論　文

14-MeV 中性子を用いた繰り返し放射化（II）

近　藤　嘉　秀

Cyclic Activation with 14-MeV Neutrons (II)

Yoshihide KONDO

(Received September 30, 1985)

The experiment has been trying to examine the availability of the cyclic activation method with 14-MeV neutrons. Using a pneumatic sample transfer system, samples of 22 elements are used in this experiment. Gamma-ray spectra for the activated samples are measured by a 30-cm^3 Ge(Li)-detector coupled to a 1024-channel pulse-height analyzer. Experimental conditions of the cyclic activation are set to as follows. Activation and counting times are set to 30 seconds, sample transfer time to 0.3 second and number of cycles to 10. Sensitivities for 28 nuclides are obtained and those for 17 elements are presented.

KEYWORDS

activation analysis, fast neutron, short-lived nuclide, gamma-ray spectrum, sensitivity.

1. 緒　　言

繰り返し放射化法によれば，測定系に蓄積される計数値は実験時間の経過につれて増加する[1]。適切に利用すれば，非常に効率的な測定が可能となる。この方法には多方面での利用が考えられる。たとえば，放射化分析に利用する際には次のような利点が挙げられる。(1)目的とする核種に対する感度の改善が期待できる。(2)設定条件の使い分けにより，生成核種に対する選別効果を期待できる。(3)短寿命の生成核種に対する効率のよい測定が可能となり，実験時間が短縮できる。(4)長寿命の妨害核種による生成放射能の影響を少くできる，などである。

一般に，低出力の加速器を始め，低線束の RI 線源などを放射化実験に利用する際には，生成放射能の収量不足が実験遂行上の大きな制約となる。特に放射化分析では利用面を制限する決定的な因子となる。この欠点を補うには，短寿命核種に着目した繰り返し放射化法が非常に効果的であると思われる。そこで，14 MeV 中性子に対するこの方法の有効性について検討するため，前報[2]に引続き，比較的短寿命核種の生成が期待できる元素を選び，実験を試みた。前報[2]では γ 線スペクトル測定用の検出器として $2''\phi\times2''$ NaI (Tl) を用いたが，本報では有効体積 $30cm^3$ の Ge (Li) を用いた。

放射化時間が測定時間に等しい条件では，n サイクルの繰り返し放射化により測定系に蓄積される計数値 Dn (D_1, D_2, ……の合計) は次式で示される[3]。

$$D_n=\frac{Nf\sigma\varepsilon}{\lambda}(1-e^{-\lambda t_a})^2\cdot(e^{-\lambda t_t})\cdot\left[\frac{n}{1-e^{-\lambda T}}-\frac{e^{-\lambda T}(1-e^{-n\lambda T})}{(1-e^{-\lambda T})^2}\right] \quad (1)$$

ここにN：標的核の原子数，f：中性子束，σ：放射化断面積，ε：検出効率，λ：生成核種の崩壊定数，t_a：放射化時間，t_t：試料の輸送（放射化→測定）時間，T：繰り返し周期$=2(t_a+t_t)$，n：繰り返し数である。

(1)式の〔 〕内は繰り返しによる蓄積効果を表し，$n \geqq 2$ においては1より大きい値となる。しかし，$n=1$ においては〔 〕内は1となり，通常の放射化法により得られる蓄積計数値（D_1）を表す。繰り返し放射化法により得られる蓄積計数値（Dn）は t_a，t_t，nの設定値の組合せとλの値により変化する。これらの条件設定[4),5)]に関しては，未だ検討中であるので，本報は前報[2)]と同様の設定条件に限定して実験をおこなった。

2. 実験方法

2.1 試　　料

実験に用いた試薬の一覧表を Table 1 に示す。これらは何も市販の試薬で，純度は99～99.9999%である。これらの試薬を内径 2mm，外径 4mm，長さ 15 mm のポリエチレン管に入れ，両端部を密封し，端面を平垣に仕上げたものを照射および測定用の試料とした。試料は同種のものを各二個ずつ作製した。

2.2 試料気送装置[6)]

実験に用いた試料気送装置のブロック・ダイヤグラムを Fig. 1 に示す。気送管は2ループ設けた。このため，効率的な試料の放射化・測定が可能である。気送管は内径 5 mm，外径 7 mm，長さ 6 m の塩化ビニル管4本で構成されている。照射および測定試料は1ループ当り1個，合計2個の同種の試料を同時に使用する。空気圧縮機（日立，SOP7-S 型）の蓄圧タンク容量は 38 l で，5～7kg/cm² の圧さく空気が充塡できる。試料交換器に2個の試料を装塡し，気送管制御器に放射化時間または測定時間，試料輸送時間，繰り返し回数などの実験条件を設定する。この気送管制御器は，放射化(測定)時間を0.1～999.9秒，試料の輸送時間を0.1～99.9秒，繰り返し回数を1～999回までの任意の値に設定できる。気送管制御器のスタートボタンを押すと2ポート電磁弁Aが開き，5ポート電磁弁Bはオンまたはオフの状態で気送方向が逆転する。Bがオンの場合には，外側のループの試料は照射位置Cに，内側のループの試料は測定位置Dに輸送される。気送管のC，D部にはゴム製のリングが埋め込まれており，試料用のストッパーとして機能する。このストッパーの働きにより試料の移動は目的位置で停止する。Bがオフの場合には試料の輸送方向が逆転する。気送管制御器の設定時間毎に電磁弁Bの弁の方向が変わり，各ループの試料位置は自動的に交互に入れ替わる。このようにして試料の連続的な放射化・測定がおこなわれる。この繰り返し動作が設定回数に達すると試料交換器内に組込んだソレノイドの動作により，試料は自動的に回収され，実験が終了する。この際，発光ダイオードとフォトダイオードを組み合せた

Table 1 Activation samples

Chemicals	Sample-1 (mg)	Sample-2 (mg)	Total (mg)
B	57.6	59.2	116.8
CaF_2	58.2	58.6	116.8
NaCl	50.8	49.8	100.6
Mg	36.7	33.5	70.2
Al	58.8	58.3	117.1
Si	53.7	53.8	107.5
S	46.5	47.1	93.6
ZnI_2	106.4	88.6	195.0
Ge	140.5	144.9	285.4
As_2O_3	78.6	73.7	152.3
$RuCl_3$	62.9	60.3	123.2
Rh	118.5	118.3	236.8
$Pd(NO_3)_2$	51.6	48.9	100.5
Ag	190.2	194.8	385.0
CdO	40.0	40.0	80.0
Sn	144.3	141.6	285.9
CeO_2	48.9	50.7	99.6
Sm_2O_3	56.7	55.6	112.3
Er_2O_3	115.7	112.9	228.6

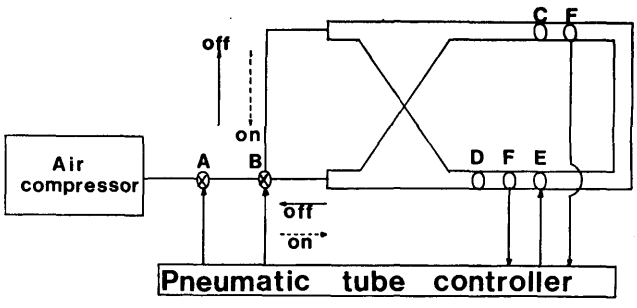

Fig. 1 Block diagram of pneumatic sample transfer system. A: 2-port magnetic valve, B: 5-port magnetic valve, C: activation position, D: measurement position, E: sample changer, F: photosensor

フォトセンサーFで，試料の通過信号を検知し，試料の通過時間，通過回数が気送管制御器に表示される。

2.3 照　　射

試料の照射には近畿大学原子力研究所に設置された中性子発生装置 (Taxas Nuclear, model 9504)のD-T 反応により発生する 14MeV 中性子を用いた。発生装置は加速電圧 120KV，平均ビーム電流約 150 μA の条件で運転をした。照射位置における気送管の配置は Al 製水冷却キャップの背面中心部に密着させた。このときの試料中心—^{3}H ターゲット間の距離は 17.5mm となる。

この際，両ループの試料照射位置における照射中性子束を互に等しくするために水冷却カップの中心部で最大の中性子束が得られるよう調整した。これは通常の使用状態では，デューテロン・ビームと ^{3}H ターゲット面の中心が必らずしも一致していないこと，14 MeV 中性子束の空間分布が ^{3}H ターゲット面近傍の照射場では急激に変化すること[7),8)] などの理由による。このため，繰り返し放射化実験を開始する前に，次のような予備的な実験をおこなった。

1) Al 製水冷却キャップの中心からの距離および互いの間隔が等しいキャップ背面部の位置に，重量がほぼ等しい銅板 (1cmϕ, 0.5mm 厚，平均 240mg) 4枚を配置し，5～10分間，14MeV 中性子で照射する。
2) 照射後1，2分経過時より ^{63}Cu の (n, 2n) 反応により生成した ^{62}Cu の半減期9.8分，511KeV の消滅γ線を GM 計数装置により1分間測定する。
3) 測定値に重量および減衰補正をして，4枚の銅板の生成放射能強度を比較する。
4) ターゲット・アセンブリーに設けられた3個所のスクリューネジを回し，デューテロン・ビームの^{3}H ターゲット面に当る位置を調整する。
5) 4枚の銅板の生成放射能強度が互に等しくなるまで1)～4)を繰り返す。

2.4 測　　定

照射試料は有効体積 30cm^{3}，相対効率 4 %，FWHM 2.08 KeV の Ge(Li) 検出器 (Princeton Gamma-Tech) と1024チャネル波高分析器 (NAIG) によりγ線スペクトルを測定した。測定位置における気送管の配置は検出器エンド・キャップ表面の中心部に密着させた。

測定用の試料を用いた繰り返し放射化の設定条件は総て放射化時間 (t_a) および測定時間 (t_c) を共に30秒，試料の輸送 (放射化→測定) 時間 (t_t) および試料の輸送 (測定→放射化) 時間 (t_t') を共に0.3秒，繰り返し数 (n) を10回の一定値とした。

試料の照射に用いられる 14MeV 中性子は実験期間を通じて大幅に変動する。これは中性子発生装置の運転積算時間の増加につれて，取り付けて使用している ^{3}H ターゲットが減耗してくるために生ずる。中性子発生装置の運転時間の経過に伴う照射中性子束の相対的な変化を Fig. 2 に示す。この図は粉末状の Si (平均 54mg) を照射試料として用い，^{28}Si の (n, p) 反応によって生成した ^{28}Al (半減期：2.246分) の1779 KeV の光電ピーク面積計数値を求めることにより得たものである。中性子発生装置の運転条件は加速電圧 120KV，平均ビーム電流 150μA の一定値とした。照射中性子束の変化の度合は，運転条件などの差により異なってくるが，今回の条件において，10時間経過時に得られた中性子束は実験当初の14分の1まで減少した。

また，照射中性子束は同一の運転条件下でも，種々の要因により変動する場合がある[9),10)]。このため，試料毎の照射中性子束をある程度，正確に把握しておく必要がある。このためのモニター試料として Si を用

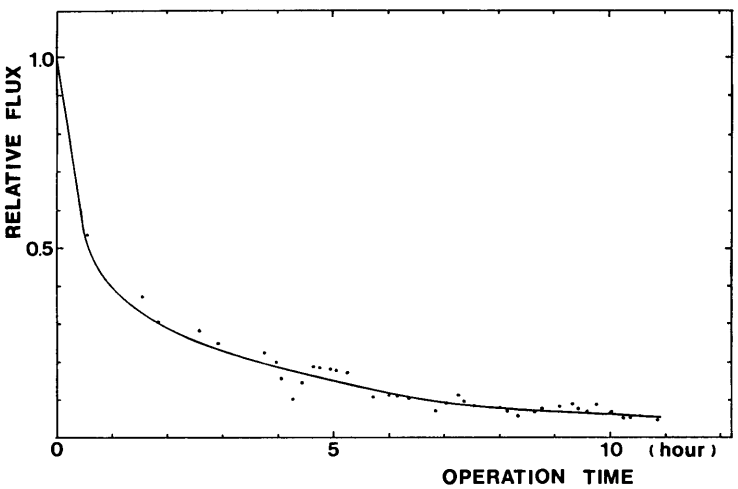

Fig. 2 Degradation of the neutron flux with the lapse of operation time.

いた。利用する核反応は $^{28}Si(n, p)^{28}Al$ である。これは ^{28}Al のγ線エネルギー値が1779KeV と高く，γ線スペクトルが比較的単純で，高感度であるため測定し易いことなどが Si を選んだ主な理由である。モニター試料の繰り返し放射化における設定条件は n を5回とし，他の設定条件は測定用試料の場合と同一にした。モニター試料は常に測定用試料の前後に用い，前後で得られた ^{28}Al の 1779KeV 光電ピーク面積計数値の平均値を基に測定用試料の照射中性子束を規格化した。

照射中性子束の規格化は以下に示す手順によりおこなった。

1) 1.6μCi の ^{22}Na 標準線源を Ge(Li) 検出器の中心軸上で，端面から 10cm の距離に配置し，γ線スペクトルを1分間測定する。得られたスペクトルの 511KeV 光電ピークに対する面積計数値を求め，この配置における 511KeV γ線に対する Ge(Li) 検出器の検出効率を算出する。この検出効率は2)において，照射中性子束を算出する際に利用する。

2) 重量 240mg の銅板（1cmφ，0.5mm 厚，純度 99.9%）1枚を Al 製水冷却キャップの背面中央部に配置し，14MeV 中性子により10分間照射する。照射終了後，^{22}Na 標準線源の測定と同一の位置において，1.5～2分の時間間隔で，1分間，銅板のγ線スペクトルを数回測定する。銅は ^{63}Cu の (n, 2n) 反応により ^{62}Cu を生成する。この ^{62}Cu の511

Table 2 Sensitivities for the nuclides produced by cyclic activation with 14-MeV neutrons

Target nuclide	Reaction	Product	Half-life of product	Gamma-energy (keV)	Accum. counts (cts/mg)	Sensitivity (mg)
B-11	(n,p)	Be-11	13.8 s	2125	2.81	2.6
F-19	(n,p)	O-19	27.1 s	197	426.	0.23
Na-23	(n,p)	Ne-23	37.6 s	439	120.	0.27
	(n,α)	F-20	11.0 s	1633	158.	0.048
Mg-25	(n,p)	Na-25	1.00 m	391	9.08	4.7
Mg-26	(n,α)	Ne-23	37.6 s	439	15.9	2.0
Al-27	(n,p)	Mg-27	9.45 m	844	35.6	0.54
Si-28	(n,p)	Al-28	2.25 m	1779	257.	0.025
Si-29	(n,p)	Al-29	6.52 m	1273	6.09	2.8
Si-30	(n,α)	Mg-27	9.45 m	844	2.70	7.2
Zn-64	(n,2n)	Zn-63	38.5 m	511	14.4	2.9
Ge-74	(n,p)	Ga-74	8.2 m	596	1.38	16.
Ge-76	(n,2n)	Ge-75m	48.9 s	140	125.	1.1
As-75	(n,p)	Ge-75m	48.9 s	140	38.8	3.5
Ru-102	(n,p)	Tc-102	5.3 s	475	5.42	5.9
Pd-108	(n,2n)	Pd-107m	21.3 s	214	431.	0.20
Pd-110	(n,2n)	Pd-109m	4.69 m	189	123.	0.73
Ag-107	(n,n′)	Ag-107m	44.3 s	93	53.2	2.0
	(n,p)	Pd-107m	21.3 s	214	16.2	5.2
	(n,2n)	Ag-106	24.1 m	511	156.	0.26
Ag-109	(n,n′)	Ag-109m	39.8 s	88	37.5	3.2
	(n,p)	Pd-109m	4.69 m	189	5.86	15.
	(n,2n)	Ag-108	2.41 m	633	6.14	3.3
Cd-112	(n,2n)	Cd-111m	48.7 m	245	54.0	1.3
Sn-124	(n,2n)	Sn-123m	40.1 m	160	37.9	2.5
Ce-140	(n,2n)	Ce-139m	56. s	754	559.	0.047
Sm-144	(n,2n)	Sm-143m	1.07 m	754	11.4	2.3
Er-168	(n,2n)	Er-167m	2.3 s	208	59.7	1.2

1) Experimental conditions are set to $t_a=t_c=30$sec, $t_t=t_{t'}=0.3$sec and n=10.
2) Neutron flux is normalized to 10^8n/cm^2·sec.

KeV 光電ピークに対する面積計数値を求め，放射能減衰および試料照射位置などの補正を加えて，気送管内の試料照射位置における照射中性子束を算出する。

3) 2) の銅板の照射中に，照射中性子束の モニター試料である Si 試料を用いて繰り返し放射化実験をおこなう。設定条件は n を 5 回とし，他の設定条件は測定用試料の場合と同一にした。この際，銅板の照射を始める前に，予め気送管を Al 製水冷却キャップの背面中心部に密着させて固定しておく。得られた γ 線スペクトルから ^{28}Si の (n, p) 反応により生成した ^{28}Al の 1779KeV 光電ピークに対する面積計数値を求める。

4) 2) で求めた ^{62}Cu の 511KeV および3) で求めた ^{28}Al の 1779KeV 光電ピークに対する面積計数値間の相対的な関係を用いて，モニター試料使用時における照射中性子束を算出する。

5) 4) の結果より，基準とする照射中性子束に規格化するための補正係数を求める。

3. 実験結果

14MeV 中性子の繰り返し放射化実験により検出された生成核種と その主要 γ 線エネルギーに 対する 感度を Table 2 に示す。表中，生成核種の半減期および γ 線エネルギー値は Edatmann[11] の Neutron Activation Tables より引用した。一つの生成核種より複数の γ 線エネルギーを放出する場合には，感度が最大となる γ 線エネルギーについてのみ記載した。蓄積計数値は606秒の 実験時間中に 得られた，標的元素の単位 mg 当りの光電ピーク面積計数値を表わす。感度値は検出器の対応したエネルギーの自然バックグラウンド計数値を Nb とするとき，$3\sqrt{Nb}$／(蓄積計数値) として算出した。これらの蓄積計数値および感度値は照射中性子束を何も 10^8n/cm^2·sec に規格化している。

Table 2 を基に確認した核反応および生成核種の半減期の等級別に分類した表を Table 3 に示す。生じた核反応は (n, n′), (n, α), (n, p), (n, 2n) の 4 種類で，それぞれ 2 例，3 例，12例，11例を認めた。これらの核反応は原子番号14の Si 以下の元素では荷電粒子放出型が，原子番号48の Cd 以上については中性子放出型が主に生じた。また，両者の混在型が原子番号30の Zu から47の Ag までの元素に見られた。生成核種の半減期は 1 分未満が14核種，10分未満が10核種，10分以上が 4 核種の 合計28核種の 生成を確認した。

Table 3 Classification of the half-lives of radio-nuclides for every nuclear reaction observed

Reaction	Half-life of product			Total
	<1m	<10m	≧10m	
(n,n′)	2	0	0	2
(n,α)	2	1	0	3
(n,p)	6	6	0	12
(n,2n)	4	3	4	11
Total	14	10	4	28

Table 4 Classification of the elemental sensitivities

Sensitivity (mg)	Element
< 0.1	Na, Si, Ce
< 1.	F, Al, Pd, Ag
<10.	B, Mg, Zn, Ge, As, Ru, Cd, Sn, Sm, Er
not detected	S, Cl, Ca, Rh, I

この実験に用いた22種の元素に対する感度を一覧表にして Table 4 に示す。この表は Table 2 で得られた核種に対する感度を元素別にまとめ，感度の等級別に元素を分類したものである。この場合，一つの元素について複数の標的核種，核反応がある場合には，最大の 感度が 得られるものを元素に 対する代表値とした。また，表に示した S, Cl, Ca, Rh, I の 5 元素に関しては核種同定ができず，感度が求められなかった。

4. 検　　討

今回，核反応により生成した誘導放射能の γ 線スペクトル測定には，有効体積 30cm^3 の Ge(Li) 検出器を用いた。感度は 0.025mg(^{28}Si)～16mg(^{74}Ge) の範囲内で得られた。この結果を 2″φ×2″NaI(Tl) 検出器で測定した前報[2] の結果と比べると，いくつかの元素では感度の大幅な改善が見られた。元素感度を求める基になる核種に対する感度で比較する。たとえば，^{23}Na(n, α)^{20}F では3.8倍，^{28}Si(n, p)^{28}Al では5.2倍，^{140}Ce(n, 2n)^{139m}Ce では3.8倍，^{27}Al(n, p)^{27}Mg では 2.4倍，^{124}Sn(n, 2n)^{123m}Sn では5.2倍，感度が向上し

た。測定上の幾加学的配置は前報[2]と本報では若干の差があるが，むしろ検出器のエネルギー分解能，ピーク／コンプトン比などの性能の差が寄与したものと思われる。

生成核種の半減期は2.3秒（^{167m}Er）～48.7分（^{111m}Cd）の範囲内で求められた。Table 3に示すように，半減期10分未満の比較的短寿命の核種が全体の86％を占めた。これは繰り返し放射化法の利用により感度の改善を図るには，好都合な現象である。この際，より一層の改善を図るには，生成核種の半減期に応じて適宜実験の設定条件を使い分ける必要がある。今回の実験では，前報[2]で用いた Se, Mo, Nd, Hf, W, Pb の試料を，都合により利用できなかった。これらの元素に関しては，前報[2]の結果より判断して，有効なデータが得られるものと思われる。

14MeV 中性子に繰り返し放射化法を適用する場合，実験を効率的におこなうには

1) 適切な放射線検出器の選定
2) 生成核種の半減期に適した実験条件の選択

に留意する必要がある。

今回の実験により，特定の元素の限定された実験条件に関してではあるが，14MeV 中性子に繰り返し放射化法を適用する場合の基礎データの一部を収集できた。これらの結果は放射分析などの応用面で有効に利用できる。

文　献

1) W. W. Givens, W. R. Mills, R. L. Caldwell: Nucl. Inst. Methods, **80**, 95 (1970).
2) Y. Kondo: Ann. Rep. Kinki Univ. Atom. Ener. Res. Inst., **21**, 37 (1984).
3) Y. Kondo: Radioisotopes, **27**, 373 (1978).
4) Y. Maki and T. Nojiri: ibid., **72**, 27 (1978).
5) H. Tominaga and N. Tachikawa: Radiochem. Radioanal. Letters, **37**, 55 (1979).
6) Y. Kondo: Ann. Rep. Kinki Univ. Atom. Ener. Res. Inst., **20**, 27 (1983).
7) Y. Kondo: ibid., **13**, 7 (1976).
8) Y. Kondo: ibid., **14**, 1 (1978).
9) Y. Kondo et al.: ibid., **12**, 21 (1975).
10) J. Beeck: J. Radioanal. Chem., **1**, 313 (1968).
11) G. Erdtmann: Neutron Activation Tables, Verlag Chemie, New York (1976).