

## 技術報告

### 密封小線源を利用した低エネルギーX線検出器の校正手法

原 正憲<sup>1</sup>, 内川 稜太<sup>1</sup>, 加藤 剣一<sup>2</sup>, 伊藤 剛士<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 富山大学 研究推進機構 水素同位体科学研究センター  
〒930-8555 富山市五福 3190

<sup>2</sup> 株式会社 化研  
〒310-0903 茨城県水戸市堀町 1044

Energy calibration for low energy X-ray detector with using low active sealed radioisotope

Masanori HARA<sup>1</sup>, Ryota Uchikawa<sup>1</sup>, Kenichi Kato<sup>2</sup>, Takeshi Ito<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Hydrogen Isotope Research Center, Organization for Promotion of Research,  
University of Toyama  
Gofuku 3190, Toyama city, Toyama 930-8555, JAPAN

<sup>2</sup> KAKEN Co. Ltd.,  
Hori 1044, Mito city, Ibaraki 310-0903, JAPAN

(Received February 28, 2020; accepted August 7, 2020)

#### Abstract

Low energy X-ray detectors have been used for the beta-ray induced X-ray spectrometry (BIXS) in tritium analysis. However, the energy calibration of detector has been done with using the X-ray from radionuclides such as <sup>55</sup>Fe, <sup>51</sup>Cr and <sup>57</sup>Co. These radionuclides generate limited energy lines of X-ray. The other calibration method was proposed in this study. The beta ray induced X-ray with beta radionuclide such as <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs was used. A metal plate was constituted desirable elements which generate adequate X-ray lines for the calibration. To generate X-ray, the metal plate

was irradiated by beta particles from  $^{90}\text{Sr}$  or  $^{137}\text{Cs}$ . The spectrum of X-ray generated was measured to obtain the relationship between the energy of X-ray and the pulse height (channel). The relationship taken by this calibration method could give more precise calibration factor in comparison with the conventional method.

## 1. 緒言

低エネルギーX線の検出器は蛍光X線分析などで広く利用されている。また、特別な用途としてトリチウムの測定にも利用されている。このトリチウム測定の方法は $\beta$ 線誘起X線計測法 (BIXS) として知られており、トリチウムの $\beta$ 線で誘起されるX線を検出することで、間接的にトリチウムの測定を行うものである[1]。このため、比較的高濃度のトリチウムに対して適用でき、気体状トリチウムの定量分析、固体中のトリチウムの定性分析を行うことができる。また、固体中のトリチウムからの $\beta$ 線誘起X線スペクトルは固体中でのトリチウム分布の情報を持っており、表面から深いところに存在する割合が多くなるにつれ低エネルギーのX線成分が少なくなる。さらに、固体中でトリチウムに隣接する元素からの特性X線も観測される。特性X線からの元素同定には、数百eV程度のエネルギー分解能があるのが望ましい。これまで、低エネルギーX線検出器のエネルギー校正には、密封線源より放出されるX線が利用されている。その線源として、 $^{55}\text{Fe}$  (Mn-K $\alpha$ , -K $\beta$ , 半減期2.747年) [2],  $^{51}\text{Cr}$  (V-K $\alpha$ , -K $\beta$ , 半減期27.704日) [2],  $^{57}\text{Co}$  (Fe-K $\alpha$ , -K $\beta$ , 半減期271.81日) [2],  $^{133}\text{Ba}$  (Cs-L, 半減期10.539年) [2]などが挙げられる。しかし、校正には限られたエネルギーの特性X線しか利用できないばかりか、これら線源の半減期は短い。

X線は高エネルギーの電子を物質に衝突させることで発生させることができる。例えば、 $^{137}\text{Cs}$  (半減期30.05年) [2],  $^{90}\text{Sr}$  (半減期28.80年) [2]の密封線源からの $\beta$ 線を金属板に照射すれば、金属板の元素に応じた特性X線を発生させることができる。また、発生する特性

Table 1 Characteristic X-ray of constituent elements of Hastelloy and so on.

	K $\alpha_1$	K $\alpha_2$	K $\beta_1$	L $\alpha_1$	L $\alpha_2$	L $\beta_1$	L $\beta_2$	L $\gamma_1$	M $\alpha_1$
Ar	2957.70	2955.63	3190.5						
Cr	5414.72	5405.509	5.946.71	572.8	572.8	582.8			
Fe	6403.84	6390.84	7.057.98	705.0	705.0	718.5			
Ni	7478.15	7460.89	8264.66	851.5	851.5	868.8			
Mo	17479.34	17374.3	19608.3	2293.16	2289.85	2394.81	2518.3	2.623.5	
Ba	32193.6	31817.1	36378.2	4466.26	4450.90	4827.53	5156.5	5531.1	
W	59318.24	57981.7	67244.3	8397.6	8335.2	9672.35	9961.5	11285.9	1775.4
Au	68803.7	66989.5	77.984	9713.3	9628.0	11442.3	11584.7	13381.7	2122.9

The unit is electron volts in this table. These data were in reference [4]

X線の強度比は、線源と金属板の組成・厚みが決まれば一定であると考えられる。つまり、密封 $\beta$ 線源と所定の金属板を用いることで、長期にわたり発生するX線スペクトルが変わらないX線の発生源を構築できる。このX線源を使用することで、低エネルギーX線検出器のエネルギー校正、エネルギー分解能の評価を長期間にわたり行うことが可能となると考えた。

そこで、下限数量以下の密封 $\beta$ 線源と金属板を利用した特性X線発生用の体系を構築し、発生するX線を低エネルギーX線検出器で測定した。測定したX線スペクトルで検出器のエネルギー校正とピーク分離の評価ができるか検討した。ここで、下限数量以下の密封 $\beta$ 線源を使用したのは、使用場所の制限がなく放射線管理区域外でも使用が可能なためである。

## 2. 実験

日本アイソトープ協会製の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の密封 $\beta$ 線源(301タイプ)を利用した。この線源は、直径25 mm、厚さ6 mmの大きさのジュラルミンカプセル内に、アクリル板に固定された線源が収納され、表面はアルミニウム箔で覆われている形状である。使用した線源の放射能は、 $^{90}\text{Sr}$ では2016年11月に10 kBq、 $^{137}\text{Cs}$ では2016年11月に10 kBqであった。いずれの線源の放射能も下限数量以下である。

X線を発生させる金属板の選定は、(1)トリチウムの $\beta$ 線のエネルギー範囲(0~18.6 keV)で特性X線を放出し、(2)市販され容易に入手しやすい金属板であり、(3)トリチウムの $\beta$ 線の最大エネルギーに近いエネルギーの特性X線を発生させるモリブデンを含有し、(4)科学的に安定であることを考慮し、ハステロイを選択した。一般的な、ハステロイの成分の重量組成はNi 55%、Mo 17%、Cr 16.5%、Fe 5%、W 5%である[3]。0.1 mm厚のハステロイ板を直径25 mmの円板に切り出し測定に利用した。Table 1にハステロイを構成する元素

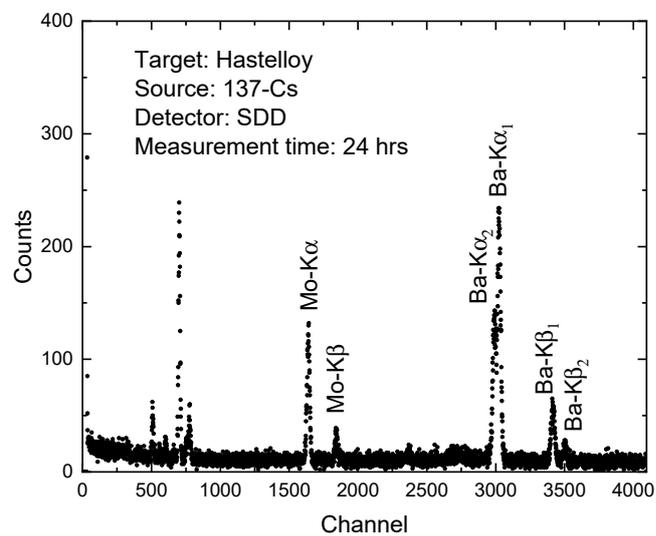


Fig. 1  $^{137}\text{Cs}$ -induced X-ray spectrum of Hastelloy.

により発生する特性X線を示す[4]。

低エネルギーのX線検出器として、テクノロジー社製のシリコンドリフト検出器(XS-100)を使用した。この検出器の有効領域面積は30 mm<sup>2</sup>であり、8 μm厚のベリリウム窓を有する。検出器に入射したX線の波高は、4096チャンネルの波高分析器でヒストグラムとして取得された。実際の測定では、β線源の前に金属板を設置し、その同軸上にX線検出器を配置した。

### 3. 結果と考察

Fig. 1に<sup>137</sup>Csのβ線源を用いて誘起された Hastelloy からのX線スペクトルを示す。測定時間は24時間とした。Fig. 2には、0から1000チャンネルまでを拡大したスペク

トルを示す。ここで見られているCu-Kαは使用している検出器内部の銅の部品より発生したと考えられる。Fig. 1とFig. 2より Hastelloy に含まれる元素と<sup>137</sup>Csの壊変後に生ずるBaからの特性X線のピークが観測されている。また、Baの特性X線においてはKα<sub>1</sub>とKα<sub>2</sub>の分離が見られた。

Fig. 3に<sup>90</sup>Srの線源により誘起された Hastelloy からのX線スペクトルを示す。Fig. 1と比較するとBaの特性X線以外は Hastelloy を構成する元素の特性X線であり、 Hastelloy 起源

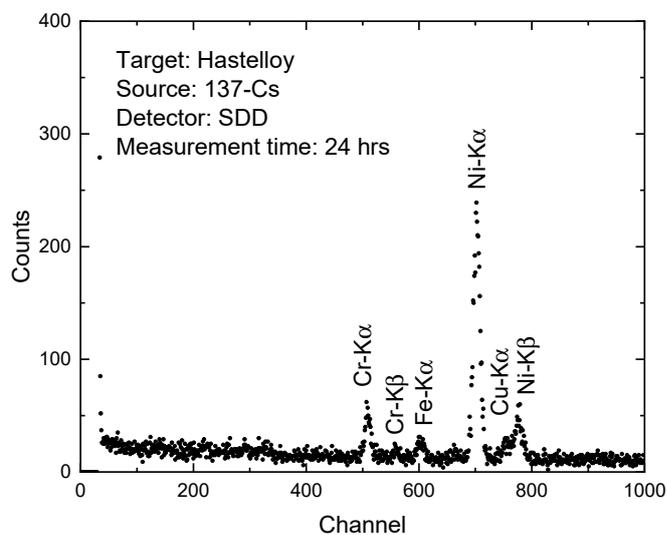


Fig. 2 The narrow range of <sup>137</sup>Cs-induced X-ray spectrum.

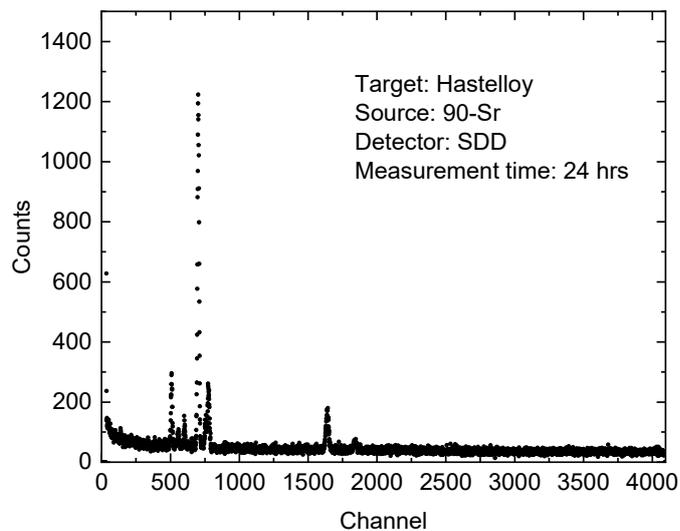


Fig. 3 <sup>90</sup>Sr-induced X-ray spectrum of Hastelloy.

のX線スペクトルは同様であることが分かる。測定時間は24時間と同じであり、 $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の放射能はほぼ同じであるが、観察されたX線の強度は $^{90}\text{Sr}$ の方が5倍程度大きな値が得られた。これは、使用した $^{90}\text{Sr}$ の密封線源は $^{90}\text{Y}$ と放射平衡にあり、 $^{90}\text{Sr}$ のみで想定される場合よりも多くの $\beta$ 線が線源より放出されている。さらに、 $^{90}\text{Sr}$ から放出される $\beta$ 線は最大エネルギーで545.9 keV[2]であり、 $^{137}\text{Cs}$ の513.97 keV[2]と1割程度高エネルギーである。一方、 $^{90}\text{Sr}$ と放射平衡にある $^{90}\text{Y}$ から放出される $\beta$ 線の最大エネルギーは2278.7 keV[2]と大きく、1つの $\beta$ 線が誘起するX線も多くなると考えられる。実際、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Y}$ の1壊変当たりで放出される $\beta$ 線の最大エネルギーの和は2824 keVであり、 $^{137}\text{Cs}$ の $\beta$ 線エネルギーの5.5倍のエネルギーを放出している。これらの値はおおよそ、観察されたX線の強度の違いと一致する。

ハステロイを構成する元素で発生する特性X線では、7.8 keVから16.4 keVの間でピークを持たない。この間のエネルギー校正を行うには、ハステロイには含まれない元素を用いる必要がある。しかし、ハステロイに他の元素を添加した合金の作製は簡単ではない。そこで、

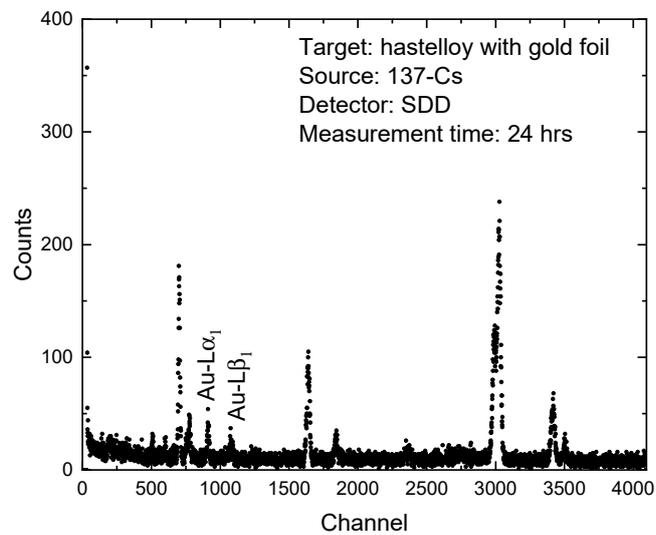


Fig. 4  $^{137}\text{Cs}$ -induced X-ray spectrum of Hastelloy with thin gold foil.

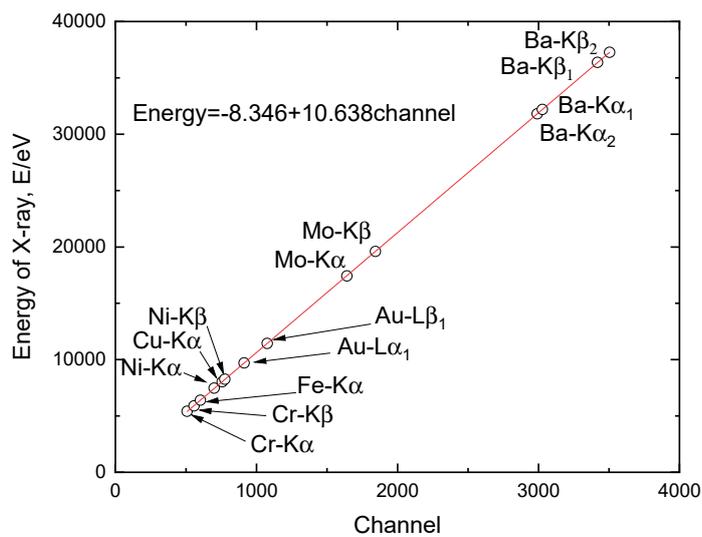


Fig. 5 Calibration curve between the X-ray energy and the channel (pulse height).

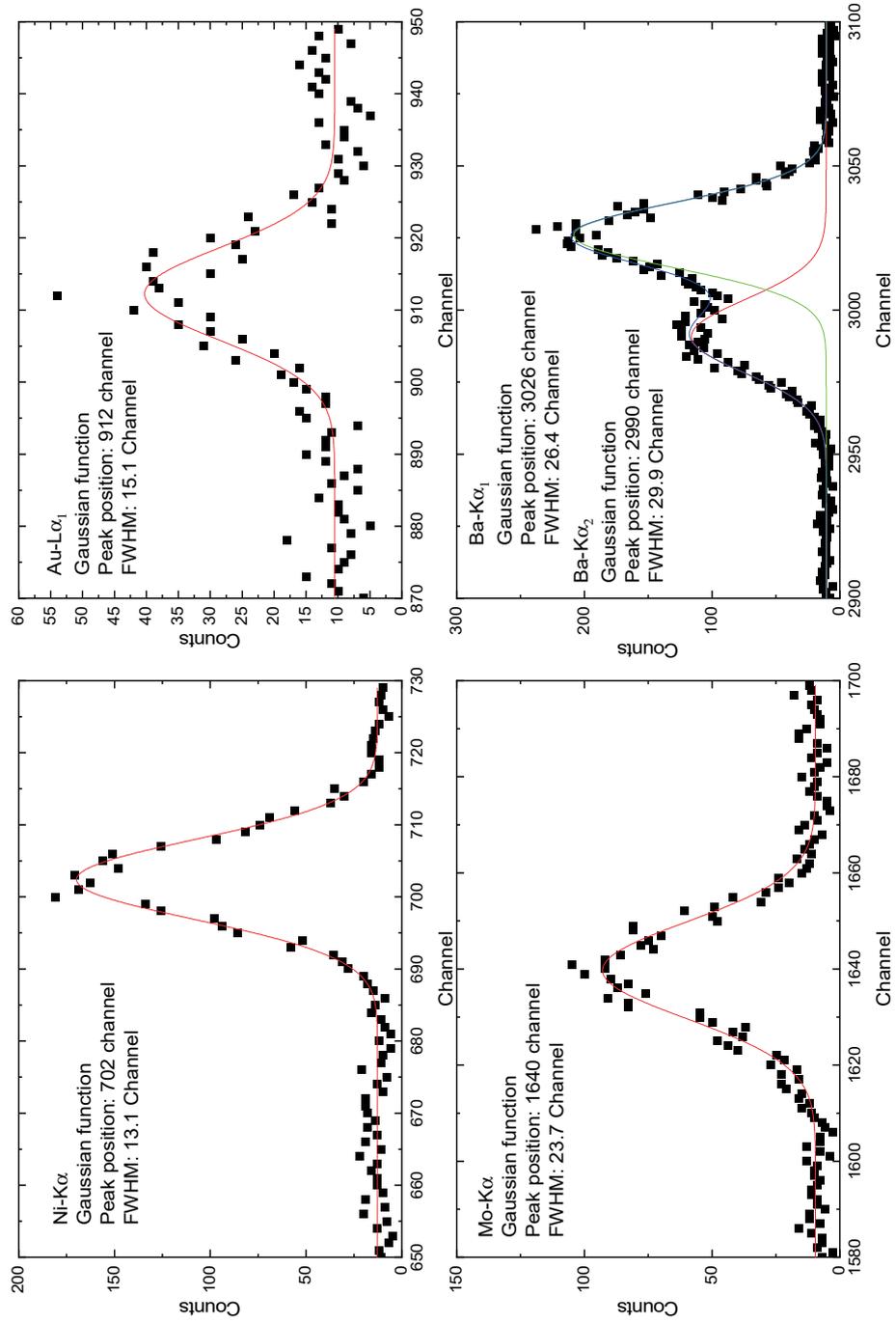


Fig. 6 Fitting by Gauss function of X-ray peaks obtained.

金属箔を線源上に載せることで特性X線のピークを出せるかを確認した。金の $L\alpha_1$ は9.71 keV,  $L\beta_1$ は11.4 keVのエネルギーを持ち[4], ハステロイで発生できない特性X線のエネルギー領域に対応する。金箔をハステロイ上にかぶせ, 金の特性X線の測定を試みた。 $^{137}\text{Cs}$ 線源で金箔を載せたハステロイを照射し得られたX線スペクトルをFig. 4に示す。Fig. 1と比較して, 912, 及び1076チャンネルに金のL線に対応するピークが観測された。即ち,  $\beta$ 線で照射する金属は合金としなくても金属箔の積層でもよいことが示唆された。

Fig. 4のスペクトルより, エネルギーとチャンネル数の校正を行った。その結果をFig. 5に示す。縦軸はX線のエネルギー, 横軸は波高分析器のチャンネル数である。Cr-K $\alpha$ の5.4 keVからBa-K $\beta_2$ の37.3 keVまで[4], チャンネル数とエネルギーは比例しており, その比例係数は1チャンネル当たり10.63 eVであった。

Fig. 4で示すX線スペクトル中のいくつかのピークをガウス関数によりフィティングし半値全幅 (FWHM) を求め, この値をもとに検出器のピーク分離を評価した。その結果をFig. 6に示す。Ni-K $\alpha$ とMo-K $\alpha$ では $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ の分離はみられなかった。Ni-K $\alpha_1$ とNi-K $\alpha_2$ のエネルギー差は0.02 keV, Mo-K $\alpha_1$ とMo-K $\alpha_2$ のエネルギー差は0.1 keVであり, チャンネル数としてはそれぞれ2チャンネルと10チャンネルの差に対応しており, 今回使用した検出器ではこのエネルギー差を見分ける分解能はない。Mo-K $\alpha$ でFWHMが23.7チャンネル(252 eV)と大きくなっており, 分解能の評価にはピーク分離の必要があると考えられる。しかし, 今回の測定データではMo-K $\alpha_1$ とMo-K $\alpha_2$ のピーク分離を試みたが, 観測されたMo-K $\alpha$ のピークは単一のガウス関数でよく再現されており, 一義的なピーク分離はできなかった。BaのK $\alpha$ は明瞭に $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ に分離しており, ピーク分離によりFWHMが得られ, FWHMは26.4チャンネルと29.9チャンネルとなった。検出された特性X線ピークのFWHMはチャンネル数が大きくなるに従い, 大きくなる傾向があり, モンテカルロシミュレーション等でスペクトルのシミュレーションを行う際の基礎データとして利用できる。

#### 4. まとめ

低エネルギーX線検出器のエネルギー校正に10 kBq程度の密封 $\beta$ 線源と入手容易な金属合金板を使用できるか検討した。その結果,  $\beta$ 線により誘起された金属板を構成する元素の特性X線が明瞭に測定された。この特性X線を利用することで, X線検出器のエネルギー校正を行うことができた。また, 金属箔を重ねることで金属箔を構成する元素の特性X線も観察できた。即ち, 金属箔を積層したものも利用できることが明らかとなった。校正に利用したいエネルギー領域に特性X線を発生できる元素で合金を作らずに, 金属箔の積層で様々なエネルギーの特性X線を利用できる。今回使用した密封 $\beta$ 線源の放射能は法令で定められた下限数量以下であり, 管理区域外でも適用可能な簡便なX線検出器の校正法となりえる。

#### 参考文献

- [1] M. Hara, Y. Kawamura, T. Tanabe, “Tritium Measurement I -Tritium in Gas, Liquid and Solid”, in Ed. by T.Tanabe, Tritium: Fuel of Fusion Reactors, Springer Japan, 2017.
- [2] Monographie BIPM-5, “Table of Radionuclides”,  
[www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm).
- [3] 日本真空技術株式会社編, ”真空ハンドブック“, オーム社, 1992.
- [4] A. Thompson, I. Lindau, D. Attwood, Y. Liu, E. Gullikson, P. Pianetta, M. Howells, A. Robinson, K. Kim, J. Scofield, J. Kirz, J. Underwood, J. Kortright, G. Williams, H. Winick, “X-Ray Data Booklet”, LBNL/PUB-490 Rev.3, 2009.