

# 溶液放射能の測定とそのジオメトリー

加藤正夫・武谷清昭

## 1. 序言

放射性同位元素を利用した研究方法は極めて多様にあるが<sup>(1)</sup>、現在わが国および世界各国において実施されている研究では、トレーサー (tracer) 分析実験の範疇に属するものが最も多い。この実験方法では、溶液中の放射能強度を測定する必要を生ずることが非常に多いのであるが、この場合に目的とする放射性同位元素の溶解イオンを放射能測定に好都合な沈澱形状に沈澱させ、その放射能を測定している<sup>(2)(3)</sup>。この方法は操作が面倒であるという欠点があるので、筆者らは試料皿に測定する放射性溶液を適当量 (後述) 採り、ガイガーミュラー (Geiger-Mieller) 管 (G-M 管) のプローズスタンドの中に入れて放射能を測定した。この方法を用いると、液浸型 G-M 管を使用する場合に比較して、採取する放射性溶液の量が極めて少いので、実験において系を乱すことが余りなく非常に好都合である。このような見地から、試料皿による放射性溶液の測定に際して、感度と試料採取量、棚係数などの関係を検討して、今後のトレーサー実験計画の資料に供したい。

## 2. 測定用試料調整と測定実験

### (a) 放射性同位元素 $^{110}_{47}\text{Ag}$

この実験で使用した放射性同位元素は  $^{110}_{47}\text{Ag}$  であって、 $^{110}\text{Ag}^*\text{Cl}$  の水溶液として Atomic Energy commission U. S. A から輸入したものである。その性質を第 1 表に示す。

第 1 表  $^{110}\text{Ag}^*\text{Cl}$  の性質

Description	$\text{Ag}^{110}$ (47AP)
chemical Form	$\text{AgNO}_3$ in wear $\text{NHO}_3$
Batch No.	3
concentration	$1.68 \pm 20\%$ mg/ml
Specific Activity	28.96 mc/gm
Analysis	
Assayed at 8:00 a. m.	6-13-52
	$\text{Ag } 58$ mg/ml
Radiochemical purity	More than 99.9
	3.42 N acid

註  $\text{Ag}^*\text{Cl}$  の \* は放射性同位元素 Ag がキャリアーを含んでいることを示している。

ラジオアイソトープがわれわれの身近に感ぜられるようになってから、その平和的な利用に志す研究は数多行われているが、なかでもトレーサー分析に使用した研究が多い。試料の放射能の測定が分析における秤量と如何なる関係にあるかを明解にした研究で、今後の研究者達に役立てば幸である。

(Radioisotope shipping Memo Packed List, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee)

この  $^{110}_{47}\text{Ag}$  は原子炉の中性子によって造られたものであって原子核反応式を次に示す



第 2 表 試料とその  $\text{Ag}^*$  濃度

試料番号	C 1	C 2	C 3	C 4	C 5	C 6	C 7	C 8
$\text{Ag}^*$ 濃度 g/cc	$1.45 \times 10^{-9}$	$7.25 \times 10^{-9}$	$1.45 \times 10^{-8}$	$2.9 \times 10^{-8}$	$1.45 \times 10^{-7}$	$2.9 \times 10^{-7}$	$2.9 \times 10^{-8}$	$2.9 \times 10^{-8}$

この (n,  $\gamma$ ) 反応による放射性同位元素  $^{110}_{47}\text{Ag}$  は次のような半減期と放射線を持った崩壊をして、安定な元素  $^{110}_{48}\text{Cd}$  になる。

半減期	放射線 Mev
225 日	$\beta < 0.1, 0.59$ $\gamma 0.66, 0.90, 1.40$

### (b) 溶液試料の調製

上記溶液からマイクロピペットを遠隔操作台によって操作して 0.1cc 取り、次のような溶液に溶かして  $2.9 \times 10^{-5}\text{g/cc}$  の  $\text{Ag}^*$  の濃度にした。

$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	157.3 gr/l
$\text{H}_2\text{SO}_4$	200 gr/l
$\text{H}_2\text{O}$	1000 cc

この溶液をさらに同じような操作によって、 $2.9 \times 10^{-7}\text{g/cc}$ ,  $1.45 \times 10^{-8}\text{g/cc}$  の  $\text{Ag}^*$  濃度に稀釈して、第 2 表に示すような  $\text{Ag}^*$  濃度の測定試料 8 種類を調製した。

### (c) 測定装置および方法

放射能測定に使用したガイガーミュラー計数装置は神戸工業製 G-M 計数装置および同 100 進スケーラー装置である。G-M 管<sup>(5)</sup> は端窓 (end-window) 型であって、マイカ窓の厚さは  $1.2\text{mg/mm}^2$ 、窓の直径 1.5cm のものを使用した。

測定試料溶液を内径 4.2cm、深さ 1.7cm の試料皿に 10cc 取って放射能測定試料とした。この試料はプローズスタンドの 3 段目の位置から 7 段目 (最低段) の位置の間で測定した。その場合の各棚位置と G-M 管の窓と

の間の距離は次に示す通りである。おのおのの測定の場合には

棚位置 (段目)	3	4	5	6	7
距離 (cm)	3.5	4.5	6.5	8.5	10.5

幾何学的条件を一定にするために、前蓋は閉めて測定し、宇宙線等の影響を最小にし自然計数の条件を一定にするために、両側および背面には厚さ 5cm の鉛煉瓦を置いてプローブスタンド全体を遮蔽するようにした。

(d) 測定実験

上記のような条件によって、C1 から C8 までの試料を 3 段目から 7 段目までの位置で cpm (毎分計数) を単位として測定した結果を第 3 表に示す。

今放射性試料を G-M 管によって測定すると、その放射能の強度は単位時間の放電回数によって示される。試料を  $T_s$  分間測定して、 $N_s$  の計数を得たとする。この

第 3 表 各棚における放射能測定値

3 段目

	$N_s$	$ns$	$\sigma_s$	$N_d$	$nb$	$\sigma_d$	$nn$	$\sigma_n$
C 1	324/15	22.8	1.2	365/18	20.3	1.1	2.5	1.6
C 2	459/15	30.6	1.4	340/17	20.0	1.1	10.6	1.8
C 3	808/15	53.9	1.8	367/17	21.6	1.1	32.3	2.1
C 4	865/15	57.7	2.0	348/16	21.8	1.2	35.9	2.3
C 5	1377/8	172.1	4.6	332/16	20.7	1.1	151.4	4.8
C 6	2806/8	350.8	6.6	420/19	22.1	1.1	328.6	6.7
C 7	7824/3	2608.0	29.5	249/14	18.8	1.2	2589.2	29.4
C 8	20580/1	20580.0	143.3	263/14	17.8	1.1	20562.2	143.4

4 段目

	$N_s$	$ns$	$\sigma_s$	$nb$	$nb$	$\sigma_b$	$nn$	$\sigma_n$
C 1	377/15	25.1	1.3	378/19	23.6	1.2	1.5	1.8
C 2	539/16	37.0	1.4	414/17	24.4	1.2	13.0	1.9
C 3	541/15	36.1	1.6	409/17	24.1	1.2	12.1	1.8
C 4	712/15	47.8	1.8	369/16	23.1	1.2	24.9	2.1
C 5	1168/8	146.0	4.3	349/16	21.8	1.2	124.2	4.4
C 6	1933/8	241.5	5.5	345/16	21.6	1.2	219.9	5.6
C 7	6698/4	1674.5	20.4	282/13	19.6	1.2	1654.9	20.4
C 8	4213/1	14213.0	119.2	275/14	21.7	1.3	14191.3	119.2

5 段目

	$N_s$	$ns$	$\sigma_s$	$N_b$	$nb$	$\sigma_b$	$nn$	$\sigma_n$
C 1	372/17	21.8	1.1	281/15	18.7	1.1	3.1	1.6
C 2	374/15	24.9	1.3	320/16	20.0	1.1	4.9	1.7
C 3	453/15	30.2	1.4	333/16	20.8	1.1	9.4	1.8
C 4	509/15	33.9	1.5	356/12	20.9	1.1	13.0	1.9
C 5	1328/14	88.5	2.4	380/18	21.1	1.1	67.4	2.7
C 6	1316/8	164.5	4.5	370/18	20.6	1.1	144.0	4.7
C 7	5757/5	1151.4	15.2	306/14	21.9	1.2	1129.5	15.2
C 8	20019/2	10009.5	70.2	287/14	20.5	1.2	9989.0	70.2

6 段目

	$N_s$	$ns$	$\sigma_s$	$N_b$	$nb$	$\sigma_b$	$nn$	$\sigma_n$
C 1	198/8	24.8	1.8	499/23	21.7	1.0	3.1	2.0
C 2	417/15	27.8	1.4	343/16	21.4	1.2	6.4	1.8
C 3	401/16	25.1	1.3	335/16	20.9	1.1	4.1	1.7
C 4	430/16	26.9	1.3	292/16	18.3	1.1	8.6	1.7
C 5	801/15	53.4	1.9	309/16	19.3	1.1	34.1	1.6
C 6	616/8	77.0	3.1	296/16	18.6	1.1	58.4	3.3
C 7	5046/8	630.8	8.9	290/15	19.3	1.1	612.1	8.9
C 8	17672/3	5890.7	44.3	280/15	18.7	1.1	5871.3	44.3

7 段目

	$N_s$	$ns$	$\sigma_s$	$N_b$	$nb$	$\sigma_b$	$nn$	$\sigma_n$
C 1	331/15	22.0	1.2	270/14	19.3	1.2	3.3	1.7
C 2	356/15	23.7	1.3	325/15	21.6	1.2	2.1	1.8
C 3	363/15	24.2	1.3	322/15	21.5	1.2	2.8	1.8
C 4	378/15	25.2	1.3	281/14	20.1	1.2	5.2	1.8
C 5	675/15	45.0	1.7	295/14	21.1	1.2	23.9	2.1
C 6	710/10	71.0	2.7	284/14	20.3	1.2	50.7	2.9
C 7	3316/8	414.5	7.2	315/16	19.7	1.1	394.8	7.3
C 8	19633/5	3926.6	28.0	541/24	22.5	1.0	3904.1	28.0

測定の標準偏差を  $\sigma_s$  とすると、毎分の計数  $ns$  は

$$ns = N_s/T_s \pm \sigma_s$$

$$= N_s/T_s \pm \sqrt{N_s}/T_s$$

で示される。次にこの試料を取り去って、宇宙線などによる自然計数 (back ground) を測定した場合に、測定時間  $T_b$  の間に計数  $N_b$  をえたとすると、毎分の自然計数  $nb$  は

$$nb = N_b/T_b \pm \sqrt{N_b}/T_b$$

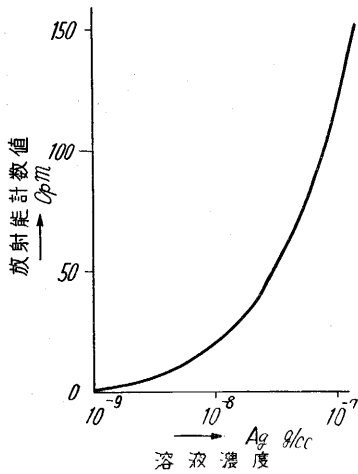
で示される。真の試料の放射能計数を毎分  $nn$  とすると  $nn$  は  $nn = ns - nb$

$$= N_s/T_s - N_b/T_b \pm \sqrt{(\sqrt{N_s}/T_s)^2 + (\sqrt{N_b}/T_b)^2}$$

によって求められる。これらの式を用いた  $\sigma_s, \sigma_b, \sigma_n$  各測定値に加えてある。

3. 考 察

これらの結果から、第 3 段目に放射能測定試料 C 1 から C 6 までを置いた場合の放射能 (cpm) と Ag の濃度とを両軸にして第 1 図に示す。この曲線から上記の  $^{110m}Ag$  を用いて放射能を測定すると  $10^{-9}g/cc$  程度の濃度が最大感度であると推定される。第 2 表の結果でも C 1 の放射能測定値は  $nn=2.52, \sigma_n=1.64$  ( $T_s=15$  分,  $T_b=18$  分) であって、標準偏差が大きく信頼度が低いのであるが、標準偏差をさらに小さくして精度を向上させるには測定時間  $T_s$  を著しく長くさせることが必要になってくる。実際の測定の場合でも、測定時間をさらに長くすることは、種々な外部的条件のために実施が困難になり、また測定時間を長くした割には標準偏差の



第1図 Ag イオン濃度—計数曲線

減少は僅少であるので実際の効果が少い。

第1図から推定される感度の限度が  $10^{-9}$  g/cc 程度であるが、この値を第1表の $^{110}\text{Ag}$ の数値を用いて計算から推定される感度と比較する。

今  $N$  個の壊変定数が  $\lambda$  である放射性同位元素の原子がある場合に、この放射性同位元素の原子の崩壊速度は  $dN/dt = -\lambda N$

ただし  $t$  は時間 ( $\lambda$  と同じ単位) とする。

1 mc は  $3.7 \times 10^7$  崩壊/秒 であるから、第1表の数値を用いて、

$$dN/dt = 28.96 \times 3.7 \times 10^7$$

$$\lambda = 0.693/225 \times 24 \times 60 \times 60$$

$$= 3.57 \times 10^{-5}$$

放射性同位元素の原子数を  $N_a$  とすると、

$$N_a = 28.96 \times 3.7 \times 10^7 / 3.57 \times 10^{-5}$$

$$= 3.0 \times 10^{13}$$

1 mg の原子数を  $N$  とすると、

$$N = 6.02 \times 10^{23} \times 10^{-3} / 107.8$$

$$= 5.58 \times 10^{18}$$

$^{110}_{47}\text{Ag}$  の放射能の mc 数の測定期日が 1952 年 6 月 13 日であるので、測定の日期までに 200 日を経過している。これから現在存在している  $^{110}_{47}\text{Ag}$  の原子数  $N_{an}$  を求めると、

$$N_{an} = 3.0 \times 10^{13} \times 1/2 \times \exp(-0.693 \times 200/225)$$

$$= 89 \times 10^{12}$$

1 mg の Ag 中に存在する放射性同位元素  $^{110}\text{Ag}$  と他の安定な Ag 元素との比は

$$N_{an}/N = 1.6 \times 10^{-6}$$

となる。

C 1 の試料には  $1.45 \times 10^{-9}$  g/cc の Ag 濃度であるので、この中で実際に放射能の測定に関する  $^{110}_{47}\text{Ag}$  の原子数を求めると、

$$1.45 \times 10^{-9} \times 10 \times 1/107.8 \times 6.02 \times 10^{23} \times 1.59$$

$$\times 10^{-6} = 1.3 \times 10^7$$

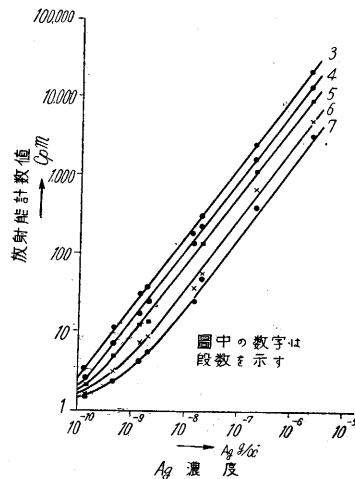
放射能試料 10cc 中で崩壊速度を求めると、

$$dN/dt = 3.6 \times 10^2$$

故に毎分の  $^{110}\text{Ag}$  の崩壊数を求めると、 $2.7 \times 10^4$  になる。

G-M 管の  $^{110}\text{Ag}$  の  $\gamma$  線に対する感度を、 $^{110}\text{Ag}$  の  $\gamma$  線のエネルギーから一般の G-M 管と同じく 1% とする。試料とマイカ窓との距離が 3.5cm、マイカ窓の直径が 2.4cm であるので立体角による効率が 29.6% 程度と推定される。距離による効率が 12% で主なジオメトリーによる糊係数が計算から  $10^{-4}$  程度となる。C 1 を実測した放射能測定値と、計算から推定される C 1 の毎分の計数値とはよく一致する。 $^{110}\text{Ag}$  の  $\beta$  線のエネルギーが  $< 0.1, 0.59\text{Mev}$  であることから、この放射能試料溶液中の  $\beta$  線の飛程が 2.2mm 程度であるため、この場合に放射能測定の場合に  $\beta$  線の効果は無視して推定した。このことは後に述べる計数値と試料と G-M 管との距離の関係からも正当化される事柄である。

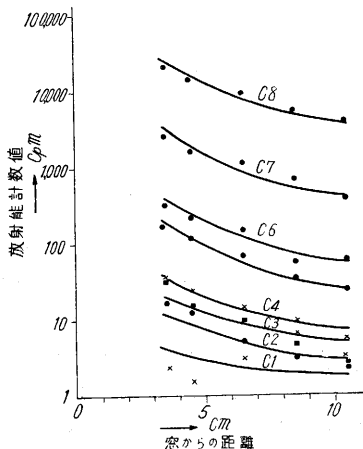
以上の通り計算と実測との感度が極めてよく一致することが明らかになった。溶液中に存在するある物質の量が  $10^{-9}$  g/cc の感度で測定される。 $10^{-9}$  g/cc の感度は他の如何なる分析方法によるよりも高感度であり、これからのトレーサー分析のみならず、化学的な実験において有効な手段を提供したことになる。この感度は採取した放射性溶液の量その他によっても決められるが、A. E. C. から輸入した  $^{110}\text{Ag}$  の比放射能が感度に対して決定的な影響を持っている。さらに高感度を要求する場合には、キャリアーのない  $^{110}_{47}\text{Ag}$  を使用するのが最もよい。著者らの用いた装置によって、キャリアーのない  $^{110}\text{Ag}$  を用いた場合の感度は、計算から推定すると  $1.4 \times 10^{-15}$  g/cc となる。比放射能の高いものも実際には A. E. C. のカタログによって米国から、または英国、カナダからも輸入可能である。



第2図 Ag イオン濃度—放射能曲線

第3表の結果を計数値 cpm の対数と Ag の濃度とを両軸にして3段から7段の各段の曲線を第2図に示す。第3段の曲線が Ag 濃度の最も低い部分まで直線である。そして段数が増加するにつれて低 Ag 濃度の所で直線性を失っている。

一般の放射性実験では補正曲線を予め求めてから測定試料の相対的な放射強度を求める場合が多いが、この第2図の曲線から放射能溶液試料測定の場合には、その放射能強度によって測定の棚位置を適当に選ばなくてはならない。



第3図 測定距離—放射能曲線

測定試料と G-M 管との距離と計数値の対数とを両軸として、各 Ag 濃度の曲線を第3図に示す。放射能強度

がある程度高い C7, C6, C5 ではほぼ曲線であって、測定に利用できるが、C3, C2 などでは有意な G-M 測定値は計数管に近い場合だけであって、殊に C1 では  $m_n$  と  $o_n$  との数値からして有意な測定値は最短距離の場合だけと考えられ、その他の場合は測定値の誤差が大きくて曲線が求められない場合もある。

#### 4. 結 言

これまで述べたように、放射性溶液の放射能を測定するには、溶液をそのまま試料皿に取った試料を端窓型 G-M 管を用いて、プローブスタンド中で測定すれば、第2図のような直線性があるためにより精度よく計数値から放射性物質の存在量が求められる。この方法は初めて行ってみた実験でもあるので、充分検討されてはいないが測定法として一つのあり方を確立したものである。今後さらにこの測定法を発展させて行きたいと考えている。

この実験において、いろいろ御助力いただいた佐々木吉方君および実際測定していただいた吉川節子嬢に深く感謝の意を表す。(1953. 12. 9)

#### 文 献

- (1) 加藤, 武谷 本誌 4 (1952), 98
- (2) G. K. Schweitzer, I. B. Whitney, "Radioactive Tracer Technique" 1949
- (3) Calvin "Isotopic carbon" 1950
- (4) A. K. Solomon, R. G. Gould, C. B. Anfinsen, Phys. Rev. 72 (1947), 1097
- (5) 加藤, 武谷, 本誌 3 (1951), 463.

#### (17 頁よりつづく)

れで一般の人が日本においてジェズイットが危険でないかと聞くのには全く驚いてしまった。

スイスには製薬工場, 時計工場, ズルツァのマリンエンジン, セネボアの工作機械など世界に冠たる工業があるがしかし由来人口が少く, 国が狭いので自国だけを市場とする産業は割に少ないようである。パーゼルで見学した Geigy 製薬会社は前者にチューリッヒで訪問したウインテルツールゼラチン会社, フリプールのテルコ写真会社などは後者に属している。ガイギー会社では薬効の試験に電気的な測定を盛んに使用していた。たとえば麻酔剤の試験に鼠を籠の中に入れてこの籠の振動を隣の部室に電気的に導いて自記せしめ, 薬が効いて鼠の動かなくなる迄の時間を測定するという類である。ここには DDT の発明でノーベル賞を貰ったミュラー博士がおられてお逢いすることができたが, 如何にも温厚な方であった。塩素誘導体の殺虫剤に対して虫が抵抗性を示して来た傾向があるので新しい型の殺虫剤を研究しはじめたと案内者がいっていた。

スイスは人も知る牧畜の国であってゼラチン工業は原料に恵まれているのでウインターツールゼラチン会社も戦前は非常に盛んであったが, 戦争中今まで輸入していた日本などでもゼラチンを自給するようになったので今ではやや不振のようであった, テルコという会社は余り人の知らないテルカラーというカラーフィルムをつくっているが, 技術者はアグファ系統の人であってなかなか立派なものを出している。

筆者のヨーロッパ旅行の最後はイタリアであった, スイスで既に寒く陰鬱で冬近きを思わせたのにミラノに来ると再び初秋の如き暖かさであって, ローマまで南下すると空は青く少し早く歩くと汗ばむ位で南欧の気候がアルプスの向うと如何に変わるかをよく体験した。ローマは北緯 38° であって日本の青森辺に相当するが冬雪の降る

ことは滅多になく日本でいえば鹿児島辺りの気候に相当するようだ。

ミラノでは有名な大理石でできたドームを見物した他に Ferrania 写真会社の天然色フィルムの現像場を見ることができた。ミラノから 200km のフェラニアという所にあるその工場はイタリアでは唯一の大写真会社であるし, フェラニアカラーという内式のカラーフィルム及び印画紙をつくっている。イタリアではこの会社の外はベニス, フロレンス, ローマと見物の旅をつづけた。筆者は美術や歴史は余り判らないが, それでもローマの絵画, 彫刻, 教会の芸術はバリーのそれにもまして驚嘆に値するものばかりであった。カステルガンドルフォというローマ法皇の夏の別荘で二, 三百人の人と共に法皇の一般謁見に参加することができた。ローマの三日の滞在はこうして瞬く間に過ぎて 11 月 11 日早朝 BOAC 機に乗って日本へ帰路についた。途中ベルマ, タイ, 香港に寄ることができて, これら東洋の国々は今まで見たヨーロッパと著しい差があるがこれらについてはまたいずれ述べて見たいと思う。(1954. 1. 12)

#### 「生産研究」第6巻第1号正誤表

頁	段	行	種別	正	誤
15	右	下17	本文	梁理論	案理論
16	左	下20	〃	θ	O
		下5	〃		
〃	右	6	〃	〆	上リ
〃	〃	16	〃	〔(イ)シリーズ〕	〔(イ)シリーズ〕
17	左	第2表	〃	数字抹消	降伏点至%の項の
〃	〃	〃	〃	〃	2.5箇数の下2.5
〃	〃	2	本文	角θ	角Q
6	右	4	〃	フジペルツ 400	フジ 400