Hence the effective energy of the γ rays in the column was not determined uniquely, but it would be sure to be in the range above 200 keV. Any way, in these ranges the responses of the film under the Cd filter is nearly equal. So to use Ra as the calibration source was considered to be reasonable for practical purpose.

The total error of the glass measurement was estimated around 11 %, and 7 % of it was stemmed from the error of thermal neutron flux estimation. The one of the film was around 20 %, and 14 % of it came from the fluctuation of the readings of film itself. So the accuracy of the glass measurement can be improved according to the accuracy of the thermal neutron flux measurement. But the interpretation of the effective γ ray

energy would be done with only one film with the adequate filter assembly, but at least three glass pieces with different filters would be necessary for the same purpose.

(Received February 5, 1962)

— REFERENCE —

- (1) J. H. SCHULMAN, *et al.* : *J. Appl. Phys.*, **22**, 1479 (1951).
- (2) W. T. THORNTON, J. A. AUXIER : *ORNL-2912*, (1960).
- (3) R. YOKOTA, *et al.* : *Health Physics*, **5**, 219 (1961).
- (4) M. J. HEARD, *et al.* : *AERE-R 3300*, (1960).
- (5) F. KALIL : *Nucleonics*, **13**, No. 11, 91 (1955).
- (6) P. S. MITTELMAN, R. A. LIETKE : *ibid.*, **13**, No. 5, 50 (1955).

研究論文

218. ^{35}S の 絶 対 測 定

渡 辺 鏝*

Absolute Measurement of Sulfur-35

By Tamaki WATANABE

In measuring absolute value of radioactivity of radioisotope which emits soft β ray, such as ^{35}S and ^{14}C , error caused mainly by self-absorption of β ray in source. In present paper, preparation method of ^{35}S source with less self-absorption and estimation of amount of self-absorption in source were discussed. The most suitable procedures for source preparation of ^{35}S were as follows;

- (1) sample solution, sulfuric acid in dilute hydrochloric acid solution, was dropped on thin vinyl film and dried up on a desiccant.
- (2) this source was dissolved with redistilled water and again dried up in ammoniac atmosphere.

^{95}Nb , which emit β ray with the same maximum and mean energy as that of ^{35}S and emit prompt γ ray, was taken. The crystal sizes of ^{95}Nb source were compared that of ^{35}S sources under the view of microscope. Then the amounts of self-absorption of β ray in these ^{95}Nb sources were derived from the ratio of $4\pi\beta$ counting rate and $4\pi\beta$ - γ coincidence counting rate. The amount of self-absorption, which was obtained by using above mentioned method, was about 5 % for ordinary source and less than 2 % for good source.

* 日本原子力研究所 (Japan Atomic Energy Res. Inst.)

I. ま え が き

^{35}S , ^{14}C のようにエネルギーの小さい β 線を出す RI の放射能強度の絶対測定をする場合に、最も大きい誤差の原因は試料中における β 線の吸収である。この誤差を少なくするためには、まず第1に自己吸収の小さい試料を作ることであって、粗大な結晶を生じない化学形を選び、かつ結晶が一様に分布して生成するような方法で試料を作らなければならぬ。ところが良好にできた試料でも自己吸収を零にすることはできず、なんらかの方法で自己吸収量を測定して補正を加えなければならない。自己吸収量を測定する方法は2, 3発表されているが⁽¹⁾、本報では測定しようとする RI に近い最大エネルギーをもつ β 線に続いて γ 線を出す別の RI を用いて RI を定量することによって、 β 線の試料中における自己吸収量を求めようとするものである。

本報は ^{35}S の放射能の絶対測定に関するもので、その内容はつぎの2つの部分に大別される。

- (1) 自己吸収の少ない試料の作り方
- (2) 自己吸収量の測定方法

以下これらの各部分の内容について述べる。

II. 測定試料の作り方

^{35}S の測定試料を作るための原液は0.1 N の塩酸溶液中の硫酸で、これを薄いビニール膜⁽²⁾ 上に SO_4^{2-} にして0.04~0.2 μg 採取した後第1図に示す種々の方法で試料を作った。その顕微鏡写真を写真1(a)~(e)に示

す。写真1(a)~(e)はそれぞれ第1図の④~⑤の試料に相当する。まずデシケータ中で1昼夜乾燥した④の試料は写真でも見られるように完全に乾燥せずしかも部分的に集まっている。この試料をさらにアンモニア雰囲気中で乾燥した試料を⑤に示す。これは写真1(e)に見られるように完全に乾燥しているが、④の試料と同様に均一に分布していない。乾燥したのは硫酸が硫酸アンモニウムになったためと思われる。④の試料に再蒸留水を滴下して再溶解した後アンモニア雰囲気中で乾燥した⑤の試料は写真1(b)からもわかるように結晶も微細化して、かつ全面一様に析出している。④の試料に当量の食塩水または塩化バリウム水を滴下した後デシケータ中で乾燥した試料をそれぞれ③、④に示す。写真1(c), (d)からもわかるように結晶は微細であるが、周辺部分に集中して析出する傾向があり、結局⑤の試料がこれらの5つの処理方法のうちで最良の結果が得られた。

第1図 ^{35}S 試料の作り方

写真1(a)~(e) ^{35}S 試料の顕微鏡写真

Ⅲ. 測定試料中のβ線の自己吸収量の測定

1. 測定試料の調製

前述のように³⁵S試料中のβ線の吸収量を知るためには、³⁵Sに近い最大エネルギーのβ線を出し、かつγ線を伴って崩壊するRIの量をγ線を利用して測定し、これから間接に自己吸収量を求める方法を用いた。このRIとして⁹⁵Nbを使用した。第1表に³⁵S、⁹⁵Nbの核的性質⁽³⁾を示す。この表に見られるように³⁵S、⁹⁵Nbのβ線の最大エネルギーおよび平均エネルギーは共に近い値を示しいずれも⁹⁵Nbの方が小さい。

使用した⁹⁵NbはR.C.C.から買い入れたもので、仕様書によればその化学形は0.5%のシュウ酸溶液中のシュウ酸醋塩となっている。この原液を蒸留水でおよそ86倍に希釈した後、ビニールの薄膜の上に滴下し、これをアンモニア雰囲気中で乾燥する。この試料の顕微鏡写真を写真2(a)~(i)に示す。ビニール膜上の試料溶液の採取量の測定は島津製作所製のML形直示微量天秤を用いて行ない、その量はシュウ酸にして0.05~0.7μgである。写真に見られる針状の結晶はシュウ

第1表 ³⁵Sと⁹⁵Nbの核的性質

RI	³⁵ S	⁹⁵ Nb
原子番号	16	41
質量数	35	95
β線最大エネルギー(keV)	167	158
	平均 ⁽⁴⁾	42
γ線エネルギー	なし	765 keV
崩壊形	$\begin{array}{c} \frac{3}{2}+ \text{ } ^{35}\text{S}(87\text{d}) \\ \swarrow \\ \frac{3}{2}+ \text{ } ^{35}\text{Cl} \end{array}$	$\begin{array}{c} \frac{3}{2}+ \text{ } ^{95}\text{Nb}(35\text{d}) \\ \swarrow \\ \frac{3}{2}+ \text{ } ^{95}\text{Mo} \end{array}$ <p>0.768 0.204</p>
ft	1.26×10^6	4.78×10^5

酸と思われる。

本実験に使用した⁹⁵Nbは核分裂生成物から分離精

写真2(a)~(i) ⁹⁵Nb試料の顕微鏡写真

製したものと思われるが、したがって、 ^{95}Nb の親である ^{95}Zr の含まれる危険がある。そこで ^{95}Nb の放射化学的純度を調べるに当っては ^{95}Zr を特に注目して測定した。方法は放射線によるものと化学分離による方法を併用した。放射線による方法では β 線のアルミニウム板による吸収とシンチレーション・カウンタによる γ 線スペクトルの測定を行なったが、そのうちで γ 線

スペクトルの測定結果では少量の ^{95}Zr が含まれているようであるが、その量は不明である。そこで ^{95}Zr と ^{95}Nb の TBP 溶媒抽出分離をカウンタ・カレント法によって行なった結果⁽⁵⁾では、 $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ の値は 0.05% 程度またはそれ以下であることがわかった。したがってこの ^{95}Nb は測定試料として用いることができる。

2. 測定方法および測定結果

第 2 図 $4\pi\beta$ - γ 同時計数装置ブロック線図

① $4\pi\beta$ カウンタ
② シンチレーション・カウンタ
写真 3 $4\pi\beta$ - γ 同時計数装置

II・1 で述べた方法によって作った測定試料の放射能強度を $4\pi\beta$ - γ 同時計数装置⁽⁶⁾を用いて測定した。使用した $4\pi\beta$ - γ 同時計数装置のブロック線図を第 2 図に、外観を写真 3 に示す。まず $4\pi\beta$ - γ 同時計数装置の $4\pi\beta$ カウンタによって ^{95}Nb から出る β 線を測定する。この測定に引き続いて ^{95}Nb の β 線および γ 線を利用して $4\pi\beta$ - γ 同時計数を行なう。前者の測定値は試料による β 線の自己吸収の影響を受けたものであり、後者はその影響を全く受けていない。したがって、前者の値を後者のそれで割れば自己吸収の影響を受けて測定値の減少した割合がわかるわけである。そこでこの比の値と写真 2 の試料の顕微鏡写真と比較対照すれば、試料の結晶のでき具合による吸収量の大きさの判定がつくわけである。

第 2 表に以上述べた方法によって求めた測定結果を示す。この表の測定値を自己吸収の値から分類して見ると、①自己吸収のほとんど全くない Nb-1, 2。②自己吸収量がおおよそ 5% 程度の Nb-3, 4, 5。③同じく 8% 位の Nb-6, 7, 8, 9 に大別することができる。これらの測定値と写真 2 とを比較して見ると、試料のでき具

第 2 表 ^{95}Nb の測定結果

試料番号	試料溶液の量 (mg)	$4\pi\beta$ 計数法による 測定値 (cpm)	$4\pi\beta\cdot\gamma$ 同時計数法 による測定値 (cpm)	$4\pi\beta$ 計数値
				$4\pi\beta\cdot\gamma$ 同時計数値 (%)
Nb-1	0.79	$7,818 \pm 53$	$7,631 \pm 56$	102.4 ± 2.1
Nb-2	2.39	$22,835 \pm 91$	$23,130 \pm 99$	98.7 ± 1.2
Nb-3	1.94	$17,270 \pm 78$	$18,050 \pm 87$	95.6 ± 1.3
Nb-4	4.75	$42,522 \pm 123$	$45,143 \pm 139$	94.2 ± 0.8
Nb-5	7.18	$64,357 \pm 154$	$67,543 \pm 241$	95.2 ± 0.8
Nb-6	3.64	$32,940 \pm 109$	$35,610 \pm 127$	92.4 ± 0.9
Nb-7	2.20	$19,519 \pm 84$	$21,432 \pm 100$	91.1 ± 1.2
Nb-8	12.00	$102,451 \pm 195$	$111,585 \pm 318$	91.9 ± 0.6
Nb-9	9.43	$80,620 \pm 177$	$87,220 \pm 346$	92.4 ± 0.9

合によってどの程度の自己吸収量があるかがわかる。

以上の測定から再び ^{35}S の測定にもどって写真 1 を見ると、⑥の試料は写真 2 (a)~(e) の Nb-1, 2, 3, 4, 5 程度であり、したがって自己吸収量も 5% 以下と考えられる。

これに対して Merritt らの実験⁽¹⁾ では平均 $2\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の量の ^{95}Nb 試料の自己吸収量はただ単に赤外線ランプの下で乾燥したものは 20% 程度、コロイド状のシリカを加えて乾燥したものは 8% 程度となっている。この文献には結晶の生成状態が示されていないので、著者の結果と直ちに 1 対 1 の比較は困難であるが割合により一致を示している。

IV. あ と が き

^{35}S の放射能の絶対測定を行なう場合に最も問題になる試料中の β 線の吸収の少ない試料の作り方としては、試料溶液をアンモニア雰囲気中で乾燥する方法で最良の結果が得られた。つぎに β 線の自己吸収量を推定する方法として、 ^{35}S と同じ程度の最大エネルギーの β 線を出しかつ同時に γ 線を出す RI として ^{95}Nb を用い、顕微鏡で観察して ^{35}S の試料と同じ程度の結晶生成状態の ^{95}Nb の試料を作り、 ^{95}Nb の γ 線を利用し

て自己吸収量を求めて、これから ^{35}S の自己吸収量を求めた。その結果は写真 1 (b) の試料でおよそ 5% である。

終わりにあたり、 ^{95}Nb 中の ^{90}Zr の化学分析を行なっていただいた Hassan M. Sammour, 木村 幹, 片岡晃の各氏に厚くお礼申し上げる。

(1962年 5月28日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) J. S. MERRITT, J. G. V. TAYLOR, P. J. CAMPION: *Can. J. Chem.*, **37**, 1109 (1951); J. S. MERRITT, J. G. TAYLOR, W. F. MERRITT, P. J. CAMPION: *Anal. Chem.*, **32**, 310 (1960).
- (2) 吉原賢二, 田中栄一: *Radioisotopes*, **5**, No. 1, 5 (1956).
- (3) D. STROMINGER, J. M. HOLLANDER, G. T. SEABORG: *Rev. Modern Phys.*, **30**, No. 2, I (1958).
- (4) J. H. MARSHALL: *Nucleonics*, **13**, No. 8, 34 (1955).
- (5) 石森富太郎, H. M. SAMMOUR: 本誌, **3**, No. 5, 344 (1961).
- (6) 渡辺 銀: [原研所内資料] 放射性同位元素資料-1013, (1960).