アルミニウム蒸着線源支持膜を使用した β 線源作成法

吉田 真, 宮原 洋, 渡辺 鏗

名古屋大学工学部原子核工学科

名古屋市千種区不老町

1975年 9月2日 受理

放射能濃度の絶対測定における均一で自己吸収の少ない β 線源作成法を研究した。線源の作成は、アルミニウム蒸着線源支持膜を用いて行ない、この上に、放射性核種の溶液を滴下し、いったん赤外線ランプで乾燥したのち、蒸留水で再溶解しアンモニア雰囲気中で乾燥した。この方法で線源の均一化は、作成過程で生ずるアルミニウム化合物の微粒子の働きで行なわれた。作成した線源試料の均一性の評価は、顕微鏡写真、オートラジオグラムを用いて行なった。また、自己吸収量は、 ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg の3つの核種で試料を作成し、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法により測定した。この結果、おのこの核種で沈殿法、コロイダルシリカ処理法と同程度の値が得られた。

1. まえがき

$4\pi\beta$ 計数法による放射能強度の絶対測定のさいに、線源自身による β 線の吸収(自己吸収)が問題となる。このため、自己吸収量の小さい測定試料を作成する必要がある。比較的自己吸収量の小さい線源作成法としては、静電スプレー法、電着法、真空蒸着法等が使用され、その作成手順は、Parker ら¹⁾により詳細に記述されている。しかし、これらの方法は、放射能濃度の測定の場合のように放射能強度とともに試料容量を知る必要がある場合には、試料容量を正確に決定できない難点があり、また、作成手順も複雑である。従って、簡単で定量性のある線源作成法は、一般に、放射性核種を含む溶液を滴下乾燥するという形態をとらざるを得ない。こうした形態の線源作成法のうち、乾燥法が最も簡単であるが、放射性核種の化学形の多くが可溶性塩であるため結晶成長が著しく、不均一な分布となり自己吸収量も大きい。この不均一性を小さくする目的で、従来は、沈殿法²⁾、インシュリン処理法³⁾、コロイダルシリカ処理法⁴⁾等がよく利用されている。

沈殿法は、放射性核種の化学形を難溶性塩の形に変えることにより結晶成長を抑え均一化を図っている。また、インシュリン処理法は、インシュリンで滴下面をぬらすことにより表面張力を緩和させ不均一に乾燥しないようにしている。さらに、コロイダルシリカ処理法では、コロイド状のシリカ粒子(ルドックス SM)を結晶成長の核として用い結晶を細く分散させることにより良い結果を得ている。

本報告では、均一で自己吸収量の小さい線源を作成

するために、放射性核種とまったく別の難溶性塩を生ずるアルミニウムを利用した。作成した線源試料の自己吸収量の評価は、比較的簡単な $\beta\text{-}\gamma$ 崩壊を行なう ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg の3つの核種を用いて、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法により行なった。また、線源の均一性は、光学顕微鏡写真およびオートラジオグラムを用いて評価した。

2. 線源の作成手順とその評価方法

2.1 線源の作成手順(アルミニウム蒸着膜法)

線源の作成は、以下に述べる手順で行なった。Fig. 1に示されているように、アルミニウムリング(内径15mm, 外径40mm, 厚み0.5mm)上にビニール膜(カネビニール M・B 1008)をはり、上面にアルミニ

Fig. 1 Source mount.

ウムを真空蒸着して線源支持膜とした。このアルミニウムの蒸着は、線源支持膜に導電性を与える目的と放射性核種溶液中に難溶性のアルミニウム化合物を生成する目的の2つを備えている。つぎに、この線源支持膜上に、放射性核種溶液を滴下し、赤外線ランプ(250W)により距離30cmで約20分間蒸発乾燥した。さらに、乾燥部を蒸留水($\sim 20\mu\text{l}$)によりふたたび溶解し、アンモニア雰囲気にしたシャーレ中でシリカゲ

ルにより乾燥した（アンモニア処理）。赤外線ランプによる乾燥操作は、放射性核種溶液の多くが塩酸性であり、この塩酸とアンモニアとの反応で多量の塩化アンモニウムが生成することを防ぐためである。再溶解に使用した蒸留水は、不純物の混入を防ぐために2回蒸留を行ない、とくに、2回目の蒸留には石英容器による非沸騰型の装置を用いた。また、アンモニア雰囲気は、シャーレ上蓋の内面をアンモニア水でぬらすことにより容易に作り出すことができた。

線源試料の作成に使用した ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg の3つの核種の比放射能は、それぞれ、200 Ci/g, 100 Ci/g, 0.2 Ci/g であり、自己吸収量の測定のごう上、試料あたり $\sim 0.05 \mu\text{Ci}$ の放射能が得られるように、0.1N塩酸により希釈した。

2.2 自己吸収量の測定

自己吸収量の測定に使用した ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg の3つの核種は、 β 線に引き続き γ 線を放出するため、4 $\pi\beta$ - γ 同時計数法による測定が便利である。測定に用いた4 $\pi\beta$ 線計数管は、アルミニウム製の箱型比例計数管（上下おのおの50×50×35^b mm）で、計数ガス

は、メタンを使用した。この β 線計数管をはさんで上下に2つの3 in. ϕ × 3 in. NaI(Tl)シンチレーション検出器が置かれ、 γ 線の計数(N_γ)を測定するとともに、 β 線計数管からの信号との同時計数(N_c)を測定した。同時計数と γ 線の計数の比(N_c/N_γ)から β 線の計数効率が決まり、計数されず失われた β 線の割合が求められる。自己吸収量は、この失われた β 線の割合から、さらに線源支持膜による吸収および β 線計数管のしきい電圧による数え落としの寄与を除くことにより求められる。

線源支持膜による吸収は、 α 線厚さ計⁵⁾による膜厚の測定値に基づき、Evansの吸収係数⁶⁾を用いて半無限平板の吸収量を計算することにより決定した。しきい電圧による数え落としは、検出される最小の β 線のエネルギー（410 eV）以下の割合を β 線のエネルギースペクトル⁷⁾より求めた。

2.3 線源の均一性の評価

作成された線源試料の微視的状态および放射性核種の分布状態は、それぞれ、光学顕微鏡、オートラジオグラムを用いて評価した。

Photo. 1 Microphotographs of ^{60}Co sources (a)~(d), ^{46}Sc source (e), and ^{203}Hg source (f), prepared by various methods.

線源粒子の粒径分布, 平均粒径の測定は, 光学顕微鏡写真($\times 2000$)から統計的処理法に基づいて行なった。平均粒径の測定において, 1 試料あたり測定した粒子の数は, 150~200個である。

オートラジオグラムは, 電子顕微鏡写真用フィルムを使用し, フィルム面と試料面との間隔は 0.1 mm 以下にして露出を行なった。フィルムの黒化度は, ミクロフォトメータにより測定し, 放射性核種の分布を評価した。

3. 結 果

Photo 1(c)~(f) に, 2・1 において述べた手順により作成した線源試料の顕微鏡写真を示す。また, Photo 1 (a), (b) は, それぞれ, 金蒸着線源支持膜およびアルミニウム蒸着線源支持膜を用い乾燥法で作成した試料の状態を示している。線源作成に用いた核種は, Photo 1 (a)~(d) においては ^{60}Co , (e), (f) では, それぞれ ^{46}Sc , ^{203}Hg である。

乾燥法で作成した試料では, 結晶の形状, 大きさ, 分布が一定せず不均一な状態を呈している。アルミニウム蒸着膜を使用しアンモニア処理されたあとでは, (c), (d), (e) が示すように, その微視的状态は, 1 μ 程度の微粒子の集合であり, ところどころそれらの微粒子

Fig. 2 Distribution of particle diameter in ^{60}Co source prepared by (a) present method and in that prepared by (b) colloidal silica treatment.

がクラスター状の分布をしている。線源全体における粒子の分布状態は, (c) に示されるように, 周辺部, 中央部ともに, ほとんど変化のない比較的均一な状態を呈している。さらに, 核種が ^{60}Co , ^{46}Sc , ^{203}Hg と変化しても状態はほとんど変化していない。このように, アルミニウム化合物の微粒子の働きにより, 乾燥法における不均一な結晶成長が抑えられている。

Fig. 2 に, ^{60}Co を用いて作成した線源試料における粒径の分布を示す。Fig. 2(a) は, アルミニウム蒸着膜法, (b) は, コロイダルシリカ処理法により作成した試料についての測定結果を示している。コロイダルシリカ処理法において比較的大きい粒径をもつ粒子が目立つのに対して, アルミニウム蒸着膜法では, かなり粒径が一定している。

^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg の 3 つの核種に対して, 各試料の平均粒径の測定値を Fig. 3 に示す。横軸は, α 線厚さ計により測定した線源の平均面密度で, 試料の違いに対応している。平均粒径は, 平均面密度の変化に対して一定であり, また, 核種の違いに対してもほとんど変化していない。

Fig. 3 Mean particle diameter of some sources of ^{46}Sc , ^{60}Co and ^{203}Hg . In the abscissae mean superficial density was chosen to show the distinction of samples.

Photo 2に、放射性核種の分布をオートラジオグラムにより評価した結果を示す。Fig. 4は、Photo 2中に示された A-A' の部分をマイクロフォトメータにより黒化度を分析した結果である。放射性核種の分布は、静電スプレー法等に比べてむらが存在するが、滴下乾燥の形態で作成した線源としては、コロイダルシリカ処理法と比べても非常に均一である。

Photo. 2 Autoradiogram of a ^{60}Co source prepared by present method.

Fig. 4 Photographic density of the autoradiogram (Photo 2) measured by a microphotometer.

アルミニウム蒸着膜法で線源を作成するさいのアルミニウム蒸着量と自己吸収量の関係を Fig. 5 に示す。測定した試料は、アルミニウム量による導電性の変化を補償するため、線源支持膜裏面より金の蒸着を行な

Fig. 5 Relationship between the self-absorption of ^{60}Co sources and the thickness of coated aluminum.

った。結果は、測定を行なった範囲で、アルミニウム量の変化に対して自己吸収量はほとんど変化しない。

4. 考 察

Table 1 に、アルミニウム蒸着膜法、コロイダルシリカ処理法および沈殿法により作成した線源の自己吸収量の測定値を示す。コロイダルシリカ処理法と沈殿法による線源の自己吸収量は、Merritt ら⁸⁾および Kawada⁹⁾により測定された値で、線源の平均面密度は $2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ である。アルミニウム蒸着膜法では、 α 線厚さ計で測定した平均面密度が $2 \sim 15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の範囲の線源の平均値が示されている。測定に使用した3つの核種のうち、最も比放射能の低い ^{203}Hg においても、キャリアの量 ($\sim 1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) は、アルミニウム化合物の量 (平均 $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) に比べて少なく、また、Photo 1 の線源の微視的状态から判断しても、キャリアの影響は抑えられていると考えられる。

Table 1 Percent self-absorption of β -rays of various sources by present and other methods

RI (MeV)	Present method	Kawada ⁹⁾	Merritt, et al. ⁸⁾	
		Colloidal silica treatment	Precipitation method	
^{46}Sc (0.36)	2.1 ± 0.5	3.1 ± 0.4	2.8 ± 0.4	2.8 ± 0.3
^{60}Co (0.31)	3.2 ± 0.5	3.0 ± 0.5	3.6 ± 0.7	3.7 ± 0.5
^{203}Hg (0.21)	8.2 ± 0.8	—	4.0 ± 0.5	5.6 ± 0.6
^{103}Ru (0.21)	—	7.8 ± 1.0	—	—

Evans の吸収係数を用いて行なった線源支持膜による吸収の評価の結果は、 $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の膜厚に対して、 ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg でそれぞれ、1.0%, 1.2%, 1.9% となった。Merritt らの評価では、同じ膜厚に対して、それぞれ 0.7%, 1.0%, 2.0% であり比較的良く一致している。

また、しきい電圧による数え落としも、検出されうる最小の β 線のエネルギーが、Merritt らにより使用された計数管における値 (400 eV) とほぼ同じであるため、 ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{203}Hg のそれぞれに対し、0.2%, 0.2%, 0.4% となり、Merritt らの評価と良く一致している。

アルミニウム蒸着膜法における自己吸収量は、 ^{46}Sc , ^{60}Co において、コロイダルシリカ処理法、沈殿法と同程度である。 ^{203}Hg においては、Merritt らの測定値がいくぶん小さいが、Kawada により測定された同

程度のエネルギーの ^{103}Ru の値と近い値を示している。 ^{203}Hg の測定は、水銀の蒸気で計数管内が汚染するため、 ^{46}Sc 、 ^{60}Co の測定の場合と異なり、ビニール膜で線源部をはさんで行なった。このため、 ^{46}Sc 、 ^{60}Co に比べて、線源支持膜の導電性が悪くいくぶん大きい測定値を示していると考えられる。

アルミニウム蒸着膜法は、2・1の手順のうえでは、沈殿法と類似している。沈殿法の特徴は、放射性核種およびそのキャリア自体を難溶性塩に変える点にあり、一般に溶液と反応しにくい金を蒸着した線源支持膜が使用される。このため、核種によって適当な難溶性塩を生ずる反応を選ぶ必要があり、適用範囲が限られる難点がある。これに対して、アルミニウム蒸着膜法は、放射性核種とは無関係な難溶性塩であるアルミニウム化合物を利用しているため、核種の違いに対する適用範囲は広くなると考えられる。また、コロイド性をもつアルミニウム化合物の微粒子を用いて均一化を図る意味では、コロイダルシリカ処理法との類似も見られる。コロイダルシリカ処理法の問題点の1つとして、コロイドのゲル化があげられる。このゲル化を防ぐためには、つねに新しく調製されたコロイド溶液を用いて線源を作成する必要がある。アルミニウム蒸着膜法では、線源作成時に、コロイド粒子が生成されるためにゲル化の問題は生じにくいと考えられる。

線源作成に関しては、2・1に述べたように、比較的簡単な手順で作成可能である。とくに、Fig. 4に示されるように、蒸着アルミニウム量が多少変化しても自己吸収量にほとんど影響しないことから、蒸着アルミニウム量を正確に規定する必要がなく有利である。また、線源作成の再現性は、Fig. 3の平均粒径の測定値に示されるように、非常に近い微視的状态が再現されることから、かなり良いと考えられる。

線源の均一性は、顕微鏡写真およびオートラジオグラムの結果に示されるように、乾燥法において見られる部分的な結晶成長が、アルミニウム化合物の微粒子の働きにより抑えられ、滴下乾燥の形態をとる線源作成法としては、十分に良いと判断される。

アルミニウム蒸着膜法の問題点は、アルミニウムの蒸着量が少ない場合に、線源支持膜の導電性が十分得られず β 線計数管の計数効率が低下することである。また、十分に蒸着された場合でも、膜に細かいしわが生じやすく導電性に悪影響を与える。しかし、この導電性は、線源支持膜裏面に $10\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度の金を蒸着することにより補償することが可能である。

5. あとがき

放射能濃度の絶対測定用線源作成法として、アルミニウム蒸着膜法を行なった。線源試料は、アルミニウム蒸着線源支持膜上に放射性核種溶液を滴下し、いったん赤外線ランプ下で乾燥したのち、アンモニア処理をして作成した。試料の微視的状态は、 $1\text{ }\mu$ 程度の微粒子の集合で構成され、乾燥法において見られる不均一な結晶成長は存在しなかった。また、各試料の平均粒径の測定値から微視的状态の再現性はかなり良く、さらに、オートラジオグラムの結果から放射性核種の分布は、滴下乾燥の形態をとる線源作成法としては、十分に均一であるという結論が得られた。

線源の作成は、手順が簡単で、そのうえ、自己吸収量がアルミニウム蒸着量の変化に対して極端には依存しないことから容易である。

最終的に得られた自己吸収量は、沈殿法、コロイダルシリカ処理法と同程度であるが、作成手順から判断して、沈殿法に比べ適用範囲は広く、また、コロイダルシリカ処理法におけるゲル化の問題も生じにくいと考えられる。しかし、アルミニウム蒸着量の少ない場合および蒸着によりひどくしわが生じた場合には、線源支持膜の導電性の悪さにより計数効率が低下するという問題点がある。これらの場合には、支持膜裏面より金を蒸着することにより改善される。

本研究の遂行にあたり、有益な助言をいただいた名古屋大学工学部、森千鶴夫、青山隆彦の両氏に深く感謝します。

文 献

- 1) W.C. Parker and H. Slatis: α -, β -, and γ -ray spectroscopy (ed. K. Siegbahn) Vol. 1, 385, North-Holland Publ. Co., Amsterdam (1965)
- 2) H.H. Seliger and A. Schwebel: *Nucleonics*, **12**, (7) 54 (1954)
- 3) L.M. Langer: *Rev. Sci. Instr.*, **20**, 216 (1949)
- 4) J.S. Merritt, J.G. V. Taylor, W.F. Merritt and P.J. Campion: *Anal. Chem.*, **32**, 310 (1960)
- 5) K. Ramavataram and D.J. Porat: *Nucl. Instr. and Meth.*, **4**, 239 (1959); S. Kato: *Nucl. Instr. and Meth.*, **75**, 293 (1969)

- 6) R.D. Evans: The Atomic Nucleus, 627, McGraw Hill Book Co., New York (1952) on: *Can. J. Chem.*, **37**, 1109 (1951)
7) J.H. Marshall: *Nucleonics*, **13**, (8)34 (1955) 9) Y. Kawada: *Nucl. Instr. and Meth.*, **98**, 21 (1972)
8) J.S. Merritt, J.G.V. Taylor and P.J. Campi-

Abstract

A β -Ray Source Preparation Method by the Use of Backing Film Coated with Aluminum

Makoto YOSHIDA, Hiroshi MIYAHARA and Tamaki WATANABE

Faculty of Engineering, Nagoya University, Nagoya

The preparation method for the source of $4\pi\beta$ -counting which had less self-absorption and better uniformity was studied.

The procedures of the preparation were as follows. The solution of radioactive nuclide was dropped upon the source backing film coated with aluminum and dried up under an infrared lamp. Then the source material dried up on the film was again dissolved by adding a small amount of distilled water and finally dried up in an ammoniac atmosphere.

By this method, the source material was distributed uniformly by the presence of fine particles of aluminum compound which were produced in the solution of radioactive nuclide.

The self-absorption for β -rays of the sources of ^{46}Sc , ^{60}Co , and ^{203}Hg was measured by means of $4\pi\beta$ - γ coincidence method and the uniformity of them was observed autoradiographically and microphotographically. The self-absorption in this method was little less than that in colloidal silica treatment or precipitation method.

(Received September 2, 1975)