

γ 線放出率の精密測定 ---長半減期核種から短半減期核種へ---

名古屋大学工学部

宮原 洋

miyahara@avocet.nucl.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

放射性同位元素を使用する際には、その崩壊核データが大切であり、 γ 線放出率もその1つである。放射性同位元素の γ 線放出率とは特定エネルギーの γ 線が1崩壊で放出される確率である。この γ 線放出率は放射化分析や断面積測定で必須であり、 γ 線検出効率の決定でも必要不可欠な値である。

γ 線放出率は一般には β 線分岐比と相対 γ 線強度より評価・決定が行われてきた。しかし、核物理学的興味から β 線スペクトロメータを用いて決定された β 線分岐比は、報告されている不確かさ以上にその精度に疑問が持たれる場合がある。基底状態への直接遷移がない場合には、一般的には相対 γ 線強度のみから γ 線放出率を決定することができ、比較的高い精度が得られる。しかし基底状態への直接遷移がある場合には、 β 線分岐比の値が γ 線放出率の値を左右する。そこで γ 線測定と共に崩壊率測定を行い、 γ 線放出率の高精度化を計る方法が報告されているが、比較的最長い半減期の核種を対象としている[1-3]。この方法は従来の方法とは異なり、 β 線分岐比や電子捕獲分岐比のあいまいさが入り込まない特長がある。

精度よい崩壊率の決定は、 $4\pi\beta\cdot\gamma$ 同時計数法により行うのが一般的で、その際同時計数の効率曲線の測定を必要とし、大変な労力であった。Smith[4]は液体シンチレータとNaI(Tl)検出器を用いて、 β 線スペクトル及び特定 γ 線と同時事象の β 線スペクトルの測定を多重波高分析器で行い、得られた両スペクトルより同時計数の効率曲線を求める、いわゆる計算機波高弁別法を考案した。この方法では1回の測定で同時計数の効率曲線が決定できる迅速さがある。

そこで、我々は β 線検出器に高圧力比例計数管($4\pi\beta$ (ppc))を使用し、さらに2次元同時計測装置を採用した、リブタイム2パラメータ・データ集積システムを用いる $4\pi\beta$ (ppc)- γ (NaI)同時計測装置を作製し、その崩壊率測定について報告した[5]。その後 γ 線検出器にHPGe検出器を用いる $4\pi\beta$ (ppc)- γ (HPGe)同時計測装置を開発し、その崩壊率測定についても報告した[6]。この装置は短時間に線源の崩壊率を精度よく決定できるのみではなく、 γ 線スペクトロメトリ装置としての機能も備えているので、 γ 線放

出率の決定が可能となる。

この方法により、市販されていたり又は特定のジェネレータで作製できる核種の γ 線放出率を精度よく決定してきた。さらに最近では、原子炉での中性子照射により作製した比較的短半減期の核種のために、計数ガスに大気圧の CF_4 ガスを用いる $4\pi\beta(\text{pc})$ [7]を新しく開発し、 γ 線放出率の測定を行っている。ここでは、得られた結果のいくつかについて述べる。

2. 測定装置及び測定原理

2.1. 測定装置

測定に使用したリブタイム 2 パラメータ・データ集積システムを用いる $4\pi\beta(\text{ppc})-\gamma$ (HPGe)同時計測装置[6]の概略を Fig.1 に示す。基本的には、 $4\pi\beta(\text{ppc})-\gamma$ (HPGe)同時計数装置に波高情報を持たせ、核物理実験で多用される $\gamma-\gamma$ 同時計測データ集積システムを組み合わせたものである。その際、この測定では同時事象のみならず、単独事象もデータとして集積する必要があり、高速で多数のデータが集積可能となっている。線源は $4\pi\beta(\text{ppc})$ もしくは $4\pi\beta(\text{pc})$ (以後単に $4\pi\beta$ 計数管と呼ぶ)の中央に固定し、 $4\pi\beta$ 計数管の出力を前置増幅器・比例増幅器で増幅した後、デジタル信号・アナログ信号として取り出す。同様に、HPGe 検出器で検出した γ 線信号も前置増幅器・比例増幅器で増幅した後デジタル信号・アナログ信号として取り出す。その際、HPGe 検出器による高分解能 γ 線測定を実現するためには、比例増幅器には長い時定数が要求され、2 台の増幅器の使用が不可欠である。即ち、時間情報の取り出しと、エネルギー情報の取り出しを別々に行う。両デジタル信号は波形整形し遅延後、コインシデンス・コントローラで同時・非同時の判定を行う。一方、両アナログ信号は ADC により波高分析を行う。こうして得られた波高情報及び時間情報を、ADC コントローラを通して磁気テープに集積する。コインシデンス・コントローラはリブタイムを測定する機能がある。

$4\pi\beta(\text{ppc})-\gamma$ (HPGe)同時計測装置の場合、 $2\pi\beta$ 計数管の寸法は $80\times 80\times 40\text{mm}$ でアルミニウム製である。線源と HPGe 検出器間距離は約 70mm もしくは 90mm で測定を行った。一方、 $4\pi\beta(\text{pc})-\gamma$ (HPGe)同時計測装置の $2\pi\beta$ 計数管は $200\times 176\times 99\text{mm}$ であり、線源と HPGe 検出器間距離は約 120mm である。これらの条件で測定を行うことにより、 γ 線測定におけるカスケードサムの補正は一般的には $2\sim 3\%$ 以下になる。

測定終了後、フィルタープログラムで同じ波高値の事象を加算することにより、 β 線及び γ 線スペクトルをメモリに出力する。さらに、いずれかの γ 線信号と同時に検出された β 線、及び特定の γ 線の全エネルギー吸収ピークに設定されたゲート内の γ 線と同時に検出された β 線を選び出し、それぞれのスペクトルをメモリに出力する。

2.2. 崩壊率測定

一般的な 4π β - γ 同時計数法において、 β 線計数率 n_β 、 γ 線計数率 n_γ 、 β - γ 同時計数率 n_c は崩壊率 n_0 と次の関係がある[8]。

$$n_\beta = n_0 \left\{ \varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right\} \quad (1)$$

$$n_\gamma = n_0 \frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} \quad (2)$$

$$n_c = \left\{ \frac{\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_\beta) \varepsilon_c \right\} \quad (3)$$

ここで ε_β 、 ε_γ は β 線及び γ 線検出効率、 α は内部転換係数、 ε_{ce} 、 $\varepsilon_{\beta\gamma}$ は β 線検出器の内部転換電子及び γ 線に対する検出効率である。 ε_c は γ - γ 同時計数の確率で、 γ 線検出器のゲートを全エネルギー吸収ピークに設定した場合、一般には無視しうる値であり、その結果次の関係式が導かれる。

$$\frac{n_\beta n_\gamma}{n_c} = n_0 \left\{ 1 + \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right\} \quad (4)$$

この式より、 ε_β が 1 であれば崩壊率 n_0 が決定できる。従って ε_β を変化させて測定を行い、 $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta$ の関数として $n_\beta n_\gamma / n_c$ の関係を求め、外挿を行えば n_0 が求められる。この式で表される関係を同時計数の効率曲線と呼び、多くの場合 $(\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}) / (1 + \alpha)$ は一定とみなすことができ、直線外挿が可能である。その際、偶然同時計数に対する補正が重要である[9]。又これらの計算で得られる崩壊率に伴う分散は文献 10 に述べられている。

2.3. γ 線強度測定

γ 線強度測定は通常の γ 線スペクトロメトリーによる測定と全く同じで、 4π β 計数管との同時計測用にも使用されている点異なるのみである。全エネルギー吸収ピークのピーク面積の決定法は多数あるが、ここではいわゆる積分法を採用している。積分法ではピーク下の連続スペクトル成分の評価が重要であるが、Helmer[11]の方法を採用した。詳細については省くが、ピークの両端を結ぶ直線を連続スペクトル成分の第 0 近似として、ピーク面積を求める。次にこの面積に依存する連続成分を求め、第 1 近似としてピーク面積を求める。この方法を 2、3 回繰り返すことにより収束した結果が得られ、計算機処理が容易である。さらに、ピーク両端のチャンネルを変化させても、強い γ 線の

場合その差は0.1%程度であり、統計的不確かさと比して十分小さい。

こうして決定した見かけの γ 線強度に対してカスケードサムの補正が重要となる。補正式についての記述は省くが、たとえば ^{60}Co の1333keV γ 線に対する補正量は1173keVの全検出効率に依存し、これらの測定では約1.5%以下である。

2.4. γ 線放出率測定

2.2節及び2.3節で述べたように、線源の崩壊率及び γ 線強度を精度よく測定できると γ 線放出率の測定が可能となる。以下にその手順について述べる。線源は $4\pi\beta-\gamma$ 同時計測用で、Au-Pd蒸着VYNS膜(全体の厚さは約 $20\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$)上に溶液又は粉末分散溶液から滴下・乾燥によって作製する。まず、 γ 線放出率が精度よく知られているいわゆる標準線源を測定し、得られた崩壊率と γ 線強度より特定エネルギーの γ 線検出効率を決定する。複数個の標準線源の測定により得られた多数のエネルギーにおける γ 線検出効率を関数化し、 γ 線検出効率曲線を決定する。この γ 線検出効率曲線としては、種々の関数形が提案されているが、以下の測定では γ 線エネルギーと γ 線検出効率の対数に対して4次多項式を用いている。得られた γ 線検出効率曲線及び測定値の効率曲線からのずれの1例をFig.2に示す。図のように1.4MeV以下のエネルギー領域では通常 ^{57}Co 、 ^{60}Co 、 ^{133}Ba 及び ^{152}Eu を標準線源として使用し、それ以上の高いエネルギー領域では他に ^{24}Na 及び ^{56}Co を使用する。この方法で高精度で決定し得るエネルギー範囲は現在のところ50keVから3500keVである。

次に決定すべき核種の線源を同様の手法により測定を行い、崩壊率及び γ 線強度を求める。さらに標準線源の測定で求めた γ 線検出効率曲線より、決定すべき γ 線のエネルギーにおける γ 線検出効率を算出する。これらより、 γ 線放出率を決定する。放出率の小さい γ 線に対しては不確かさが大きくなるので、相対 γ 線強度の文献値もしくは直接相対 γ 線強度を測定し、その比より γ 線放出率を決定した。

3. γ 線放出率の測定結果

3.1. ^{75}Se 、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 、 ^{192}Ir の γ 線放出率の無撞着な決定

2.4節で述べたように、通常は標準線源を用いて γ 線検出効率を決定しているが、数百keV以下の低エネルギー領域では利用可能な放射性核種は限られる。そこで、数百keV以下の領域で複数の γ 線を放出する ^{75}Se (半減期120日)、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ (1200年)及び ^{192}Ir (74日)を1次標準線源と共に測定し、3核種のうちの1核種の γ 線放出率を決定するための γ 線検出効率曲線を他の2核種と1次標準線源で決定した。次のステップとして、こうして得られた各々の第1近似の γ 線放出率を用いて同様の計算を繰り返し、第2近似としての γ 線放出率を求める。この操作を繰り返し、収束した結果を得ることに

より、測定と矛盾しない結果が求められる。

Fig.3 に ^{75}Se の同時計数の効率曲線の例を示す。 ^{75}Se の場合、121、136 及び 265keV γ 線にゲートを設定した場合、広い直線あてはめ領域が得られ小さな不確かさの崩壊率が得られる。しかし、 ^{75}As の 304keV レベルの半減期が 17ms であり、このレベルからの 25keV 遷移は高い確率で内部転換される。その結果、一部は 1 崩壊で 2 カウントする確率が生ずる。その補正係数として理論的・実験的に求められた 1.0540 ± 0.0035 [12] や 相関測定による 1.065 ± 0.002 [13] があり、最近も種々の値が報告されているが、ここでは 1.0540 ± 0.0035 を用いた。

$^{166\text{m}}\text{Ho}$ の同時計数の効率曲線は、直線領域がせまい結果となった。これは比放射能が小さく、そのため $\epsilon \beta$ が低いことに起因している。そこで 2 次元の同時計数法[14]を適用した。第 1 の γ 線としては 281、712 及び 810keV を、第 2 の γ 線としては 281、712、752 及び 810keV を用いて 9 個の組み合わせによる平均値として崩壊率を決定した。一方、 ^{192}Ir の場合、296、308、316 及び 468keV γ 線にゲートを設定した場合、0.95 程度の高い $\epsilon \beta$ 値が得られたが、電子捕獲崩壊により放出される低エネルギー電子のため、直線あてはめ領域はそれほどおおきくはとれなかった。しかし、崩壊率の不確かさは 0.1% 程度の十分小さなものであった。

この方法により計算した γ 線放出率はほぼ 2 回で収束し、3 回の計算で十分であることが分かった。同様の方法で $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 及び ^{192}Ir の γ 線放出率を決定した。Table 1~3 にこの測定で得られた結果及び評価値又は報告値を示す。 ^{75}Se の結果は IAEA の推奨値[16]と良い一致を示している。 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ の結果によると、Reich と Cline の結果[17]は 400keV 以下では比較的良く一致しているが、それ以上では少し大きめの値になっている。一方、Danilenko らの値[18]は系統的に 3~4% 小さい。Reich と Cline の結果は大きな不確かさが含まれていて、最近の相対 γ 線強度測定からみても、高いエネルギー領域の結果における系統的ずれが考えられる。 ^{192}Ir の結果と Yoshizawa らによる相対 γ 線強度から求められた値[19]とは良く一致している。

これらの結果は 1.0540 ± 0.0035 という補正係数により決定した ^{75}Se の崩壊率を用いて求めた。もし補正係数として 1.065 ± 0.002 を用いると、 ^{75}Se の γ 線放出率は 1.04% 増大するが、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 及び ^{192}Ir の結果へは有意な影響は無い。

3.2. ^{42}K の γ 線放出率の精密測定

半減期 12.4 時間の ^{42}K の 1524.6keV γ 線の放出率を測定した。この測定では ^{42}Ar - ^{42}K ジェネレータから取り出して使用し、 ^{42}Ar の崩壊率は 180kBq で、毎日 140kBq の ^{42}K を抽出することができる。ステンレススティール電極上の ^{42}K を約 100 μl の蒸留水に溶かし線源を作製し、崩壊率測定を合計 40 回繰り返した。

Fig.4 に同時計数の効率曲線の例を示す。 $(1 - \epsilon_{\beta})/\epsilon_{\beta}$ が 0.03 以上では見かけの崩壊率は減少するが、高い検出効率を得られるので直線外挿に支障はない。4 回行った γ 線放出率の測定結果では、1 回目と 2 回目の γ 線検出効率の値は近く、3 回目と 4 回目も非常に近い値であるが、両者には 0.2% 程度の差がある。しかし、 γ 線放出率は 0.1% 程度で一致している。Table 4 に 1542.6keV γ 線放出率の報告値を測定結果と共に示す。表中の値は不確かさの範囲内で一致しているが、高い精度で測定されているのは今回の結果のみである。これは文献値が 30 年以上古い結果であることより当然とも考えられるが、精度の大幅な改善はこの測定装置によるものである。この結果と Kawade ら[23] による相対 γ 線強度及び Q_{β} の文献値を用いれば崩壊パラメータを決定することができる。

3.3. ^{175}Yb の γ 線放出率の精密測定

^{175}Yb は半減期 4.2 日で β -崩壊し、最大エネルギー 71keV の遷移を含み、さらに基底状態への 466keV 遷移が 80% 程度と評価されている。最も強い γ 線は 396.3keV であり、6.3% 程度と評価[24]されている。この γ 線放出率を精密測定した。線源は 97.80% 濃縮の $^{174}\text{Yb}_2\text{O}_3$ 粉末を、京都大学原子炉実験所もしくは日本原子力研究所の原子炉で中性子照射して作製した。

崩壊率測定のための γ 線ゲートは 114、145、283 及び 396keV の 4 つが考えられる。しかし、作製した ^{175}Yb はキャリアが大きいため、 β 線検出効率は悪く同時計数の効率曲線は直線とはならなかった。そのため 3 次式によるあてはめ[25]も試みた。その結果、上に凸である 114、145 及び 309keV の効率曲線の外挿値と下に凸である 283keV の効率曲線の外挿値の差は約半分となった。しかしまだその差は大きいので、2 次元外挿法を適用した。これは最大エネルギー 71keV の β 線の自己吸収の大きさからくる曲がりを補正するのが目的である。得られた結果のうち、ゲート 1 に 396keV γ 線を使用する場合及びゲート 1 又はゲート 2 に 145keV γ 線を含む組み合わせの場合、その不確かさが大きくなるので除外した。最終的には 4 つの組み合わせにより得られた結果の平均値を崩壊率としたが、これは通常効率曲線で 3 次式による外挿値の平均値と大差はなかった。

測定は 3 回行い、1 回の測定では 3~4 個の線源を用いた。報告された直接の測定値はないので、評価値と測定値の比較を Table 5 に示す。このように、評価値は実際の値の約 50% であることが判明した。表から分かるように相対的な γ 線強度は比較的良く一致しているので、 β 線分岐比の評価に問題があると考えられる。そこで、 β 線分岐比の測定結果及び今回の γ 線放出率の測定値から崩壊図を用いて求めた β 線分岐比を Table 6 に示す。評価値が Baschandy と El-Nesr の結果[30]に重みをおいているために、Table 5

のような結果になったと考えられる。彼らは β 線スペクトロメータによるスペクトルを示しているが、 β 線自己吸収を評価していず、特に吸収が大きい最大エネルギー71keVの β 線に対する考察が重要だと考えられる。今回の測定でも吸収量は30%以上に達している、 β 線スペクトロメータ用の強い線源の場合、より大きい吸収量になると考えられる。この点から考えても、今回の結果が妥当と考えられる。今回の測定結果及び内部転換係数の文献値[31,32]を用いて崩壊パラメータを計算すれば崩壊図が得られる。

3.4. ^{128}I の γ 線放出率の精密測定

^{128}I は半減期約 25 分で、大部分は β -崩壊で ^{128}Xe に一部は電子捕獲崩壊により ^{128}Te になる。しかも、両方の基底状態への遷移があるため、 γ 線放出率にも疑問が持たれるので、 $4\pi\beta(\text{pc})-\gamma$ (HPGe)同時計測装置で測定を行った。測定は3回行い、3~6個の線源を用いた。線源は天然のLiI結晶(純度99%)を京都大学原子炉実験所で中性子照射により作製した。測定は600秒の γ 線測定を1回又は2回行った後、2次元測定を2回行った。又、弱い γ 線の強度を決めるために、他の γ 線スペクトロメータにより強い線源を用いて相対 γ 線強度測定を行った。

崩壊率測定は443keV γ 線にゲートを設定した場合のみを採用し、直線外挿で十分良い結果が得られた。 γ 線放出率の測定結果をTable 7に、相対 γ 線強度の測定結果をTable 8に示す。最も重要な442.9keV γ 線の放出率は測定精度内で良く一致している。 γ 線放出率から導かれる相対 γ 線強度も、 γ 線計数が少ないため不確かさは大きいが相対 γ 線強度の測定結果と一致している。測定結果と報告値との比較をTable 9に示す。相対 γ 線強度の結果はSchneiderらの結果[35]と良く一致している。一方442.9keV γ 線放出率ではBenczerらの結果[33]は35%以上大きく、Langhoffらの結果[34]は不確かさの範囲内で一致しているが不確かさは大きく、今回の測定で大幅に改善された。 ^{128}Te 及び ^{128}Xe の基底状態への遷移量の和は決定されるが、各々は分からない。そこで、Langhoffら[34]による442.9keV γ 線とTeのKX線の比より電子捕獲崩壊の確率を求め、Nuclear Data Sheets[36]に述べられている内部転換係数を用いて崩壊パラメータを決定した結果、 ^{128}Te 及び ^{128}Xe の基底状態への直接遷移は0.0571及び0.8110となった。

3.5. ^{88}Rb の γ 線放出率の精密測定

^{88}Rb は半減期約 18 分で β -崩壊をし、300 から 4900keV の広いエネルギー範囲の多数の γ 線を放出するが、約 77%の割合で直接基底状態へ遷移する。ここでは 898.1、1836.1 及び 2677.9keV γ 線の放出率を絶対測定すると共に、合計 22 本の γ 線の相対強度測定を行った。測定は6回行い、最初の測定では $^{87}\text{RbCl}$ 粉末(濃縮度98.00%)を用いたが、 ^{38}Cl が生成し十分な精度を得ることが困難なため、2回目以後は天然組成の

Rb₂CO₃(⁸⁷Rb の天然存在比 27.85%)を用いた。中性子照射は京都大学原子炉実験所で行った。1 回の実験では 2~5 個の線源を作製し、600 秒の測定時間で γ 線測定 2~3 回、崩壊率測定 3~4 回を行った。

崩壊率測定のために 898 及び 1836keV γ 線にゲートを設定して同時計数の効率曲線を求めた。比較的広い範囲であてはめが可能で、直線外挿により容易に崩壊率を決定できた。しかし、1 回目の測定では ³⁸Cl が生成し、2 回目以後の照射では ⁸⁵Rb(天然存在比 72.15%)から半減期約 19 日の ⁸⁶Rb が生成したので補正を必要とした。補正量は各々 15~20%及び約 2%であり、最終的には 1%以内の不確かさで崩壊率を決定できた。相対 γ 線強度測定では 4853keV γ 線までを決定したが、その検出効率の決定においては、3500keV までの両対数の 4 次式によるあてはめを直線外挿することにより決定した。そのため、検出効率の不確かさとしては 3500~4000keV 領域では 3%、4000~4500keV で 5%、4500keV 以上では 10%を加算して推定した。

決定した 898.1、1836.1 及び 2677.9keV γ 線の放出率及び評価値を Table 10 及び Table 11 に示す。1 回ではあるが不純物として ³⁸Cl を含む場合と ⁸⁶Rb を含む場合で有意な差は認められなかった。Table de Radionuclides の評価値[38]は良く一致しているが、Table of Radioactive Isotopes の評価値[37]は少し小さい値を与えている。これらの評価値は相対 γ 線強度と β 線分岐比から評価しているの、まず相対 γ 線強度の測定結果と報告値を比較すると、表としては示さないが Ragaini らの結果[39]は 4~30%ずれていることが判明した。Bunting らの値[40]を採用している Table of Isotopes[41]の値はカスケードサム効果が大きい 2734.1keV γ 線では大きく異なるが、その補正がなされていないためと考えられる。それ以外は精度内で一致しているが、3500keV を越える高いエネルギー領域で文献値は系統的に小さい値を与えている。

一方今回の γ 線放出率の測定値と文献 38 の崩壊図をもとに β 線分岐比を計算し、Ragaini らの値[39]と比較すると、最大エネルギー 5309keV の値は良く一致しているが、それ以外はかなり異なっている。これは現在までに報告されている ⁸⁸Rb のエネルギーレベル数に比べ、少ない数を用いて 5309keV 以外の β 線分岐比を決定しているためと考えられる。

4. まとめ

ここで紹介したリブタイム 2 パラメータ・データ集積システムを用いる $4\pi\beta-\gamma$ 同時計測装置で線源を測定すると、その崩壊率決定を迅速に行えるのみならず γ 線強度も決定可能である。その結果、 β 線分岐比の値とは関係なく γ 線放出率を決定できる。しかも β 線分岐比と比べ崩壊率の精度は高く、高精度での γ 線放出率測定が可能である。特に基底状態への直接遷移がある場合には、大きな精度の改善につながると考えられる。

この方法で決定した γ 線放出率のいくつかの結果について述べた。3.1節では比較的長い半減期を有し市販されている ^{75}Se 、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 及び ^{192}Ir の自己無撞着な方法による γ 線放出率の測定結果について述べた。これらの核種は300keV以下の γ 線を複数放出し、不足しているこのエネルギー領域の標準線源としての使用が有望であり、特に半減期1200年の $^{166\text{m}}\text{Ho}$ は永久に使用することができるので、高精度で崩壊率が決定された線源の供給が望まれる。3.2節では半減期12.4時間と短いジェネレータから抽出できる42Kの γ 線放出率の測定結果について述べた。不純物を含まないため1524.6keV γ 線の放出率を 0.1808 ± 0.0009 と高精度で決定でき、従来値と比較して大幅な精度改善が行われ、最近発行されたTable of Isotopesの第8版[42]にもこの値が採用されている。

放射化分析で用いられる、 ^{175}Yb 、 ^{128}I 及び ^{88}Rb の γ 線放出率の測定結果について3.3節以下で述べた。 ^{175}Yb では従来値が実際の値の50%程度であったことが判明した。このことは、放射化分析でYb量を倍に評価することにつながり重要な問題である。最近、放射化分析の評価を修正する論文が発表された[43]。同様のことが ^{128}I についても判明し、主要な γ 線である442.9keV γ 線の放出率が 0.12613 ± 0.00077 であり、従来値[44] 0.169 ± 0.017 は精度が不足しているのみならず、絶対値も30%以上大きいことが分かった。一方、 ^{88}Rb の γ 線放出率の測定結果は、3500keVまでは従来値がほぼ妥当であることが判明した。しかしそれ以上のエネルギー領域では系統的に小さい可能性が大きい。

ここで述べた核種のうち ^{75}Se 、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ 、 ^{192}Ir については文献45、 ^{42}K については文献46、 ^{175}Yb については文献47及び ^{128}I については文献48に報告したが、それ以外の核種についても、 ^{38}Cl [49]、 ^{66}Cu [50]、 ^{75}Ge [51]、 ^{86}Rb [52]、 ^{103}Ru [53]、 $^{116\text{m}}\text{In}$ [54]、 ^{133}Ba [55]については既に報告した。又、現在、 ^{27}Mg 、 ^{49}Ca 、 ^{139}Ba 、 ^{166}Ho 、 ^{169}Yb 、 $^{186,188}\text{Re}$ 、 ^{197}Pt 等についての γ 線放出率の測定を行っている。最後に、これらの測定は名古屋大学の森研究室の職員・卒業生を含めた学生に負うところが大きく、さらに京都大学原子炉実験所及び日本原子力研究所の方々の援助のもとになされたことを付け加え、謝意を表すものである。

参考文献

- [1] U.Schotzig et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot. 28 (1977) 503.
- [2] R.J.Gehrke et al., Nucl. Instr. and Meth. 147 (1977) 405.
- [3] Y.Yoshizawa et al., Nucl. Instr. and Meth. 212 (1983) 249.
- [4] D.Smith, Metrologia 11 (1975) 73.
- [5] H.Miyahara et al., Appl. Radiat. Isot. 38 (1987) 793.
- [6] H.Miyahara et al., Appl. Radiat. Isot. 40 (1989) 343.

- [7] H.Miyahara et al., *J. Nucl. Sci. Technol.* 31 (1994) 521.
- [8] A.P.Baerg, *Metrologia* 2 (1966) 23.
- [9] P.J.Campion, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 4 (1959) 232.
- [10] P.J.Campion, J.G.V.Taylor, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 10 (1961) 131.
- [11] R.G.Helmer, *Nucl. Instr. and Meth.* 199 (1982) 521.
- [12] V.E.Lewis et al., *Metrologia* 9 (1973) 14.
- [13] H.Janssen, *Nucl. Instr. and Meth.* A299 (1990) 292.
- [14] D.Smith, L.E.H.Stuart, *Metrologia* 11 (1975) 67.
- [15] L.P.Ekstrom, *Nucl. Data Sheets* 32 (1981) 211.
- [16] IAEA-TECDOC-619, *X-ray and Gamma-ray Standards for Detector Calibration* (IAEA, Vienna, 1991) 66.
- [17] C.W.Reich, J.E.Cline, *Nucl. Phys.* A159 (1970) 181.
- [18] V.N.Danilenko et al., *Appl. Radiat. Isot.* 40 (1989) 789.
- [19] Y.Yoshizawa et al., *Nucl. Instr. and Meth.* 174 (1980) 133.
- [20] E.W.Emery, N.Veall, *Proc. Phys. Soc.* A68 (1955) 346 and *ibid.* 72 (1958) 675.
- [21] J.Mackin, D.Love, *J. Inorg. Nucl. Chem.* 10 (1959) 17.
- [22] B.Persson, *Acta. Radiol.* 58 (1962) 192.
- [23] K.Kawade et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* 29 (1970) 43.
- [24] E.Browne, R.B.Firestone, *Table of Radioactive Isotopes* (Wiley, New York, 1986) 175-1.
- [25] H.Miyahara et al., *Appl. Radiat. Isot.* 37 (1986) 1.
- [26] M.M.Minor, *Nucl. Data Sheets* 18 (1976) 331.
- [27] C.M.Lederer, V.S.Shirley, *Table of Isotopes* (7th ed.) (Wiley, New York, 1978) 1086.
- [28] H.de Waard, *Phil. Mag.* 46 (1955) 445.
- [29] J.P.Mize et al., *Phys. Rev.* 100 (1955) 1390.
- [30] E.Bashandy, M.S.El-Nesr, *Arkiv. Fysik.* 21 (1962) 65.
- [31] G.T.Emery, M.L.Pearlman, *Phys. Rev.* 151 (1966) 984.
- [32] J.D.Reiersen et al., *Nucl. Phys.* A153 (1970) 109.
- [33] N.Benczer et al., *Phys. Rev.* 101 (1956) 1027.
- [34] H.Langhoff et al., *Z. Physik* 165 (1961) 393.
- [35] E.W.Schneider et al., *Phys. Rev.* C19 (1979) 1025.
- [36] K.Kitao et al., *Nucl. Data Sheets* 38 (1983) 191.
- [37] E.Browne, R.B.Firestone, *Table of Radioactive Isotopes* (Wiley, New York, 1986)

88-2.

- [38] F.Lagoutine et al., Table de Radionucleides (CEA-LMRI, 1980) .
- [39] R.C.Ragaini, R.A.Meyer, Phys. Rev. C5 (1972) 890.
- [40] R.L.Bunting et al., Phys. Rev. C13 (1976) 1577.
- [41] C.M.Lederer, V.S.Shirley, Table of Isotopes (7th ed.) (Wiley, New York, 1978) 331.
- [42] R.B.Firestone, V.S.Shirley, Table of Isotopes (8th ed.) (Wiley, New York, 1996) 144.
- [43] A.Simonits et al., Appl. Radiat. Isot. 47 (1996) 389.
- [44] R.B.Firestone, V.S.Shirley, Table of Isotopes (8th ed.) (Wiley, New York, 1996) 1094.
- [45] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A339 (1994) 203.
- [46] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A286 (1990) 519.
- [47] H.Miyahara et al., Appl. Radiat. Isot. 45 (1994) 219.
- [48] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A353 (1994) 229.
- [49] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A369 (1996) 494.
- [50] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A324 (1993) 219.
- [51] H.Miyahara et al., J. Nucl. Sci. Technol. 31 (1994) 1038.
- [52] H.Miyahara et al., Appl. Radiat. Isot. 42 (1991) 485.
- [53] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A312 (1992) 359.
- [54] G.Wurdiyanto et al., J. Nucl. Sci. Technol. 32 (1995) 1090.
- [55] H.Miyahara et al., Nucl. Instr. and Meth. A374 (1996) 193.

Table 1 γ -ray emission probabilities for ^{75}Se (%).

Energy (keV)	Nucl. Data Sheets [15]	IAEA [16]	Present work
96.7	3.48(8)	3.41(4)	3.392(20)
121.1	17.3(2)	17.1(1)	17.468(62)
136.0	59.0(5)	58.8(3)	58.83(20)
198.6	1.47(3)	1.49(1)	1.500(9)
264.7	59.1(5)	59.0(5)	58.70(17)
279.5	25.2(2)	25.0(1)	25.112(73)
303.9	1.34(1)	1.31(1)	1.314(8)
400.7	11.56(10)	11.5(1)	11.337(40)

Table 2 γ -ray emission probabilities for ^{166m}Ho (%).

Energy (keV)	Reich and Cline [17]	Danilenko et al. [18]	Present work
80.6	12.5(6)	11.59(27)	11.649(80)
184.4	73.2(37)	69.9(14)	72.58(22)
280.5	29.8(15)	28.5(4)	29.492(82)
410.9	11.6(6)	11.14(14)	11.195(41)
529.8	10.2(5)	9.40(16)	9.711(39)
571.0	5.75(29)	5.45(8)	5.447(49)
670.5	5.77(29)	5.31(8)	5.529(28)
711.7	58.7(29)	53.3(7)	55.38(19)
752.3	13.1(7)	11.86(19)	12.319(48)
810.3	62.7(31)	56.2(9)	58.44(21)
830.6	10.6(6)	9.52(17)	9.899(49)

Table 3 γ -ray emission probabilities for ^{192}Ir (%).

Energy (keV)	Yoshizawa et al. [19]	Present work
205.8		3.343(18)
296.0	28.70(28)	28.54(13)
308.5	29.71(29)	29.55(13)
316.5	82.9(6)	82.44(32)
468.1	47.7(4)	47.62(20)
484.6	3.16(3)	3.214(22)
588.6	4.48(4)	4.508(17)
604.3	8.08(7)	8.202(32)
612.5	5.25(5)	5.349(23)

Table 4 γ -ray emission probability for ^{42}K (%).

Energy (keV)	
	1542.9
Emery & Veal [20]	17.8(9)
Mackin & Love [21]	18.4(5)
Persson [22]	17.9(5)
Present work	18.08(9)

Table 5 γ -ray emission probabilities for ^{175}Yb (%).

Energy (keV)	Nucl. Data Sheets [26]	Table of Isotopes [27]	Present work
113.8	2.27	2.17	3.857(24)
396.3	6.2	6.3	13.101(80)

Table 6 β -ray branching ratios for ^{175}Yb (%).

Energy (keV)	Ward [28]	Mize et al. [29]	Bashandy & El-Nesr [30]	Present work
71	10	15(5)	10.14(42)	20.78(10)
216		<0.5	0.80(12)	0.00(4)
353	3	5(2)	2.63(21)	6.20(116)
467	87	80	86.52(172)	73.02(117)

Table 7 Measured results of γ -ray emission probabilities for ^{128}I (%).

Energy (keV)	442.9	526.6	969.5
Run 1	12.64(13)	1.174(21)	0.271(13)
Run 2	12.69(15)	1.220(16)	0.305(9)
Run 3	12.51(13)	1.180(34)	0.279(15)
Mean	12.613(77)	1.191(14)	0.2822(69)

Table 10 Measured results of γ -ray emission probabilities for ^{88}Rb (%).

Energy (keV)	898.1	1836.1	2677.9
Run 1	14.89(13)	22.79(23)	2.09(4)
Run 2	14.83(13)	23.09(22)	2.12(5)
Run 3	14.76(13)	22.43(21)	2.11(5)
Run 4	14.82(14)	22.84(23)	2.13(6)
Run 5	14.90(21)	22.50(34)	2.05(11)
Mean	14.84(9)	22.73(15)	2.10(3)

Table 8 Measured results of relative γ -ray intensities for ^{128}I (%).

Energy (keV)	442.9	526.6	743.4	969.5
Run 1	100.00(64)	9.659(81)	0.9367(149)	2.465(29)
Run 2	100.00(65)	9.529(39)	0.8658(287)	2.281(41)
Run 3	100.00(74)	9.526(105)	0.9433(339)	2.367(46)
Mean	100.00(40)	9.538(52)	0.915(16)	2.371(23)

Table 9 Summary for ^{128}I . $P\gamma$: γ -ray emission probabilities; $I\gamma$: relative γ -ray intensities (%).

Energy (keV)	442.9	526.6	743.4	969.5
Benczer et al. [33]	$P\gamma$	17.16(170)	1.78(18)	0.31(3)
	$I\gamma$	100.0(99)	10.4(15)	1.81(25)
Langhoff et al. $P\gamma$ [34]		14.0(14)		
Schneider et al. $I\gamma$ [35]		100.0(31)	9.39(35)	0.92(4)
Present work	$P\gamma$	12.613(77)	1.191(15)	0.1107(47)
	$I\gamma$	100.00(40)	9.538(52)	0.915(16)

Table 11 γ -ray emission probabilities for ^{88}Rb (%).

Energy (keV)	898.1	1836.1	2677.9
Table of Radioactive Isotopes [37]	14.1(3)	21.4(4)	1.96(4)
Table de Radionuclides [38]	14.7(6)	22.4(8)	2.05(10)
Present work	14.68(13)	22.73(15)	2.123(21)

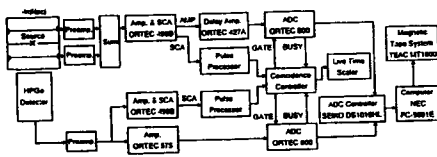


Fig.1 Block diagram of the electronics.

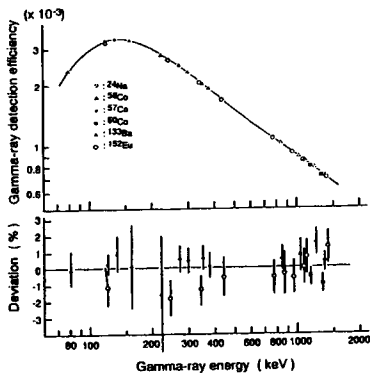


Fig.2 Example of detection efficiency curve and deviation from the fitting function.

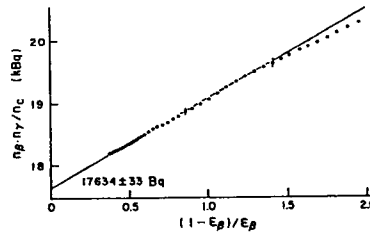


Fig.3 Example of an efficiency function for ^{75}Se derived for the gate set of the 136 keV γ -rays.

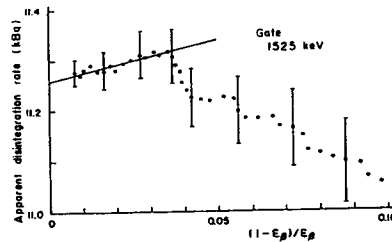


Fig.4 Example of an efficiency function for ^{42}K .