

論	文
---	---

14-MeV 中性子の繰り返し放射化によるガンマ線スペクトル測定

近 藤 嘉 秀

Gamma-ray Spectrometry in Cyclic Activation with 14-MeV Neutrons

Yoshihide KONDO

(Received September 30, 1987)

Cyclic activation utilizes very efficiently a low-output source of 14 MeV neutrons. The counts accumulated in measuring system consistently increase with elapse of experimental time. The method has the advantage of sensitivity improvement in activation analysis. Using a pneumatic sample transfer system, the experiment is tried to examine the availability of this method with 14 MeV neutrons. Gamma-ray spectra from the activated samples are measured by a 83 cm³ Ge(Int) semiconductor detector coupled to a 2048-channel pulse-height analyzer. The experimental conditions of this 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. The gamma-ray spectra for 44 elements are obtained and these are presented.

KEYWORDS

cyclic activation, 14 MeV neutron, activation analysis, γ -ray spectrum, Ge(Int) semiconductor detector, pulse height analyzer.

1. 緒 言

一般に、低出力の加速器などを放射化線源として用いる際には、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。14MeV 中性子による放射化では、熱中性子による場合よりも放射化断面積では劣るものの、短寿命の放射性核種が多く生成する¹⁾。短寿命核種を効率よく測定するに繰り返し放射化法が有効である。この方法によれば、測定系に蓄積される計数値は実験時間の経過に連れて増加する。放射化分析に適用する場合には以下に示すような利点が挙げられる。(1)短寿命の生成核種に対する効率の良い測定が可能となる。(2)目的とする元素に対する感度の改善が期待でき

る。(3)設定条件の使い分けにより、成分元素に対する選別効果を期待できる。(4)長寿命の妨害核種による生成放射能の影響を少なくできる、などである。

放射化時間が測定時間に等しい条件では、 n 回の連続的な繰り返し放射化により測定系に蓄積される計数値 $D_n(D_1, D_2, \dots$ の合計) は次式で示される²⁾³⁾。

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

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 : 試料の輸送時間(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〔 〕内は放射化一測定の一繰り返しによる蓄積効果を表し、 $n \geq 2$ 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 (D_n) は t_a , t_t , n の設定値の組み合わせと λ の値により変化する。生成放射能を効率良く測定するには、これらの条件の最適化が必要である。

2. 実験方法

2.1 試料

試料には市販の粉末状の試薬を用いた。純度はいずれも99%以上である。これらの試薬を内径 2mm, 外径 4mm, 長さ 15mm のポリエチレン管に入れ、両端部を密閉し、端面を平坦に仕上げた照射試料とした。Fig. 1~44 の右上部にその化学形と試料重量を示した。

2.2 試料気送装置⁴⁾

気送装置は空気圧縮機、気送管、フォトセンサー、気送管制御器、試料交換器、電磁弁で構成されている。気送管制御器は実験に必要なパラメータを設定する。照射一測定位置間の試料輸送距離は 6m である。気送管は 2 ループ式とし、一方のループで目的試料を測定しながら、もう一方のループでその時の照射中性子束をモニターすることが可能である。

2.3 照射および測定

試料の照射には近畿大学原子力研究所に設置されている中性子発生装置 (Texas 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 105keV, 平均ビーム電流 150~500 μ A の条件で運転をした。照射位置における試料中心と ^3H ターゲット間の距離は 17.5mm である。

照射試料は有効体積 82.7cm³, 相対効率14%, FW HM 1.84keV の Ge(Int) 検出器 (Princeton Gamma-Tech) と 2048チャンネル波高分析器 (NAIG) により γ 線スペクトルを測定した。測定位置における試料中心と検出器表面間の距離は 3mm 厚のアクリル板を介して 6.5mm である。

繰り返し放射化の設定条件は放射化時間 (t_a) および測定時間 (t_t) を共に30秒, 試料の輸送 (放射化→測定) 時間 (t_i) および試料の輸送 (測定→放射化) 時間 (t_r) を共に0.3秒, 繰り返し数 (n) を10回の一定値とした。

3. 結果および検討

14MeV 中性子の繰り返し放射化実験により測定された γ 線スペクトルを Fig. 1~44 に示す。各図中には生成した γ 線ラインに対するエネルギー値 (keV) とその核反応および右上部には用いた試薬の化学形とその量を記した。各スペクトルは Ge(Int) 半導体検出器に遮蔽を施さないで測定した。このため、10分間程度の測定時間にも拘わらず ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{40}K などによる顕著なピークが検出された。また、試料によっては Si の重畳したスペクトルとなっているが、これは照射中性子束のモニターとして用いた Si 試料によるものである。

Fig. 1~44 を整理して生成核種とその γ 線エネルギー値の総括表を Table 1 に示す。表中、天然存在比、

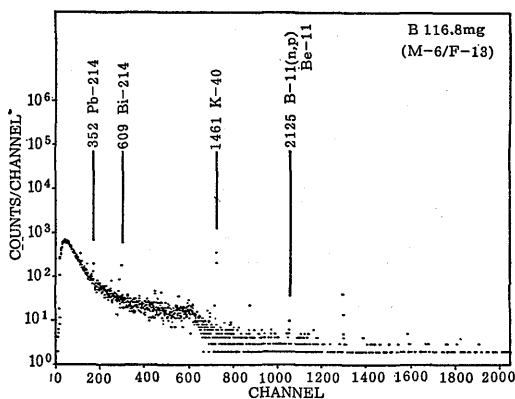


Fig. 1 Gamma-ray spectrum from B.

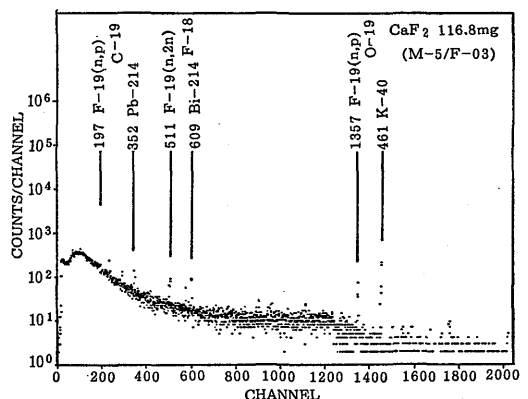


Fig. 2 Gamma-ray spectrum from F.

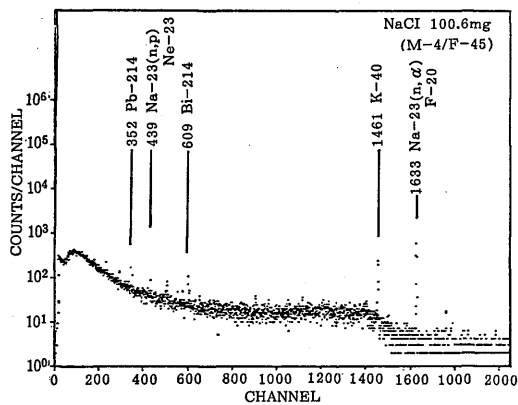


Fig. 3 Gamma-ray spectrum from Na.

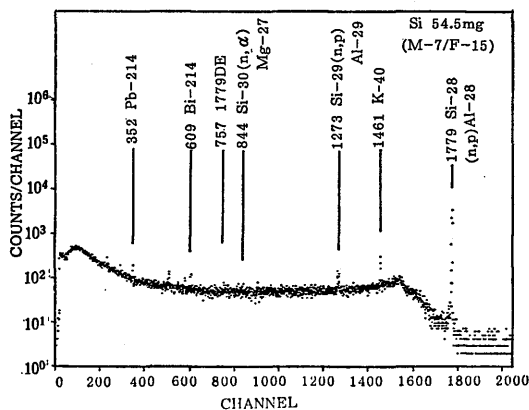


Fig. 6 Gamma-ray spectrum from Si.

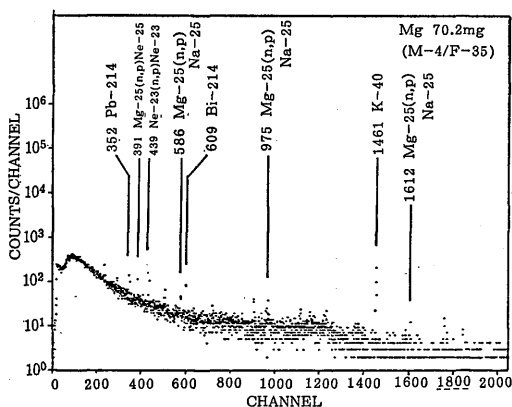


Fig. 4 Gamma-ray spectrum from Mg.

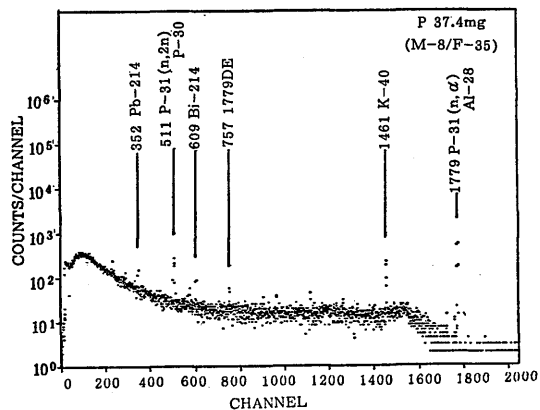


Fig. 7 Gamma-ray spectrum from P.

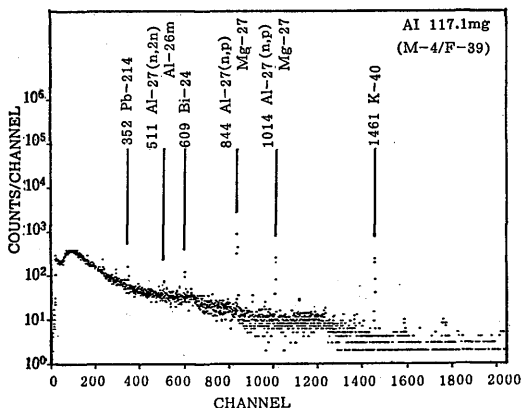


Fig. 5 Gamma-ray spectrum from Al.

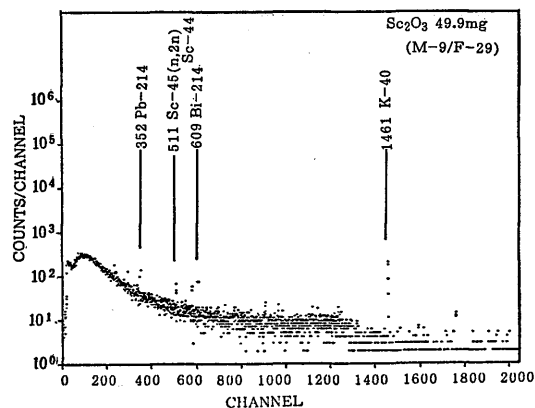


Fig. 8 Gamma-ray spectrum from Sc.

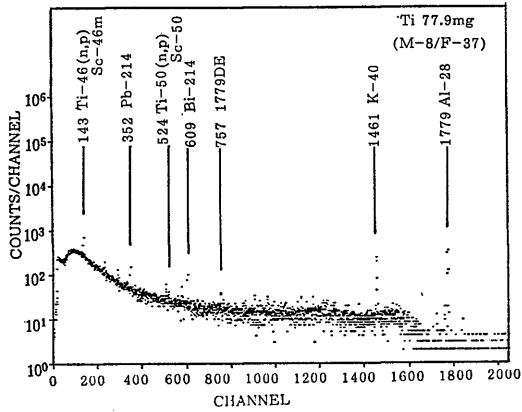


Fig. 9 Gamma-ray spectrum from Ti and Si.

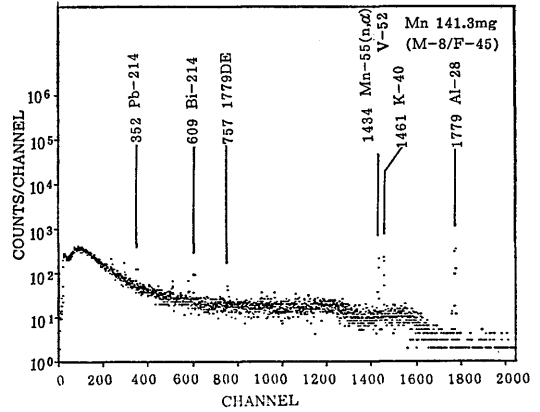


Fig. 12 Gamma-ray spectrum from Mn and Si.

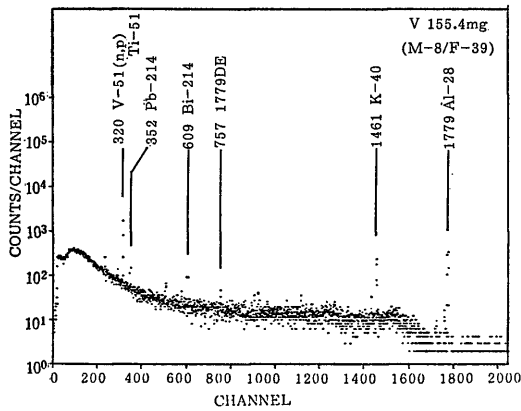


Fig. 10 Gamma-ray spectrum from V and Si.

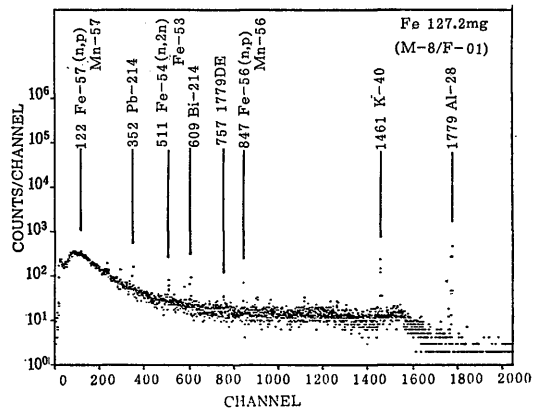


Fig. 13 Gamma-ray spectrum from Fe and Si.

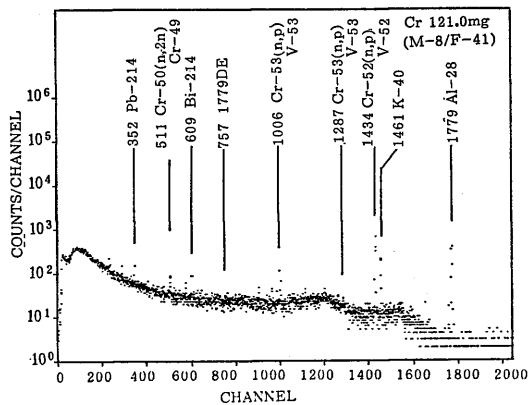


Fig. 11 Gamma-ray spectrum from Cr and Si.

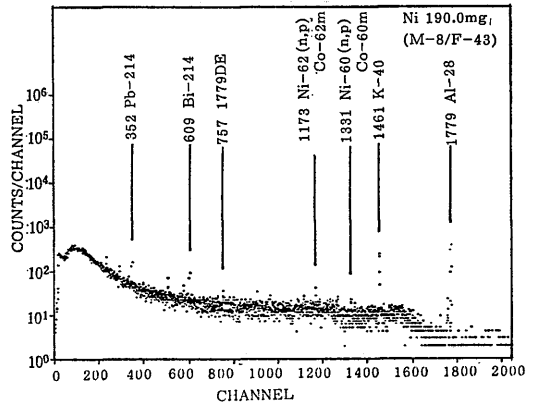


Fig. 14 Gamma-ray spectrum from Ni and Si.

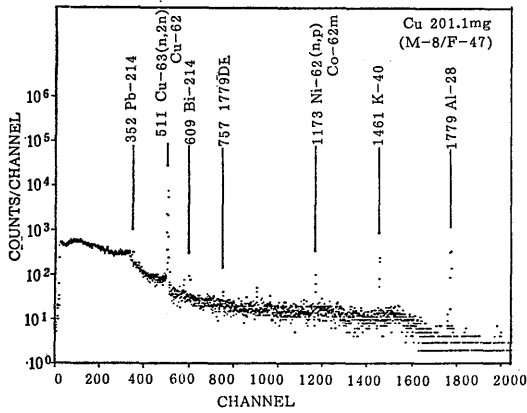


Fig. 15 Gamma-ray spectrum from Cu and Si.

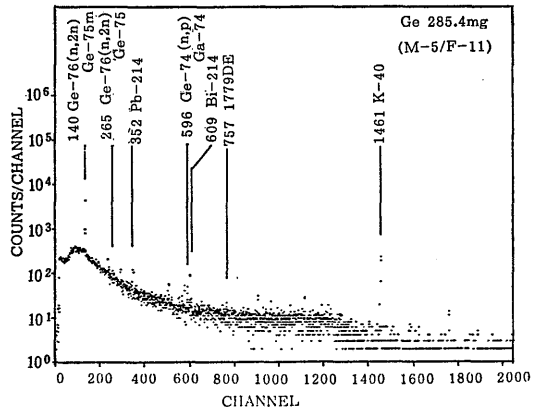


Fig. 18 Gamma-ray spectrum from Ge.

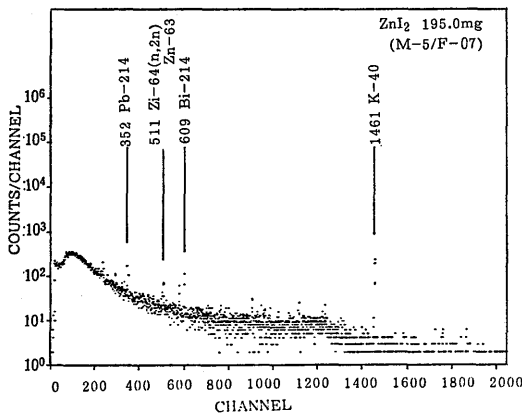


Fig. 16 Gamma-ray spectrum from Zn.

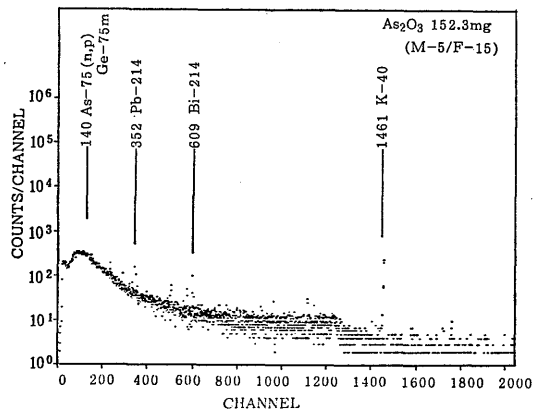


Fig. 19 Gamma-ray spectrum from As.

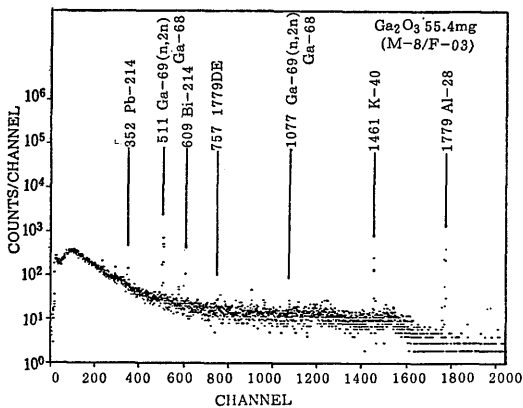


Fig. 17 Gamma-ray spectrum from Ga and Si.

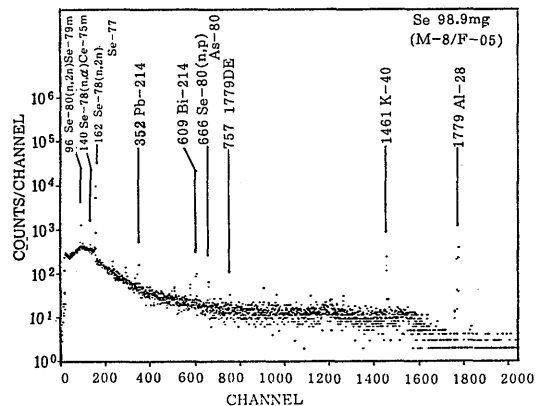


Fig. 20 Gamma-ray spectrum from Se and Si.

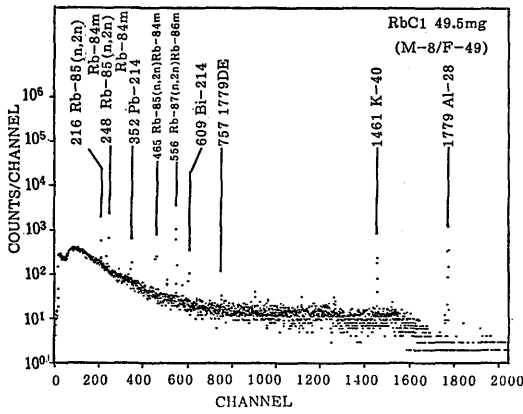


Fig. 21 Gamma-ray spectrum from Rb and Si.

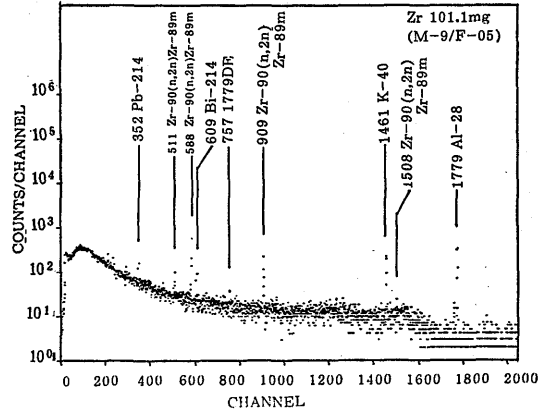


Fig. 24 Gamma-ray spectrum from Zr and Si.

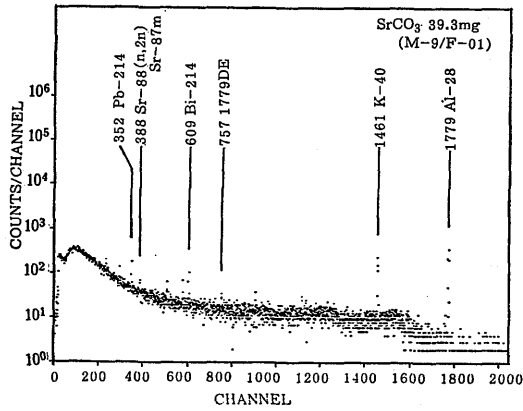


Fig. 22 Gamma-ray spectrum from Sr and Si.

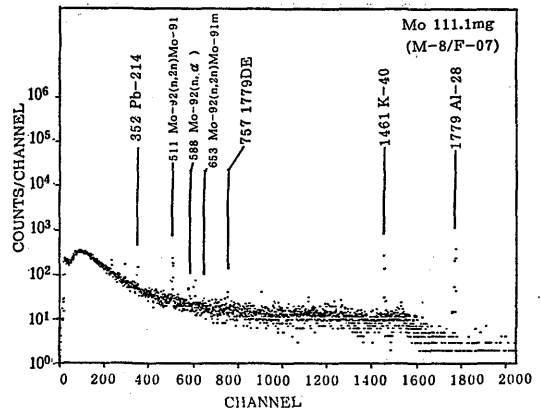


Fig. 25 Gamma-ray spectrum from Mo and Si.

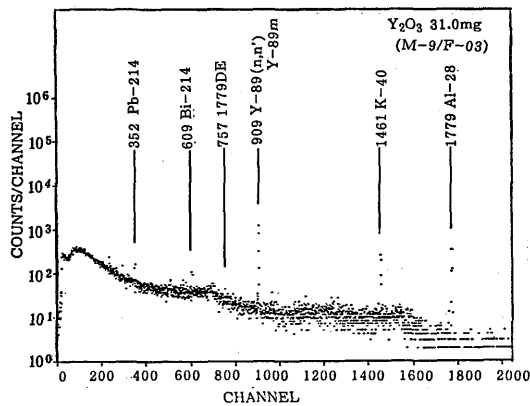


Fig. 23 Gamma-ray spectrum from Y and Si.

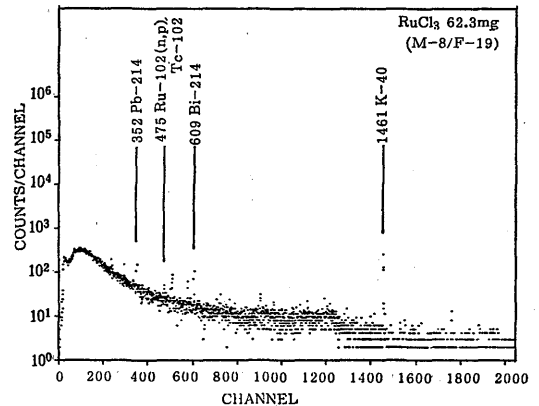


Fig. 26 Gamma-ray spectrum from Ru.

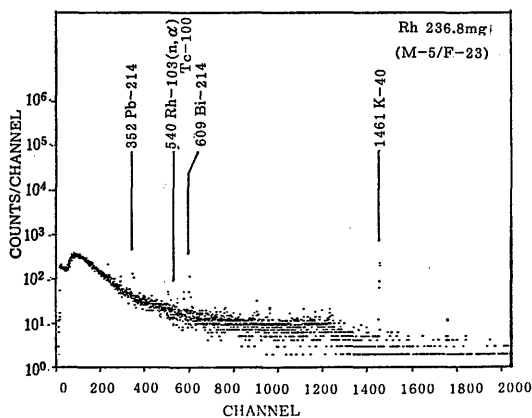


Fig. 27 Gamma-ray spectrum from Rh.

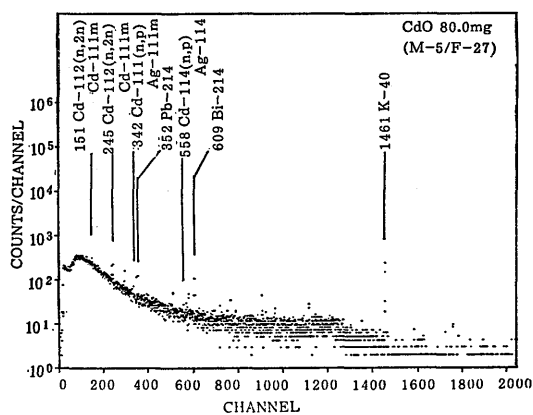


Fig. 30 Gamma-ray spectrum from Cd.

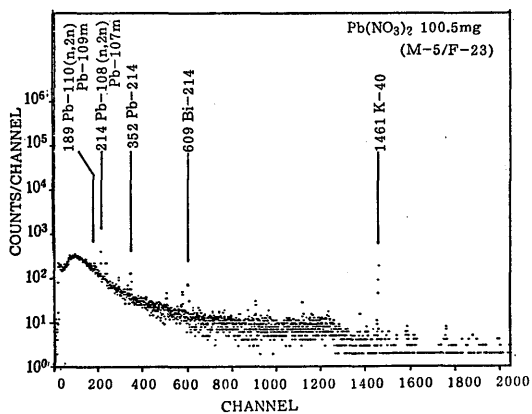


Fig. 28 Gamma-ray spectrum from Pd.

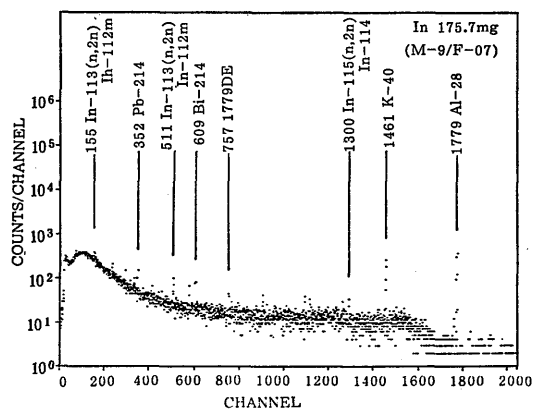


Fig. 31 Gamma-ray spectrum from In and Si.

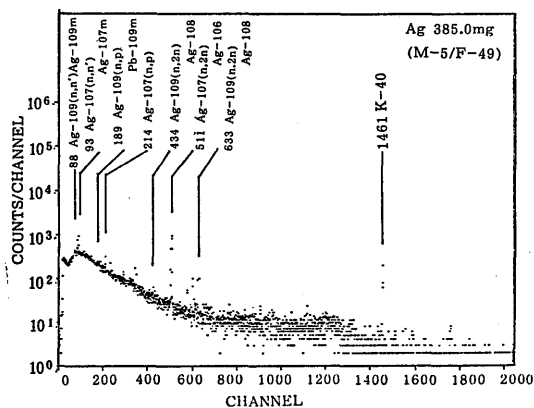


Fig. 29 Gamma-ray spectrum from Ag.

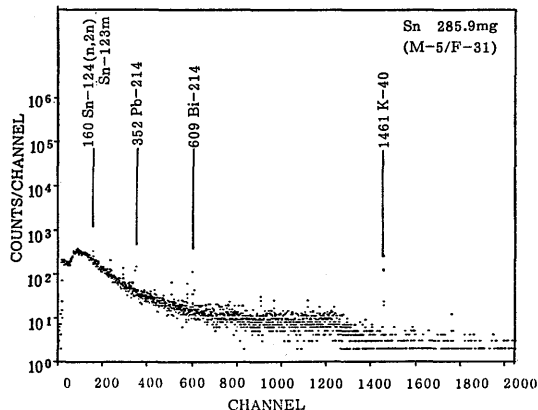


Fig. 32 Gamma-ray spectrum from Sn.

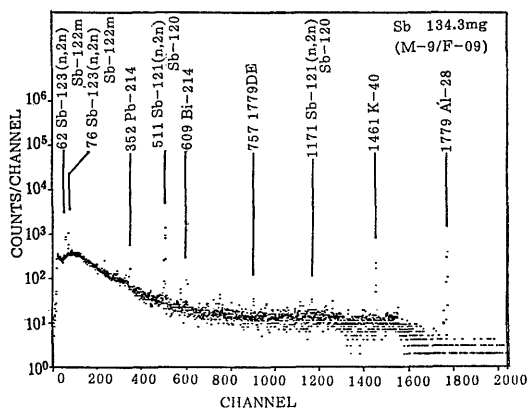


Fig. 33 Gamma-ray spectrum from Sb and Si.

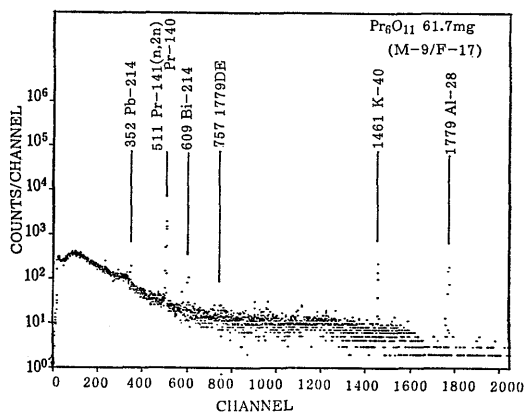


Fig. 36 Gamma-ray spectrum from Pr and Si.

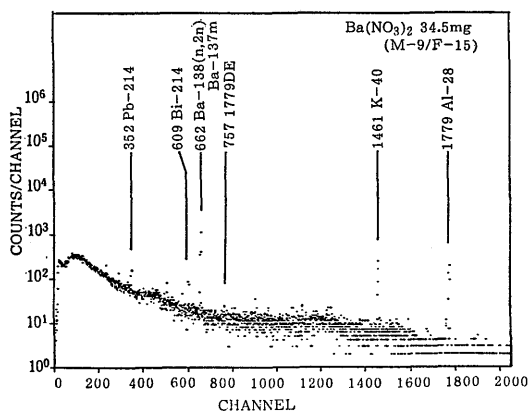


Fig. 34 Gamma-ray spectrum from Ba and Si.

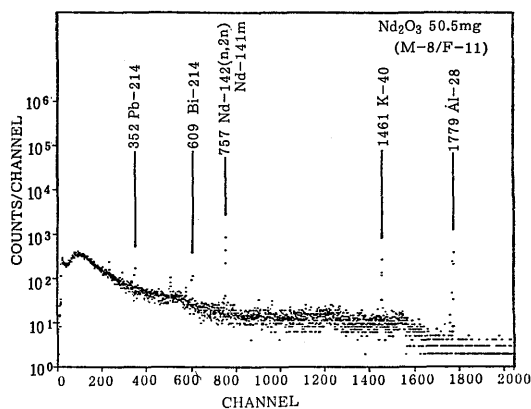


Fig. 37 Gamma-ray spectrum from Nd and Si.

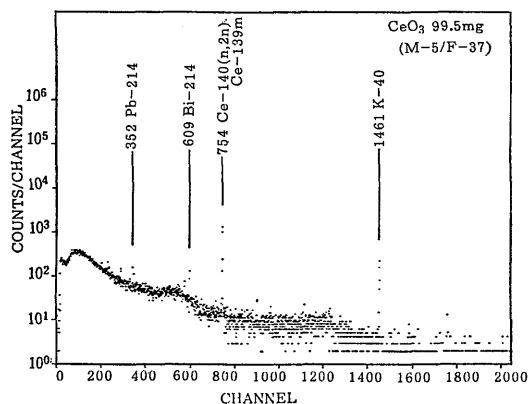


Fig. 35 Gamma-ray spectrum from Ce.

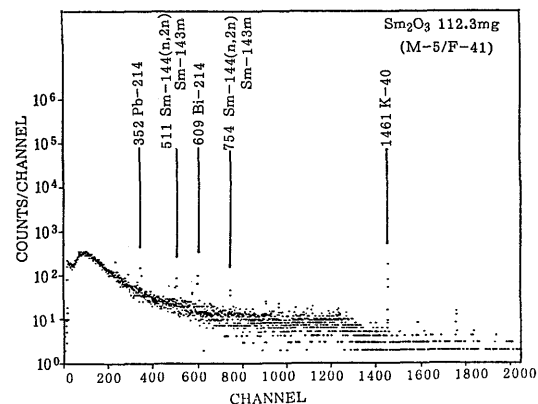


Fig. 38 Gamma-ray spectrum from Sm.

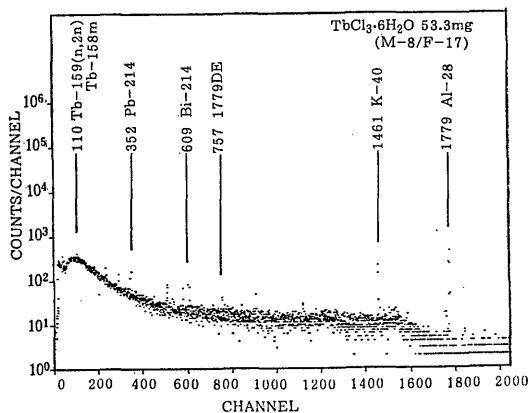


Fig. 39 Gamma-ray spectrum from Tb and Si.

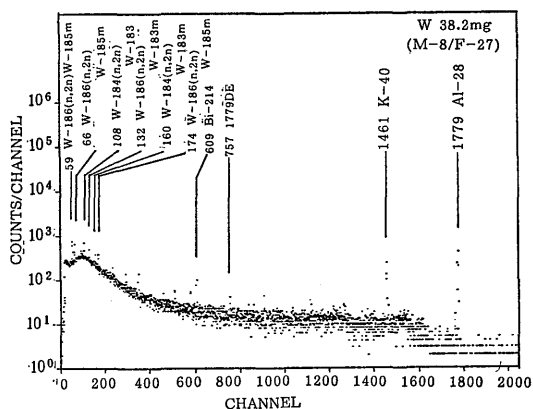


Fig. 42 Gamma-ray spectrum from W and Si.

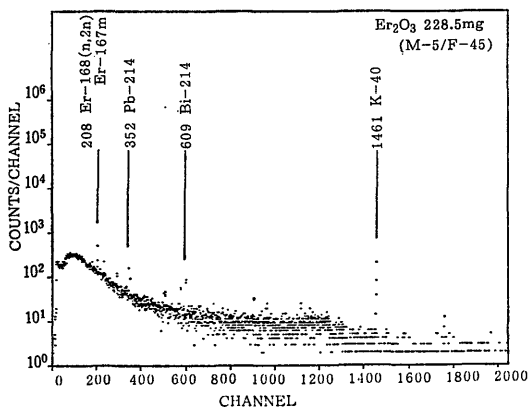


Fig. 40 Gamma-ray spectrum from Er.

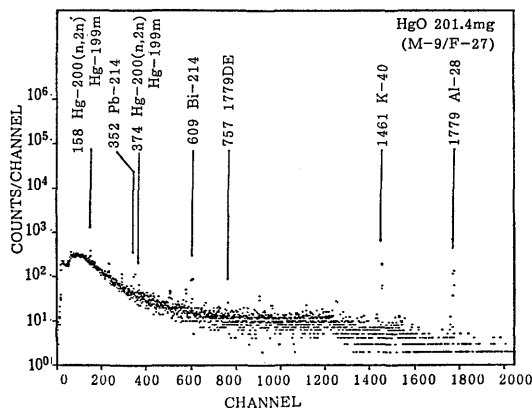


Fig. 43 Gamma-ray spectrum from Hg and Si.

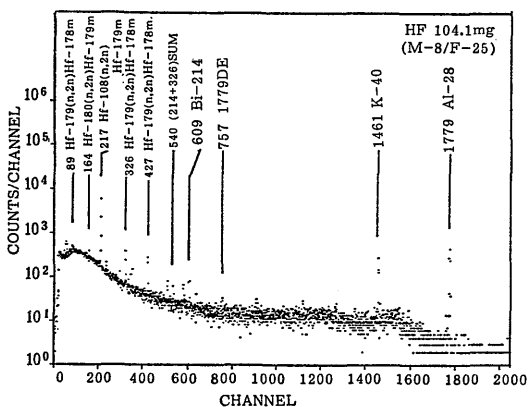


Fig. 41 Gamma-ray spectrum from Hf and Si.

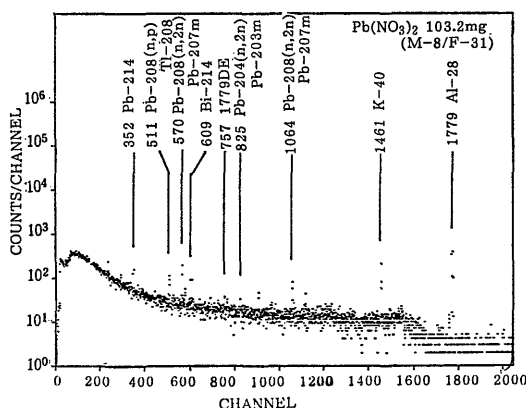


Fig. 44 Gamma-ray spectrum from Pb and si.

近藤：14-MeV 中性子の繰り返し放射化によるガンマ線スペクトル測定

Table 1 Radionuclides produced by cyclic activation with 14 MeV neutrons^{*})

Target nuclide	Abundance (%)	Reaction	Product	Half-life of product	γ energy(keV)
B-11	80.2	(n, p)	Be-11	13.8 s	2125
F-19	100	(n, p)	O-19	27.1 s	197, 1357
		(n, 2n)	F-18	1.83 h	511
Na-23	100	(n, p)	Ne-23	37.6 s	439
		(n, α)	F-20	11.0 s	1633
Mg-25	10.0	(n, p)	Na-25	1.00 m	391, 586, 975, 1612
Mg-26	11.0	(n, α)	Ne-23	37.6 s	439
Al-27	100	(n, p)	Mg-27	9.45 m	844, 1014
		(n, 2n)	Al-26m	6.35 s	511
Si-28	92.2	(n, p)	Al-28	2.25 m	1779
Si-29	4.7	(n, p)	Al-29	6.52 m	1273
Si-30	3.1	(n, α)	Mg-27	9.45 m	844
P-31	100	(n, α)	Al-28	2.25 m	1779
		(n, 2n)	P-30	2.50 m	511
Sc-45	100	(n, 2n)	Sc-44	3.93 h	511
Ti-46	8.0	(n, p)	Sc-46m	18.7 s	143
Ti-50	5.3	(n, p)	Sc-50	1.71 m	524
V-51	99.8	(n, p)	Ti-51	5.76 m	320
Cr-50	4.35	(n, 2n)	Cr-49	42.0 m	511
Cr-52	83.8	(n, p)	V-52	3.76 m	1434
Cr-53	9.5	(n, p)	V-53	1.55 m	1006, 1287
Mn-55	100	(n, α)	V-52	3.76 m	1434
Fe-54	5.8	(n, 2n)	Fe-53	8.53 m	511
Fe-56	91.7	(n, p)	Mn-56	2.58 h	847
Fe-57	2.19	(n, p)	Mn-57	1.59 m	122
Ni-60	26.23	(n, p)	Co-60m	14.48 m	1331
Ni-62	3.66	(n, p)	Co-62m	1.51 m	1173
Cu-63	69.1	(n, 2n)	Cu-62	9.78 m	511
Cu-65	30.9	(n, α)	Co-62m	1.51 m	1173
Zn-64	48.9	(n, 2n)	Zn-63	38.5 m	511
Ga-69	60.0	(n, 2n)	Ga-68	1.14 h	511, 1077
Ge-74	36.4	(n, p)	Ga-74	8.2 m	596
Ge-76	7.7	(n, 2n)	Ge-75m	48.9 s	140
			Ge-75	1.38 h	265
As-75	100	(n, p)	Ge-75m	48.9 s	140
Se-78	23.5	(n, α)	Ge-75m	48.9 s	140
		(n, 2n)	Se-77m	17.5 s	162
Se-80	50.0	(n, p)	As-80	16.5 s	666
		(n, 2n)	Se-79m	3.89 m	96
Rb-85	72.2	(n, 2n)	Rb-84m	20.4 m	216, 248, 465
Rb-87	27.8	(n, 2n)	Rb-86m	1.02 m	556
Sr-88	82.6	(n, 2n)	Sr-87m	2.81 h	388
Y-89	100	(n, n')	Y-89m	15.7 s	909
Zr-90	51.4	(n, 2n)	Zr-89m	4.18 m	511, 588, 909, 1508

(Table 1 continued)

Target nuclide	Abundance (%)	Reaction	Product	Half-life of product	γ energy(keV)
Mo-92	14.8	(n, α)	Zr-89m	4.18 m	588
		(n, 2n)	Mo-91m	1.07 m	653
			Mo-91	15.5 m	511
Ru-102	31.6	(n, p)	Tc-102	5.3 s	475
Rh-103	100	(n, α)	Tc-100	16 s	540
Pd-108	26.7	(n, 2n)	Pd-107m	21.3 s	214
Pd-110	11.8	(n, 2n)	Pd-109m	4.69 m	189
Ag-107	51.8	(n, p)	Pd-107m	21.3 s	214
		(n, 2n)	Ag-106	24.1 m	511
		(n, n')	Ag-107m	44.3 s	93
Ag-109	48.2	(n, p)	Pd-109m	4.69 m	189
		(n, 2n)	Ag-108	2.41 m	434, 511, 633
		(n, n')	Ag-109m	39.8 s	88
Cd-111	12.8	(n, p)	Ag-111m	1.23 m	342
Cd-112	24.0	(n, 2n)	Cd-111m	48.7 m	151, 245
Cd-114	28.8	(n, p)	Ag-114	4.6 s	558
In-113	4.28	(n, 2n)	In-112m	20.8 m	155, 511
In-115	95.7	(n, 2n)	In-114	1.20 m	1300
Sn-124	5.8	(n, 2n)	Sn-123m	40.1 m	160
Sb-121	57.3	(n, 2n)	Sb-120	15.8 m	511, 1171
Sb-123	42.8	(n, 2n)	Sb-122m	4.2 m	62, 76
Ba-138	71.7	(n, 2n)	Ba-137m	2.55 m	662
Ce-140	88.5	(n, 2n)	Ce-139m	56 s	754
Pr-141	100	(n, 2n)	Pr-140	3.39 m	511
Nd-142	27.1	(n, 2n)	Nd-141m	1.03 m	757
Sm-144	3.1	(n, 2n)	Sm-143m	1.07 m	754
			Sm-143	8.83 m	511
Tb-159	100	(n, 2n)	Tb-158m	10.9 s	110
Er-168	27.0	(n, 2n)	Er-167m	2.3 s	208
Hf-179	13.8	(n, 2n)	Hf-178m	4.3 s	89, 214, 326, 427
Hf-180	35.1	(n, 2n)	Hf-179m	18.7 s	164, 217
W-184	30.7	(n, 2n)	W-183m	5.2 s	108, 160
W-186	28.6	(n, 2n)	W-185m	1.64 m	59, 66, 132, 174
Hg-200	23.1	(n, 2n)	Hg-199m	42.6 m	158, 374
Pb-204	1.4	(n, 2n)	Pb-203m	6.2 s	825
Pb-208	52.4	(n, p)	Tl-208	3.05 m	511
		(n, 2n)	Pb-207m	0.80 s	570, 1064

*) Experimental conditions of cyclic activation are set to $t_a=t_c=30$ sec $t_t=t_r=0.3$ sec and $n=10$ cyc.

生成核種の半減期および γ 線エネルギー値は主として Neutron Activation Tables⁹⁾ より引用した。

実験には図中に記した44種類の試薬以外に Li, Be, C, S, Cl, K, Ca, Co, Nb, Te, I, Cs, La, Eu, Gd, Dy, Ho, Yb, Ta, Ir, Tl, Bi を含む試薬を用

いた。しかし、これらの試料からは顕著な γ 線ピークが検出されなかったのでスペクトルを省略した。

今回設定した $t_a=t_c=30$ 秒, $t_t=t_r=0.3$ 秒, $n=10$ 回の条件では32.2秒の生成核の半減期に対して最適の設定条件となっている。この条件に於ける最適条件

近畿：14-MeV 中性子の繰り返し放射化によるガンマ線スペクトル測定

で得られる蓄積計数値の90%以上の効率で測定が可能な半減期の範囲は13.9秒～86.8秒(1.45分)である。したがって、Table 1 に示した核種の中、 $^{19}\text{F}(\text{n}, \text{p})^{19}\text{O}$ 、 $^{23}\text{Na}(\text{n}, \text{p})^{23}\text{Ne}$ などの24種類に関しては概ね最適条件に近い条件設定となっている。これら以外の核種については適切な条件設定により γ 線ピークの検出が容易になる。

今回の実験により、14MeV 中性子に繰り返し放射化法を適用した場合に得られる γ 線スペクトルを殆どの元素について測定することができた。これらの結果は放射化分析に際して有効な利用が期待できる。

文 献

- 1) 近藤 嘉秀：近畿大学 原子力 研究所 年報， **23**, 1 (1986).
- 2) W. W. Givens, W. R. Mills and R. L. Caldwell: Nucl. Inst. Methods, **80**, 95 (1970).
- 3) 近藤嘉秀：Radioisotopes, **27**, 373 (1978).
- 4) 近藤嘉秀：近畿大学 原子力 研究所 年報， **20**, 27 (1983).
- 5) G. Erdtmann: Neutron Activation Tables, Verlag Chemie, New York (1976).

正 誤 表

訂 正 個 所	誤	正
目 次, 標 題 3	中 性 子 密 度	中 性 子 束 密 度
p. 33, Fig. 28	pb	pd