Vol. 13. (1976)

研究論文

003 反復放射化による光核反応生成物について

近　藤　嘉　秀

Isotopes Produced by Cyclic Photon-Activation

Yoshihide KONDO

(Received Sept. 20, 1976)

Cyclic activation is one of the useful methods to obtain high sensitivity in activation analysis. We have tried the cyclic activation using photonuclear reactions with 16-MeV bremsstrahlung from a electron linac. The elements used for this experiment are as follows : Cl, As, Y, Mo, Pd, Ag, In, Ba, Ce, Nd, Sm, Er, Hf, W, Au and Pd. The experiment is performed on a condition of activation (or counting) time : 28 seconds, sample transport time : 2 seconds, repeated for 5 cycles by a 2-channel transfer system. Gamma-ray spectra of the activated samples are measured by the 40-cm^3 Ge (Li) detector, which is placed at a distance of 8 cm from the samples. The gamma-ray spectra of 6 elements of Ag, Ba, Ce, Er, Hf and Au are shown, and the radioactivity intensities for detected gamma-energies are obtained.

1. 緒　　言

光核反応によって生ずる核種の生成収量は，照射γ線源のエネルギーおよび線束，照射および測定方式によりほぼ決定される。このため一定時間試料を連続的に放射化した後，試料の誘導放射能を一定時間測定する従来の方法では，放射化分析の適用範囲に自ら限界が生ずる。

この限界を取り除く方法の一つに反復放射化法[1]がある。これは試料の放射化一輸送（または冷却）一測定をくり返し，効率良く目的元素を定量する方法であり，Givens ら[2]により理論的考察がなされた。この際，生成核種の半減期と放射化時間，計数時間，輸送（または冷却）時間，サイクル時間，サイクル数などの実験パラメーターにより検出感度が変化する。これらについては別報[3]において報告するのでここでは触れない。

本報では反復放射化法を実験パラメーター一定の条件で主要16元素に試み，γ線スペクトルを測定した結果について報告する。

2. 実　験　方　法

2.1 試　　料

照射に供した試料は市販の高純度試薬（一部を除いて純度は99％以上）で，純金属または化合物（酸化物，硝酸塩）である。これらの試薬を内径2mm，外径4mm，長さ12mm のポリエチレン・チューブに50～100mg 封入して照射試料とした。

2.2 照射および測定

試料の照射は大阪府立放射線中央研究所の電子線型加速器を 16 MeV—30μA で運転し，Wコンバーターによる制動放射線を用いた。

γ線スペクトルの測定は 40 cm^3 Ge(Li) 検出器と400チャンネル波高分析器によりおこなった。試料—検出器間距離は8cm である。

2.3 気送装置

実験に使用した気送装置[4]のブロック・ダイヤグラムを Fig. 1 に示す。サンプル・チェンジャーに試料を挿入後，照射位置および測定位置の各々に試料を窒素ガスにより気送する。時間制御回路により設定時間毎に2方向電磁弁の方向を変え，試料位置を入れ替え

て連続的に放射化一測定をおこなう。実験は放射化時間＝計数時間＝28秒，試料輸送時間＝2秒でおこなった。

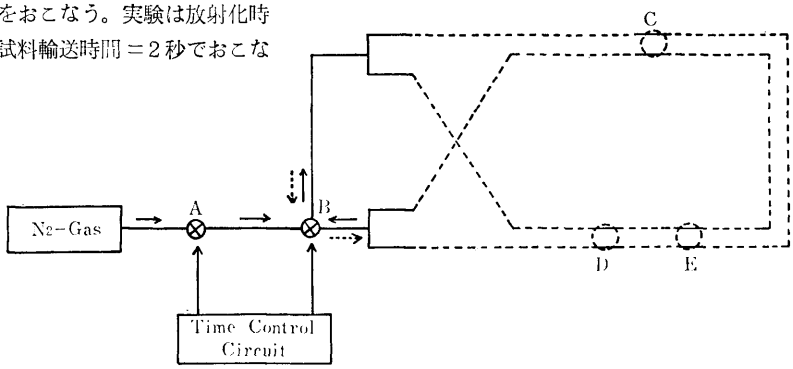

Fig. 1 Block diagram of 2-channel pneumatic transfer system Vinyl tubes of 4.5mm inner diameter are used as pneumatic trarsfer tubes. A : magnet switch, B : 2-way magnet switch, C : activation position, D : counting position, E : sample changer.

3. 結　　果

Cl, As, Y, Mo, Pd, Ag, In, Ba, Ce, Nd, Sm, Fr, Hf, W, Au, Pb について反復放射化法により γ 線スペクトルを測定した。その一例として Ag, Ba, Ce, Fr, Hp, Au のスペクトルを Fig. 2〜7 に示す。Ag (Fig. 2) では光中性子の (n, γ) 反応により 658 keV に ^{110}Ag のピークが検出された。Hf (Fig. 6), Au (Fig. 7) ではそれぞれ Zr, Ag が不純物として検出された。なおポリエチレン，窒素ガス，試料中の酸化物による影響は検出されなかったが，硝酸塩試料 (Pd, Ba, Pd) では ^{14}N$(\gamma, n)^{13}$N (0.511 MeV) の影響が若干検出された。

16 MeV 制動放射線の反復放射化により検出された γ 線エネルギーと標的核種 1 mg 当りの生成核種の誘導放射能強度を Table 1 に示す。なおビーム強度の違いは ^{197m}Au の 279 keV ピークにより補正した。この表のうち天然存在比は Lederer らの値[5]，生成核

Table 1 List of isotopes Produced by cyclic activation with 16-MeV bremsstrahlung.

Target nuclide	Abundance (%)	Reaction	Product	Half-life of product	Gamma-energy (MeV)	Activity (counts/mg)
Cl-35	75.53	(γ, n)	*Cl-34m	32 m	0.146	2.7
			*Cl-34	1.6 s	0.511	29
As-75	100	(γ, n)	*As-74	18 d	0.511	3.1
					0.596	1.3
Y-89	100	(γ, γ')	Y-89m	16 s	0.909	260
Mo-92	15.86	(γ, n)	*Mo-91m	1.1 m	0.511	110
					0.653	40
					1.208	7.7
					1.508	7.5
Pd-108	26.7	(γ, n)	Pd-107m	21 s	0.214	320
Pd-110	11.8	(γ, n)	Pd-109m	4.7 m	0.189	120
Ag-107	51.35	(γ, n)	*Ag-106	24 m	0.512	2600
					0.623	60
					0.873	9.4
		(γ, γ')	Ag-107m	44 s	0.093	200
Ag-109	48.65	(γ, n)	Ag-108	2.4 m	0.434	65
					0.633	150
		(γ, γ')	Ag-109m	40 s	0.088	230
In-113	4.23	(γ, n)	*In-112m	21 m	0.155	53
			*In-112	14 m	0.511	39
					0.618	3.2
		(γ, γ')	In-113m	1.7 h	0.392	3.9

Table 1 (continued)

Target nuclide	Abundance (%)	Reaction	Product	Half-life of product	Gamma-energy (MeV)	Activity (counts/mg)
In-115	95.77	(γ, γ')	In-115m	4.5 h	0.337	29
Ba-137	11.32	(γ, γ')	Ba-137m	2.5 m	0.662	960
Ba-138	71.66	(γ, n)				
Ce-140	88.48	(γ, n)	Ce-139m	55 s	0.754	750
			Ce-139	140 d	0.166	6.0
Nd-142	27.13	(γ, n)	*Nd-141m	1.0 m	0.756	140
			*Nd-141	2.6 h	0.145	1.6
					0.511	12
Nd-150	5.60	(γ, n)	Nd-149	1.7 h	0.114	68
					0.156	18
					0.211	74
					0.270	34
					0.327	8.4
					0.424	8.5
					0.540	7.2
					0.655	6.0
Sm-144	3.16	(γ, n)	*Sm-143m	1.1 m	0.750	8.0
			*Sm-143	8.8 m	0.511	280
					1.055	2.6
Sm-154	22.53	(γ, n)	Sm-153	2.0 d	0.069	4.3
					0.103	33
Er-167	22.94	(γ, γ')	Er-167m	2.3 s	0.208	890
Er-168	27.07	(γ, n)				
Hf-174	0.163	(γ, n)	*Hf-173	23.6 h	0.130	320
					0.300	3.5
Hf-177	18.56	(γ, γ')	Hf-177m	1.1 s	0.228	1.1
Hf-178	27.1	(γ, n)			0.281	17
					0.378	2.5
Hf-178	27.1	(γ, γ')	Hf-178m	4.3 s	0.089	510
Hf-179	13.75	(γ, n)			0.326	31
					0.426	41
Hf-179	13.75	(γ, γ')	Hf-179m	19 s	0.161	280
Hf-180	35.22	(γ, n)			0.214	10000
W-180	0.135	(γ, n)	*W-179m	6.7 m	0.222	3.1
W-183	14.4	(γ, γ')	W-183m	5.3 s	0.103	45
W-184	30.6	(γ, n)			0.108	72
					0.161	31
					0.210	5.0
W-186	28.4	(γ, n)	W-185m	1.6 m	0.131	56
					0.174	45
Au-197	100	(γ, n)	*Au-196	6.2 d	0.333	11
					0.356	37
					0.426	2.2
		(γ, γ')	Au-197m	7.8 s	0.131	46
					0.202	19
					0.279	1000
Pd-204	1.40	(γ, n)	*Pb-203m	6.2 s	0.825	3.5
			*Pb-203	2.2 d	0.279	3.6
Pd-207	21.7	(γ, γ')	Pb-207m	0.80 s	0.570	2.2
Pd-208	52.3	(γ, n)			1.064	1.0

* Nuclides that cannot be produced by (n, γ) process.

Time —— activation = counting : 28 sec, transport : 2 sec (repeated for 5 cyeles

by 2-channel transper system)
Detector : 40 cm^3 Ge(Li), sample-to-detector distance : 8 cm.
Each of activity data is normalized for ^{197m}Au 279 KeV peak area.

種の半減期および γ 線エネルギーは，Lis らの値[6]を参考にした。実験に使用した16元素の中では Hf が最高感度を示した。この値は反復放射化によらない 30 MeV 制動放射線による実験結果[7]を上回っている。

本実験より，16元素に関する反復放射化法による光核反応生成核種の検出特性について概要を把握した。このような短時間の放射化ー測定のくり返しは生成核種が限定されるためにスペクトルが複雑とならず，非破壊分析に適しているといえる。しかし，この方法を実際の分析試料に応用する場合には，このような検出特性を分析対象元素について十分検討しておくことがぜひ必要である。

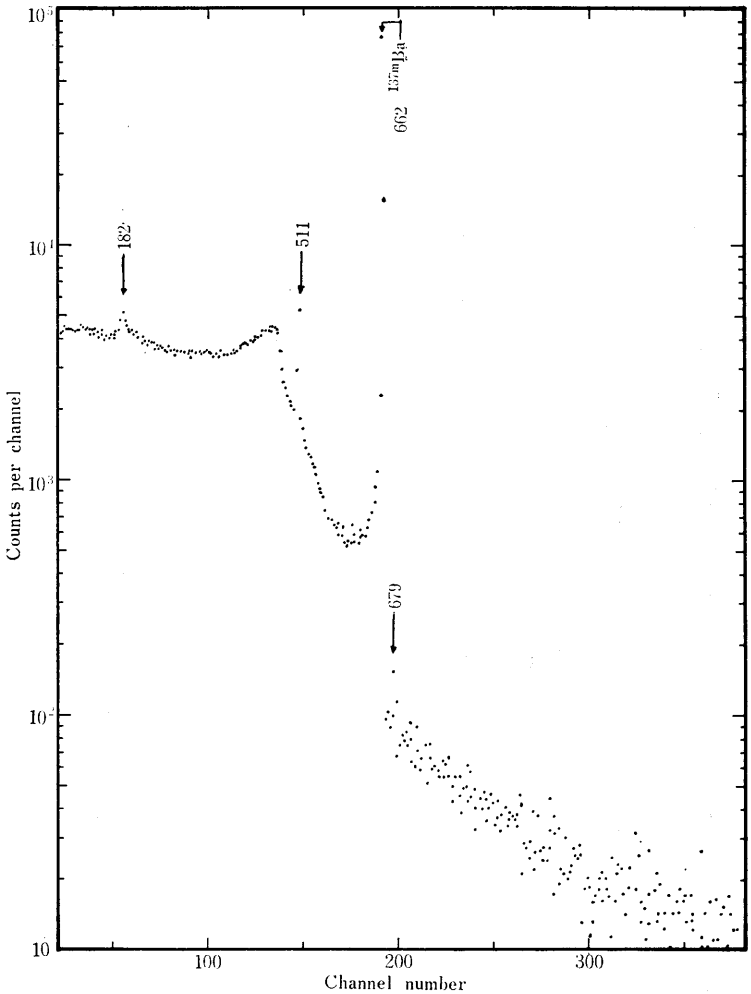

Fig. 2　Gamma-ray spectrum of Ag.
Sample——chemical form : metal foil, weight : 99.5 mg, purity : 99.9%
Time——activation = counting : 28 sec, transport : 2 sec (repeated for 5 cycles by 2-channel tranter system)
Detector : 40 cm^3 Ge(Li), sample-to-detector distance : 8 cm.

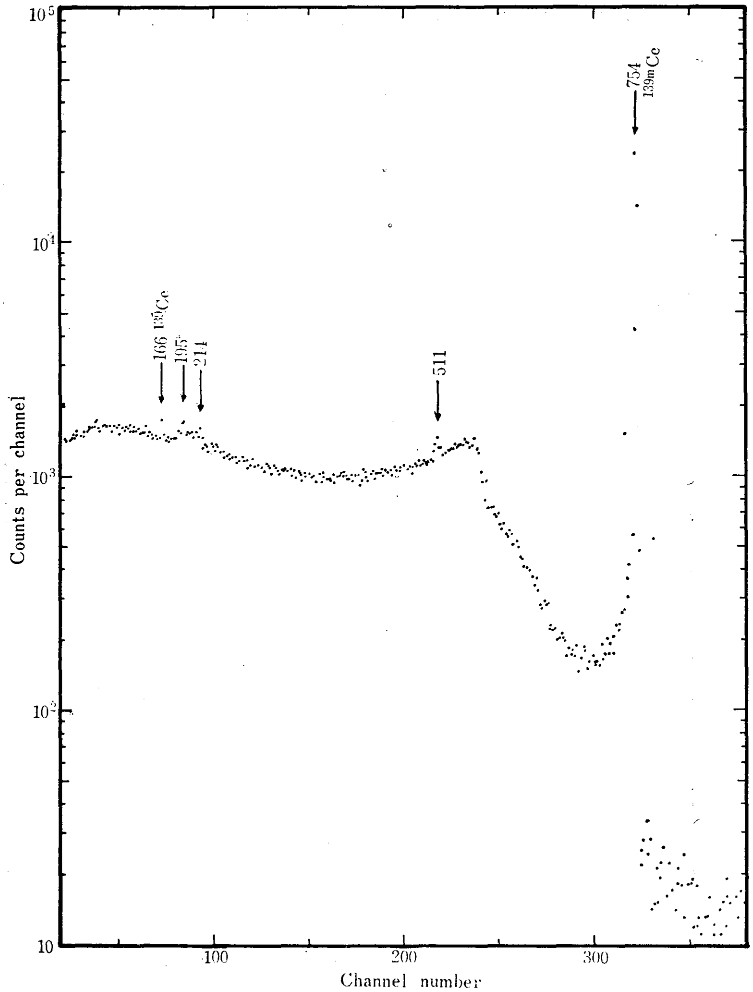

Fig. 3 Gamma-ray spectrum of Ba.
Sample —— chemical form : $Ba(NO_3)_2$, weight : 188.3 mg, purity : 99%.
Time —— activation = counting : 28 sec, transport : 2 sec (repeated for 5 cycles by 2-channel transfer system)
Detector : 40 cm^3 Ge(Li), sample-to-detector distance : 8 cm.

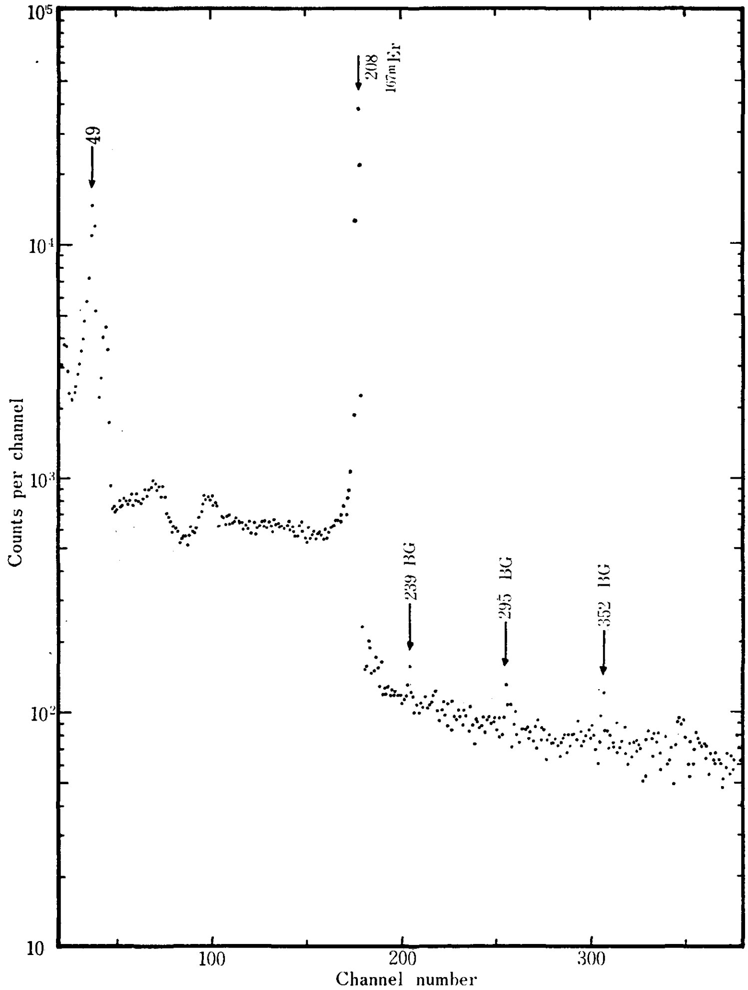

Fig. 4 Gamma-ray spectrum of Ce.
Sample —— chemical form : CeO_2, Weight : 100.3 mg, purity : 99.9 %.
Time —— activation = counting : 28 sec, transport : 2 sec (repeated for 5 cycles by 2-channel transfer system)
Detector : 40 cm^3 Ge(Li), sample-to-detector distance : 8 cm.

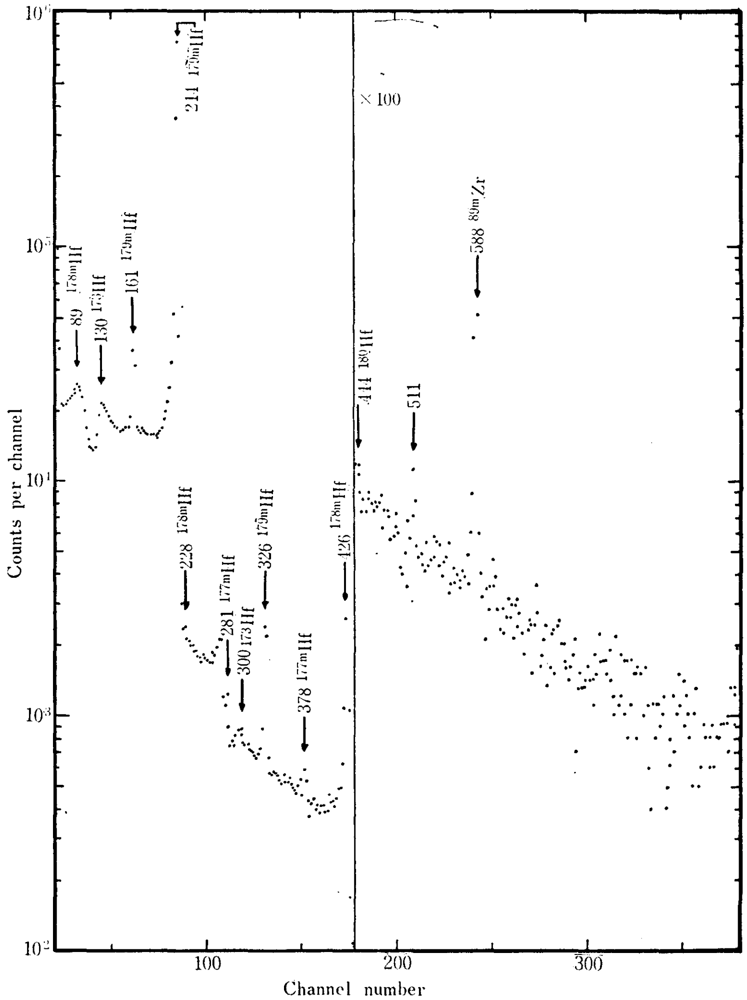

Fig. 5 Gamma-ray spectrum of Er.
Sample —— chemical form : Er_2O_3, weight : 101.9 mg, purity : 99.9%.
Time —— activation = counting : 28 sec, transport : 2 sec (repeated for 5 cycles by 2-channel transfer system)
Detector : 40 cm³ Ge(Li), sample-to-detector distance : 8 cm.

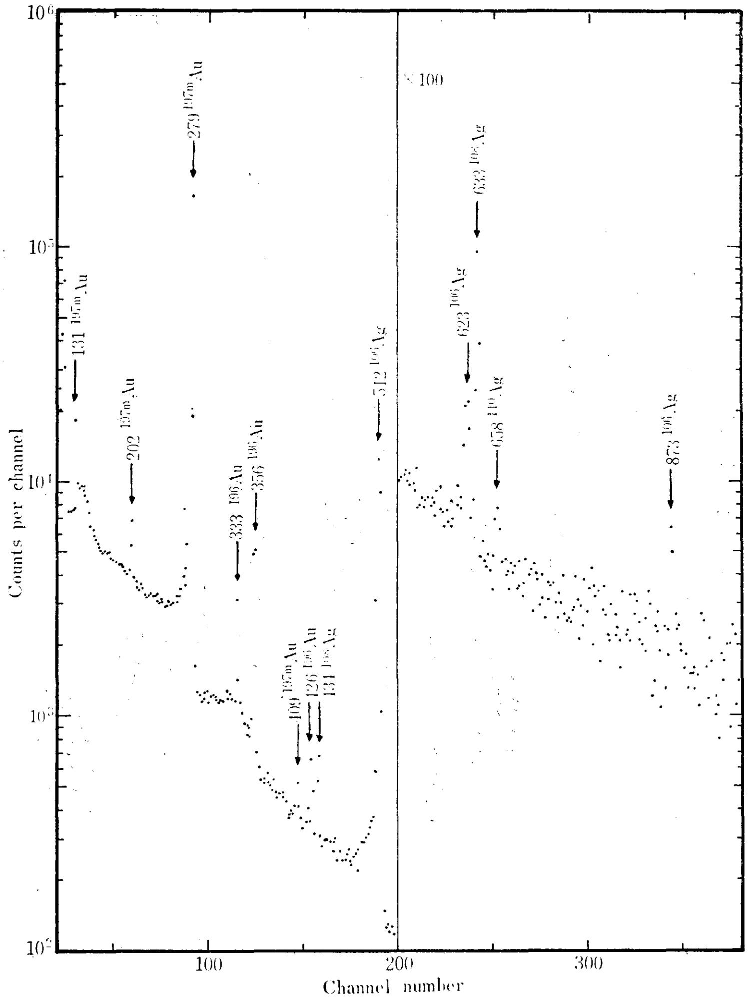

Fig. 6 Gamma-ray spectrum of Hf.
Sample —— chemical form : metal powder, weight : 100.3 mg, purity : 99 %.
Time —— activation = counting : 28 sec, transport : 2 sec (repeated for 5 cycles by 2-channel transfer system)
Detector : 40 cm³ Ge(Li), sample-to-detectior distance : 8 cm.

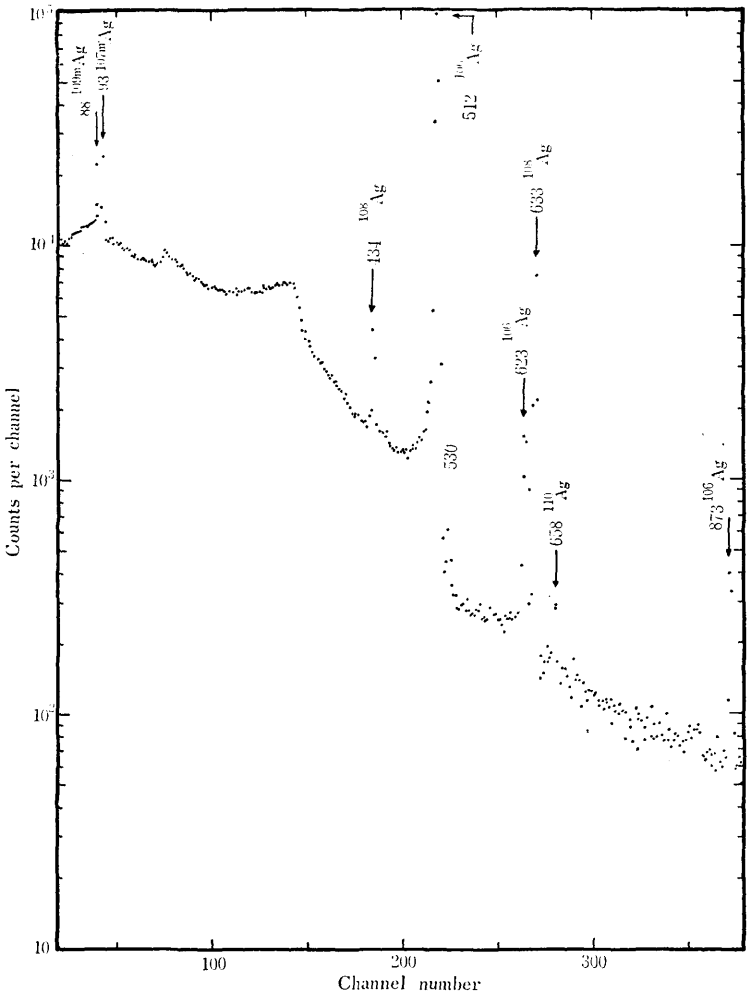

Fig. 7 Gamma-ray spectrum of Au.
Sample —— chemical form : metal foil, weight : 199.4 mg, purity :99.9%.
Time —— activation = counting : 28 sec, trasport : 2 sec (repeated for 5 cyctes by 2-channel transfer system)
Detector : 40 cm³ Ge(Li), sample-to-detector distance : 8 cm.

なお本実験にさいし，種々の便宜を図っていただいた大阪工業大学の東俊雄教授，大阪府立放射線中央研究所の佐藤裕二氏，試料の照射をしていただいた大阪府立放射線中央研究所のライナック班の方々をはじめ各位に深く謝意を表します。

参 考 文 献

1) 牧康行 : Radioistopes, **22**, 1396 (1973)
2) W. W. Givens, W. R. Mills, R. L. Cadwell : Nucl. Inst. Methods, **80**, 95 (1970)
3) 近藤嘉秀 : Radioisotopes に投稿予定。
4) Y. Sato, R. Miki, Y. Kondo, T. Azuma : Ann. Rept. Rad. Cent. Osaka Pref., **13**, 52 (1972).
5) C. M. Lederer, J. M. Hollander, I. Perlman : Table of Isotopes, Six Edition, John Wiley and Sons, Inc., New York (1967).
6) S. A. Lis, Ph. K. Hopke, J. L. Fashing : J. Radioanal. Chem., **24**, 125 (1975).
7) T. Kato : J. Radioanal. Chem., **16**, 307 (1973).