

## R I の (n, $\gamma$ ) 反応断面積測定

(1994年1月10日受理)

(日本原子力研究所) 関根 俊明

現在知られている R I の数は 2000 個以上あり、その崩壊については膨大な量のデータが蓄積されてきたが、R I の反応断面積のデータは極めて乏しいと言わざるを得ない。しかし、宇宙における元素合成過程の研究、核分裂生成物の消滅処理研究などのために、R I をターゲットとする中性子や荷電粒子核反応の研究が今後盛んに進められるであろう。筆者の所属する原研アイソトープ部では、主に原子炉を用いて (n,  $\gamma$ ) 反応によって R I を製造している。これに関連して、R I の (n,  $\gamma$ ) 反応断面積を測定したのでその経緯を述べて、核データ関係者の参考に供したい。また最近、動燃の原田秀郎氏、名大工学部の加藤敏郎氏らと行った核分裂生成物に関する実験についても記す。

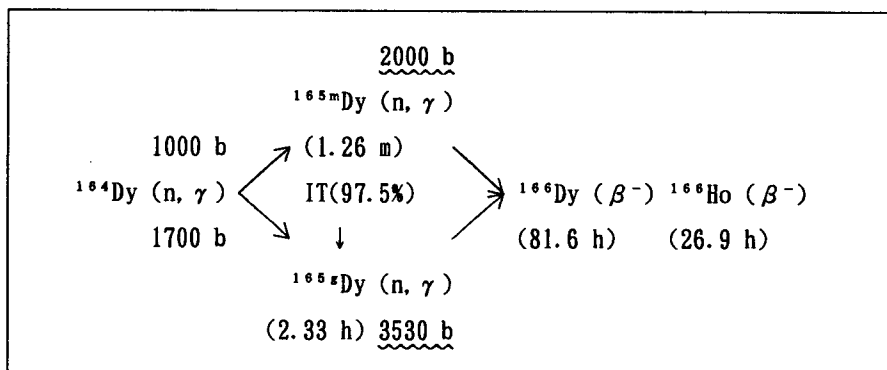
原子炉の中性子束が高い場合、(n,  $\gamma$ ) 反応で生成した R I が更に (n,  $\gamma$ ) 反応する確率が無視できなくなる。この過程は二重中性子捕獲、あるいはより一般的に多重中性子捕獲と呼ばれ、核データ研究では、中性子束モニターに使われる金の場合が良く知られている。 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$  反応で生成した  $^{198}\text{Au}$  の (n,  $\gamma$ ) 反応の熱中性子断面積は 25000 b もあり、 $^{198}\text{Au}$  と  $^{199}\text{Au}$  とがほぼ同じ半減期であるために、金箔を高中性子束で照射した場合、 $^{198}\text{Au}$  と  $^{199}\text{Au}$  とが  $\gamma$  線スペクトルに現れる。

二重中性子捕獲による生成量は、中性子束の自乗に比例する。熱中性子束が  $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  台では、二重中性子捕獲はそれほど積極的な意味は無いように思われるが、 $10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  台から更に、 $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  台になると話が違ってくる。二重中性子捕獲によって有用な R I を製造することが可能になる。その一例は次の反応による  $^{188}\text{Re}$  である。なお、断面積の値は原子炉中性子スペクトルによる実効値である。

37.8 b	64 b		
$^{186}\text{W}(n, \gamma)$	$^{187}\text{W}(n, \gamma)$	$^{186}\text{W}(\beta^-)$	$^{188}\text{Re}(\beta^-)$
(23.8 h)	(69 d)	(17.0 h)	

$^{188}\text{Re}$  をモノクローナル抗体に標識した放射性薬品は、ガンの診断・治療に有望視されている。 $^{188}\text{Re}$  は、 $^{186}\text{W}$  の二重中性子捕獲による  $^{186}\text{W}$  の  $\beta^-$  崩壊で生成する。 $^{188}\text{Re}$

の半減期は比較的長いので、繰り返しミルキングして  $^{188}\text{Re}$  を得ることができる。 $^{188}\text{Re}$  は  $^{188}\text{W}$  から化学分離によって製造するので、ターゲット物質を含まない、いわゆるキャリアフリーで得られる点も医学的利用において重要である。このような二重中性子捕獲による  $^{188}\text{Re}$  の製造は現在原研アイソトープ部で開発が進められている。次の例で、下線を引いた断面積値は筆者らが測定したものである<sup>1)</sup>。



このような準安定状態と基底状態の断面積が知られている場合が 4例 ( $^{68\text{m}}\text{Co}$ ,  $^{60\text{m}}\text{Co}$ ,  $^{104\text{m}}\text{Rh}$ ,  $^{148\text{m}}\text{Pm}$ ) あり、いずれも準安定状態が大きい (11~72倍)。しかし、準安定状態が基底状態より断面積が大きくなければならないという理由は考えられない。文献には、 $^{165\text{m}+}\text{Dy}(n, \gamma)^{166}\text{Dy}$  反応断面積として  $5000 \pm 2000 \text{ b}$  と  $3900 \pm 300 \text{ b}$  があったが、半減期 1.26 m の準安定状態  $^{165\text{m}}\text{Dy}$  の断面積の実験データは報告されていなかった。 $^{165\text{m}}\text{Dy}$  の断面積の大小関係がどうなるか興味をもたれた。そこで、 $^{164}\text{Dy}(n, \gamma)^{165\text{m}}\text{Dy}$  反応断面積を既知として、 $^{166}\text{Dy}$  収量の照射時間依存性を調べた。ジスプロシウムとして 0.1 mg の塩化物を薄いポリエチレン上にスコッチテープで固定したターゲットを 3 分~1 時間照射した。幸い照射後のターゲットには放射能測定上の妨害となる不純物 R I はなく、放射能は精度よく測定できた。その結果、 $^{165\text{m}}\text{Dy}$  の断面積として  $2000 \pm 600 \text{ b}$ 、 $^{166}\text{Dy}$  の断面積として  $3530 \pm 330 \text{ b}$  を得た。この結果、準安定状態より基底状態の断面積が大きいという経験則 (?) は否定されてしまった。

このデータが最近  $^{166}\text{Dy}$  生成量評価に使われるようになった。目的は前述の  $^{188}\text{W}$  の場合と同様に、娘核の  $^{166}\text{Ho}$  を核医学的に利用することである。 $^{166}\text{Ho}$  は  $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166}\text{Ho}$  反応で製造することができるが、この製品はキャリアフリーではない。また、長半減期の  $^{166\text{m}}\text{Ho}(1200 \text{ y})$  の生成が避けられない。二重中性子捕獲を使うとほとんどキャリアフリー状態で得ることができ、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$  の生成も避けられる。また、 $^{166}\text{Dy}$  生成の場合の断面積が  $^{188}\text{W}$  に比べて非常に大きいので、製造は比較的容易である。近い

将来、二重中性子捕獲で製造した  $^{180}\text{Ho}$  放射性薬品が使われるようになる可能性はある。

この他に、 $^{27}\text{Mg}$ (9.46 m),  $^{66}\text{Ni}$ (2.56 h),  $^{94}\text{Nb}$ ( $2.03 \times 10^4$  y) [以上文献1],  $^{154}\text{Eu}$ (8.5 y),  $^{166}\text{Eu}$ (4.9 y)<sup>2)</sup> について断面積を求めた。なお、 $^{154}\text{Eu}$  と  $^{166}\text{Eu}$  は  $^{158}\text{Eu}$  をターゲットとして二重及び、三重捕獲を調べた。また、 $^{154}\text{Eu}$  と  $^{166}\text{Eu}$  については、実効断面積だけでなく、2200 m/s 中性子断面積と共鳴積分を決定した点で、多重捕獲の断面積としてはまれな例となった。

$^{137}\text{Cs}$  は核分裂生成物として代表的な核種であるが、文献ではその (n,  $\gamma$ ) 反応断面積の実験報告は 1960年の Stuepegia<sup>3)</sup> による 1編だけであった。その論文から、実験の解析に必要な  $\gamma$  線分岐比、半減期などの 1960年当時の核データは今日のそれとあまり変わらない位に整っていたが、 $\gamma$  線スペクトル測定は NaI(Tl) 検出器と 256 チャンネル波高分析器の組み合わせであったので、重なり合う不純物ピークの差し引きに苦労したことが分かる。論文の記述はかなり詳しく、照射に用いた CP-5 炉の中性子スペクトルが熱外中性子束/熱中性子束の形で与えられ、実効断面積について比較することもできる。

彼の論文で理解し難いことは、ターゲットとして  $^{137}\text{Cs}$  を 600 MBq も用いていることである。 $\gamma$  線測定の経験のある人なら、このような強い線源を NaI(Tl) 検出器の傍らに持ってくることは不可能であることが、すぐに分かる。実際、線源と検出器とは 21 フィートも離れたと記されている。600 MBq もの  $^{137}\text{Cs}$  放射能を使わなければ、実験ができないのであろうか。我々は、照射条件・放射能測定条件を検討して、Stuepegia の実験と同精度の実験を行うには、0.1 MBq で十分であるという結論に達した。これには Stuepegia が採用していない照射後の化学的精製によって測定のス/N比の向上を図るなどを行っているが、照射条件は Stuepegia の場合、熱中性子束 =  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , 照射時間 = 40 分で、我々は JRR-4 の T-パイプを用いて、 $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  と10分で、 $^{138}\text{Cs}$  生成に関しては同等である。なお、線源と検出器との距離は 5 cmとした。線源を検出器に密着させれば、もっとターゲット量を減らすことができるが、 $^{138}\text{Cs}$  測定における sum coincidence loss の補正が大きくなると、種々の問題が生じてくる。なお、測定試料に含まれる  $^{137}\text{Cs}$  ターゲット原子数と  $^{138}\text{Cs}$  生成原子数の比を求めれば、断面積を決定できるので、これらの放射能の比を求めればよい。幸い  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{138}\text{Cs}$  の  $\gamma$  線は同軸型の Ge 検出器で測定できるエネルギー領域にあるので、1 回の  $\gamma$  線測定で原子数比を決めることができる。

実験の結果、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応の実効断面積として、 $0.250 \pm 0.013 \text{ b}$  を得た<sup>4)</sup>。しかし、これは Stuepegia の値の 2.3 倍であって、この差がどこから来たのかが問題である。我々の実験には自信があるので、Stuepegia の方が間違っているとすると、恐らく 21 フィートも距離を取ったことによる、計数効率校正に問題があるのではないかと推察

したが、もし、Stupegia の結果が正しいとすれば、用いた中性子スペクトルの差によって、断面積に差がでた可能性がある。熱外中性子束/熱中性子束の比で、我々の方が10倍大きいので、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応に非常に大きい共鳴ピークが存在するという可能性も否定できない。そこで、いわゆるカドミ比法による実験を行って、2200 m/s 中性子断面積と共鳴積分を決定することにした。

ターゲット取り扱い上、カドミウムの箔で被って照射することは非常に困難であったので、我々は JRR-4 の気送管を用いることにした。これにはカドミウム製の円筒が取り付けられており、ターゲットをカドミウムで覆うことできる。また、カドミウム円筒を取り除いた照射も可能である。ただ、円筒の両端が開いていて、そこから熱中性子が入ってくるので、その点を考慮する必要がある。実験の結果、カドミウム円筒で覆ったことにより熱中性子束は 1/13 に減少し、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応の 2200 m/s 中性子断面積として  $0.25 \pm 0.02$  b, 共鳴積分として  $0.36 \pm 0.07$  b を得た<sup>5)</sup>。

こうして初めて、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応について共鳴積分の実験値が得られた。しかし、この共鳴積分の値では、実効断面積にはほとんど効いてこない。従って、Stupegia と我々の結果の差については、前述の推察以上のものはない。

共鳴積分の値は小さいが、 $1/v$  成分よりはかなり大きい。ユーリッヒでの核データ国際会議で、宇宙における元素合成過程を調べているカールスルーエの Kaeppler 氏が、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応について keV 領域の中性子断面積を測定できるのではないかと話していたが、近い将来共鳴ピークが明らかにされるかもしれない。

なお、 $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$  反応についても実験したが<sup>6)</sup>、これについては原田氏、あるいは加藤氏が別に記述されることを期待する。

#### 参考文献

- 1) T. Sekine and H. Baba: JAERI 1266 (1980).
- 2) T. Sekine, S. Ichikawa and S. Baba, Appl. Radiat. Isot. 38, 513 (1987).
- 3) D.C. Stupegia, J. Nucl. Energy, A12, 16 (1960).
- 4) H. Harada, H. Watanabe, T. Sekine, Y. Hatsukawa, K. Kobayashi and T. Kato, J. Nucl. Sci. Technol. 27, 577 (1993).
- 5) T. Sekine, Y. Hatsukawa, K. Kobayashi, H. Harada, H. Watanabe and T. Kato, J. Nucl. Sci. Technol. 30, 1099 (1993).
- 6) H. Harada, T. Sekine, Y. Hatsukawa, N. Shigeta, K. Kobayashi, T. Ohtsuki, and T. Kato, J. Nucl. Sci. Technol., in press.