研究論文

546. 高比放射能 Ir-192 線源の製造法

榎本茂正*, 前田 頌*

(1970年 10月 8日 受理)

A Method of Preparing Ir-192 Gamma-Ray Source of High Specific Activity

By Shigemasa ENOMOTO and Syō MAEDA

When preparing ^{192}Ir γ -ray source, there is a serious effect of neutron self-shielding during the irradiation. In order to avoid this effect, thin discs separated from each other were irradiated in capsule and after irradiation, they were piled one against the other to form a cylindrical source. This method should be applicable to the preparation of intense γ -ray sources with characteristics suitable for radiographic work.

Iridium discs, 0.2 and 0.4 mm thick, were irradiated in the experimental hole of JRR-2, and the ^{192}Ir γ -ray dose from each disc and also of the built-up source was observed. In comparison with a 2 mm dia. $\times$ 2 mm thick source prepared in the conventional way, the γ -ray strength from the built-up source of the same overall size was larger by 2.3 and 1.6 times greater on sources made up of 0.2 and 0.4 mm thick plates, respectively. Furthermore, the built-up source showed better radiographic quality than a conventional source of the same dimensions, its radioactivity being more homogeneously distributed through the source.

I. ま え が き

γ 線透過撮影試験法をX線管球による方法と比較する場合、一般に長い撮影期間を必要とすることが、その欠点に挙げられてきている。これに対する対策としては、最近では放射能の大きい線源を用いようとする傾向が強い。

中性子照射によって製造する線源の放射能を大きくするには、通常、次の2つの方法が挙げられる。

- (1) 高い中性子束密度のもとで長時間にわたる照射を行う。
- (2) ターゲットの重量を大きくする。

一般に、生成する放射能は中性子束密度および照射時間に関して飽和特性を示す。ターゲット元素の種類によっては中性子自己遮蔽が大きいので、生成放射能はターゲット重量に比例しない。とくにターゲット重量を増すに従って、 γ 線透過写真は線源の大きさに起因するボケが大きくなる。

非破壊検査用の ^{192}Ir 線源の場合、 ^{191}Ir の放射化断面積 (σ_{act}) あるいは吸収断面積 (σ_{abs}) が著しく大きいので、上記の2つの方法はそれぞれ実的な限界がある。そのため第3の方法として、まず中性子自己遮蔽の少ない、すなわち表面積-重量比の大きいターゲットの状態での中性子照射を行い、後にこれを1つの線源に作り上げる方法が考えられる。例えば、ターゲットとして海綿状の Ir を準備し、これを中性子照射したのち溶解して球形の線源にする方法によって、従来のものに比較して比放射能が25%増の線源を製造したという報告がある¹⁾。この方法は、放射能をもった融点 (2,454°C) の高い Ir を溶解する設備を必要とする難点がある。

著者らは、1つの照射キャプセル中に、複数枚の薄い Ir 円板のターゲットを互いに充分な間隔を置いて

* 日本原子力研究所アイソトープ事業部 (Japan Radioisotop. Center, Japan At. Energy Res. Inst.)

配置した状態で中性子照射し、後にこれらを必要枚数だけ重ね合わせて1つの円筒形線源にする方法を考え、この方法によって得られる ^{192}Ir 線源の比放射能および γ 線強度について検討した。さらに、この方法によって得られた線源は、その中の放射能分布が均一に近く、 γ 線透過写真における線源の像質への効果に関して、放射能が表面近くに分布している通常の線源より良好であることを実験的に認めた。

II. 実験

1. ターゲットの仕様

実験に用いた Ir ターゲットは8種類の円板あるいは円筒形のもので、それらの形状、重量および標準偏差を Table 1 に示した。形状としては“Nominal”形状のほか、その直径(2r)は正確であると仮定して、各ターゲットの重量から計算によって求めた厚さ(L)も示した。

Table 1 List of Ir target, disc or cylindrical pellet, used in the experiment

Target type No.	Nominal dimension 2r×L (mm)	Weight (mm) ±std. dev. (%)	Real dimension† 2r×L (mm)	γ -ray self-abs. factor: f ^{††}
1	0.5×0.5	2.26±()	0.5×0.51	0.92
2	1×1	17.34±(1.38)	1×0.99	0.85
3	2×0.2 (A)	12.96±(1.54)	2×0.18	0.97
4	2×0.2 (B)	17.15±(3.09)	2×0.24	0.96
5	2×0.4	27.28±(1.47)	2×0.39	0.94
6	2×2	139.33±(1.59)	2×1.98	0.73
7	3×0.4	60.49±(1.92)	3×0.38	0.94
8	4×4	1,129 ±()	4×4.01	0.55

† Calculated thickness by assuming that real diameter of target equals to nominal one

†† Calculated result by assuming homogeneous radioactive source and with using γ -ray self-absorption coefficient of 3.4 cm^{-1} , experimentally obtained in the previous work⁽²⁾

Ir 金属は硬くその加工は困難であるが、ターゲット重量の正確度および精度は生成する放射能に直接関係するので、その工作上的の限度を知ることは、一定の仕様の ^{192}Ir 線源を製造するさいに重要である。

実験の目的からすれば、円板ターゲットの厚さは薄いほど効果的であるが、加工および放射化した後の遠隔操作の難易の点から、0.2 mm L を限度とした。ターゲットの加工精度は、Table 1 に示したとおり、重量の標準偏差 2% 以下である。ただし、Type 4 の 2 mmφ×0.2 mm L (B) ターゲットは薄い円板を製作する方法を検討中の段階に作ったものであるため、正確度および精度ともに不良であった。

Table 1 には、 ^{192}Ir 線源の中心軸方向の γ 線自己吸収因子(f: 実際に観測できる γ 線強度と、 γ 線自己吸収が全くないと仮定した場合に得られるべき γ 線強度との比)を付記した。なおこの値は、放射能がターゲット中に一様に分布していると仮定して計算したもので、実際のそれに近似的に等しいことが、さきの実験で確かめられている⁽²⁾。計算のさいの γ 線自己吸収係数の実効値(μ_{eff})としては実験値 3.4 cm^{-1} を用いた。

2. 中性子照射および測定

中性子束密度 $\phi(\text{n/cm}^2\cdot\text{sec})$ の中に重量 $W(\text{g})$ のターゲットをおいて、時間 $t(\text{sec})$ にわたる照射を行ったとき、中性子自己遮蔽が全くないと仮定した場合には、得られる比放射能 $s_0(\text{Ci/g})$ は近似的に次式で表わされる。

$$s_0 \sim \frac{(\sigma_A + \sigma'_A) a N_0 \phi}{3.7 \times 10^{10} W} \cdot \frac{\exp\{-(\sigma_A + \sigma'_A)\phi t\} - \exp\{-(\lambda_B + \sigma_B \phi)t\}}{1 + (\sigma_B - \sigma_A - \sigma'_A)\phi/\lambda_B} \quad (1)$$

ここで、 N_0 : Avogadro 数($=6.0248 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)

a : ^{191}Ir の天然存在率 ($=0.385$)

$\sigma_A, \sigma'_A, \sigma_B$: それぞれ $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$, $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192m}\text{Ir}$, $^{192}\text{Ir}(n, \gamma)^{193m}\text{Ir}$ の核反応ミクロ断面積で、その値は750, 250, 700 barn⁽³⁾

ある一定の中性子束密度 ϕ のもとで比放射能が最大となる照射時間 t_{max} を(1)式より求めると、

$$t_{\text{max}} = \frac{\ln\{(\sigma_A + \sigma'_A)\phi/(\lambda_B + \sigma_B \phi)\}}{(\sigma_A + \sigma'_A)\phi - (\lambda_B + \sigma_B \phi)} \quad (2)$$

となる。

生成する放射能の相違が、主に照射中の中性子自己遮蔽の相違によるものであるようにするためには、照射時間 t を制限し、すなわち $t \ll t_{\max}$ として、ターゲット中のどの部分の放射能も飽和特性を示すまでには至っていないことが必要である。

Table 1 に示した各ターゲットの中性子照射は、JRR-2 の気送管照射孔あるいは垂直実験孔 VT-3、VT-1 において行なった(照射条件については Table 2 参照)。中性子照射のさいには、高純度の Al 箔に各ターゲットの間隔を充分においてつつみ、各照射ごとに 1 つの照射キャプセルに収めた。また、中性子束密度の測定のために $1\text{ mm}\phi$ の Co 線を用いた。

Fig. 1 に、生成する比放射能 s_0 と照射時間 t との関係、中性子束密度 ϕ をパラメータとして(1)式を用いて計算した結果を示し、実際に行なった照射の条件を○印で示した。このうち垂直実験孔を用いた照射については、 $t \ll t_{\max}$ の条件を満足していないので、これらの場合の実験結果は、さきに述べた理由で、中性子遮蔽効果の評価に直接結びつけることはできない。しかし、実際問題として、放射能の大きい ^{192}Ir 線源を得るためには $t \approx t_{\max}$ の条件で照射を行う必要があるため、その場合の参考として実験を行なった。

Fig. 1 Specific activity of ^{192}Ir in function of irradiation time and neutron flux density, calculated with the use of Eq.(1)

中性子照射後、 ^{194}Ir (半減期: 19 hr) を減衰させるための冷却期間15日間において、Table 1 の各ターゲットから作った線源および複数枚の円板ターゲットを1つの Al カプセル(Al 厚さ 1 mm) 中に重ね合わせ

た線源について、 γ 線強度を電離箱測定系(タケダ理研 TR-50 球形電離箱および TR-84M 振動容量電位計)を用いて測定した。

3. 線源のレスポンス関数の測定

形状は同じ $2\text{ mm}\phi \times 2\text{ mm}L$ の 2 種類の ^{192}Ir 線源、すなわち 1 つは $2\text{ mm}\phi \times 2\text{ mm}L$ ターゲットを用いた通常の線源、他は $2\text{ mm}\phi \times 0.2\text{ mm}L(A)$ ターゲットを放射化したのち10枚重ね合わせた線源について、それぞれの線源に起因する γ 線透過写真のボケを評価するため、レスポンス関数を求めて比較した。

この場合のレスポンス関数とは、その放射線通路に正弦波状に変化するパターンをおいたときに生ずる放射線強度のコントラストの変化を、正弦波の空間周波数(通常 $\mu\text{本/mm}$ の単位を用いる)に対して示したものである⁽⁴⁾⁽⁵⁾。

線源のレスポンス関数の測定は、フーリエ解析による方法によって行なった。すなわち、レスポンス関数は理論的に無限に幅のせまい放射線によって生ずる線像強度分布のフーリエ変換によって求められる。線源の線像強度分布は、 γ 線の直進性から光学的に考えると、X線フィルム面より観測した γ 線強度分布に等しい。したがって、線源の γ 線強度分布を $s(x)$ とすると、そのレスポンス関数 $S(\nu)$ は次式で計算できる。

$$S(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} s(x) \exp(-2\pi i \nu x) dx \quad (3)$$

上述の2種類の ^{192}Ir 線源について、 γ 線強度分布 $s(x)$ を次のとおり実験的に求めた。幅0.05 mm、厚さ20 mmの鉄製スリットを通して、X線フィルム上にそれぞれの線源の線像をつくり、その写真濃度分布をマイクロフォトメータ(理学電機: MP-3型)を用いて測定した。次に、これをそのX線フィルムの線量-写真濃度特性曲線によって γ 線強度分布に変換した。

得られた線源の γ 線強度分布 $s(x)$ より、(3)式によって線源のレスポンス関数 $S(\nu)$ を数値計算した。そのさい $S(\nu)$ のみを独立に求めることができないため、使用したX線フィルム(さくら、タイプ R)およびスリットのレスポンス関数を別に求め、これで全体のレスポンス関数を除すことによって $S(\nu)$ を求めた。

III. 結果および考察

1. 円板線源の比放射能

Table 1 にあげた各種の Ir ターゲットについて、照射条件および照射終了直後における ^{192}Ir 線源の γ 線強度から、次の手順で中性子自己遮蔽因子 k (実際に得られた線源の放射能と中性子自己遮蔽が全くない

と仮定した場合に得られる放射能との比)を求めた結果を **Table 2** に示した。すなわち、最初に(1)式による計算によって s_0 を求め、これにターゲット重量 W , γ 線自己吸収因子 f (Table 1 参照)および R_{hm} 値

(^{192}Ir の場合、線源よりの距離 1 m において 0.5 R/hr $\cdot \text{Ci}$) を乗じて、中性子自己遮蔽が全くないと仮定した場合に得られるべき γ 線強度を理論的に計算し、測定値をこの計算値で除して h の値を求めた。

Table 2 Neutron self-shielding factor experimentally observed in preparing ^{192}Ir source showing with irradiation condition

	I	II	III	IV	V
Irradiation hole in JRR-2	Pneu. tube	Pneu. tube	VT-3	VT-1	VT-1
Neutron flux density: ϕ ($\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$)	4.3×10^{13}	3.7×10^{13}	1.9×10^{13}	9.8×10^{13}	8.7×10^{13}
Irradiation time: t	10 min	20 min	200 hr	263 hr	652 hr
Irradiation time factor: $(t/t_{\max})$	4.88×10^{-5}	8.79×10^{-5}	3.88×10^{-2}	1.27×10^{-1}	2.87×10^{-1}
Specific radioactivity calculated: s_0 (mCi/mg)	0.084	0.155	45.9	286	527
Ir target	Neutron self-shielding factor: h				
1 0.5×0.5	0.54				
2 1×1	0.36	0.36	0.39		0.41
3 $2 \times 0.2(\text{A})$		0.47			
4 $2 \times 0.2(\text{B})$				0.50	
5 2×0.4		0.32			
6 2×2	0.20	0.19	0.22	0.26	0.27
7 3×0.4		0.31			
8 4×4	0.13				

一般に、中性子自己遮蔽因子については、無限大の平板、無限長さの円筒、あるいは球形ターゲットの場合についてそれぞれ理論式が示され、また任意の形状のものについても簡便な近似式が Nisle によって提案されている⁽⁸⁾。

Table 2 に示した実験結果のうち、照射実験 I, II ($t \ll t_{\max}$ の場合)において得られた h の値(○印)を理論式あるいは Nisle の近似式による計算結果とともに **Fig. 2** に示した。

Fig. 2 は次のことを示している。

- (1) 直径と厚さの等しい ($2r=L$) 4 種類の円筒形ターゲットについては、球形ターゲットについての理論式による計算結果と比較的良好な一致を示している。また、Nisle の近似式による計算結果は、これらの円筒形ターゲットの形状が小さくなるほど実験値との相違が大きくなる。
- (2) 2 あるいは 3 mm ϕ の薄い円板ターゲットについての実験結果は、いずれも無限大の平板ターゲットについての計算結果と近似的に一致し、円板の直径に関係していない。

Fig. 2 Neutron self-shielding factor for Ir targets, disc or cylindrical pellet, experimentally obtained is shown with the calculated curves

さらに、Table 2 をみると、照射条件として $t/t_{\max}$ が 1 に近づくに従って h の値が大きくなる傾向を示し

ている。これは、中性子自己遮蔽因子 h の定義によるもので、 $t/t_{\max}$ が1に近づくに従って、その分母が分子よりも早く飽和特性を示すことによるものと考えられる。

2. 重ね合せ線源の γ 線強度

薄い ^{192}Ir 円板を重ね合わせて1つの円筒形線源にしたとき、各円板による γ 線自己吸収のほか、その中心軸方向では、重ね合わせることによって γ 線自己吸収がおこる。すなわち、厚さ $l_i (i=1, 2, \dots, n)$ の ^{192}Ir 円板を n 枚重ね合わせたときの γ 線自己吸収因子 f は、

$$f = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left[\exp(-\mu_{\text{eff}} \sum_{j=i+1}^n l_j) \cdot \langle (1 - \exp(-\mu_{\text{eff}} l_i)) / \mu_{\text{eff}} l_i \rangle \right]$$

Table 3 Relative γ -ray intensity obtained for the ^{192}Ir source prepared by piling thin ^{192}Ir discs

Ir target	γ -ray dose rate observed (mR/hr at 100 cm)				Relative fh value calculated		
	Single disc or pellet	Source piling discs (Number of discs piled)		(Relative intensity)	h From Table 2	f Calculated	fh Relative value
3. $2 \times 0.2(\text{A})$	0.46	$[\times 10]$	3.32	(2.3)	0.47	0.70	2.4
5. 2×0.4	0.63	$[\times 5]$	2.29	(1.6)	0.32	0.69	1.6
7. 3×0.4	1.37	$[\times 7]$	5.95	(4.0)	0.31	0.58	1.3†
6. 2×2	1.47			(1.0)	0.19	0.73	1.0

† Relative γ -ray dose rate to $2\text{mm}\phi \times 2\text{mmL}$ ^{192}Ir source would correspond to source volume, $1.3 \times (3/2)^2 = 4.4$

Table 3によれば、 $2 \times 0.2(\text{A})$ 、 2×0.4 および $3\text{mm}\phi \times 0.4\text{mmL}$ の ^{192}Ir 円板をそれぞれ10、5および7枚重ね合わせて得た線源、すなわち2種類の $2 \times 2\text{L}$ および $3\text{mm}\phi \times 2.8\text{mmL}$ 線源は通常の $2\text{mm}\phi \times 2\text{mmL}$ 線源と比較して、 γ 線強度の相対値がそれぞれ約2.3、1.6および4.0倍であった。

3. 線源のレスポンス関数

$2\text{mm}\phi \times 2\text{mmL}$ ターゲットを用いた通常の ^{192}Ir 線源および $2\text{mm}\phi \times 0.2\text{mmL}$ (A) ^{192}Ir 円板を10枚重ね合わせた線源の中心軸方向の γ 線強度分布についての測定結果をFig. 3の中に示した。通常の $2\text{mm}\phi \times 2\text{mmL}$ 線源(点線)は中央部に比較して周辺部分の γ 線強度が大きくなっており、これはすでに報告した別の実験結果²⁾とも合致している。これに対して、重ね合せ線源(実線)はほぼ一様の γ 線強度分布を示している。

両者の線源の γ 線強度分布から、それぞれのレスポンス関数を求めてFig. 3に示した。両者を比較する

$$= \langle 1 - \exp(-\mu_{\text{eff}} l) \rangle / \mu_{\text{eff}} l, \quad (l_i = l/n \text{ のとき}) \quad (4)$$

となる。

照射実験IIを行なった $2 \times 0.2(\text{A})$ 、 $2 \times 0.2(\text{B})$ 、 2×0.4 および $3\text{mm}\phi \times 0.4\text{mmL}$ の4種類の ^{192}Ir 円板を、それぞれ10、9、5および7枚重ね合わせて1つの ^{192}Ir 線源とし、その中心軸方向の γ 線強度を測定した結果をTable 3に示した。また、照射条件が等しければ、線源からの γ 線強度は fh に比例するはずであるので、 h (Table 2に示した値)および(4)式によって計算した f の値をあげ、 fh の相対値を通常の $2\text{mm}\phi \times 2\text{mmL}$ 線源のそれを1として示した。Table 3によれば、重ね合せ線源の γ 線強度の比は fh の比に比較的良好一致を示している。

と、重ね合せ線源の方が低周波領域におけるレスポンスがすぐれていて、 γ 線透過写真においてより良好な

Fig. 3 Optical transfer function of an ^{192}Ir γ -ray source (solid line), $2\text{mm}\phi \times 2\text{mmL}$, prepared by using thin disc targets, $2\text{mm}\phi \times 0.2\text{mmL}$, which is compared to that of the usual source of equal size

像質の得られることが期待できる。検討の結果、この重ね合せ線源(実線)は実効的に 2 mmL の矩形波状線源とみなすことができるのに対して、通常の線源(点線)は実効的に 2.5 mmL の矩形波状線源にほぼ等しい。したがって、重ね合せ線源を用いた場合、線源の形状に起因する像質のボケが小さいので、有利であることがわかった。

IV. 結 論

比放射能の大きい非破壊検査用 ^{192}Ir 線源を製造する 1 方法として、照射中の中性子自己遮蔽をさけるため、まず複数枚の薄い Ir 円板ターゲットを中性子照射し、後にこれらを必要枚数だけ重ね合わせて 1 つの円筒形線源にする方法について検討し、次のような結果が得られた。

- (1) 2 あるいは 3 mmφ のターゲットにおいて、薄い(0.2 および 0.4 mmL) 場合には、中性子自己遮蔽因子の実験結果は、無限大の平板ターゲットについての理論計算値と近似的に一致した。
- (2) $2 \times 0.2 \text{ L}$ および $2 \text{ mm}\phi \times 0.4 \text{ mmL}$ の ^{192}Ir 円板をそれぞれ 10 および 5 枚重ね合わせて作った $2 \text{ mm}\phi \times 2 \text{ mmL}$ 線源の γ 線強度は、通常の $2 \text{ mm}\phi \times 2 \text{ mmL}$ 線源の 2.3 および 1.6 倍であった。
- (3) $2 \text{ mm}\phi \times 0.2 \text{ mmL}$ ^{192}Ir 円板を用いてつくった $2 \text{ mm}\phi \times 2 \text{ mmL}$ 線源は、その放射能分布が均一に近いため、通常の $2 \text{ mm}\phi \times 2 \text{ mmL}$ 線源

に比較して、実効的な線源形状が小さく、 γ 線透過写真における像質が良い。

なお、 γ 線透過撮影試験用の線源としては、その形状は小さいほど望ましいが、 $2 \text{ mm}\phi \times 0.2 \text{ mmL}$ ^{192}Ir 円板の遠隔操作にはやや困難を伴うので、とくに放射能の大きい線源を多数製造する必要がある場合には、例えば $3 \text{ mm}\phi \times 0.4 \text{ mmL}$ ^{192}Ir 円板を重ね合わせてゆく方法をとることが考えられる。現在、著者らは、本報に述べた方法によって、JMTR を利用して $2 \text{ mm}\phi$, 50 Ci 程度、 $3 \text{ mm}\phi$, 100 Ci 以上の ^{192}Ir 線源の製造を検討中である。

— 参 考 文 献 —

- (1) *Maters. Evaluation*, 25-10, 49A, (1967).
- (2) 榎本茂正, 小野寺敏美, 加藤 久: 本誌, 12[4], 174 (1970).
- (3) LEDERER, C.M., HOLLANDER, J.M., PERLMAN, I.: "Table of Isotopes", 6th ed., p. 113 (1968), John Wiley & Sons, Inc., New York.
- (4) 土井邦雄: 非破壊検査, 14[5], 201 (1965).
- (5) 土井邦雄: 同上, 14[6], 245 (1965).
- (6) "NBS Handbook", 86, (1963).
- (7) SOODAK, H.: "Reactor Handbook", Vol. III, Pt. A, Physics, p. 181 (1962), Intersci. Publ., New York, London.
- (8) NISLE, R.G.: *Nucleonics*, 18[3], 86 (1960).
- (9) 前田 頌, 小林昌敏: 非破壊検査, 19[9], 455, (1970).

投 稿 歓 迎 / 本「会 誌」各欄の要綱 (42年1月一部改正)

本誌各欄の内容は、大要つぎのとおりです。(有料分は 6,000 円/頁)

- ① 研究論文(6頁まで無料) 独創性のある、結論の明確な、未発表の論文。欧文は「欧文誌」に掲載される。
- ② 技術報告(6頁まで無料) 施設・設備・装置等の建設・試験・運転などの経験や結論をまとめた実用的価値のある技術的論文。欧文は「欧文誌」に掲載。
- ③ ショート・ノート(2頁) 研究・技術上の新知見の速報、掲載論文に対する意見および質疑応答(従来の寄書・討論を含む)。欧文は「欧文誌」に掲載。
- ④ 資料 (6頁まで無料) 研究・技術に関する参考資料および解説・調査集計報告など。
- ⑤ 私のノートから(2頁) 各専門分野の研究、技術、経験等の報告。
- ⑥ 談話室(1~2頁) 本会および本誌に対する希望・提言、および国際会議などの見聞記・感想など。
- ⑦ 巻頭言、総説、講演・討論会要旨、講座、新刊紹介等の各欄は編集委員会で企画の上寄稿を依頼する。

会員投稿欄は、研究論文、技術報告、ショート・ノート、資料、私のノートから、談話室ですら、奮ってご投稿願います。ご投稿には所定の原稿用紙(30枚綴り 1部 100円 + 45円。欧文は適宜のタイプ用紙で正副 2通)により、「投稿規程」に従って事務局宛ご送付下さい。その他、ご意見・ご希望やご提案は大歓迎です。