研究論文

513. Au-198 中 の Au-199

中 村 治 人*, 山 林 尚 道*

(1969年 4月11日 受 理)

Amount of Au-199 in Au-198

By Haruto NAKAMURA and Hisamichi YAMABAYASHI

It is of great importance in assuring good quality control in the routine production of ^{198}Au isotopes to be able to estimate the yield of ^{199}Au formed by (n,γ) reaction on ^{198}Au and to measure simply and accurately the content of ^{199}Au in ^{198}Au after irradiation of Au.

Several detection systems available for routine measurement of ^{199}Au in ^{198}Au have been compared with each other in respect of efficiency, resolution, detecting sensitivity and ease of maintenance.

Gamma-ray spectrometry using a NaI(Tl) crystal detector was found as a result to be the most suitable for the relative ease it promised in operation and maintenance. This method was applied successfully to the measurement of the ^{199}Au content in ^{198}Au formed by irradiation of Au at various positions in a nuclear reactor.

The experimental results agreed well with those calculated by adopting the value of 2.58×10^4 barns as $^{198}\text{Au}(n,\gamma)^{199}\text{Au}$ reaction cross section. Neutrons in the resonance region were found practically not to take any part in the transformation of ^{198}Au into ^{199}Au .

I. は し が き

^{198}Au は医薬用 RI として広く利用されている重要な核種であると同時に, $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ 反応は熱中性子束モニタとしてしばしば使用されている主な反応である。しかし, ^{198}Au は 2.58×10^4 barn⁽¹⁾ という高い放射化断面積を有しているため, 照射中にさらに熱中性子を吸収して $^{198}\text{Au}(n,\gamma)^{199}\text{Au}$ 反応により ^{199}Au を生成する。

^{199}Au の半減期は3.15日であり, ^{198}Au の半減期2.69日よりわずかに長く, この核種の混入は ^{198}Au を利用するさい放射能測定などにおいて支障をきたす。

このような2重に中性子を捕獲して生成する RI の量の一般的な計算方法については Heydorn⁽²⁾ の報告がある。また, $^{198}\text{Au}(n,\gamma)^{199}\text{Au}$ 反応の放射化断面積は Bell⁽³⁾ によって熱中性子に対して $(2.60 \pm 0.12) \times 10^4$ barn が与えられ, 共鳴領域中性子に対する放射化断面積は極めて小さいことが報告されている。放射化断

面積の値についてはこのほかにも多くの報告があり, BNL-325⁽⁴⁾ では $(2.58 \pm 0.12) \times 10^4$ barn の値を提唱している。さらに, 共鳴領域中性子に対する放射化断面積が ^{197}Au の同領域における放射化断面積に比べてはるかに小さいことを利用して, Cd 被覆をして熱中性子を除いて照射することにより, 純度の高い ^{198}Au を製造することも提案されている⁽⁴⁾。

しかし, いずれの報告においても, 熱中性子と共鳴領域中性子の両方がいろいろな割合にある種々の照射条件で照射したときの ^{198}Au 中の ^{199}Au の量を簡便かつ正確に知る方法は明示されていない。このことは安定した比較的手軽な ^{198}Au 中の ^{199}Au の測定法が確立されていないことが原因と考えられる。定常的に ^{198}Au を製造していく上において, ^{199}Au の量を手軽に精度よく定量し, また生成量を精度高く予測することは RI 製品の品質管理上必要である。

本報においては, ^{198}Au 中の ^{199}Au の比較的簡便な

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

定量法の開発と、種々の照射条件下で生成する ^{199}Au の量を予測する方法の確立とを目的として検討した結果について報告する。

II. 実験および結果

1. ^{198}Au 中の ^{199}Au の定量法

^{199}Au のおもな γ 線のエネルギーは 0.158 MeV であり、 ^{198}Au の 0.412 MeV の値より小さく、 ^{198}Au 中にわずかに含まれる ^{199}Au の量を正確に定量することは困難である。そこで種々の放射能測定器について比較検討した。

γ 線検出器としては、① $3''\phi \times 3''$ NaI(Tl) 結晶、② $4\frac{3}{4}''\phi \times 5''$ 井戸型 NaI(Tl) 結晶、③ 同井戸型 NaI(Tl) 結晶を液体シンチレータで囲み非同時計数法により測定し、コンプトン効果を少なくした全吸収 γ 線スペクトロメータ、④ 2 cm^3 Ge(Li) 半導体検出器の 4 種を用いた。また内部転換電子を測定する方法についても検討した。検出器としては、⑤ $10\text{ mm}\phi \times 2\text{ mm}$ Si(Li) 半導体検出器を用いた。

^{198}Au の溶液は金箔(厚さ 2 mg/cm^2) 約 1 mg を JRR-2 気送管(熱中性子束 $5 \times 10^{13}\text{ n/cm}^2\cdot\text{sec}$) で 20 min 間照射したのを王水に溶解して調製した。この照射条件における ^{199}Au の混入量は後に述べる計算式によれば 0.1% 以下である。 ^{199}Au 溶液は $^{198}\text{Pt}(\pi, \gamma)^{199}\text{Pt} \xrightarrow{\beta} ^{199}\text{Au}$ 反応を使って調製した。白金線 22 mg を JRR-2 垂直照射孔(VT-4)(熱中性子束 $1.8 \times 10^{13}\text{ n/cm}^2\cdot\text{sec}$) で 130 hr 照射した。王水に溶解し、蒸発乾固後 2.5 M HBr 溶液としてエーテルで ^{199}Au を抽出し、エーテルを蒸発後

水に溶解した。この溶液の γ 線スペクトルの測定および β 線放射能の減衰曲線(12半減期測定)からは ^{198}Au 以外の放射能は検出されなかった。 ^{198}Au および ^{199}Au の溶液を混ぜ合わせて任意の ^{198}Au を含む ^{199}Au の溶液を作成し、それぞれの検出器について定量曲線を求めた。

なお、 ^{198}Au 、 ^{199}Au それぞれの放射能の絶対値は $4\pi\beta\gamma$ 同時計数法により求めた。各測定器に用いた試料の形状および測定条件は次のようである。

NaI(Tl) $3'' \times 3''$ 結晶: 約 $0.2\text{ }\mu\text{Ci}$ を 2 ml の液量とし、 $1.5\text{ cm}\phi$ のポリエチレン管に入れて結晶表面から 5 mm の位置で測定した。

全吸収 γ 線スペクトロメータ: 約 $0.02\text{ }\mu\text{Ci}$ を 0.1 ml の液量とし、 5ϕ のポリエチレン管に入れて測定した。

$4\frac{3}{4}''\phi \times 5''$ 井戸型 NaI(Tl) 結晶: 全吸収 γ 線スペクトロメータの試料と同じ。

Ge(Li) 結晶 (2 cm^3): 約 $3\text{ }\mu\text{Ci}$ をライファン膜(厚さ 0.3 mg/cm^2) 上につけて乾燥したものを検出器から約 3 cm の距離に置いて測定した。

Si(Li) 結晶 ($10\text{ mm}\phi \times 2\text{ mm}$): 約 $1\text{ }\mu\text{Ci}$ をライファン膜 (0.3 mg/cm^2) 上につけ、真空中箱に入れて検出器から約 3 cm の距離に置いて測定した。なお、検出器は液体窒素温度に保って用いた。

2. 測定法の検討

^{199}Au を含む ^{198}Au の試料について、各検出器で γ 線放射能および内部転換電子を測定した結果を第 1 図に示す。

第 1 図 各測定器による ^{199}Au を含む ^{198}Au の放射能測定結果

^{198}Au 、 ^{199}Au のそれぞれ主な光電ピーク 412 keV および 158 keV の分解能と計数効率を測定して第 1 表にまとめて示した。半導体検出器の分解能は 2% 以下であり NaI 結晶の 10% よりいじむるしく高い。しかし計数効率は NaI 結晶の数% にすぎない。

また第 1 図から半導体検出器を使用した場合は、NaI 結晶を使用した場合よりコンプトン効果の肩が高くな

ることがわかる。 ^{198}Au 中の ^{199}Au の定量のように、主な核種の γ 線エネルギーが少量混入している核種の γ 線エネルギーより高い場合は、分解能と同時にコンプトン効果の肩の高さも定量感度に重要な影響がある。

^{198}Au 中の ^{199}Au の定量法として、158 keV の光電ピークの半値幅の 2 倍のエネルギー領域にわたって放射能量を積分し、 ^{198}Au のコンプトン効果の影響を差

第1表 各検出器による ^{198}Au , ^{199}Au の測定特性

検出器	線源		^{198}Au 411 keV		^{199}Au 158 keV		$R \cdot \frac{f_8 \epsilon_8}{f_9 \epsilon_9}$
	形状	放射能 (μCi)	分解能 (%)	計数効率 (%)	分解能 (%)	計数効率 (%)	
NaI(Tl) $3'' \times 3''$	2 ml 液状	~ 0.2	10.0	12.2	10.2	30	0.163
NaI(Tl) $5'' \times 5''$ well	点状	~ 0.02	13.7	39.2	37.4	99	0.123
全吸収 γ 線スペクトロメータ	点状	~ 0.02	10.0	37.9	26.6	84	0.064
Ge(Li)	点状	~ 3	1.34	0.056	1.70	0.9	0.149
Si(Li)	点状	~ 1	6.0	—	7.2	—	—

し引いて ^{199}Au の量を求める方法をとった。 ^{199}Au と ^{198}Au の放射能比 A_9/A_8 は次式で表わすことができる。

$$A_9/A_8 = \frac{N_9/f_9 \cdot \epsilon_9}{N_8/f_8 \cdot \epsilon_8} - R \cdot \frac{f_8 \cdot \epsilon_8}{f_9 \cdot \epsilon_9} \quad (1)$$

ここで、

A_9, A_8 : $^{199}\text{Au}, ^{198}\text{Au}$ の放射能 (mCi/g)

N_9, N_8 : 158, 412 keV 光電ピークの半値幅の2倍のエネルギー領域の積分値 (cpm)

f_9, f_8 : 158, 412 keV の光電ピークの計数効率

R : 412 keV 光電ピークのコンプトン効果寄与率

ϵ_9, ϵ_8 : 158, 412 keV γ 線の分枝率($\epsilon_9=0.286$, $\epsilon_8=1.00$)

各定量法について $R \cdot (f_8 \cdot \epsilon_8) / (f_9 \cdot \epsilon_9)$ を計算して第1表にあわせて記載した。この値が小さいほど感度の

よい方法である。なお、これらの定量法において、(1)式の右辺の第1項と第2項との比が ^{198}Au 中の ^{199}Au を定量するさいの S/N 比である。第2図に ^{199}Au の含有量と S/N 比との関係を示した。全吸収 γ 線スペクトロメータによる方法が最も感度が高いことがわかる。しかし、分解能が非常に悪く、不純物が混入した場合検出し難いこと、検出器が大きく遮蔽し難いためバックグラウンドが高いことなどを考えると、 $3'' \times 3'' \phi$ NaI(Tl)結晶による方法が最もよいとの結論を得た。

3. 照射条件と ^{199}Au の含有量

前記の結果より、比較的分解能もよく、 ^{198}Au 中の ^{199}Au の検出感度も低くない、最も普及している $3'' \times 3'' \phi$ NaI(Tl)検出器を使って種々の照射条件で照射して生成した ^{198}Au 中の ^{199}Au の量を測定した。

中性子束、照射時間等の照射条件については ^{199}Au の含有量の測定結果と合わせて第2表に記載した。

第2表 各照射条件での ^{198}Au 中の ^{199}Au

照射条件					$^{199}\text{Au}/^{198}\text{Au}$ (照射直後)	
原子炉	照射孔	照射時間 (hr)	熱中性子束 ($\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)	熱外係数	測定値†	計算値
JRR-2	6D	122	7.4×10^{13}	0.055	0.305	0.326
"	VT-4	130	1.9×10^{13}	0.002	0.074	0.082
JRR-3	VR-2	50	2.2×10^{13}	0.019	0.042	0.042
"	VR-2 in Cd	50	—	0.019	<0.001	—
"	VG-2	50	1.3×10^{13}	0.004	0.002	0.003

† NaI(Tl) $3'' \phi \times 3''$ 結晶による測定結果

なお、各照射にさいしては金箔と同時にCo箔(厚さ $10 \text{ mg}/\text{cm}^2$) 2 mg を照射し、 ^{198}Au , ^{60}Co の生成量を測定し、Westcottの式⁽⁶⁾から導いた次式を用いて熱中性子束および熱外係数を求めた。

$$r\sqrt{T/T_0} = (1 - \hat{\phi}_{\text{Co}}/\hat{\phi}_{\text{Au}}) \cdot (S_0\text{Au} \cdot \hat{\phi}_{\text{Co}}/\hat{\phi}_{\text{Au}} - S_0\text{Co})^{-1} \quad (2)$$

第2図 各種測定法による S/N 比

$$\phi = \hat{\phi}(1 + r\sqrt{T/T_0} \cdot S_0)^{-1} \quad (3)$$

ここで, $r\sqrt{T/T_0}$: 熱外係数

$\hat{\phi}_{\text{Co}}, \hat{\phi}_{\text{Au}}$: $^{60}\text{Co}, ^{198}\text{Au}$ の生成量から, 熱中性子に対する放射化断面積を使って計算した見掛け上の中性子束

ϕ : 熱中性子束

$S_0: 2/\sqrt{\pi} \cdot \Sigma'/\sigma_0 (\Sigma' \text{ は共鳴中性子に対する平均断面積, } \sigma_0 \text{ は熱中性子に対する放射化断面積})$

Au, Co についての S_0 はそれぞれ 17.3, 1.74 である⁽⁶⁾。

このようにして測定した熱中性子束および熱外係数の値を第 2 表の第 4, 5 欄に示す。

また, 実測値と比較するため, 次式から計算した値を同表最右欄に記載した。

$$\frac{A_9}{A_8} = \frac{\phi \sigma_9 \left\{ (1 - e^{-\lambda_9 t}) - \frac{\lambda_9}{\lambda_9 - (\lambda_8 + \phi \sigma_9)} (e^{-(\lambda_8 + \phi \sigma_9)t} - e^{-\lambda_9 t}) \right\}}{\lambda_8 \{ 1 - e^{-(\lambda_8 + \phi \sigma_9)t} \}} \quad (4)$$

ここで, A_9, A_8 : $^{199}\text{Au}, ^{198}\text{Au}$ の放射能 (mCi)

ϕ : 熱中性子束 ($\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)

λ_9, λ_8 : $^{199}\text{Au}, ^{198}\text{Au}$ の崩壊係数 ($2.55 \times 10^{-6}, 2.97 \times 10^{-6} \text{ sec}^{-1}$)

σ_9 : $^{199}\text{Au}(n, \gamma)^{199}\text{Au}$ 反応の熱中性子束に対する放射化断面積 ($2.58 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$)

t : 照射時間 (sec)

$^{199}\text{Au}(n, \gamma)^{199}\text{Au}$ 反応の熱中性子に対する放射化断面積は BNL-325 で採用している $2.58 \times 10^{-20} \text{ barn}$ の値を使って計算した。共鳴領域中性子に対する放射化断面積については Simpson⁽⁷⁾, Bell⁽⁸⁾ の報告があるが, 熱中性子に対する放射化断面積に比較して極めて小さいことのみが確かめられ, 数値については報告がない。したがって, 上記の計算は, ^{198}Au は熱中性子によってのみ放射化されるものとして計算した。

第 3 図に, 各照射時間照射したさいの ^{199}Au と ^{198}Au の比率の実測値および計算値をそれぞれ点および実線で記入した。この図から, 熱中性子束 10^{14} 以下, 照射時間 100 hr 以下の照射条件では, 一定時間照射したさいの ^{199}Au と ^{198}Au の比はほぼ熱中性子束に比例すると考えてよい。

第 3 図 照射条件と ^{199}Au の含有量

また, 共鳴領域中性子の多い JRR-2 6D 照射孔(炉心内照射孔)で照射した場合も, 計算値と実験値とがよい一致を示すことが第 2 表からわかる。このことは前者らの報告のとおり, 共鳴領域中性子に対する放射化断面積が小さいことを示す。そこで, この反応についての共鳴領域中性子の実効放射化断面積への寄与率 S_0 の上限を次のようにして計算した。

最も共鳴領域中性子の成分の多い照射孔は JRR-2 6D 孔であるので, ここで照射したさい得られた結果を使って計算した。この試料についての A_9/A_8 の測定誤差は, それぞれの放射能の絶対測定の誤差, 計数誤差を含めて 5% 以下である。(4) 式により計算すると, この値を 5% 増加させるために必要な σ_9 の増加量は 4.1% である。Westcott の報告によれば, 実効放射化断面積($\hat{\sigma}$)は次式により表わされる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0(g + r\sqrt{T/T_0} \cdot S_0) \quad (5)$$

ここで, σ_0 は熱中性子に対する放射化断面積, g は放射化断面積の $1/v$ 法則からのズレを表わす値で, 一般に 1 に近い数値であるから ^{198}Au についても 1 であると仮定する。すると次式が成り立つ。

$$r\sqrt{T/T_0} \cdot S_0 < 0.041 \quad (6)$$

この照射孔での熱外係数($r\sqrt{T/T_0}$)は 0.055 であるから, (6) 式より S_0 は 0.75 以下となる。この値は $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応の S_0 の値 17.4 の 4% である。このことは, Cd 被覆して照射すれば, ^{199}Au の含有量の少ない ^{198}Au を得ることができることを示している。

Ⅲ. む す び

^{198}Au 中の ^{199}Au を測定する方法として定量感度の
みから考えた場合、全吸収 γ 線スペクトロメータが最
もよい結果を与えたが分解能がよくない、 Ge(Li) 検
出器は分解能は著しくよく、定量感度から考えても
 NaI(Tl) 結晶とはほぼ同じでありすぐれている。しか
し、検出器の維持、計数効率が低いことなどの欠点を
持っている。そこで、本研究では NaI(Tl) 検出器を主
に使用することとした。

各照射条件で照射したさいの ^{199}Au の含有量を測定
した結果、 $^{198}\text{Au}(n,\gamma)^{199}\text{Au}$ 反応の放射化断面積を
 $2.58 \times 10^4 \text{ barn}$ として計算した結果とよく一致した。
共鳴領域中性子によってはほとんど放射化されず S_0
は 0.75 以下であることがわかった。この結果 ^{199}Au の
含有量は中性子束 $2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 130 hr 照射し
た場合約 8% であることがわかった。また、特に ^{199}Au
の含有量の少ない ^{198}Au を得なければならぬ場合

は、共鳴領域中性子の多い位置で Cd 被覆をして熱中
性子を除いて照射すればよい。

本研究に際し終始ご指導をいただいた日本原子力研
究所 RI 製造部柴田長夫博士、天野 恕博士に深謝する。

— 参 考 文 献 —

- (1) GOLDBERG, M.D., MUGHABAGHAB, S.F., DURO-
BIT, S.N., *et al.*: BNL-325, 2nd ed., Supl. 2,
(1966).
- (2) HEYDORN, K.: *Radiochim. Acta*, **3**, 161~166
(1964).
- (3) BELL, R.E., GRAHAM, R.L., YAFFE, L.: *Can.*
J. Phys., **33**, 457 (1955).
- (4) CAPGRAS, A.: *CEA-R-3239*, (1967).
- (5) WESTCOTT, C.H., WALKER, W.H., ALEXANDER,
T.K.: *A/Conf.*, 15/P/202, (1958).
- (6) WESTCOTT, C.H.: *CRRP-960*, (1960).
- (7) SIMPSON, F.B., SCHUMAN, R.P.: *WASH-1033*,
38 (1961).

☆ 本 誌 投 稿 の 手 引 ☆

- 一般投稿は研究論文・技術報告・資料・ショ-
ートノートを原則とし、必ず会員の資格を有する。
- 掲載範囲は、原子力研究に関連する凡ゆる部
門を含め、とくに限定しない。内容はオリジナ
ルなものに限る。
- 刷上り 6 頁(ショートノートは 2 頁)以内は無
料(有料頁は 1 頁当り実費約 5,000 円)とする。
和文は「会誌」に、欧文は Journal に掲載される。
- 必ず所定の原稿用紙(480 字詰 約 4 枚で 1 頁)
を使用し、投稿規程に従って執筆する。ただし、
欧文は、適宜に厚手のタイプ用紙に 2 段送り、
1 枚約 25 行にタイプする。(約 3 枚で 1 頁)和・
欧文とも所定の原稿表紙(無料)を添付する。図
面はそのまま製版できるよう必ず墨入れトレ-
ースする。(鮮明なゼロックス可)
- 投稿希望者は事務局へ連絡すれば、原稿用紙
(30枚綴 1 冊 100 円, 千 45 円)および投稿規程を送
付する。
- 和・欧文を問わず表題・抄録・所属機関名など
を和・英両文で正確に書いて添付する。
- 別に締切り日は設けない。原稿受理次第「受

理通知」を本人に送る。原稿は当該分野担当の
査読委員の査読に回わり、次回以後の編集委員
会において採否を審議する。査読通過および掲
載巻号は決定次第通知される。

- 論文は査読通過後受理順に掲載される。
(掲載まで欧文約 2~3 ヶ月、和文約 4~5 ヶ月)
- 別刷は掲載論文 1 篇につき 30 部まで無料で送
付する(30 部以上希望の時は、実費 1 部につき、
50~100 部で 4 頁以内 50 円, 5~8 頁 60 円程度)。
- 査読・審議の結果、内容の修正、文章の短縮、ま
たは図面の書直しを要求されたり、時には掲載
を遠慮いただく場合があるので、予めご了承願
いたい。

欧文の修文・添削についてはすべて著者負担
とする。(和訳を要求される場合もある)

- 修正のため返却した原稿は 6 ヶ月以内に再提
出しないと撤回とみなされる。
- 談話室欄(1~2 頁)には、随時、随意に気軽な
寄稿を歓迎する。
- その他、詳細は事務局へお問合せ下さい。