

JAERI-M

放射性同位体製造資料-1266

9 6 1 6

^{152}Eu の絶対測定

1981年8月

馬場 宏・馬場澄子・市川進一

関根俊明・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.

^{152}Eu 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

馬場 宏・馬場 澄子・市川 進一⁺

関根 俊明・石川 勇

(1981年7月22日受理)

$4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコーピー同時計数法による ^{152}Eu の絶対測定法を確立した。絶対測定法として、 $4\pi\beta$ 計数管と Ge(Li) 検出器とを組合わせ、 β 線検出器からの出力パルスとコインシデンスする γ 線スペクトルを測定し、着目する γ 線毎にその強度を求め、それとシングル γ 線スペクトル中の対応する γ 線強度との比から β 線検出器の各 β 線、内部転換電子およびオージェ電子に対する実効計数効率を求める方法を考案した。

最初に、この絶対測定法を検証するために、 ^{60}Co 線源を用いて3種類の絶対測定法を併せ試み、相互に良く一致する結果が得られることを確かめた。次いで、 ^{151}Eu 濃縮ターゲットの原子炉照射によって作製した ^{152}Eu 線源について、 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコーピー同時計数法を適用し、得られた結果を LMRI 製 ^{152}Eu 標準線源を用いる γ 線スペクトロメトリの結果と比較した。両者は約 2% の範囲内で一致した。

⁺ 原子炉化学部

Absolute Measurement of ^{152}Eu

Hiroshi BABA, Sumiko BABA, Shinichi ICHIKAWA⁺
Toshiaki SEKINE and Isamu ISHIKAWA

Division of Radioisotope Production, JAERI

(Received July 22, 1981)

A new method of the absolute measurement for ^{152}Eu was established based on the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ spectroscopic anti-coincidence method. It is a coincidence counting method consisting of a $4\pi\beta$ -counter and a Ge(Li) γ -ray detector, in which the effective counting efficiencies of the $4\pi\beta$ -counter for β -rays, conversion electrons, and Auger electrons were obtained by taking the intensity ratios for certain γ -rays between the single spectrum and the spectrum coincident with the pulses from the $4\pi\beta$ -counter.

First, in order to verify the method, three different methods of the absolute measurement were performed with a prepared ^{60}Co source to find excellent agreement among the results deduced by them. Next, the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ spectroscopic coincidence measurement was applied to ^{152}Eu sources prepared by irradiating an enriched ^{151}Eu target in a reactor. The result was compared with that obtained by the γ -ray spectrometry using a ^{152}Eu standard source supplied by LMRI. They agreed with each other within the error of 2%.

Keywords; ^{152}Eu , ^{60}Co , Absolute Determination, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Coincidence, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Anti-coincidence

+ Division of Chemistry, Tokai Research Establishment, JAERI

目 次

1. 序 論	1
2. ^{152}Eu 線源の調製と γ 線スペクトロメトリによる定量	1
3. 絶対測定法の原理	2
4. ^{60}Co による絶対測定法の検証	3
5. ^{152}Eu の絶対測定	3
6. 結果と考察	6
謝 辞	9
文 献	10
附 録	16

Contents

1. Introduction	1
2. Preparation of the ^{152}Eu sources and the determination by the γ -ray spectrometry	1
3. Principle of the absolute measurement	2
4. Verification of the absolute measurement method by means of the determination of a ^{60}Co source.	3
5. Absolute measurement of ^{152}Eu	3
6. Results and discussion	6
Acknowledgement	9
References	10
Appendices	16

1. 序 論

^{152}Eu は、半導体 γ 線検出器のエネルギー及び計数効率校正のための標準線源として有用な核種であるため、その壊変図式や γ 線の放出率などが詳細に測定されている¹⁻⁵⁾。しかし、その壊変率の絶対測定に関しては、複雑な壊変図式がわざわざして通常の同時計数法が適用されず、一崩壊あたり殆んど100%の γ 線又はX線が放出されることに着目した $4\pi\gamma$ 計数法による測定^{6, 7)}の報告があるのみである。

$4\pi\gamma$ 計数法では、大型のNaI(Tl)検出器を用い、各 γ 線エネルギーでのその計数効率から壊変図式に基いて ^{152}Eu の計数効率を計算する。したがって、 γ 線計数効率を定めるための一次標準線源を他に必要とする間接的な絶対測定である上、結果の信頼度には壊変図式の信頼度が直接影響することになる。その影響の度合は、検出器の効率が大きくなる程小さくなるが、4" ϕ \times 5"の井戸型NaI(Tl)検出器を使用した場合の誤差は 3σ の信頼度で約1%であると報告⁶⁾されている。

今回、 ^{152}Eu を直接的に絶対測定することを試み、河田らの考案した $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコーピー逆同時計数法⁸⁾を発展させて、 ^{152}Eu の新らしい絶対測定法を確立した。これは $4\pi\beta$ 検出器とGe(Li)検出器とを組み合わせ、 β 線検出器の出力をゲートパルスとして、同時計数の γ 線スペクトルを測定し、着目する γ 線強度を求める方法である。

この絶対測定法の信頼度を調べるために、 ^{60}Co 線源を調製して種々の絶対測定法を試み、得られた結果が相互によく一致することを確認した。次いで、作製した ^{152}Eu 線源について、本 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコーピー同時計数法を適用し、得られた結果をLMRI製 ^{152}Eu 標準線源と比較した。

2. ^{152}Eu 線源の調製と γ 線スペクトロメトリによる定量

ユーロピウムの濃縮試料(^{151}Eu 92%, ^{153}Eu 8%の組成)に原子炉で中性子照射を行い ^{152}Eu を生成せしめた。照射後、陽イオン交換法により、不純物としてターゲット中に含まれていた他の希土類元素を除去⁹⁾した。精製したユーロピウム・フラクシオンには、 ^{152}Eu の他に約0.7%の ^{154}Eu が含まれている。ユーロピウムは塩化ユーロピウムの稀塩酸溶液の形で保存した。

放射能測定用の試料は、この保存溶液から重量法により既知量の溶液を分取して作製した。絶対測定用試料は、両面に金を蒸着したカネビニール薄膜($\sim 15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$)に試料溶液を載せ、デシケータ中で乾燥させて調製した。 γ 線スペクトロメトリ用試料は、マイラー箔上に載せた試料溶液を赤外ランプで加熱乾燥させ、スコッチテープで表面を覆って作った。

γ 線スペクトロメトリには、1979年10月18日付で $10.24 \pm 0.16 \mu\text{Ci}$ (誤差は 3σ)のフランスLMRI製の ^{152}Eu 標準線源を用いて直接比較する方法を採った。測定器に

1. 序 論

^{152}Eu は、半導体 γ 線検出器のエネルギー及び計数効率校正のための標準線源として有用な核種であるため、その壊変図式や γ 線の放出率などが詳細に測定されている¹⁻⁵⁾。しかし、その壊変率の絶対測定に関しては、複雑な壊変図式がわざわざして通常の同時計数法が適用されず、一崩壊あたり殆んど100%の γ 線又はX線が放出されることに着目した $4\pi\gamma$ 計数法による測定の報告^{6, 7)}があるのみである。

$4\pi\gamma$ 計数法では、大型のNaI(Tl)検出器を用い、各 γ 線エネルギーでのその計数効率から壊変図式に基いて ^{152}Eu の計数効率を計算する。したがって、 γ 線計数効率を定めるための一次標準線源を他に必要とする間接的な絶対測定である上、結果の信頼度には壊変図式の信頼度が直接影響することになる。その影響の度合は、検出器の効率が大きくなる程小さくなるが、4" ϕ \times 5"の井戸型NaI(Tl)検出器を使用した場合の誤差は 3σ の信頼度で約1%であると報告されている⁶⁾。

今回、 ^{152}Eu を直接的に絶対測定することを試み、河田らの考案した $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコーピー逆同時計数法⁸⁾を発展させて、 ^{152}Eu の新らしい絶対測定法を確立した。これは $4\pi\beta$ 検出器とGe(Li)検出器とを組み合わせ、 β 線検出器の出力をゲートパルスとして、同時計数の γ 線スペクトルを測定し、着目する γ 線強度を求める方法である。

この絶対測定法の信頼度を調べるために、 ^{60}Co 線源を調製して種々の絶対測定法を試み、得られた結果が相互によく一致することを確認した。次いで、作製した ^{152}Eu 線源について、本 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコーピー同時計数法を適用し、得られた結果をLMRI製 ^{152}Eu 標準線源と比較した。

2. ^{152}Eu 線源の調製と γ 線スペクトロメトリによる定量

ユーロピウムの濃縮試料(^{151}Eu 92%, ^{153}Eu 8%の組成)に原子炉で中性子照射を行い ^{152}Eu を生成せしめた。照射後、陽イオン交換法により、不純物としてターゲット中に含まれていた他の希土類元素を除去⁹⁾した。精製したユーロピウム・フラクシオンには、 ^{152}Eu の他に約0.7%の ^{154}Eu が含まれている。ユーロピウムは塩化ユーロピウムの稀塩酸溶液の形で保存した。

放射能測定用の試料は、この保存溶液から重量法により既知量の溶液を分取して作製した。絶対測定用試料は、両面に金を蒸着したカネビニール薄膜($\sim 15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$)に試料溶液を載せ、デシケータ中で乾燥させて調製した。 γ 線スペクトロメトリ用試料は、マイラー箔上に載せた試料溶液を赤外ランプで加熱乾燥させ、スコッチテープで表面を覆って作った。

γ 線スペクトロメトリには、1979年10月18日付で $10.24 \pm 0.16 \mu\text{Ci}$ (誤差は 3σ)のフランスLMRI製の ^{152}Eu 標準線源を用いて直接比較する方法を採った。測定器に

はORTEC社製同軸型Ge(Li)検出器(相対検出効率15%,分解能2.1 keV)を用いた。

測定に際して検出器と線源の距離は20-40 cmとし、全計数値が300 cps以下になるように調節した。¹⁵²Euの定量は、上記¹⁵²Eu標準線源との間で、直接γ線ピーク面積の比較で行った。試料中に少量の¹⁵⁴Euを含むので、¹⁵⁴Euのγ線が混入する恐れがなく且強度の大きい344, 779, 964, 1112, 及び1408 keVのピークを用いた。半減期は 13.1 ± 0.1 年¹⁰⁾として補正した。

3. 絶対測定法の原理

今、第1図に示すような壊変図式を有する放射性核種Aについて、そのβ計数値 N_β を観測すると、壊変数 N_0 は次式で与えられる。

$$N_0 = N_\beta / \sum_i f_i \epsilon_{\beta i} \quad (1)$$

ここで、 f_i は*i*番目のβ線に対する分岐比、 $\epsilon_{\beta i}$ はその計数効率である。和はすべてのβ線について求める。今、 $\epsilon_{\beta i}$ を求めるために、βカウンターと半導体γ線検出器とを組み合わせた第2図の回路構成により、β線検出器からの信号をゲートとしてγ線同時計数スペクトルを測定する。着目する γ_j のピーク面積 $A_c(j)$ を求めると、壊変数 N_0 との間に次式が成立する。

$$A_c(j) = N_0 f_i \epsilon_{\gamma i} \phi_j \epsilon_{\gamma j} \quad (2)$$

ただし、 ϕ_j は γ_j の相対分岐比、 $\epsilon_{\gamma i}$ は γ_j に対する計数効率である。これとシングルγ線スペクトル中の γ_j のピーク面積 $A_s(j)$ の比を取ると

$$D_c(j) \equiv \frac{A_c(j)}{A_s(j)} = \frac{N_0 f_i \epsilon_{\beta i} \phi_j \epsilon_{\gamma j}}{N_0 f_i \phi_j \epsilon_{\gamma j}} = \epsilon_{\beta i} \quad (3)$$

となって β_i に対するβカウンターの計数効率を得られる。したがって、(1)式は

$$N_0 = N_\beta / \sum_i f_i D_c(j) \quad (4)$$

と書くことが出来る。ただし、 γ_j は β_i とカスケードの関係にあるγ線を表わす。^{注)}

注) 文献7)では同時計数スペクトルの代りに、逆同時計数スペクトルのデータを用い、したがって、β線計数効率は(3)式の代りに

$$\epsilon_{\beta i} = 1 - \frac{A_a(j)}{A_s(j)} \quad (3')$$

はORTEC社製同軸型Ge(Li)検出器(相対検出効率15%, 分解能2.1 keV)を用いた。

測定に際して検出器と線源の距離は20-40 cmとし, 全計数値が300 cps以下になるように調節した。 ^{152}Eu の定量は, 上記 ^{152}Eu 標準線源との間で, 直接 γ 線ピーク面積の比較で行った。試料中に少量の ^{154}Eu を含むので, ^{154}Eu の γ 線が混入する恐れがなく且強度の大きい344, 779, 964, 1112, 及び1408 keVのピークを用いた。半減期は 13.1 ± 0.1 年¹⁰⁾として補正した。

3. 絶対測定法の原理

今, 第1図に示すような壊変図式を有する放射性核種Aについて, その β 計数値 N_β を観測すると, 壊変数 N_0 は次式で与えられる。

$$N_0 = N_\beta / \sum_i f_i \epsilon_{\beta i} \quad (1)$$

ここで, f_i は*i*番目の β 線に対する分岐比, $\epsilon_{\beta i}$ はその計数効率である。和はすべての β 線について求める。今, $\epsilon_{\beta i}$ を求めるために, β カウンターと半導体 γ 線検出器とを組み合わせた第2図の回路構成により, β 線検出器からの信号をゲートとして γ 線同時計数スペクトルを測定する。着目する γ_j のピーク面積 $A_c(j)$ を求めると, 壊変数 N_0 との間に次式が成立する。

$$A_c(j) = N_0 f_i \epsilon_{\gamma i} \phi_j \epsilon_{\gamma j} \quad (2)$$

ただし, ϕ_j は γ_j の相対分岐比, $\epsilon_{\gamma i}$ は γ_j に対する計数効率である。これとシングル γ 線スペクトル中の γ_j のピーク面積 $A_s(j)$ の比を取ると

$$A_c(j) \equiv \frac{A_c(j)}{A_s(j)} = \frac{N_0 f_i \epsilon_{\beta i} \phi_j \epsilon_{\gamma j}}{N_0 f_i \phi_j \epsilon_{\gamma j}} = \epsilon_{\beta i} \quad (3)$$

となって β_i に対する β カウンターの計数効率を得られる。したがって, (1)式は

$$N_0 = N_\beta / \sum_i f_i A_c(j) \quad (4)$$

と書くことが出来る。ただし, γ_j は β_i とカスケードの関係にある γ 線を表わす。^{注)}

注) 文献7)では同時計数スペクトルの代りに, 逆同時計数スペクトルのデータを用い, したがって, β 線計数効率は(3)式の代りに

$$\epsilon_{\beta i} = 1 - \frac{A_a(j)}{A_s(j)} \quad (3')$$

で与えられることになる。ここで、 $A_a(j)$ は逆同時計数スペクトル中の γ_j のピーク面積である。 β カウンターとして $4\pi\beta$ カウンターを用いるので、 ϵ_β は1に近く、ために(3)式の方が(3)式より統計誤差が小さいという点では、この方が有利である。しかしながら、同時計数スペクトルの場合に比して、逆同時計数スペクトルの場合は補正の仕方があまり直截的でないため、本報の対象核種である ^{152}Eu のように極めて複雑な壊変図式を有する核種に適用することは事実上不可能である。

なお、上の計算法は壊変図式が第1図のように簡単な核種の場合であり、第4図に示すようにカスケード γ 遷移による流れ込みがある場合には ϵ_β は(3)式のような簡単な形にはならない。

4. ^{60}Co による絶対測定法の検証

前節で記述したスペクトロスコピー的手法による絶対測定法を検証するために、 ^{60}Co 線源を用いて他の絶対測定法との比較測定を行った。比較のために $4\pi\beta$ プロポーショナル・カウンターと NaI(Tl) 検出器を組み合わせた通常の $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法を実施した。そのブロック回路図を第3図に示す。

絶対測定に使用した ^{60}Co 線源は、両面に金蒸着を施したカネビニール薄膜に ^{60}Co の塩酸溶液を滴下し、濃アンモニア雰囲気を充したデシケータ中で乾燥して作製した。

5. ^{152}Eu の絶対測定

^{152}Eu は27%が β^- 壊変で ^{152}Gd に、73%がEC壊変とわずかな β^+ 壊変により ^{152}Sm に崩壊する。¹¹⁾ β^- 壊変は12本の β 線を放出するが、そのうち1%以上の分岐比を有する β 線は170 keV(1.9%)、370 keV(2.5%)、690 keV(13%)及び1492 keV(8%)の4本である。このうち最初の3本については、それぞれ1299 keV、1090 keV及び779 keVの γ 線に着目してスペクトロスコピー同時計数法を適用すれば、(3)式によりその計数効率を求めることができる。1492 keVの β 線については344 keVの γ 線を利用することになるが、この γ 線には他の β 線からの流れ込みが無視できないため、(3)式をそのまま適用する訳には行かず、既知の3つの β 線計数効率 $\epsilon_\beta(170)$ 、 $\epsilon_\beta(370)$ 、 $\epsilon_\beta(690)$ と344 keVの γ 線に対する面積比 $A_c(344)$ とから(5)式により計算しなければならない。

$$\epsilon_\beta(1492) = \frac{25.29 A_c(344) - 13.0 \epsilon_\beta(690) - 2.43 \epsilon_\beta(370) - 1.86 \epsilon_\beta(170)}{8}$$

..... (5)

で与えられることになる。ここで、 $A_a(j)$ は逆同時計数スペクトル中の γ_j のピーク面積である。 β カウンターとして $4\pi\beta$ カウンターを用いるので、 ϵ_β は1に近く、ために(3)式の方が(3)式より統計誤差が小さいという点では、この方が有利である。しかしながら、同時計数スペクトルの場合に比して、逆同時計数スペクトルの場合は補正の仕方があまり直截的でないため、本報の対象核種である ^{152}Eu のように極めて複雑な壊変図式を有する核種に適用することは事実上不可能である。

なお、上の計算法は壊変図式が第1図のように簡単な核種の場合であり、第4図に示すようにカスケード γ 遷移による流れ込みがある場合には ϵ_β は(3)式のような簡単な形にはならない。

4. ^{60}Co による絶対測定法の検証

前節で記述したスペクトロスコピー的手法による絶対測定法を検証するために、 ^{60}Co 線源を用いて他の絶対測定法との比較測定を行った。比較のために $4\pi\beta$ プロポーショナル・カウンターと NaI(Tl) 検出器を組み合わせた通常の $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法を実施した。そのブロック回路図を第3図に示す。

絶対測定に使用した ^{60}Co 線源は、両面に金蒸着を施したカネビニール薄膜に ^{60}Co の塩酸溶液を滴下し、濃アンモニア雰囲気を充したデシケータ中で乾燥して作製した。

5. ^{152}Eu の絶対測定

^{152}Eu は27%が β^- 壊変で ^{152}Gd に、73%がEC壊変とわずかな β^+ 壊変により ^{152}Sm に崩壊する。¹¹⁾ β^- 壊変は12本の β 線を放出するが、そのうち1%以上の分岐比を有する β 線は170 keV(1.9%)、370 keV(2.5%)、690 keV(13%)及び1492 keV(8%)の4本である。このうち最初の3本については、それぞれ1299 keV、1090 keV及び779 keVの γ 線に着目してスペクトロスコピー同時計数法を適用すれば、(3)式によりその計数効率を求めることができる。1492 keVの β 線については344 keVの γ 線を利用することになるが、この γ 線には他の β 線からの流れ込みが無視できないため、(3)式をそのまま適用する訳には行かず、既知の3つの β 線計数効率 $\epsilon_\beta(170)$ 、 $\epsilon_\beta(370)$ 、 $\epsilon_\beta(690)$ と344 keVの γ 線に対する面積比 $A_c(344)$ とから(5)式により計算しなければならない。

$$\epsilon_\beta(1492) = \frac{25.29 A_c(344) - 13.0 \epsilon_\beta(690) - 2.43 \epsilon_\beta(370) - 1.86 \epsilon_\beta(170)}{8}$$

..... (5)

で与えられることになる。ここで、 $A_a(j)$ は逆同時計数スペクトル中の γ_j のピーク面積である。 β カウンターとして $4\pi\beta$ カウンターを用いるので、 ϵ_β は1に近く、ために(3)式の方が(3)式より統計誤差が小さいという点では、この方が有利である。しかしながら、同時計数スペクトルの場合に比して、逆同時計数スペクトルの場合は補正の仕方があまり直截的でないため、本報の対象核種である ^{152}Eu のように極めて複雑な壊変図式を有する核種に適用することは事実上不可能である。

なお、上の計算法は壊変図式が第1図のように簡単な核種の場合であり、第4図に示すようにカスケード γ 遷移による流れ込みがある場合には ϵ_β は(3)式のような簡単な形にはならない。

4. ^{60}Co による絶対測定法の検証

前節で記述したスペクトロスコピー的手法による絶対測定法を検証するために、 ^{60}Co 線源を用いて他の絶対測定法との比較測定を行った。比較のために $4\pi\beta$ プロポーションナル・カウンターとNaI(Tl)検出器を組み合わせた通常の $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法を実施した。そのブロック回路図を第3図に示す。

絶対測定に使用した ^{60}Co 線源は、両面に金蒸着を施したカネビニール薄膜に ^{60}Co の塩酸溶液を滴下し、濃アンモニア雰囲気を充したデシケータ中で乾燥して作製した。

5. ^{152}Eu の絶対測定

^{152}Eu は27%が β^- 壊変で ^{152}Gd に、73%がEC壊変とわずかな β^+ 壊変により ^{152}Sm に崩壊する。¹¹⁾ β^- 壊変は12本の β 線を放出するが、そのうち1%以上の分岐比を有する β 線は170 keV(1.9%)、370 keV(2.5%)、690 keV(13%)及び1492 keV(8%)の4本である。このうち最初の3本については、それぞれ1299 keV、1090 keV及び779 keVの γ 線に着目してスペクトロスコピー同時計数法を適用すれば、(3)式によりその計数効率を求めることができる。1492 keVの β 線については344 keVの γ 線を利用することになるが、この γ 線には他の β 線からの流れ込みが無視できないため、(3)式をそのまま適用する訳には行かず、既知の3つの β 線計数効率 $\epsilon_\beta(170)$ 、 $\epsilon_\beta(370)$ 、 $\epsilon_\beta(690)$ と344 keVの γ 線に対する面積比 $A_c(344)$ とから(5)式により計算しなければならない。

$$\epsilon_\beta(1492) = \frac{25.29 A_c(344) - 13.0 \epsilon_\beta(690) - 2.43 \epsilon_\beta(370) - 1.86 \epsilon_\beta(170)}{8}$$

..... (5)

第4図には、以上のことを考慮して簡略化した ^{152}Eu の実効的壊変図式を示す。

β^- 壊変に劣らずEC側の壊変図式も複雑であるが、 β^+ 放出が事実上無視出来るので、測定上問題になるのは、各 γ 遷移の過程で放出される内部転換電子とEC壊変の際に放出されるオージェ電子の寄与である。従来の β 線検出による絶対測定では、内部転換電子に対する計数効率が厳密に求められないことと、内部転換係数の不確かさとが、 ^{152}Eu の絶対測定を行う上での制約になっていた。さらに、KオージェのみならずLオージェ電子のような軟電子線までが加わって、効率トレーサー法¹²⁾による ϵ_β の外挿手法にも問題があった。

ところが、今回のスペクトロスコープ同時計数の手法によれば、第4図の122 keVの γ 遷移の過程で放出される内部転換電子の寄与は、122 keVの遷移とカスケード関係にある γ 線を利用して求めることが出来る。しかも、この場合には、転換電子に対する単なる計数効率でなく、(6)式に示すように、転換の割合を乗じた量が得られるため、内部転換係数の値に含まれる誤差は消去されてしまう。すなわち

$$\begin{aligned} A_c(\gamma_i) &\equiv \frac{A_c(\gamma_i)}{A_s(\gamma_i)} = \frac{N_0 f_i \epsilon \gamma_i \frac{\alpha_{122}}{1+\alpha_{122}} \epsilon_e(122)}{N_0 f_i \epsilon \gamma_i} \\ &= \frac{\alpha_{122}}{1+\alpha_{122}} \epsilon_e(122) \equiv \epsilon_{122} \end{aligned} \quad (6)$$

ただし、 α_{122} および $\epsilon_e(122)$ はそれぞれ122 keVの遷移における内部転換係数と転換電子計数効率である。また、 γ_i は122 keVの遷移とカスケード関係にある γ 線のどれかを表わす。第4図から明らかなように、最も寄与の大きい122 keV γ 遷移の転換電子の寄与分を決定するのに4本の γ 線を利用することが可能であり、したがって独立に4ケの測定値が得られるので、その精度は極めて良い。

ところで、122 keVの γ 遷移とカスケード関係にある γ 遷移は、同時に先行するEC壊変の過程で放出されるオージェ電子ともカスケードの関係にある。したがって、(6)式はより厳密にはオージェ電子の寄与をも考慮した(6')式に置き換えられねばならない。

$$A_c(\gamma_i) = \epsilon_{122} + (1 - \epsilon_{122}) \delta_A \quad (6')$$

ここで、 δ_A がオージェ電子の測り込み分であり、X線蛍光収率 ω とオージェ電子に対する計数効率 ϵ^A とから

$$\begin{aligned} \delta_A &= (1 - \omega_K) \epsilon_K^A + \{ 1 - (1 - \omega_K) \epsilon_K^A \} (1 - \omega_L) \epsilon_L^A \\ &\quad + \omega_K (1 - \omega_L) \epsilon_L^A \end{aligned} \quad (7)$$

で与えられる。ただし、添字KおよびLはそれぞれK X線乃至Kオージェ電子およびL X線乃至Lオージェ電子を表わす。

122 keV の γ 線とカスケード関係にある γ 遷移の過程での転換電子およびオーグ電子の寄与分は、122 keV の γ 線についてスペクトロスコピー同時計数を実施することにより、一括して求めることが出来る。すなわち

$$A_C(122) = \langle e \rangle + (1 - \langle e \rangle) \delta_A \quad (8)$$

ここで

$$\langle e \rangle = \frac{\sum_j f_j \frac{\alpha_j}{1 + \alpha_j} \epsilon_{ej}}{\sum_j f_j} \quad (9)$$

であり、(9)式中の和は122 keV の γ 線とカスケード関係にあるすべての γ 線についてとるものとする。

一方、1086 keV の γ 遷移によって代表される直接基底状態に落ちる遷移についての転換電子の寄与は測定出来ないが、これらの γ 線はいずれもエネルギーが大きく、転換電子の寄与は問題にならない。逆に、このことを利用して、1086 keV の γ 線について同様に A_C を求めるならば

$$A_C(1086) = \delta_A + (1 - \delta_A) \frac{\sum'_j f_j \frac{\alpha_j}{1 + \alpha_j} \epsilon_{ej}}{\sum'_j f_j} \approx \delta_A \quad (10)$$

となって、(6)式および(8)式の右辺に表われる δ_A を求めることが出来る。

一旦、このようにして δ_A が求められれば

$$e_{122} = \frac{A_C(122) - \delta_A}{1 - \delta_A} \quad (11)$$

および

$$\langle e \rangle = \frac{A_C(122) - \delta_A}{1 - \delta_A} \quad (12)$$

によって、転換電子の寄与分のみを求めることが出来る。

6. 結果と考察

今回調製した絶対測定用の ^{60}Co 線源を用いて2種類の絶対測定法を実施した結果を第1表に示す。4 π β - γ スペクトロスコーピー法については同一の測定条件での結果が2通りづゝ与えてあるが、これは、1173 keV と1332 keV の2本の γ 線についてそれぞれ独立に求めた N_{β} に対応している。

第1表の左から2番目のカラムには、各装置について求めた不感時間 τ_D が記してある。この τ_D は、2線源法によって求めた値である(附録A参照)。3番目のカラムには、 N_{β} に対する数え落しの補正だけを考慮した時に得られる壊変数を与えてある。通常の4 π β - γ 同時計数法の結果と比較して、スペクトロスコーピー逆同時計数法の場合には、ほぼ等しい値が得られるが、同時計数法では大きな差があり、しかもその差はゲートパルスの中が大きい程大きくなっている。

スペクトロスコーピー法における主たる補正は、同時計数のクロック時間が延長されることである。この他に必要な補正としては、チャンス・コインシデンスに対する補正と β 線検出器による γ 線の検出の問題^{13,14)}がある。これらの問題は附録BとCに論じられている。結局、通常の4 π β - γ 同時計数法に対しては、

$$\varepsilon_{\beta} \equiv \Delta_c^0 = \frac{\Delta_c - 2N_{\beta}\tau_R - \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 - 2N_{\beta}\tau_R - \varepsilon_{\beta\gamma}} \quad (13)$$

によって β 線計数効率が与えられる。ただし、(13)式中の τ_R は同時計数回路の分解時間であって、第1表の4番目のカラムに与えた値に設定されている。また、 $\varepsilon_{\beta\gamma}$ は ^{60}Co の γ 線の1本当りの β 線検出器の γ 線検出効率であり、こゝでは $\varepsilon_{\beta\gamma} = 0.0044$ ¹³⁾という値を用いる(附録C参照)。

一方、スペクトロスコーピー同時計数法に対しては、

$$\varepsilon_{\beta} \equiv \Delta_c^0(\gamma) = \frac{\Delta_c(\gamma) - N_{\beta}\tau_E - \varepsilon_{\beta\gamma}(1 + N_{\beta}\tau_R)}{(1 - \varepsilon_{\beta\gamma})(1 + N_{\beta}\tau_R) - N_{\beta}\tau_E} \quad (14)$$

また、スペクトロスコーピー逆同時計数法に対しては、

$$1 - \varepsilon_{\beta} \equiv \Delta_a^0(\gamma) = \frac{\Delta_a(\gamma)}{(1 - \varepsilon_{\beta\gamma})(1 + N_{\beta}\tau_R) - N_{\beta}\tau_E} \quad (15)$$

によって ε_{β} が計算されることになる。こゝで、(14)及び(15)式中に現われる τ_E は、スペクトロスコーピー法の場合には、チャンス・コインシデンスに有効な分解時間が同時計数回路のゲートパルスの中 τ_R と同じにならないこと(A-1図参照)に起因している。

β 線検出器の γ 線に対する検出感度を考慮した場合の壊変数 N_0 を求める式は、通常の 4π $\beta-\gamma$ 同時計数法の場合も、 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー法の場合も等しく

$$N_0 = \frac{N\beta}{\epsilon_{\beta} + 2\epsilon_{\beta}\gamma(1-\epsilon_{\beta})} \quad (16)$$

となる。

これらの補正を施した最終結果が、第1表の最後のカラムに与えてある。表中に示した種々の測定法、異なる測定条件で得られた測定値は、極めて満足すべき一致を示している。以上の結果は、(13)から(16)式までの補正方法の正しさを裏付けるのみならず、絶対測定法そのものが、少くとも ^{60}Co に関しては、極めて高い精度を保証することを示している。

第2表に ^{152}Eu 試料について行った γ 線スペクトロメトリーの結果を示す。

第3表は、第2表で定量した ^{152}Eu 溶液から作成した4ヶの線源について行った $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー同時計数法による測定結果を与える。表中、上からの最初の4ヶの $\Delta_c(\gamma)$ は、1%以上の分岐比で放出される4本の β 線に関する γ 線についてのピーク面積比を表わし、それぞれ上段は実測値、下段は(14)式による補正値を与える。なお、第4図から見て明らかのように、 β^- 崩壊については、 β 計数管の γ 線数え込みの寄与は無視して良い。これら4ヶの $\Delta_c(\gamma)$ の下には、(5)式によって計算した1492 keVの β 線に対する計数効率が記載されている。

^{152}Sm への壊変は殆んどがEC壊変であり、 β^+ の寄与は無視して良いが、他方オージェ電子の寄与 δ_A を考慮しなければならない。 δ_A は、1086 keVの γ 線についてのピーク面積比 $\Delta_c(1086)$ を(14)式に代入して求めることが出来る。ただし、第4図から明らかのように、この場合の $\epsilon_{\beta}\gamma$ としては、1086 keVの γ 線の一部とカスケード関係にある444 keVと564 keVの γ 線の寄与が関係して来る。文献(13)から読み取ったそれぞれの $\epsilon_{\beta}\gamma(\gamma)$ に相対分岐比を乗じた量は、0.000192という小さな値になるが、それでも δ_A の評価に際しては無視出来ない。

第3表の δ_A の下には、245 keVの γ 線をはじめとする4本の γ 線について実測した $\Delta_c(\gamma)$ の値と

$$\epsilon_{122} = \frac{\Delta_c(\gamma) - N_{\beta}\tau_E - \delta_A(1 + N_{\beta}\tau_R)}{(1 - \delta_A)(1 + N_{\beta}\tau_R) - N_{\beta}\tau_E} \quad (11')$$

なる計算式によって求めた ϵ_{122} の値が載せてある。これらの γ 線の場合、カスケード関係にあるのは、事実上、122 keVの γ 線だけと見なせるので、 $\epsilon_{\beta}\gamma$ の寄与はこゝでは無視できる。¹³⁾

次に、122 keVの γ 線からは(12)式の代りに

$$\langle \epsilon \rangle = \frac{\Delta_c(122) - N_{\beta}\tau_E - \delta_A(1 + N_{\beta}\tau_R)}{(1 - \delta_A)(1 + N_{\beta}\tau_R) - N_{\beta}\tau_E} \quad (12')$$

を用いて $\langle \epsilon_e \rangle$ を求めることが出来る。これらは第3表の $(\epsilon_{122})_{av}$ の値の下に与えられている。この場合には、 $\epsilon_{\beta\gamma}$ の寄与が若干あるとすべきであるが、 $\epsilon_{\beta\gamma} \leq 0.003$ と見積られるので無視した。

第3表に得られた4本の β 線に対する計数効率の値を用いて構成した β 線エネルギー E_β の関数としての β 線計数効率曲線を第5図に示す。次に、こうして得られた計数効率曲線から、第4図中に数値を与えた0.1%以上の分岐比を有する8本の β 線のそれぞれについて、その計数効率を読み取り、次式によって平均の β 線計数効率 $\langle \epsilon_\beta \rangle$ を求めた。

$$\langle \epsilon_\beta \rangle = \frac{\sum_{i=1}^8 f_i \epsilon_{\beta i}}{\sum_{i=1}^8 f_i} \quad (17)$$

こうして求めた β 線計数効率に内部転換電子その他の寄与を加えた実効計数効率 ϵ_β は、近似的に

$$\epsilon_\beta = 0.27 \{ \langle \epsilon_\beta \rangle + (1 - \langle \epsilon_\beta \rangle) \cdot \Sigma \epsilon_{\beta\gamma} \} + \langle \epsilon_e \rangle \quad (18)$$

で与えられる。ここで $\langle \epsilon_e \rangle$ はEC崩壊側からの寄与分で

$$\begin{aligned} \langle \epsilon_e \rangle = & 0.63 \{ \delta_A + (1 - \delta_A) \{ \Sigma \epsilon_{\beta\gamma} + \epsilon_{122} + \langle \epsilon_e \rangle (1 - \epsilon_{122}) \} \} \\ & + 0.10 \{ \delta_A + (1 - \delta_A) \Sigma \epsilon_{\beta\gamma} \} \end{aligned} \quad (19)$$

さらに、 $\Sigma \epsilon_{\beta\gamma}$ は ^{152}Eu 全体としての β 計数管の γ 線測り込み分であって、附録Cにより0.0068と求められている。

4ケの ^{152}Eu 試料のそれぞれについて求めたこれらの数値はすべて第3表に記載されている。

γ 線スペクトロメトリの結果、 ^{152}Eu 中に含まれる ^{154}Eu の放射能は0.73% (1980年9月1日現在)であった。 ^{152}Eu と ^{154}Eu の β 線のエネルギー分布は比較的類似しているので、この程度の不純物に対する補正としては、 ^{152}Eu について求めた $\langle \epsilon_\beta \rangle$ をそのまま用いることが許される。結局、 ^{152}Eu の壊変率 N_0^{152} は

$$N_0^{152} = \frac{N_\beta}{\epsilon_\beta + 0.0073 f_\beta^{154} \langle \epsilon_\beta \rangle} \quad (20)$$

で与えられる。ただし、 f_β^{154} は ^{154}Eu の全 β 線放出率で0.9998 [11]を用いる。

^{152}Eu の絶対測定の結果も第3表に与えてある。なお、比較のために γ 線スペクトロメトリによって決定した試料原液の放射能濃度との比を併記してある。この比が1に近いということは、LMRIの採用している $4\pi\gamma$ 法と今回の $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコープ同時計数法の信頼

度を高めるのみならず、 ^{152}Eu の γ 線分岐比の値の正しさをも裏付けるものであると結論される。なんとすれば、この一致が単なる偶然によるものである可能性は極めて薄いと考えるのが妥当だからである。

第3表の放射能濃度の比は最終的には 1.014 ± 0.007 という値になっている。こゝで誤差は、 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー法について68%信頼度での統計誤差と系統誤差を合わせた値であり、 γ 線スペクトロメトリにおける誤差は含まれていない。LMRIの ^{152}Eu 標準線源には99.7%信頼度(3 σ)で $\pm 1.5\%$ の誤差が付されている。これにスペクトロメトリの誤差を加えると、スペクトロスコピー法と同程度の誤差になる。

ところで、第3表中の放射能濃度比の4つの値のばらつきは極めて小さく、系統的誤差が誤差の大半を占めていると見なすことが出来る。スペクトロスコピー法の結果の精度を論じるに当って、 $\langle \epsilon_\beta \rangle$ の占めるウエイトはあまり大きくない。これは、 β の全分岐比が27%と小さいためである。全計数効率 ϵ_β の精度は $\langle \epsilon_e \rangle$ をいかに精度良く求めるかにかかっているが、その評価にあたってはオージェ電子の寄与分 δ_A が大きな影響を与える。しかして、 δ_A の決定には1086 keV の γ 遷移とカスケード関係にある γ 線に対する β 計数管の測り込み分の正確な評価が必要になる。 δ_A の増加は ϵ_{122} と $\langle \epsilon \rangle$ の減少をもたらすが、その効果は $\langle \epsilon \rangle$ においてより著しい。結論として、0.01%程度の $\epsilon_{\beta\gamma}$ といえども無視出来ないことになる。

本論文中に示した δ_A の評価方法の妥当性を調べる目的で ^{152}Eu 線源の上下に両面に金蒸着を施したVYNS膜を逐次重ねて絶対測定を行った結果を第4表に示す。測定データの表示のTはトップ、Bはボトムを表わし、T又はBに続く数字はVYNS吸収膜の枚数を表わす。第4表によれば、 $\langle \epsilon_\beta \rangle$ 及び ϵ_{122} は吸収膜の厚さが増すにつれて徐々に減少するが、 δ_A は殆んど一定であり、逆に $\langle \epsilon \rangle$ は急激に減少して0になってしまう。これは、それぞれのエネルギー分布から考えて大体妥当な傾向であると云える。

さらに、第4表中の N_0 については、最も厚いT3B3の例を除くと、大体1%程度の変動におさまっている。T3B3の場合には3%近い差異が生じているが、これはあまり多くの吸収膜を高電圧の場の中に挿入することによる影響が現われ始めた可能性がある。

以上の結果から見て、本研究における β 計数管の計数効率の評価方法の妥当性は充分証明されており、最終結果における誤差は1%を越えることはない結論される。

謝 辞

本研究に際して有益な議論をして頂いた名古屋大学工学部の渡辺鏗教授に深く感謝します。

度を高めるのみならず、 ^{152}Eu の γ 線分岐比の値の正しさをも裏付けるものであると結論される。なんとすれば、この一致が単なる偶然によるものである可能性は極めて薄いと考えるのが妥当だからである。

第3表の放射能濃度の比は最終的には 1.014 ± 0.007 という値になっている。こゝで誤差は、 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー法について68%信頼度での統計誤差と系統誤差を合わせた値であり、 γ 線スペクトロメトリにおける誤差は含まれていない。LMRIの ^{152}Eu 標準線源には99.7%信頼度(3 σ)で $\pm 1.5\%$ の誤差が付されている。これにスペクトロメトリの誤差を加えると、スペクトロスコピー法と同程度の誤差になる。

ところで、第3表中の放射能濃度比の4つの値のばらつきは極めて小さく、系統的誤差が誤差の大半を占めていると見なすことが出来る。スペクトロスコピー法の結果の精度を論じるに当って、 $\langle \epsilon_{\beta} \rangle$ の占めるウエイトはあまり大きくない。これは、 β の全分岐比が27%と小さいためである。全計数効率 ϵ_{β} の精度は $\langle \epsilon_e \rangle$ をいかに精度良く求めるかにかかっているが、その評価にあたってはオージェ電子の寄与分 δ_A が大きな影響を与える。しかして、 δ_A の決定には1086 keV の γ 遷移とカスケード関係にある γ 線に対する β 計数管の測り込み分の正確な評価が必要になる。 δ_A の増加は ϵ_{122} と $\langle \epsilon_e \rangle$ の減少をもたらすが、その効果は $\langle \epsilon_e \rangle$ においてより著しい。結論として、0.01%程度の $\epsilon_{\beta\gamma}$ といえども無視出来ないことになる。

本論文中に示した δ_A の評価方法の妥当性を調べる目的で ^{152}Eu 線源の上下に両面に金蒸着を施したVYNS膜を逐次重ねて絶対測定を行った結果を第4表に示す。測定データの表示のTはトップ、Bはボトムを表わし、T又はBに続く数字はVYNS吸収膜の枚数を表わす。第4表によれば、 $\langle \epsilon_{\beta} \rangle$ 及び ϵ_{122} は吸収膜の厚さが増すにつれて徐々に減少するが、 δ_A は殆んど一定であり、逆に $\langle \epsilon_e \rangle$ は急激に減少して0になってしまう。これは、それぞれのエネルギー分布から考えて大体妥当な傾向であると云える。

さらに、第4表中の N_0 については、最も厚いT3B3の例を除くと、大体1%程度の変動におさまっている。T3B3の場合には3%近い差異が生じているが、これはあまり多くの吸収膜を高電圧の場の中に挿入することによる影響が現われ始めた可能性がある。

以上の結果から見て、本研究における β 計数管の計数効率の評価方法の妥当性は充分証明されており、最終結果における誤差は1%を越えることはないと結論される。

謝 辞

本研究に際して有益な議論をして頂いた名古屋大学工学部の渡辺鏗教授に深く感謝します。

References

1. S.Baba and T.Suzuki, J. Radioanal. Chem. 29 (1976) 301.
2. R.J.Gehrke, R.G.Helmer and R.C.Greenwood, Nucl. Instr. Methods 147 (1977) 405.
3. K.Debertin, Nucl. Instr. Methods 158 (1979) 479.
4. U.Schötzig, K.Debertin and K.F.Walz, Nucl. Instr. Methods 169 (1980) 43.
5. Y.Yoshizawa, Y.Iwata and Y.Iimura, Nucl. Instr. Methods 174 (1980) 133.
6. J.Legrand, C.Clément and C.Bac, Bulletin BNM 6 (1975) No.19, p.31.
7. U.Schötzig and K.Debertin, PTB-Ra-10 (1980).
8. Y.Kawada, O.Yura and M.Kimura, Nucl. Instr. Methods 78 (1970) 77.
9. 夏目晴夫, 佐藤 忠, 第6回日本アイソトープ会議報文集 (1964) 80, A/C-7.
10. F.Lagoutine, J.Legrand and C.Bac, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 29 (1978) 269.
11. Table of Isotopes, seventh edition, edited by C.M.Lederer and V.S.Shirley, Wiley (New York·Chichester·Brisbane·Toronto, 1978).
12. P.J.Campion, J.G.V.Taylor and J.S.Merritt, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 8 (1960) 8.
13. A. Williams and P.J.Campion, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes 14 (1963) 533.
14. J.S.Merritt and J.G.V.Taylor, Proc. of a symposium on Standardization of Radionuclides, Vienna, IAEA (1966) SM-79/66.
15. J.B.Marion, 1960 Nuclear Data Tables, Part 3, Nuclear Reaction Graphs, National Academy of Science—National Research Council, Washington, D.C. (1960) p.6.

Table 1 Comparison of the results of various methods of the absolute measurement for ^{60}Co . Notations are explained in the text.

Method	τ_D (μsec)	\underline{N}_0 (dps)	τ_R (μsec)	\underline{N}_0 (dps)
4 π β - γ coincidence	3.0	6979 \pm 15	1.0	6997 \pm 15
4 π β - γ spectroscopic coincidence	1.6	6742 \pm 27	6.0	7010 \pm 28
		6730 \pm 27		6996 \pm 28
	1.6	6850 \pm 27	3.0	6984 \pm 27
		6884 \pm 15		7019 \pm 15
4 π β - γ spectroscopic anti-coincidence	1.6	7016 \pm 12	6.0	7011 \pm 12
		7018 \pm 11		7012 \pm 11
	1.6	7034 \pm 12	3.0	7027 \pm 12
		7029 \pm 11		7024 \pm 11

Table 2 Result of the γ -ray spectrometry for the prepared ^{152}Eu solution.

Nuclide	Disintegration rate per mg solution at 1 September, 1980
^{152}Eu	4537 \pm 43
^{154}Eu	33 \pm 3

Table 3 Result of the $4\pi\beta$ - γ spectroscopic coincidence absolute measurement of ^{152}Eu . Detailed explanation is given in the text.

Source No.	1	2	3	4
N_{β}	7501 \pm 6	6595 \pm 7	7132 \pm 7	7952 \pm 8
Δ_c (344)	0.9694 \pm .0027 0.9247 \pm .0027	0.9803 \pm .0030 0.9409 \pm .0030	0.9690 \pm .0027 0.9265 \pm .0027	0.9557 \pm .0027 0.9084 \pm .0027
Δ_c (779)	0.9740 \pm .0062 0.9293 \pm .0062	0.9779 \pm .0066 0.9385 \pm .0066	0.9833 \pm .0065 0.9407 \pm .0065	0.9760 \pm .0060 0.9286 \pm .0060
Δ_c (1090)	0.941 \pm .022 0.897 \pm .022	0.988 \pm .024 0.949 \pm .024	0.943 \pm .024 0.901 \pm .024	0.903 \pm .020 0.856 \pm .020
Δ_c (1299)	0.828 \pm .024 0.783 \pm .024	0.906 \pm .025 0.867 \pm .025	0.811 \pm .022 0.769 \pm .022	0.801 \pm .020 0.754 \pm .020
ϵ_{β} (1492)	0.9586 \pm .0081	0.9596 \pm .0089	0.9478 \pm .0083	0.9273 \pm .0074
Δ_c (1086)	0.1852 \pm .0028	0.2244 \pm .0034	0.1592 \pm .0027	0.1563 \pm .0025
δ_A	0.1432 \pm .0028	0.1873 \pm .0034	0.1194 \pm .0027	0.1119 \pm .0025
Δ_c (122)	0.2081 \pm .0010	0.2395 \pm .0010	0.1750 \pm .0008	0.1772 \pm .0008
$\langle \underline{e} \rangle$	0.0201 \pm .0030	0.0105 \pm .0036	0.0128 \pm .0028	0.0183 \pm .0027
Δ_c (245)	0.6318 \pm .0044 0.5162 \pm .0052	0.6501 \pm .0049 0.5183 \pm .0060	0.6199 \pm .0044 0.5189 \pm .0052	0.6256 \pm .0040 0.5240 \pm .0047
Δ_c (964)	0.6200 \pm .0045 0.5024 \pm .0053	0.6496 \pm .0049 0.5177 \pm .0060	0.6141 \pm .0046 0.5123 \pm .0054	0.6165 \pm .0043 0.5137 \pm .0050
Δ_c (1112)	0.6456 \pm .0054 0.5324 \pm .0058	0.6598 \pm .0055 0.5303 \pm .0065	0.6293 \pm .0049 0.5296 \pm .0056	0.6171 \pm .0046 0.5144 \pm .0053
Δ_c (1408)	0.6232 \pm .0029 0.5061 \pm .0041	0.6468 \pm .0032 0.5143 \pm .0047	0.6268 \pm .0039 0.5268 \pm .0048	0.6247 \pm .0037 0.5230 \pm .0045
$(\underline{e}_{122})_{av}$	0.5143 \pm .0134	0.5202 \pm .0070	0.5219 \pm .0079	0.5188 \pm .0055
$\langle \epsilon_{\beta} \rangle$	0.9254 \pm .0113	0.9399 \pm .0123	0.9269 \pm .0115	0.9101 \pm .0101
$\langle \epsilon_e \rangle$	0.3932 \pm .0094	0.4097 \pm .0054	0.3845 \pm .0058	0.3813 \pm .0042
ξ_{β}	0.6432 \pm .0099	0.6636 \pm .0075	0.6349 \pm .0074	0.6272 \pm .0060
N_0	11675 \pm 180	9935 \pm 113	11236 \pm 132	12700 \pm 122
N_0/N_0^{ref}	1.014 \pm .016	1.010 \pm .012	1.017 \pm .013	1.016 \pm .010

$$(N_0/N_0^{ref})_{av} = 1.014 \pm 0.007$$

Table 4 Result of the absolute measurement of ^{152}Eu for various thicknesses of the absorption layer.

Absorbers	T0B1	T1B1	T2B2	T3B3
\underline{N}_β	13785±12	13847±14	13557±13	13246±12
$\langle \epsilon_\beta \rangle$	0.8352±.0081	0.8330±.0075	0.8252±.0073	0.7826±.0065
δ_A	0.0620±.0018	0.0774±.0019	0.0691±.0024	0.0630±.0018
\underline{e}_{122}	0.4645±.0037	0.4505±.0032	0.4434±.0056	0.4300±.0042
$\langle \underline{e} \rangle$	0.0104±.0019	0.0007±.0020	0	0
$\langle \epsilon_e \rangle$	0.3277±.0029	0.3232±.0026	0.3151±.0042	0.3045±.0042
ξ_β	0.5535±.0046	0.5454±.0042	0.5382±.0050	0.5162±.0041
$\underline{N}_0 (\times 10^4)$	2.518±.022	2.554±.022	2.545±.025	2.592±.022
Ratio	1	1.014±.011	1.011±.012	1.029±.012

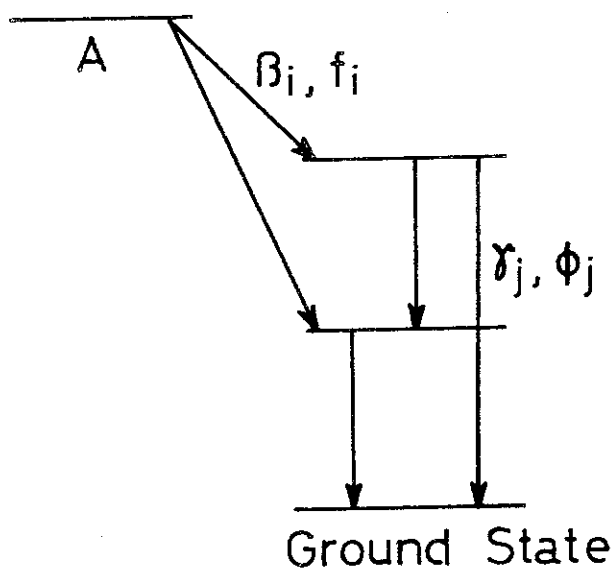


Fig.1 An illustrative decay scheme for the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ spectroscopic absolute measurement.

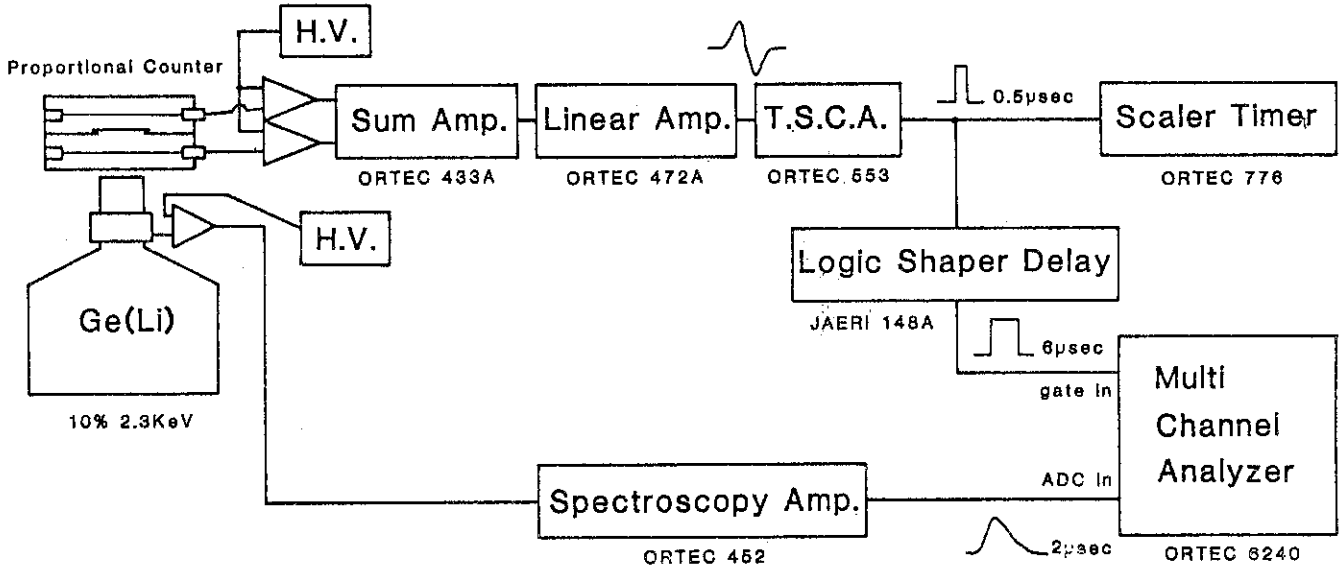


Fig.2 A block diagram of the counting set-up for the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ spectroscopic absolute measurement.

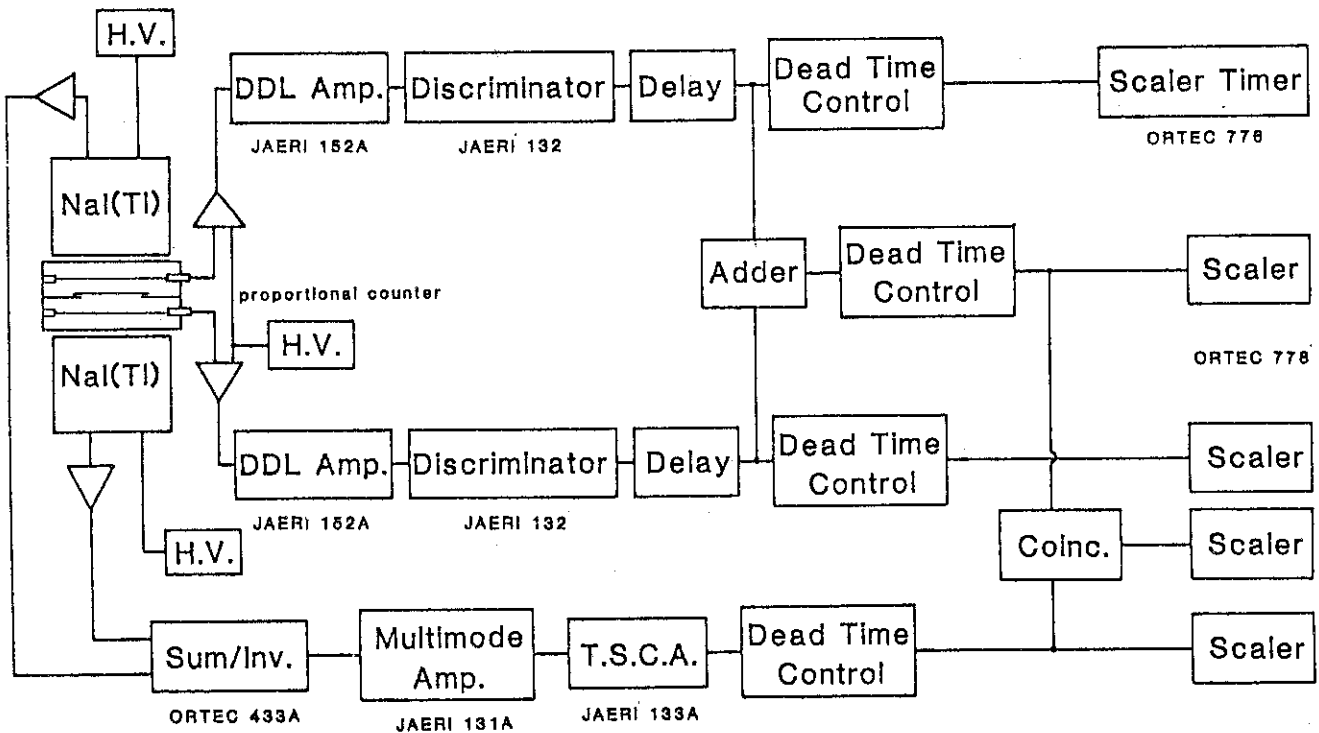


Fig.3 A block diagram of the adopted ordinary $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence absolute measurement.

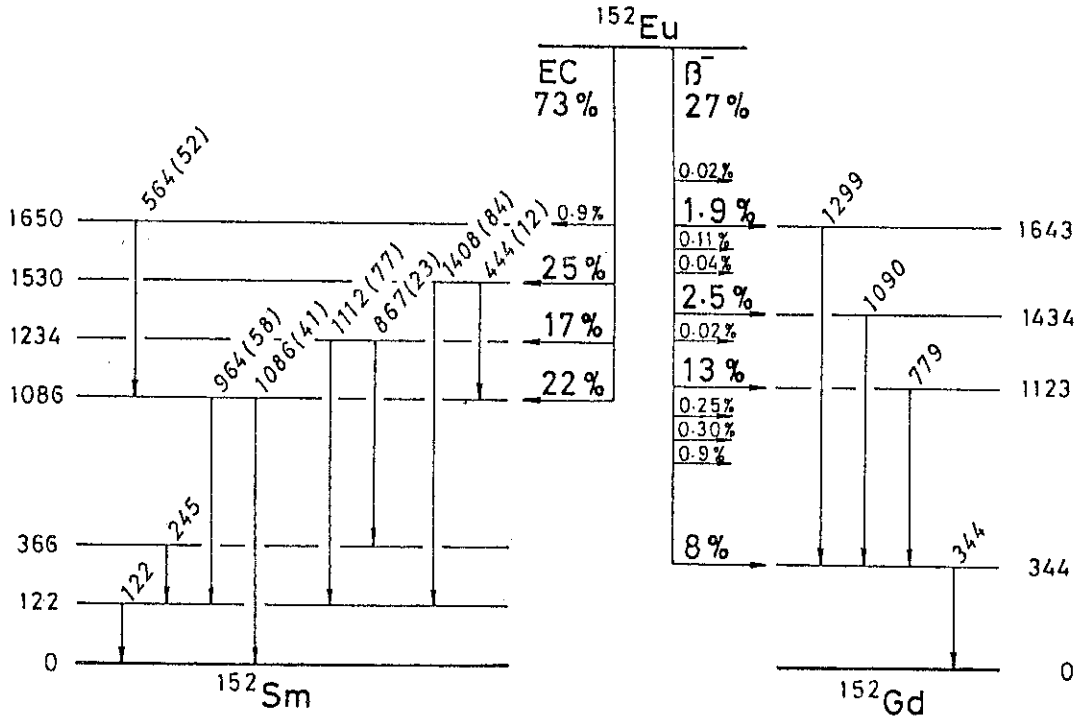


Fig.4 A simplified decay scheme of ¹⁵²Eu effective for the 4 π β - γ spectroscopic coincidence measurement.

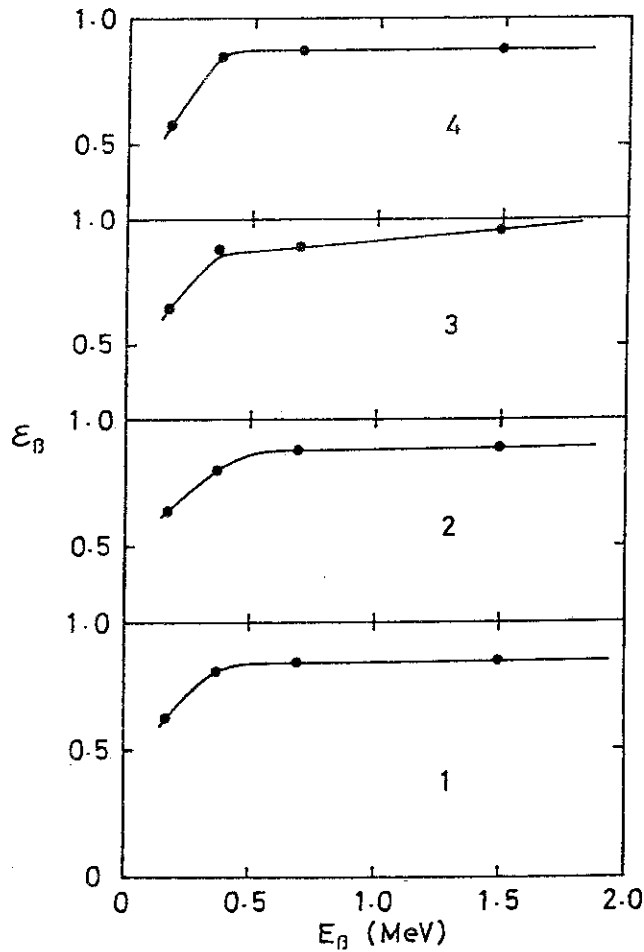


Fig.5 Beta-ray efficiency curves of the 4 π β -counter obtained by the 4 π β - γ spectroscopic coincidence method.

附録A 2線源法による不感時間の測定と数え落しの補正

β - γ 同時計数法では、通常 γ 線検出効率あまり大きくないため、統計誤差を小さくする目的で高崩壊率の線源を用いるのが普通である。したがって、 β 計数値については、測定器の不感時間に基づく数え落しの補正が必要になる。今、測定系の不感時間を τ_D 、計数値を N_β （バックグラウンドを含めて）とすると、真の計数値 N_β^0 は

$$N_\beta^0 = \frac{N_\beta}{1 - N_\beta \tau_D} \quad (\text{A-1})$$

で与えられる。

増巾器として double delayline amplifier を用いる回路では、増巾器からの出力である矩形波の巾が τ_D を与えるが、一般の回路について τ_D を求めるにはいわゆる2線源法によるのが簡便且確実である。これは、用意した2つの線源について、それぞれ単独に計測した時の計数率 N_1 、 N_2 と両線源一諸に計測した時の計数率 N_{1+2} を求めて

$$\begin{aligned} \tau_D &= \frac{N_1 + N_2 - N_{1+2} - B}{N_{1+2} (N_1^0 + N_2^0) - N_1 N_1^0 - N_2 N_2^0 - B (N_{1+2} - N_1 - N_2)} \\ &\approx \frac{N_1 + N_2 - N_{1+2} - B}{N_{1+2} (N_1 - N_2) - N_1^2 - N_2^2} \end{aligned} \quad (\text{A-2})$$

なる関係式により τ_D を求めるやり方である。ここで、 B はバックグラウンド計数率、 N_1^0 および N_2^0 は数え落しがない場合の計数率を表わす。

2線源法による τ_D の決定の際に注意すべきこととして、個々の線源について単独に測った時と2つ合わせて測った時とで測定条件が同じになるようにすることの他に、十分な強さの線源を用意することが挙げられる。線源の強さが充分でない場合には、往々にして1桁程大きすぎる τ_D の値を与える。通常 τ_D は $1 \mu\text{sec}$ の程度であるので、正確な τ_D 値を求めるためには、数万cps以上の線源を2ヶ用意することが必要である。

測定関係の教科書によって(A-2)式の代りに別の近似式

$$\tau_D = \frac{N_1 + N_2 - N_{1+2} - B}{N_{1+2}^2 - N_1^2 - N_2^2} \quad (\text{A-3})$$

が与えられていることがあるが、A.1表からも明らかなように、この式は τ_D の正しい値を与えないので注意を要する。A.1表は、double delay line amplifierを用いて τ_D を $3 \mu\text{sec}$ に設定した $4\pi\beta$ 計数装置の τ_D を2線源法によって測定した結果である。(A-

2)式を用いた時には $\tau_D = 3.1 \mu\text{sec}$ と正しい値が得られるが、(A-3)式では $\tau_D = 4.2 \mu\text{sec}$ と約30%大きめの値になってしまう。

本文の第2表に示した各計測装置に対する τ_D は2線源法によって求めた値である。

Table A.1 Dead time measurement by the two-source method.

Source No.	1	2	1+2
\underline{N} (cps)	43672 \pm 7	55950 \pm 12	88119 \pm 14
B.G.	1.2 \pm 0.1	1.2 \pm 0.1	1.2 \pm 0.1

附録B 同時計数，逆同時計数回路の分解時間 τ_R が有限な大きさであることに対する補正

通常の $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法の場合の τ_R の影響は，真の同時計数値 N_C^0 にチャンス・コインシデンスの寄与が加わった形で現われる。即ち

$$\begin{aligned} N_C &= N_C^0 + 2\tau_R (N_\beta - N_C^0) (N_\gamma - N_C^0) \\ &\approx N_C^0 \{ \varepsilon_\gamma + \varepsilon_\beta + 2N_\beta \tau_R (1 - \varepsilon_\beta) \} \end{aligned} \quad (\text{A-4})$$

これから

$$\Delta_C^0 \equiv \varepsilon_\beta = \frac{N_C / N_\gamma - 2N_\beta \tau_R}{1 - 2N_\beta \tau_R} \quad (\text{A-5})$$

が導かれる。

一方，第2図に示した測定回路に基づく $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー法の場合には，ライブタイム・モードで測定した時のクロックタイムは，波高分析器のADCの不感時間に加えて，同時計数回路が開いている時間の分だけ長くなる。したがって，この場合の γ_j についての同時計数値 $A_C(j)$ に対しては

$$\begin{aligned} A_C(j) &= A_C^0(j) (1 + N_\beta \tau_R) + N_\beta \tau_R (A_S(j) - A_C^0(j)) \\ &= A_C^0(j) + N_\beta \tau_R A_S(j) \end{aligned} \quad (\text{A-6})$$

となり，これから

$$\Delta_C^0(j) = A_C(j) - N_\beta \tau_R A_S(j) \quad (\text{A-7})$$

が得られる。

次に， $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー逆同時計数法に対しては

$$\begin{aligned} A_a(j) &= A_a^0(j) (1 + N_\beta \tau_R) - N_\beta \tau_R A_a^0(j) \\ &= A_a^0(j) \end{aligned} \quad (\text{A-8})$$

となって，補正が必要でなくなる。このことも又，壊変図式の簡単な核種に対して，同時計数でなく逆同時計数を選択する根拠⁸⁾になっている。

ところで，第2図に示した測定回路による同時計数又は逆同時計数の際に生じるチャンス・コインシデンスに有効に働くゲートパルス巾は，設定したパルス巾よりも小さめになる。これ

は波高分析器のADCのトリガーのタイミングとの関係で起るものであり、A.1図にゲートパルスに加えられる遅延時間の関数として表わした光電ピーク強度をエネルギーの異なる3本の γ 線に対してプロットしてある。この図から明らかなように、入力パルスの波高により、同期時間は前後にずれるが、いずれの場合も等しく $5.5 \mu\text{sec}$ となっている。これは設定した分解時間 $6 \mu\text{sec}$ に比較して、 $0.5 \mu\text{sec}$ の減少になっている。チャンス・コインシデンスに対する実効的な分解時間を τ_E で表わすと、(A-6)及び(A-8)式はそれぞれ

$$A_c(j) = A_c^0(j) \{1 + N_\beta(\tau_R - \tau_E)\} + N_\beta \tau_E A_s(j) \quad (\text{A-6}')$$

及び

$$A_a(j) = A_a^0(j) \{1 + N_\beta(\tau_R - \tau_E)\} \quad (\text{A-8}')$$

に置き換えられる。

これから本文の(14)、(15)の両式を導くには、さらに、 β 線検出器の γ 線数え込みの寄与を考慮しなければならない。この効果については、附録Cで取り扱う。

(14)及び(15)式の補正方法の妥当性を調べる目的で、分解時間 τ_R を変化させた時に同じ結果が得られるか否かを検討した。その結果は、A.2表に示したように良好な一致が得られている。

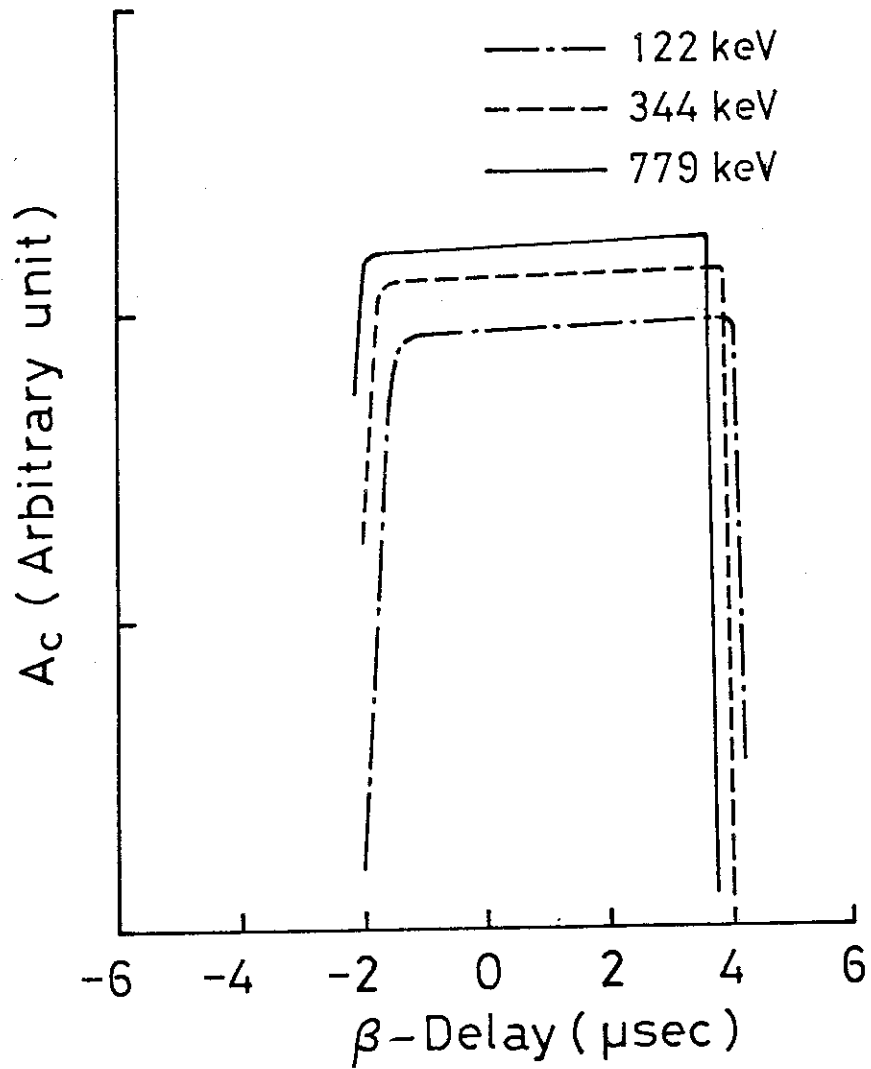


Fig.A.1 Photopeak intensity in the coincidence γ -ray spectrum displayed as a function of the delay time fed to the gate-pulse. The width of the gate-pulse was set to 6 μ sec. Three γ -ray peaks are chosen in order to demonstrate that the effective width is equally 5.5 μ sec for all γ -rays though the coincidence timing shifts forward as the γ -ray energy decreases.

Table A.2. Results of the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ spectroscopic coincidence measurement of ^{152}Eu with different resolving times. Detailed explanations are found in the text.

τ_R (μsec)	3	6
Δ_C (122)	0.1059 \pm .0013 0.0236 \pm .0040	0.1412 \pm .0013 0.0202 \pm .0044
Δ_C (244)	0.5822 \pm .0057 0.5316 \pm .0068	0.5984 \pm .0054 0.5172 \pm .0069
Δ_C (344)	0.9208 \pm .0035 0.8999 \pm .0035	0.9338 \pm .0034 0.8917 \pm .0034
Δ_C (779)	0.9325 \pm .0078 0.9115 \pm .0078	0.9366 \pm .0075 0.8944 \pm .0075
Δ_C (964)	0.5845 \pm .0060 0.5341 \pm .0071	0.5975 \pm .0052 0.5162 \pm .0067
Δ_C (1086)	0.0838 \pm .0037 0.0647 \pm .0037	0.1206 \pm .0042 0.0802 \pm .0042
Δ_C (1090)	0.864 \pm .031 0.843 \pm .031	0.909 \pm .030 0.867 \pm .030
Δ_C (1112)	0.5673 \pm .0065 0.5158 \pm .0075	0.5886 \pm .0064 0.5066 \pm .0077
Δ_C (1299)	0.679 \pm .025 0.659 \pm .025	0.680 \pm .025 0.638 \pm .025
Δ_C (1408)	0.5767 \pm .0064 0.5258 \pm .0064	0.6026 \pm .0053 0.5218 \pm .0068
ξ_β	0.6106 \pm .0086	0.6086 \pm .0081
N_0 ($\times 10^4$)	1.162 \pm .017	1.166 \pm .016

附録C β 線検出器の γ 線検出感度と絶対測定に際しての影響

β 線検出用のプロポーションナル・カウンターの γ 線検出感度が β 線のおよそ1/100であり、 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法による絶対測定においてはその補正が必要であると指摘され、 β 線検出器の γ 線検出感度が γ 線エネルギーの関数として与えられている^{13,14)}。それによると、 ^{60}Co の γ 線に対しては、 γ 線1本当り0.44%という値になる。

^{152}Eu については、その壊変図式が複雑なため、文献に与えられた図を基にして全体としての γ 線検出感度を計算で求めることをせず、以下に述べる方法により直接測定することにした。

最初に ^{60}Co 線源を、A・2図に示すように、 $4\pi\beta$ 計数管の外に置き、 β 線をカットするに充分な厚さの吸収層¹⁵⁾を通して検出器内に入る γ 線を計数し、計算で求めた計測ジオメトリー(A・3図参照)で補正することにより、 ^{60}Co の γ 線に対する検出感度を求めた。

実際の配置では、 $h/(d_1+d_2)=0.07$ と小さいので、A・3図に示すように球面で近似して計算すると、立体角 Ω は

$$\Omega = \frac{1}{2} - \frac{h}{d_1 + d_2} \quad (\text{A-9})$$

となる。 ^{60}Co 線源について測定した結果は、 γ 線検出感度として、1崩壊当り0.011、 γ 線1本当り0.0055という値が得られた。この値とWilliamsらの値0.0044の比は0.8となるが、 ^{137}Cs についても同じ0.8という比が得られた。したがって、この値を本簡便法の誤差と見なし、 ^{152}Eu についての測定値に対する補正因子とした。その結果は、 ^{152}Eu 1崩壊当りの γ 線検出感度として0.0068という値を得た。

β 線検出器が γ 線に感じることの影響は、 β 計数値 N_β に次の形で現われる。即ち

$$N_\beta = N_0 \{ \epsilon_\beta + 2\epsilon_{\beta\gamma}(1-\epsilon_\beta) \} \quad (\text{A-10})$$

ここで、 N_0 、 ϵ_β は本文で説明されており、 $\epsilon_{\beta\gamma}$ が β 線検出器の γ 線検出感度である。(A-10)式の括弧内第2項が検出器の γ 線に感じることに對する補正項になる。ただし、 ^{60}Co の場合は $2\epsilon_{\beta\gamma} = \epsilon_{\beta\gamma_1} + \epsilon_{\beta\gamma_2}$ と全体としては、2本の γ 線に対する検出感度の和になる。

一方、 ^{60}Co を例にとって、通常の $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数値 N_C を考えて見ると、

$$\begin{aligned} N_C &= N_0 \{ \epsilon_{\gamma_1} [\epsilon_\beta + \epsilon_{\beta\gamma_2} (1-\epsilon_\beta)] + \epsilon_{\gamma_2} (1-\epsilon_{\gamma_1}) [\epsilon_\beta + \epsilon_{\beta\gamma_1} \\ &\quad (1-\epsilon_\beta)] \} + N_\beta \tau_R N_\gamma (1-\epsilon_\beta) \\ &\approx N_0 (\epsilon_{\gamma_1} + \epsilon_{\gamma_2}) \{ \epsilon_\beta + (\epsilon_{\beta\gamma} + N_\beta \tau_R) (1-\epsilon_\beta) \} \quad (\text{A-11}) \end{aligned}$$

なる関係が成り立ち、これから本文の(13)式が得られる。

次に、 $4\pi\beta-\gamma$ スペクトロスコピー法について考察すると、 N_β に対する補正は通常の $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法と同じく (A-10) 式で表わされるが、 $A_c(\gamma)$ については

$$A_c(\gamma_1) = N_0 \varepsilon \gamma_1 \{ \varepsilon_\beta + \varepsilon_\beta \gamma_2 (1 - \varepsilon_\beta) \} (1 + N_\beta \tau_R) \\ + N_\beta \tau_E N_0 \varepsilon \gamma_1 (1 - \varepsilon_\beta) \quad (\text{A-12})$$

また、 $A_a(\gamma)$ については

$$A_a(\gamma_1) = N_0 \varepsilon \gamma_1 \{ (1 - \varepsilon_\beta) - \varepsilon_\beta \gamma_2 (1 - \varepsilon_\beta) \} (1 + N_\beta \tau_R) \\ - N_\beta \tau_E N_0 \varepsilon \gamma_1 (1 - \varepsilon_\beta) \\ = N_0 \varepsilon \gamma_1 (1 - \varepsilon_\beta) \{ (1 - \varepsilon_\beta \gamma_2) (1 + N_\beta \tau_R) - N_\beta \tau_E \} \\ = A_a^0(\gamma_1) \{ (1 - \varepsilon_\beta \gamma) (1 + N_\beta \tau_R) - N_\beta \tau_E \} \quad (\text{A-13})$$

が得られる。これから、それぞれ本文の (14) 及び (15) 式が導かれる。

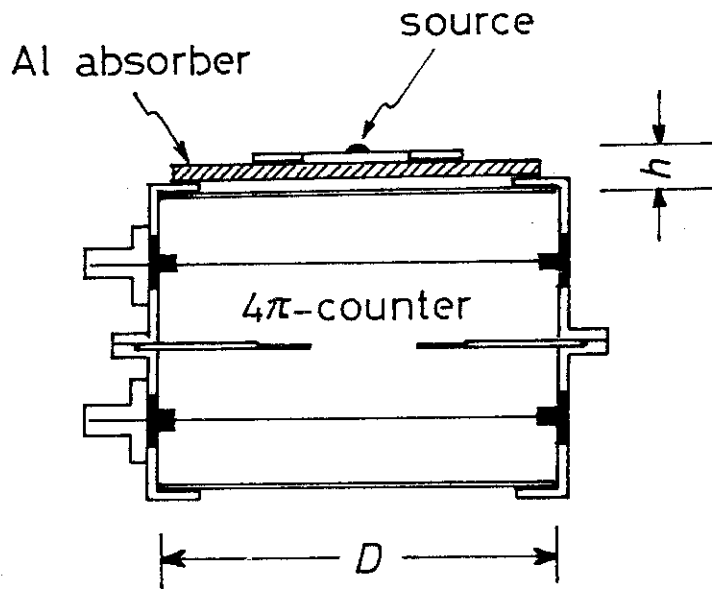


Fig.A.2 The experimental set-up for the measurement of $\epsilon_{\beta\gamma}$

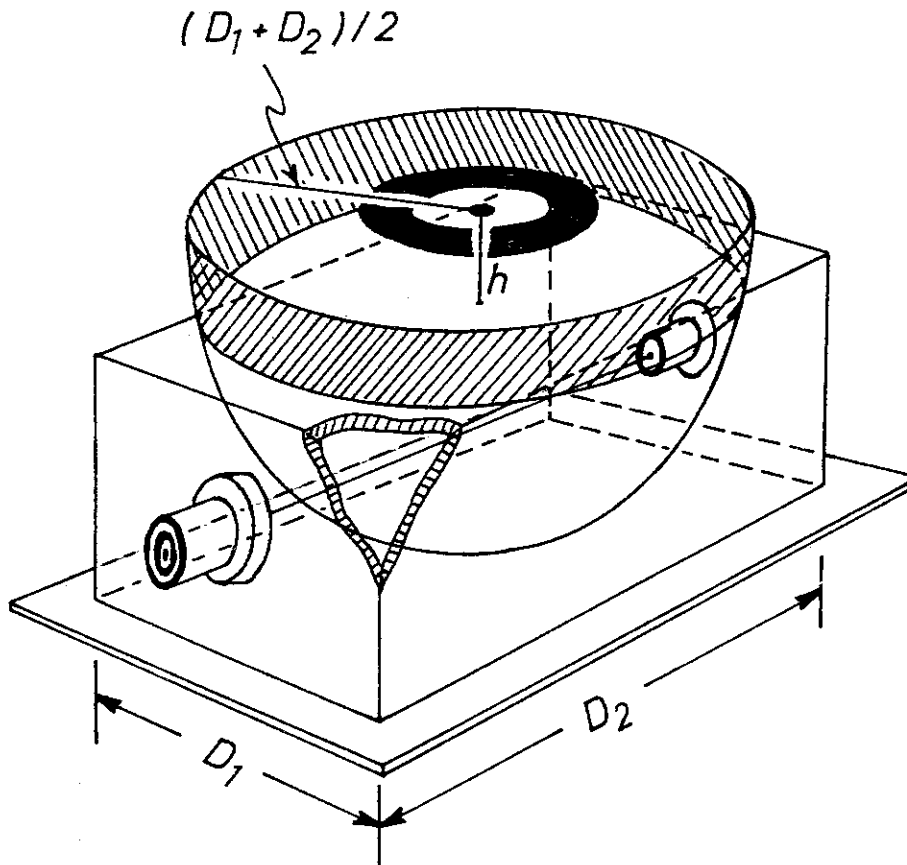


Fig.A.3 An illustrative figure for the evaluation of the detection geometry in the measurement of $\epsilon_{\beta\gamma}$