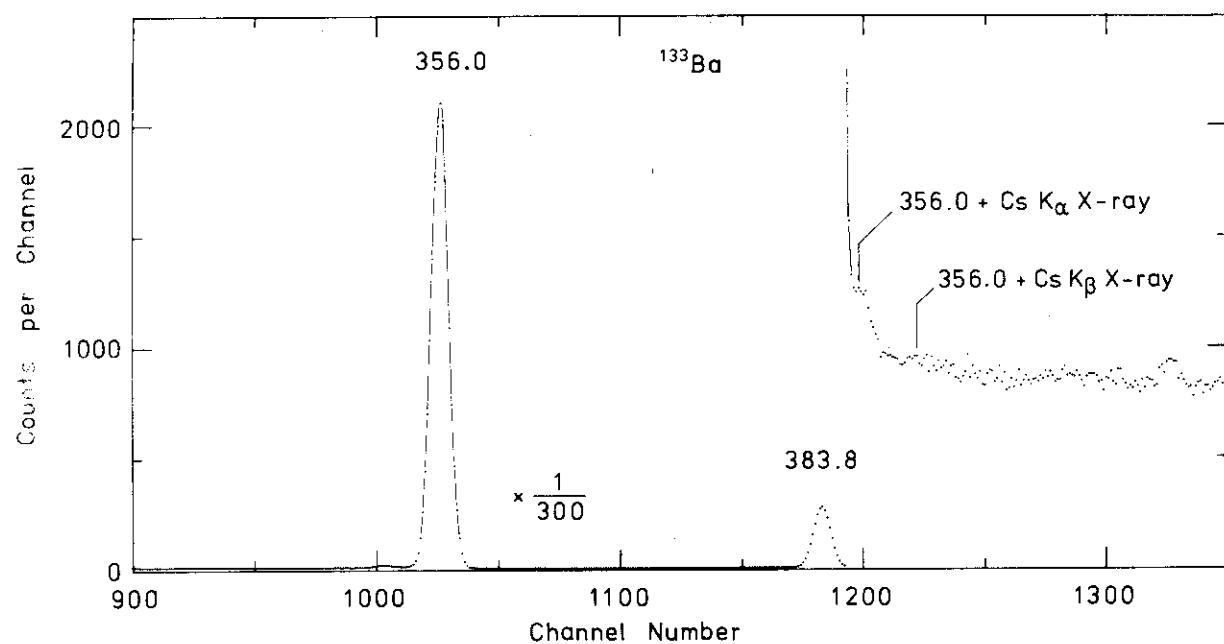


Fig. 16. Sum of 356 keV gamma rays and X rays in ^{133}Ba .

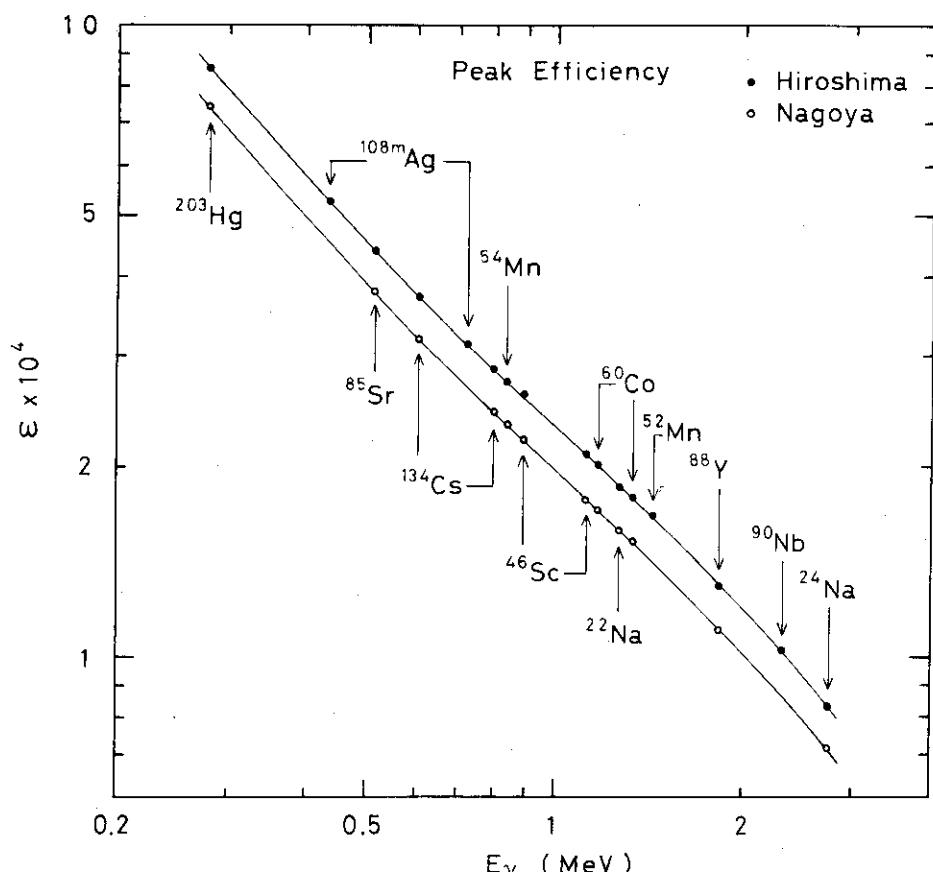


Fig. 17. Efficiency curves in the logarithmic scale.

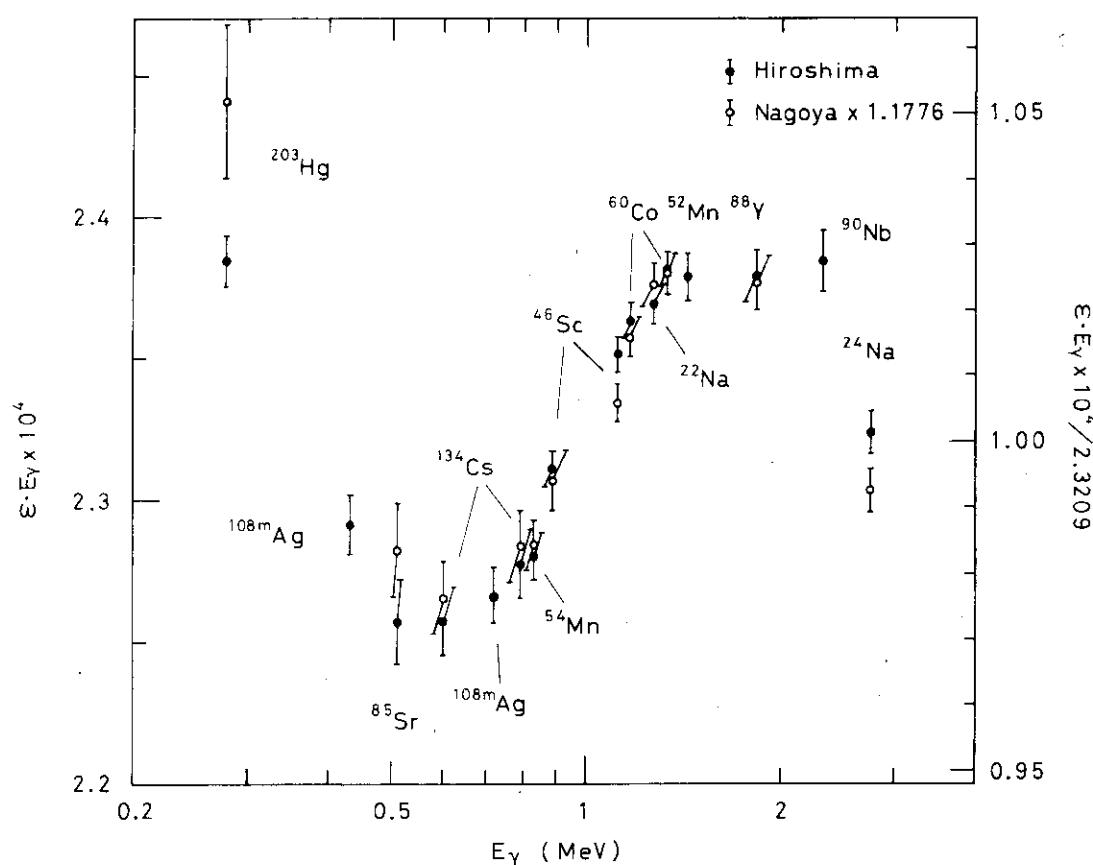


Fig. 18. Efficiencies times energy curve.

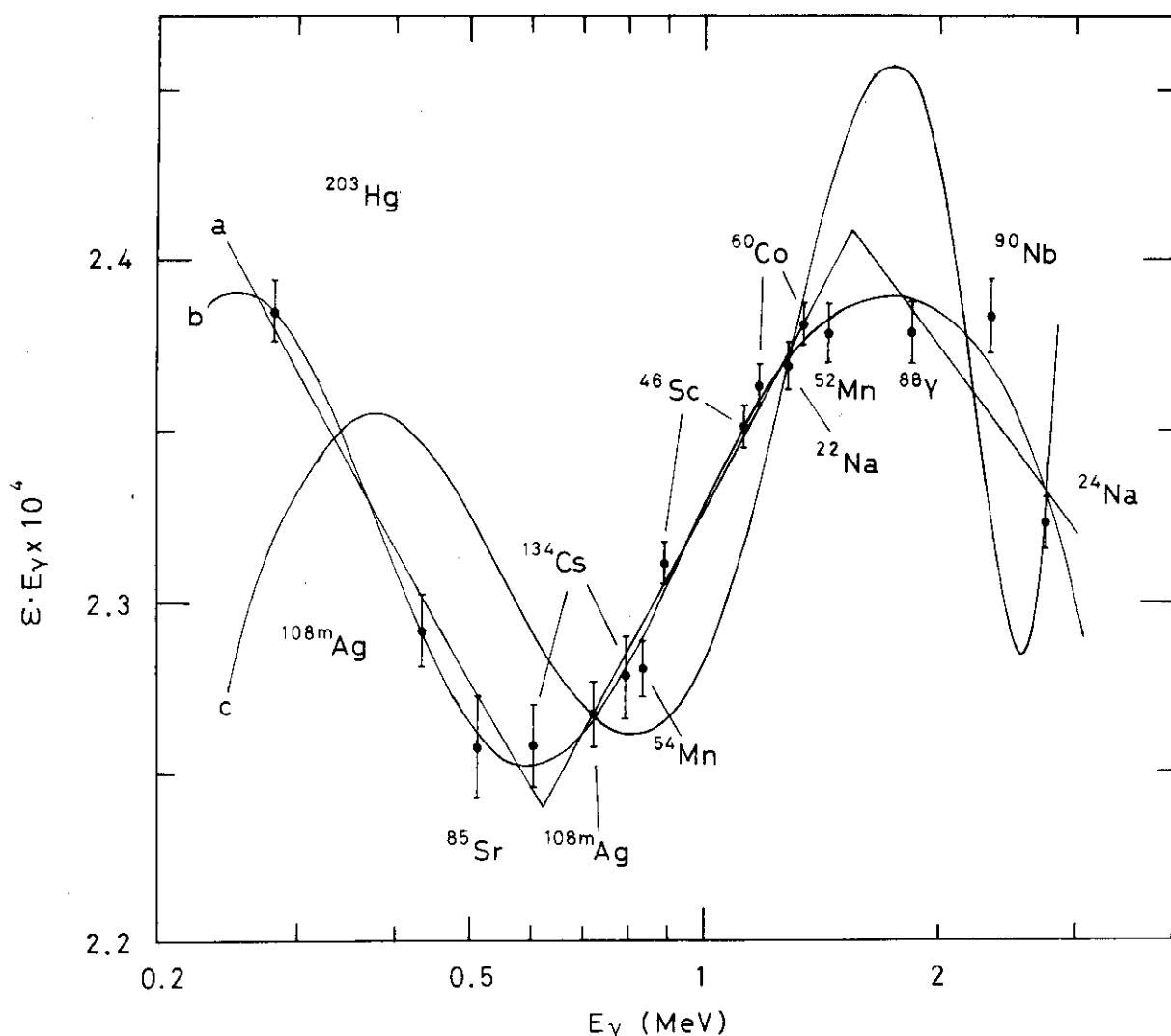


Fig. 19. Efficiency curve fitted by various empirical curves. a. Three logarithmic functions, Eq. (5). b. Linear combination of three exponential functions, Eq. (9). c. Exponential function, Eq. (8).

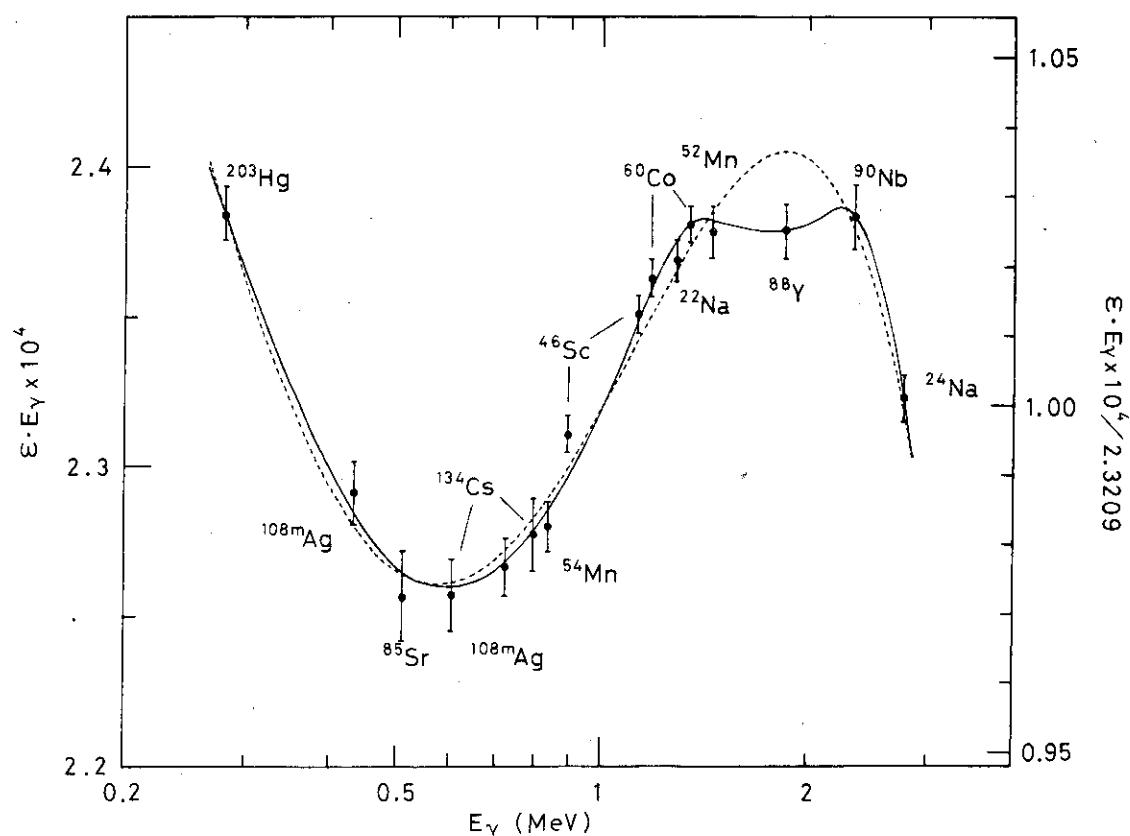


Fig. 20. Final efficiency curve in Hiroshima.

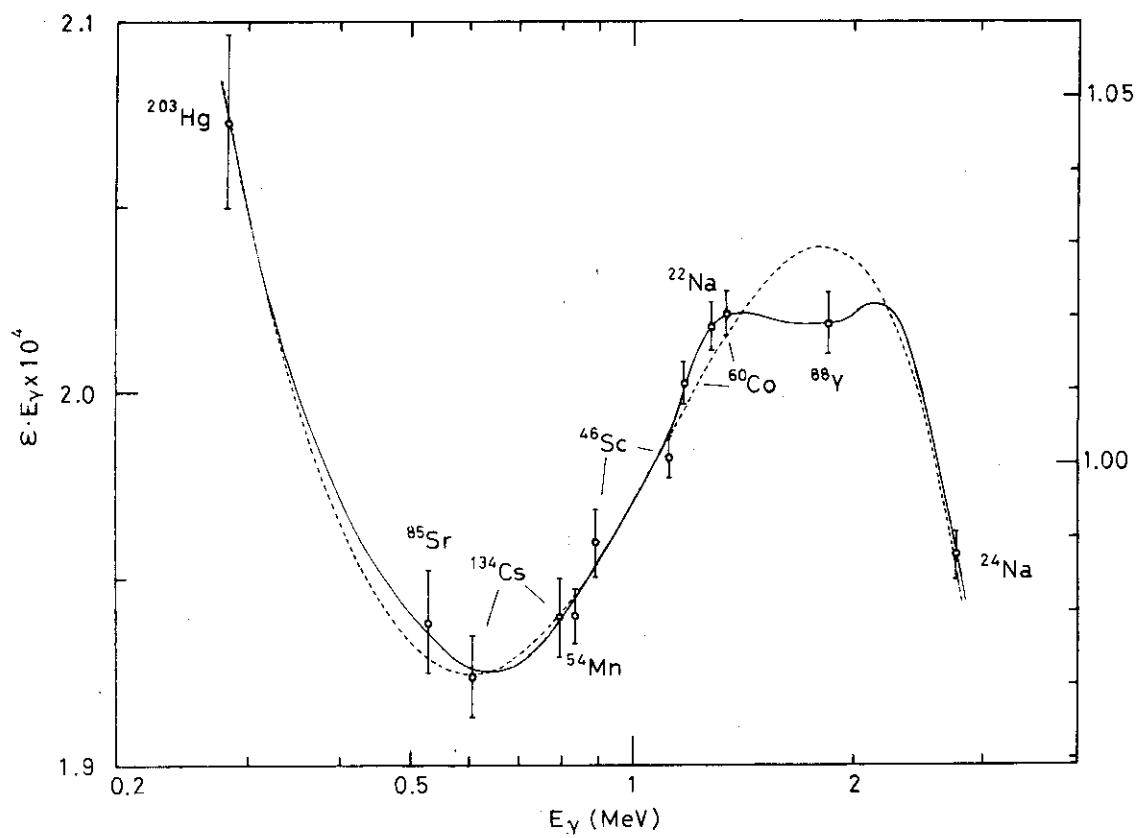


Fig. 21. Final efficiency curve in Nagoya.

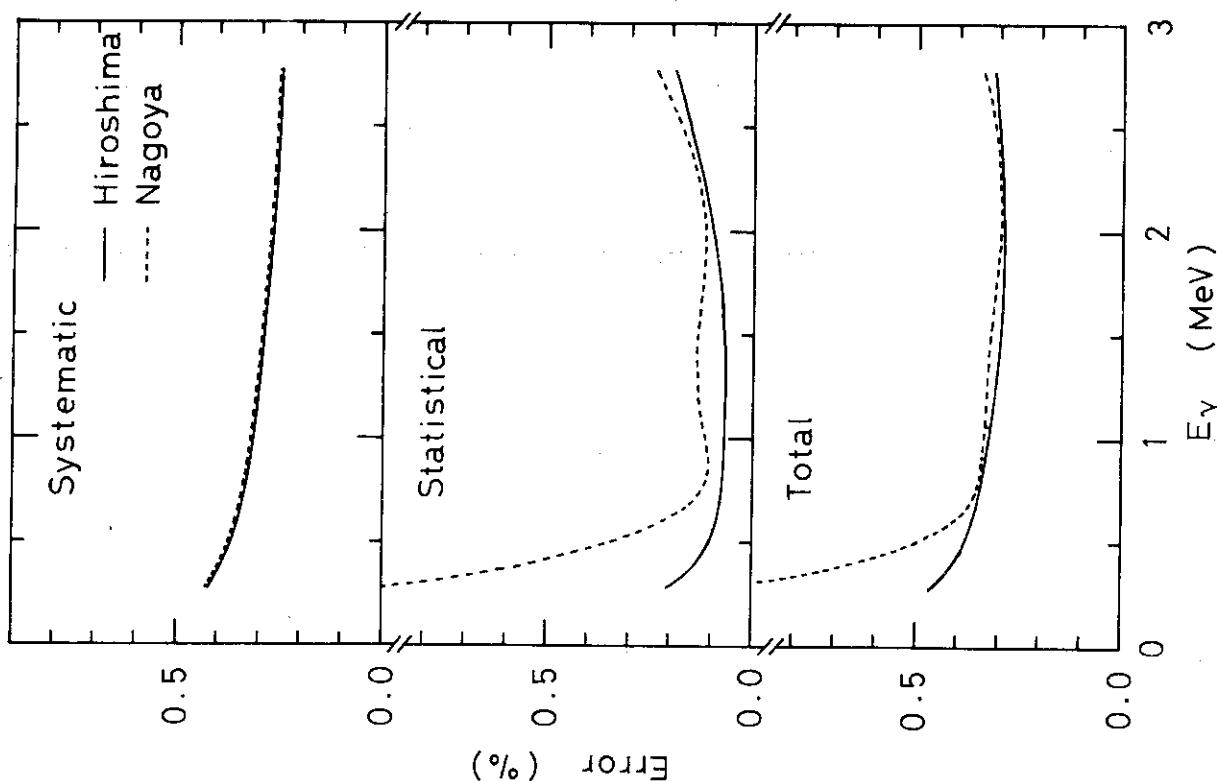


Fig. 23. Errors of efficiency curves.

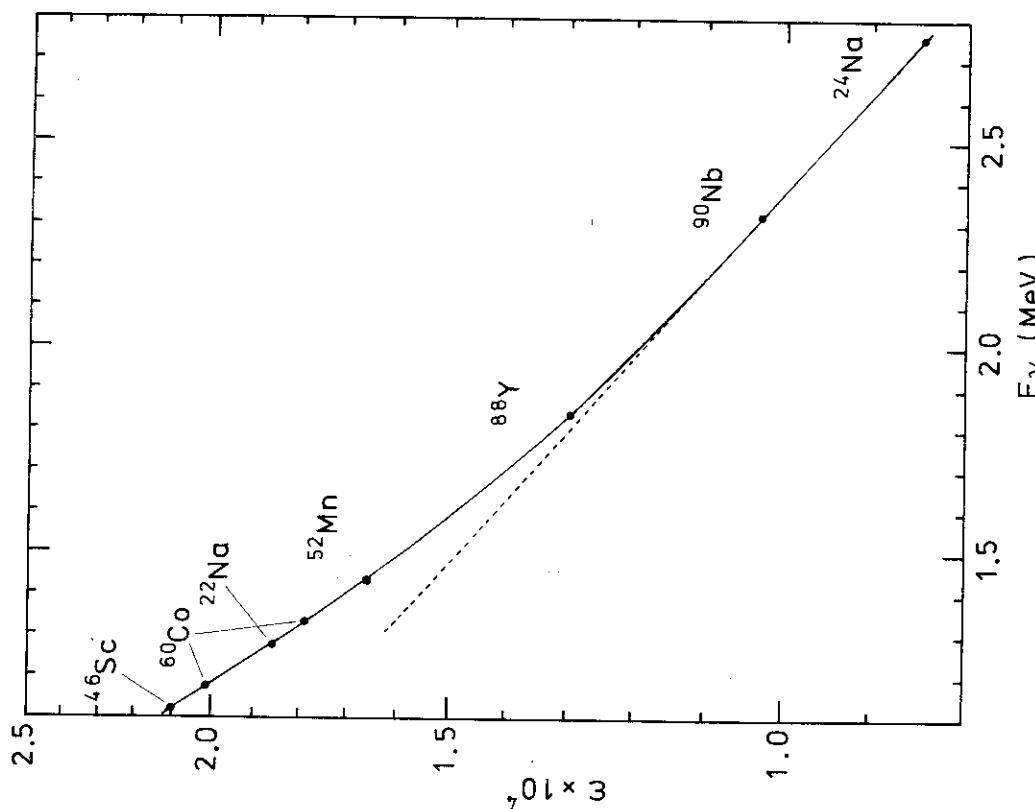


Fig. 22. High energy part of the final efficiency curve of Hiroshima in semi-logarithmic scale.

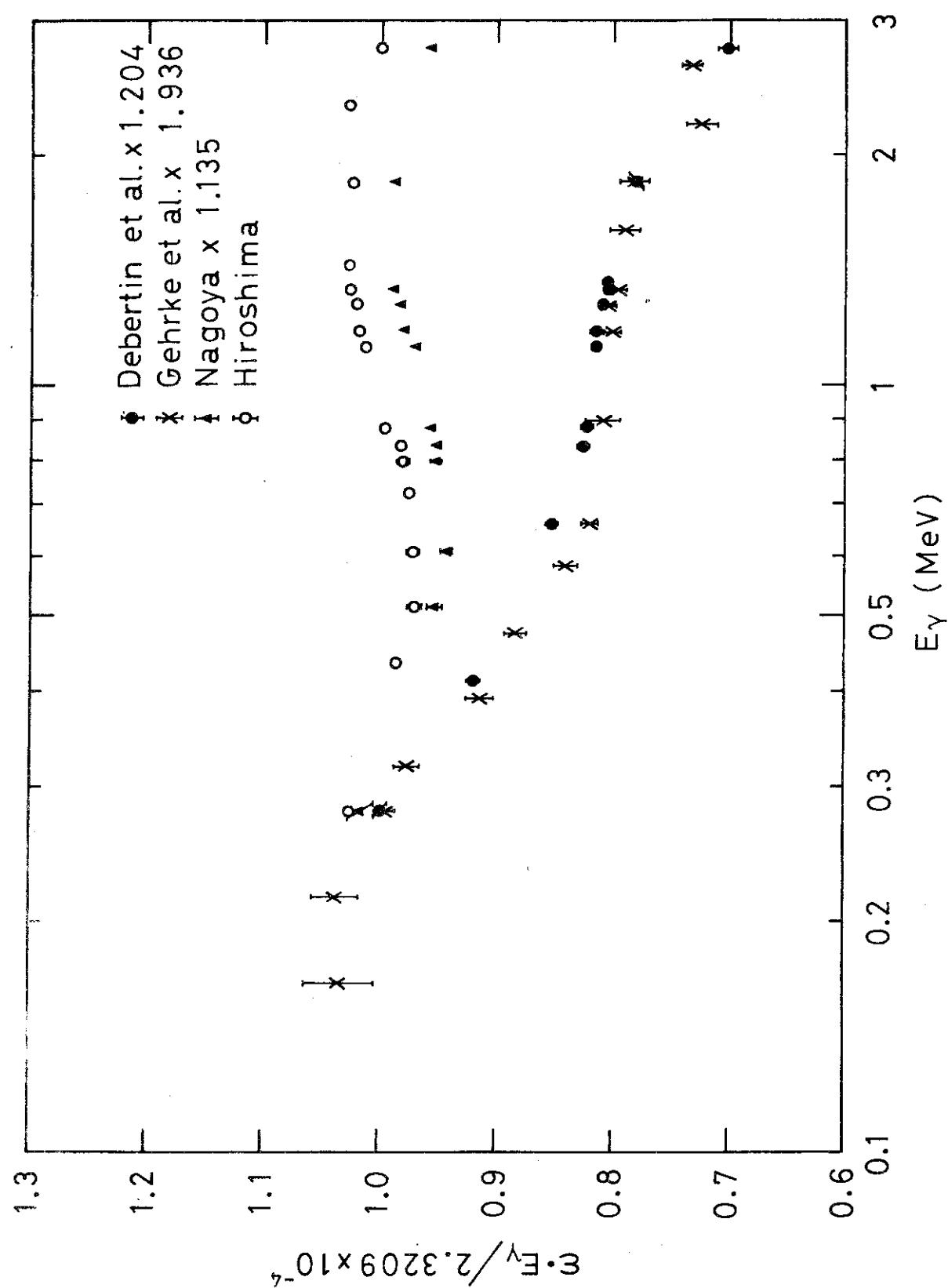
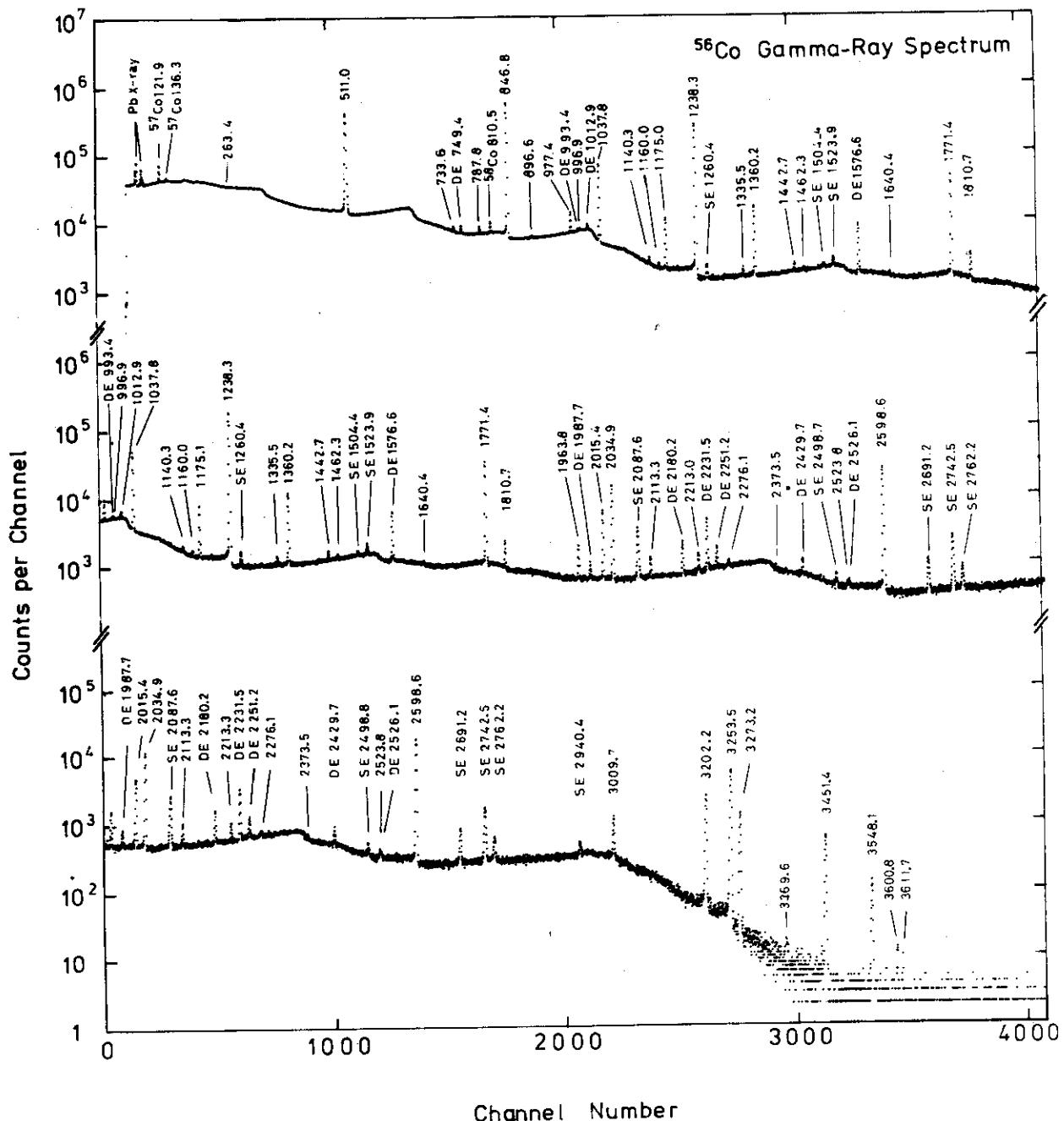
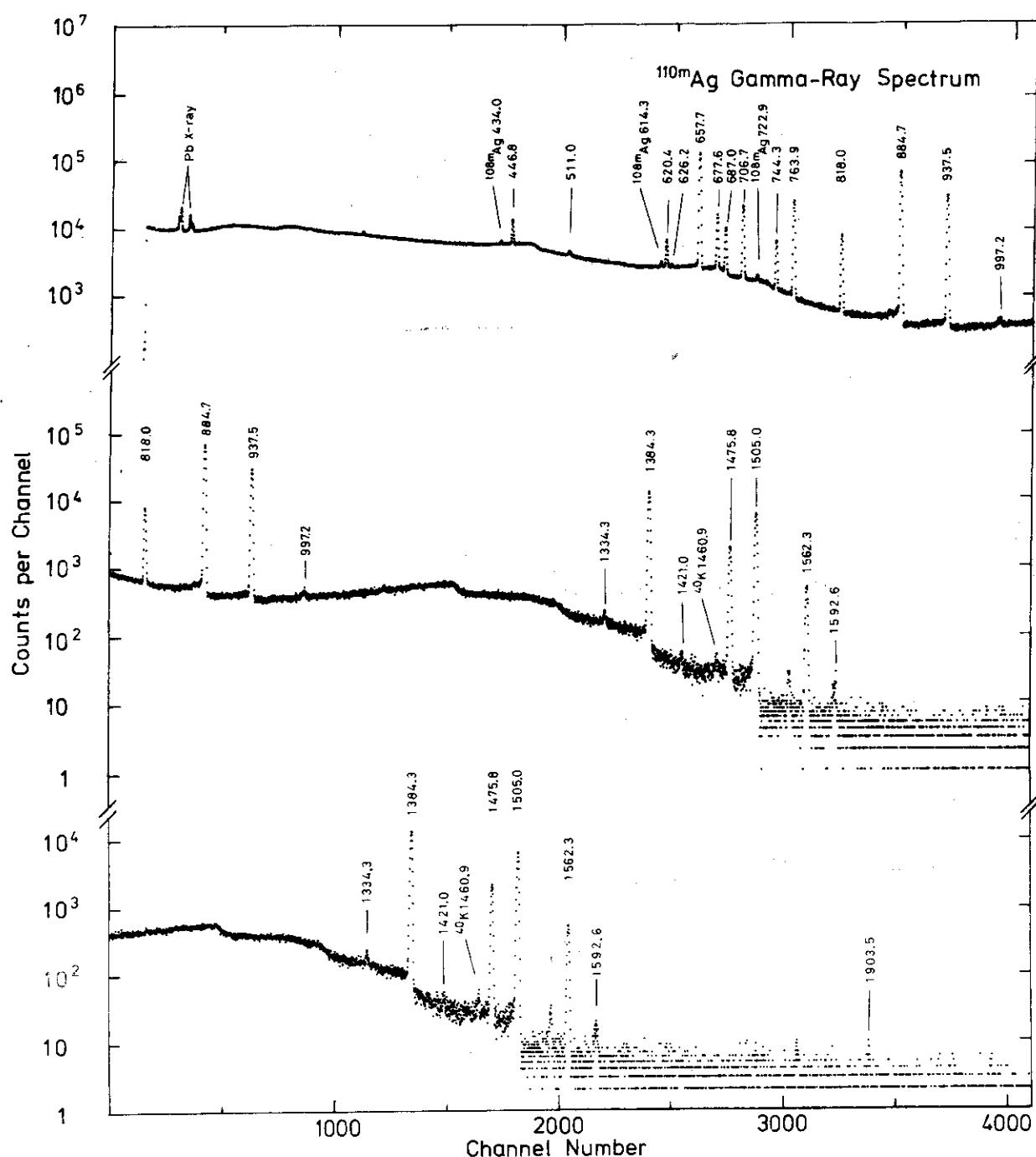
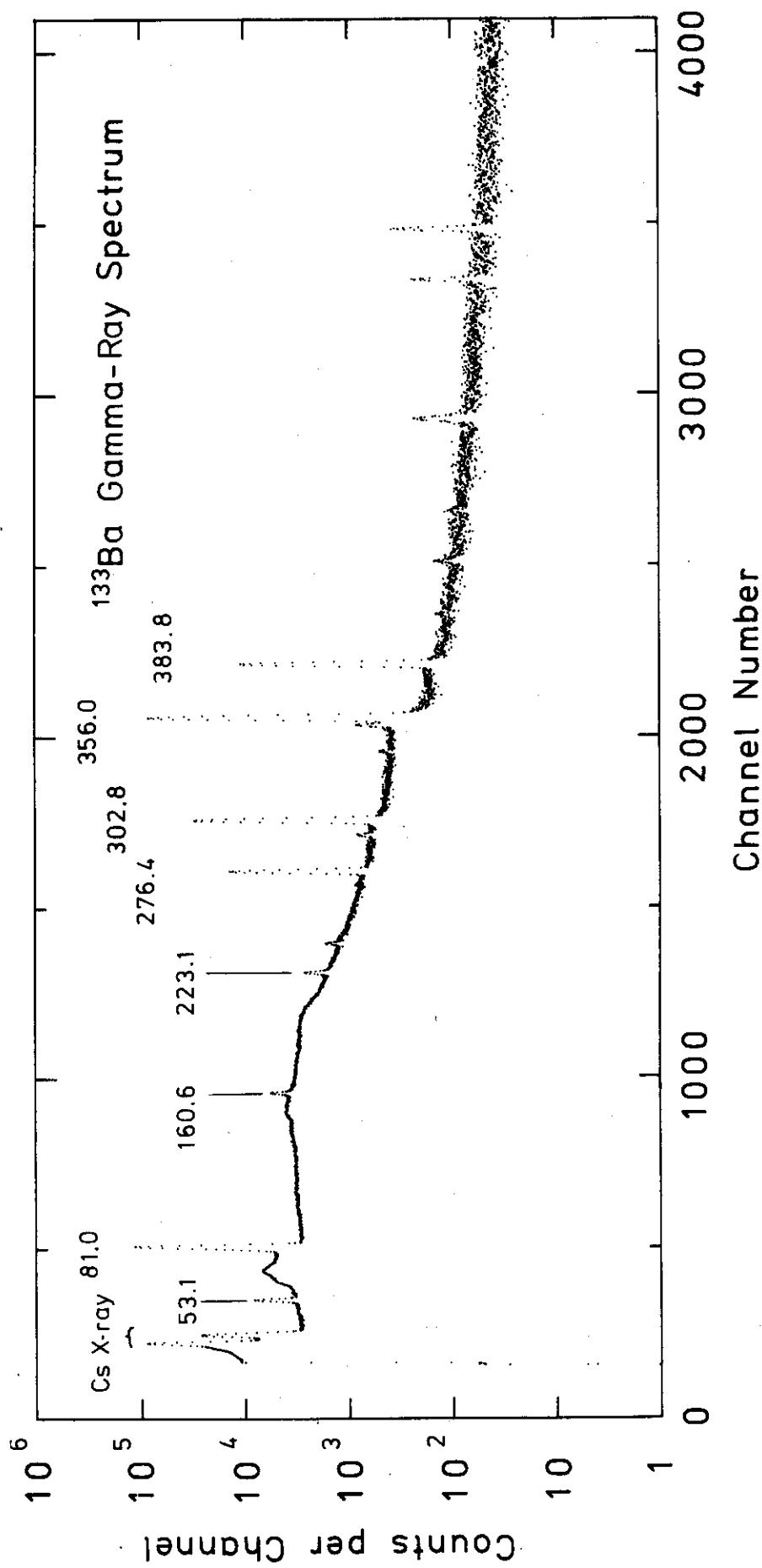
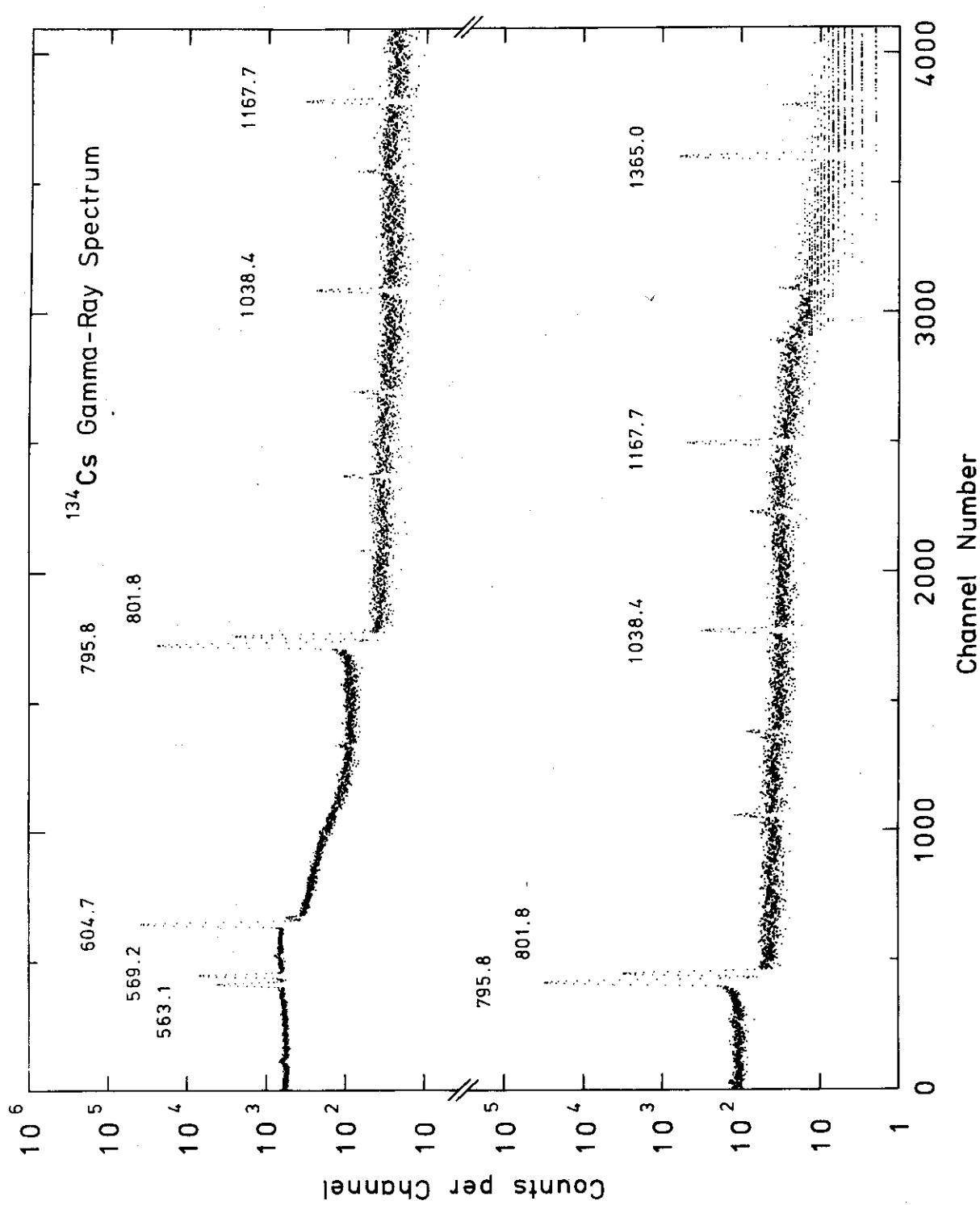


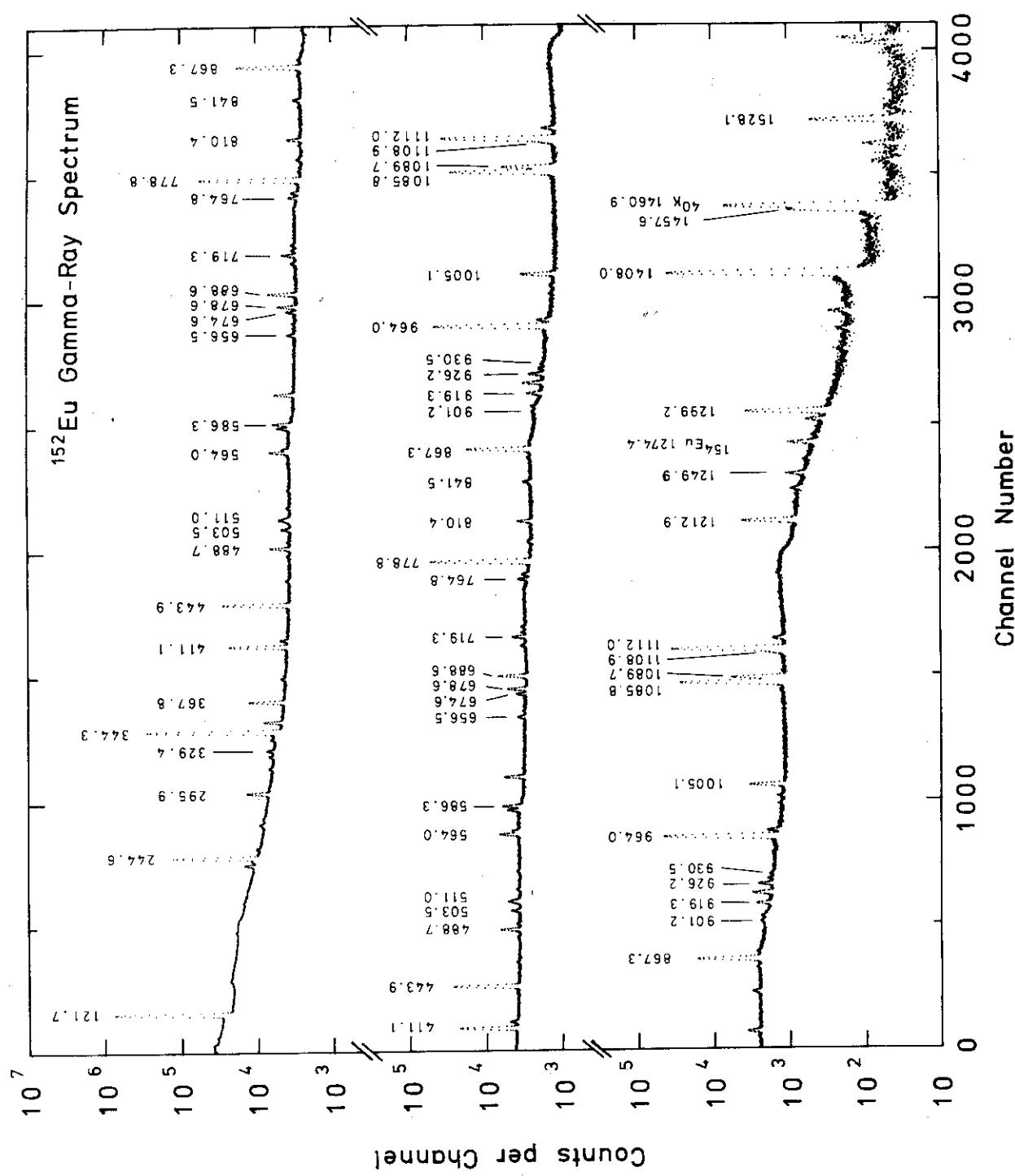
Fig. 24. Comparison between efficiency curves.

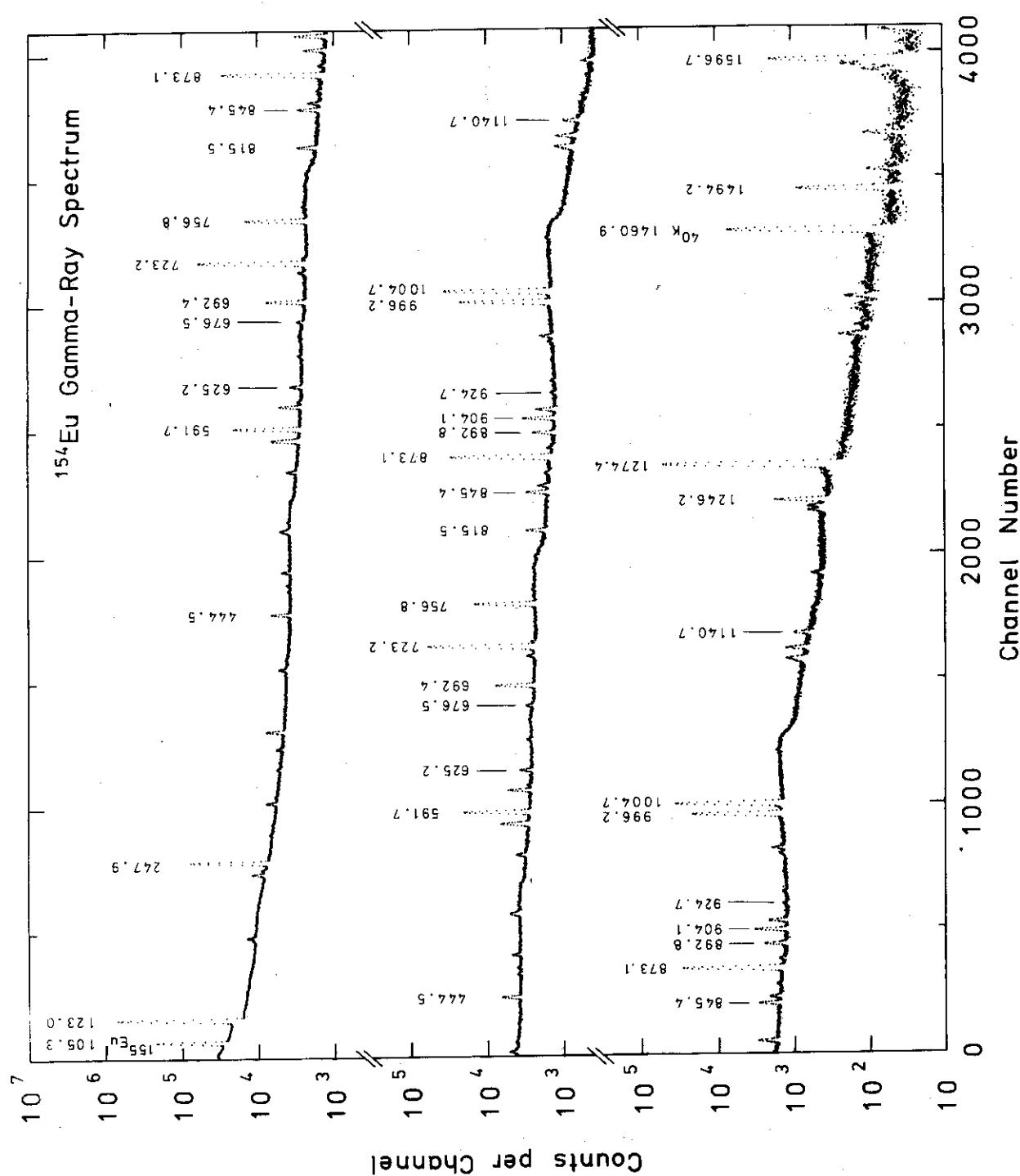
Fig. 25. Gamma-ray spectrum of ^{56}Co .

Fig. 26. Gamma-ray spectrum of ^{110m}Ag .

Fig. 27. Gamma-ray spectrum of ^{133}Ba .

Fig. 28. Gamma-ray spectrum of ^{134}Cs .



Fig. 30. Gamma-ray spectrum of ^{154}Eu .

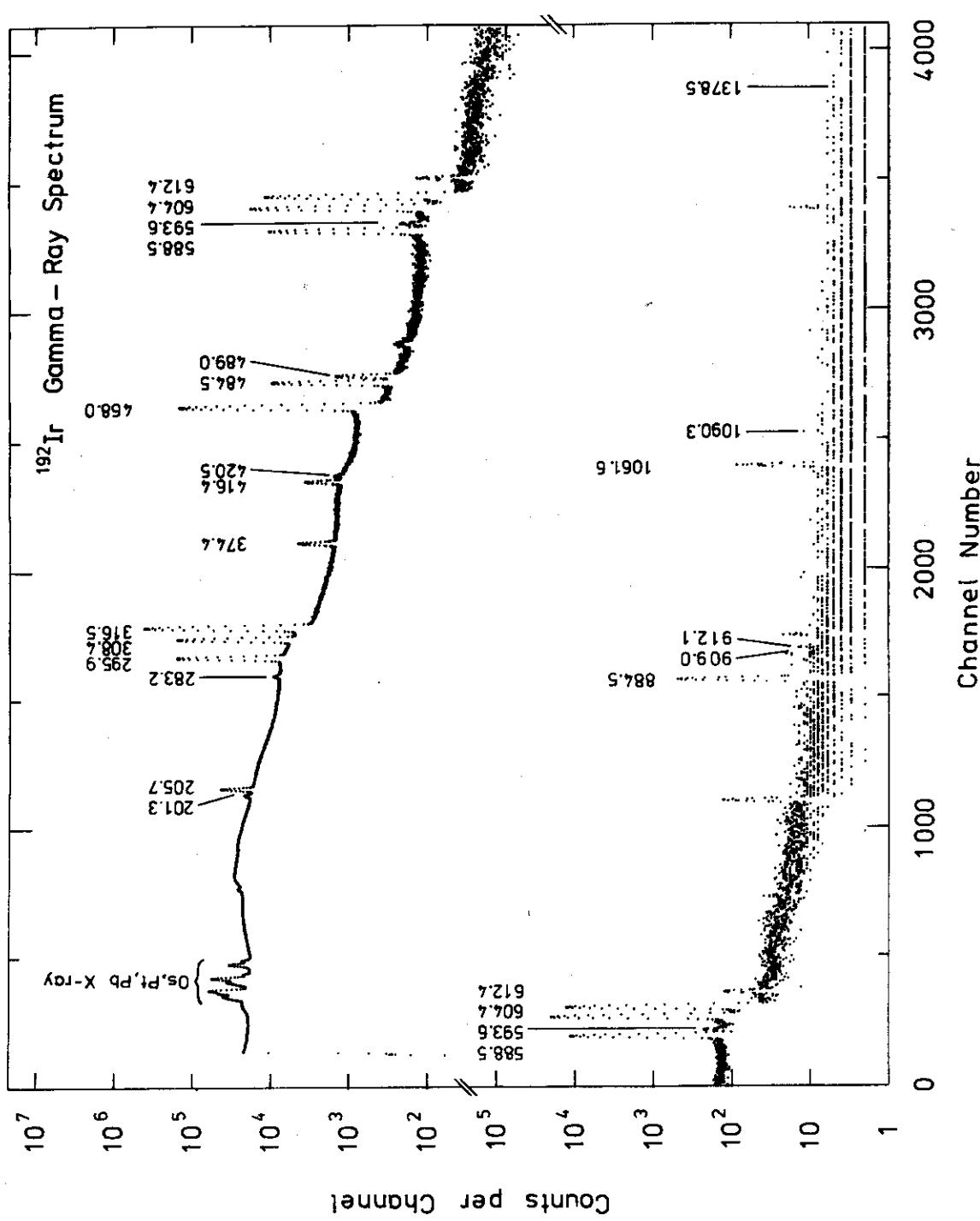


Fig. 31. Gamma-ray spectrum of ^{192}Ir .

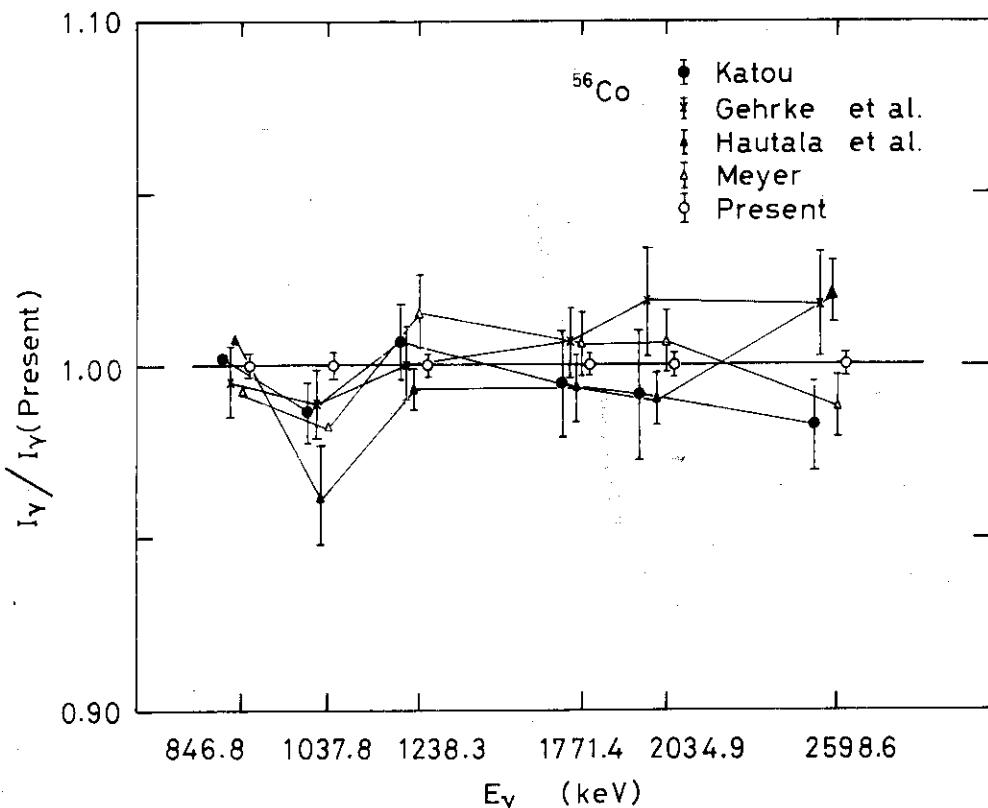


Fig. 32. Comparison between relative intensity measurements for ^{56}Co .

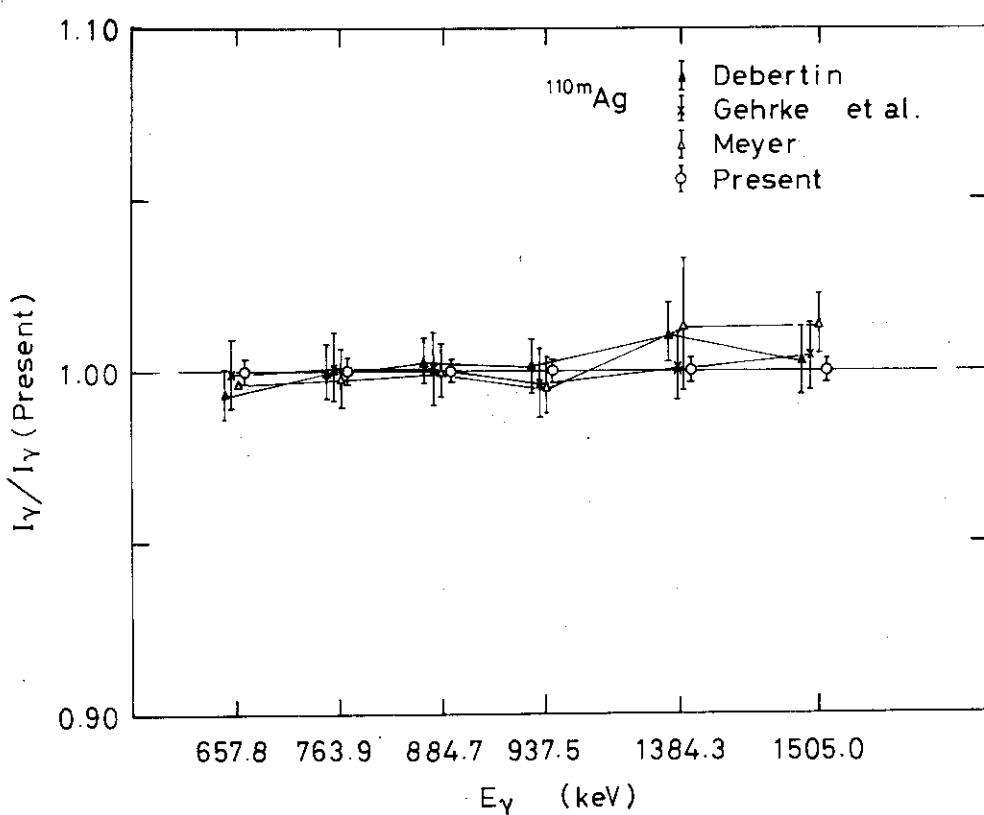


Fig. 33. Comparison between relative intensity measurements for $^{110\text{m}}\text{Ag}$.

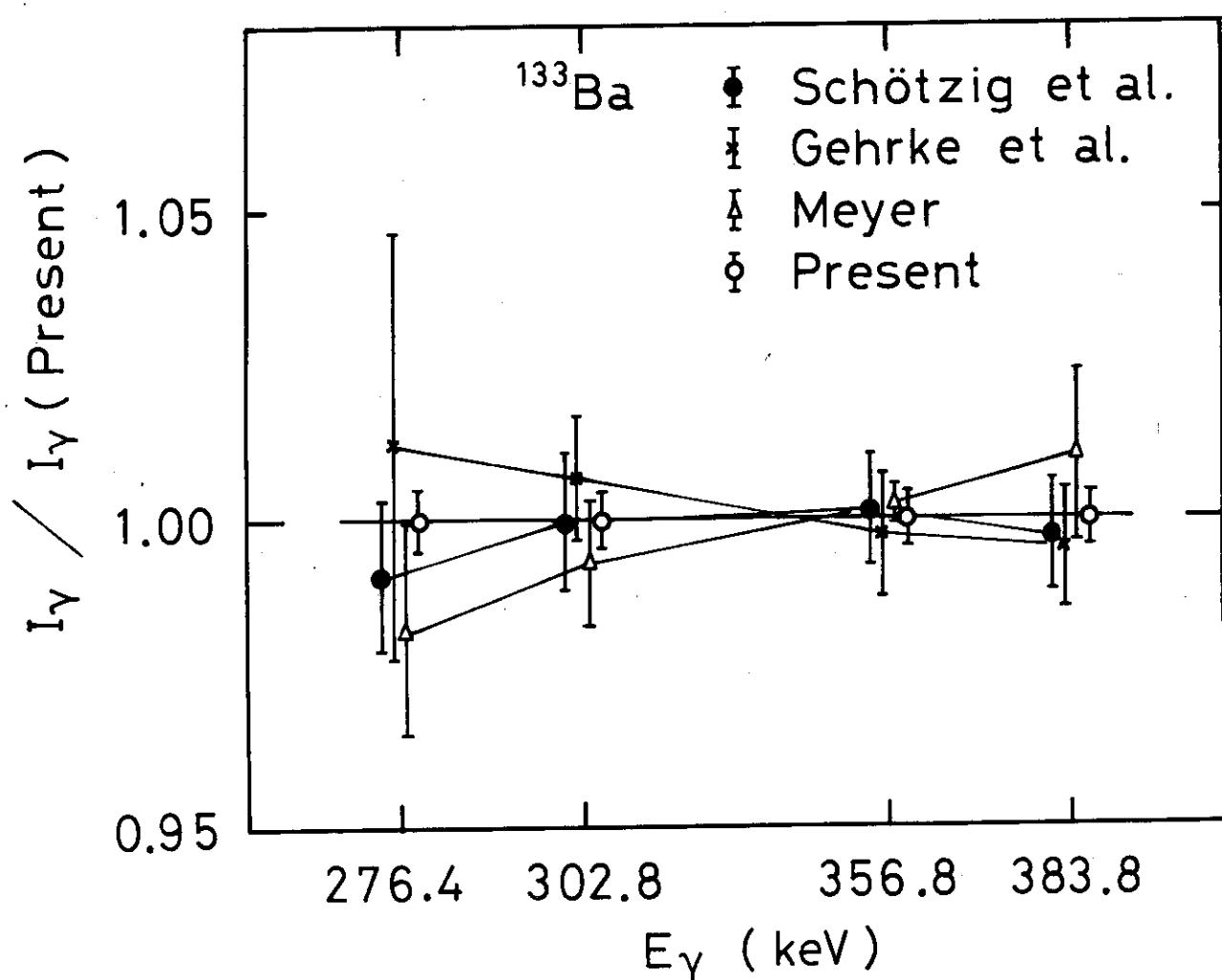
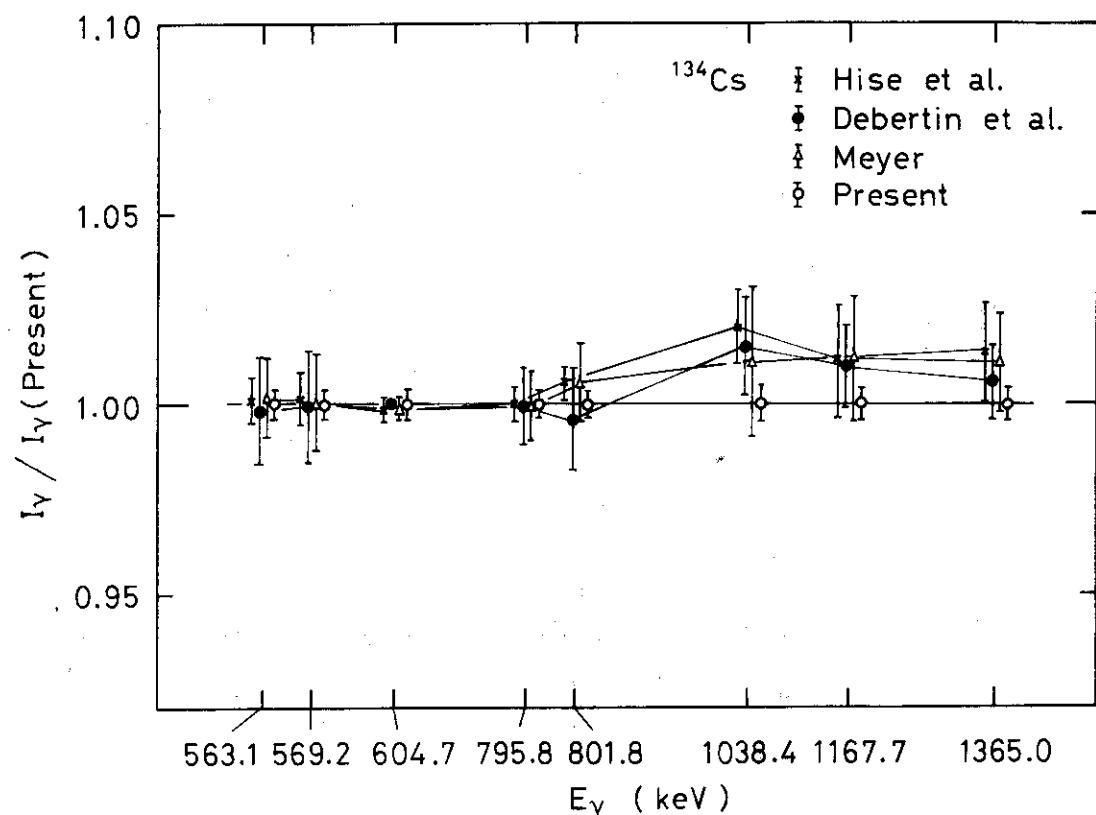
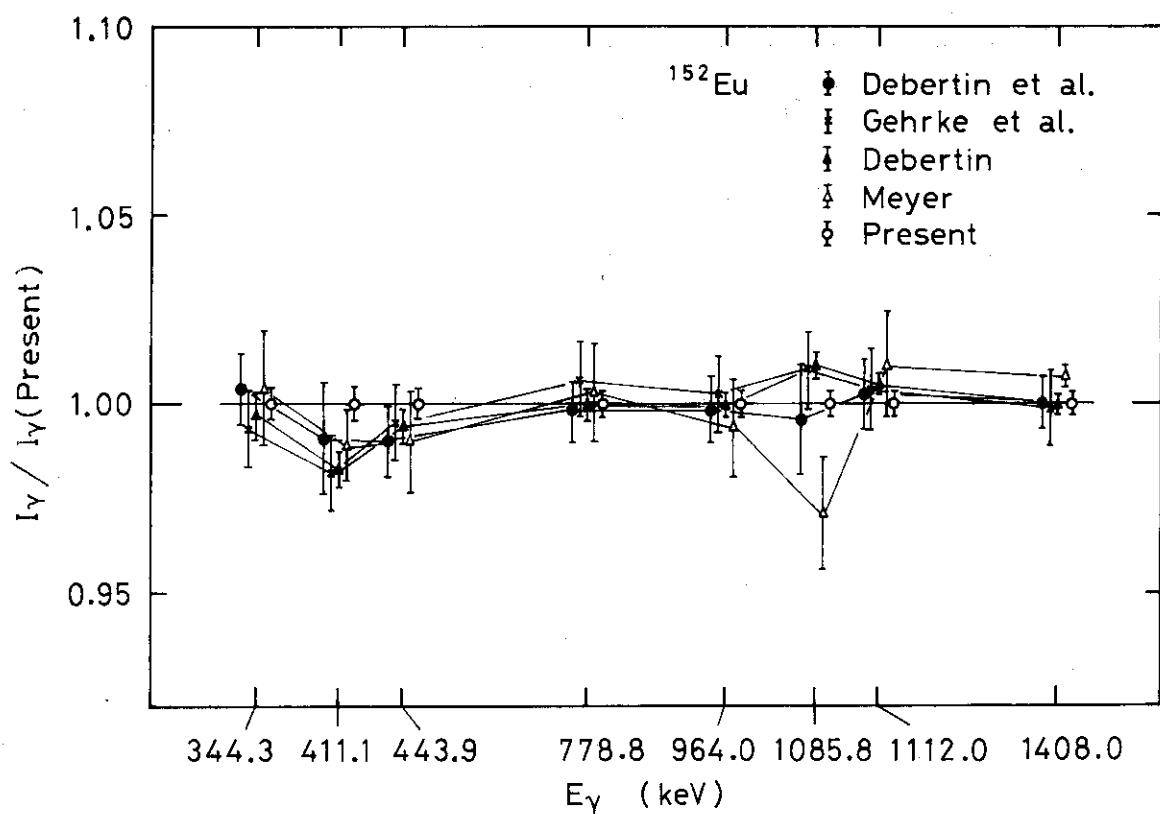


Fig. 34. Comparison between relative intensity measurements for ¹³³Ba.

Fig. 35. Comparison between relative intensity measurements for ^{134}Cs .Fig. 36. Comparison between relative intensity measurements for ^{152}Eu .