総 説

イッテルビウム-169線源：製造技術と利用の開発[†]

山林尚道

日本原子力研究所東海研究所アイソトープ部
319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Key Words: ytterbium-169, gamma-ray source, radiography, non-destructive test, enriched target, neutron irradiation

1. はじめに

イッテルビウム (Yb) は、原子番号 70 で、希土類元素のイットリウム族に属する。1878年 de Marignac により発見され、スウェーデンの鉱石発見地 Ytterby にちなんで命名¹⁾された。希土類元素特有の中性子に対する高い吸収断面積を有することから、原子炉照射により高い比放射能のラジオアイソトープ (放射性同位体、以下 RI と記す) ^{169}Yb (半減期 30 日), ^{175}Yb (半減期 4.19 日), ^{177}Yb (半減期 1.93 時間) を生産することができる。 ^{175}Yb , ^{177}Yb は短時間照射による放射化分析の対象核種として利用されている。一方、 ^{169}Yb は β^- 線を放出せず、EC 崩壊により、63.12-307.73 keV の低エネルギー γ 線を放出することから、 γ 線ラジオグラフィによる 1-10 mm 厚さの薄肉鋼板、薄肉細管溶接部の非破壊欠陥検査用線源として開発されてきた。

^{169}Yb 線源は、エックス線装置が使えない場所で鋼厚 10 mm 以下の薄物にたいして、日本工業規格 (JIS Z 3104 など) に規定されている像質を得ることが可能な線源である。欧米で

は、1970年代後半から天然 Yb 金属または酸化物 (Yb_2O_3) による ^{169}Yb 線源が、小型軽量で可搬型の照射装置の開発と相俟って、試作されてきた。1975年に Dobrowolski ら²⁾ は、 ^{168}Yb 濃縮度 18.2%-25.2% の Yb_2O_3 ペレット [1 mm ϕ × 1 mm, 放射能強度 111 GBq (3 Ci)] を使用し、材厚 3 mm 以下の管径 30 mm の管を内部線源撮影法 (パノラマ)、二重壁撮影法により撮影した結果、 ^{75}Se , ^{192}Ir 線源より優れていることを、古田ら³⁾ は天然金属 Yb ペレット [2 mm ϕ × 3 mm (3.7 mR/h at 1 m), 3 mm ϕ × 3 mm (9.2 mR/h at 1 m)] および Yb_2O_3 ペレット [3 mm ϕ × 7 mm (10.0 mR/h at 1 m)] で、1-10 mm 厚薄肉鋼板、軽金属小口径管の溶接部検査に有効であることを、Pullen ら⁴⁾ は ^{169}Yb 線源 [ペレット 0.3 mm ϕ × 0.3 mm, 放射能強度 3.7 GBq (0.1 Ci), 0.6 mm ϕ × 0.6 mm, 放射能強度 37-111 GBq (1-3 Ci)] を使用し、ステンレス製鋼管 (12.5 mm ϕ × 114 mm, 1.5-12.5 mmt) を内部線源撮影法、二重壁撮影法で撮影し、3-5% の透過度計識別度を得たことを報告している。さらに、Walla ら⁵⁾ は内部線源撮影用自動移動装置を開発し外径 31.8 mm, 肉厚 4.4 mm 管の 0.015-0.02 インチの球を検出できることを述べ、中西⁶⁾ は球状線源 [1.0 mm ϕ , 185 GBq (5 Ci)] で熱交換器の外径 38 mm, 肉厚 1.65 mm のチューブとチューブシートのインナボア溶接部の検査に、Dobrowolski ら²⁾ はポーランドの原子力発

[†] Development of Production Techniques for Ytterbium-169 Sources. Hisamichi YAMABAYASHI: Department of Radioisotopes, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-Pref. 319-11, Japan.

電所小口径管の溶接部検査に、またイギリス⁷⁾での核燃料再処理工場建設時の配管溶接部検査にその有効性が実証され実用化された報告がある。

¹⁶⁹Yb 線源としては、0.3 mmφ×0.3 mm－1.5 mmφ×3 mm〔3.7 GBq(0.1 Ci)－370 GBq(10 Ci)〕程度の寸法、放射能強度のペレットまたは球状の線源がアマシャム社（英国）等から供給されてきた。

¹⁶⁹Yb を非破壊検査用線源として利用する場合、¹⁹²Ir に比べると半減期が 32 日と短く利用期間が少ないため、線源交換頻度が高いこと、さらに微小で高比放射能の線源が要求されることから、高出力の原子炉が必要で、かつ安定し

た供給が確保されなければならない。

日本原子力研究所（原研）では、天然存在比 0.14% の ¹⁶⁸Yb を 20% まで濃縮した安定濃縮同位体を微小ペレットに成形後アルミニウム製インナーカプセルに封入して、研究炉 JRR-3 M または材料試験炉 JMTR で中性子照射をする。どちらの原子炉でも 1.0 mmφ×1.0 mm ペレットで 185 GBq(5 Ci)、0.65 mmφ×0.65 mm ペレットで 37 GBq(1 Ci) 以上の放射能を得て、その後チタン製アウターカプセル（3.0 mmφ×12 mm）に溶接封入し、非破壊検査用線源に仕上げるための線源製造技術を確立した。

表 1 イッテルビウムの物理、化学的性質

元 素 名	イッテルビウム (Ytterbium)															
原 子 記 号	Yb															
原 子 番 号	70															
原 子 量	173.04															
結 晶 構 造	α : 立方, β ($>732\text{ }^{\circ}\text{C}$) : 体心立方															
色	灰色金属															
密 度	α : 6.965, β : 6.54 g/cm ³															
融 点	819 $^{\circ}\text{C}$															
沸 点	1 194 $^{\circ}\text{C}$															
化 学 的 性 質	空气中 (室温) : 表面酸化, H ₂ , ハロゲンと反応し, 水素化物 (YbH ₂), ハロゲン化物 (YbX ₃) となる 水 : 徐々に溶解し, H ₂ を発生 酸水溶液 : 速やかに H ₂ を発生し溶解 価数 : III 価が最も安定, II 価も水溶液中で安定															
化 合 物	Yb(III) 化合物は無色ないし白色。Yb(II) 化合物は緑色で, 溶液中できわめて不安定 Yb ₂ O ₃ は無色, 立方結晶で, 水に溶けず, 希酸に溶解															
ク ラ ー ク 数	地殻存在度 3.0 ppm															
安 定 同 位 体	<table><tr><td>¹⁶⁸Yb 0.140%</td><td>¹⁷³Yb 16.2%</td></tr><tr><td>¹⁷⁰Yb 3.03%</td><td>¹⁷⁴Yb 31.84%</td></tr><tr><td>¹⁷¹Yb 14.3%</td><td>¹⁷⁶Yb 12.73%</td></tr><tr><td>¹⁷²Yb 21.82%</td><td></td></tr></table>		¹⁶⁸ Yb 0.140%	¹⁷³ Yb 16.2%	¹⁷⁰ Yb 3.03%	¹⁷⁴ Yb 31.84%	¹⁷¹ Yb 14.3%	¹⁷⁶ Yb 12.73%	¹⁷² Yb 21.82%							
¹⁶⁸ Yb 0.140%	¹⁷³ Yb 16.2%															
¹⁷⁰ Yb 3.03%	¹⁷⁴ Yb 31.84%															
¹⁷¹ Yb 14.3%	¹⁷⁶ Yb 12.73%															
¹⁷² Yb 21.82%																
中性子捕獲断面積	<table><tr><td>¹⁶⁸Yb $\left[\begin{array}{l} \phi_{th} 3\,470\text{ barn} \\ \phi_f 16\,100\text{ barn} \end{array} \right]$</td><td>¹⁶⁹Yb ($T_{1/2}=32.0\text{ d}$) 3 600 barn</td></tr><tr><td>¹⁷⁰Yb 11.4 ± 1.0 barn</td><td></td></tr><tr><td>¹⁷¹Yb 46.8 ± 2.5 barn</td><td></td></tr><tr><td>¹⁷²Yb 0.8 ± 0.4 barn</td><td></td></tr><tr><td>¹⁷³Yb 17.1 ± 1.3 barn</td><td></td></tr><tr><td>¹⁷⁴Yb 69.4 ± 5.0 barn</td><td>¹⁷⁵Yb ($T_{1/2}=4.19\text{ d}$)</td></tr><tr><td>¹⁷⁶Yb 2.85± 0.05 barn</td><td>¹⁷⁷Yb ($T_{1/2}=1.9\text{ h}$)</td></tr></table>		¹⁶⁸ Yb $\left[\begin{array}{l} \phi_{th} 3\,470\text{ barn} \\ \phi_f 16\,100\text{ barn} \end{array} \right]$	¹⁶⁹ Yb ($T_{1/2}=32.0\text{ d}$) 3 600 barn	¹⁷⁰ Yb 11.4 ± 1.0 barn		¹⁷¹ Yb 46.8 ± 2.5 barn		¹⁷² Yb 0.8 ± 0.4 barn		¹⁷³ Yb 17.1 ± 1.3 barn		¹⁷⁴ Yb 69.4 ± 5.0 barn	¹⁷⁵ Yb ($T_{1/2}=4.19\text{ d}$)	¹⁷⁶ Yb 2.85 ± 0.05 barn	¹⁷⁷ Yb ($T_{1/2}=1.9\text{ h}$)
¹⁶⁸ Yb $\left[\begin{array}{l} \phi_{th} 3\,470\text{ barn} \\ \phi_f 16\,100\text{ barn} \end{array} \right]$	¹⁶⁹ Yb ($T_{1/2}=32.0\text{ d}$) 3 600 barn															
¹⁷⁰ Yb 11.4 ± 1.0 barn																
¹⁷¹ Yb 46.8 ± 2.5 barn																
¹⁷² Yb 0.8 ± 0.4 barn																
¹⁷³ Yb 17.1 ± 1.3 barn																
¹⁷⁴ Yb 69.4 ± 5.0 barn	¹⁷⁵ Yb ($T_{1/2}=4.19\text{ d}$)															
¹⁷⁶ Yb 2.85 ± 0.05 barn	¹⁷⁷ Yb ($T_{1/2}=1.9\text{ h}$)															

2. イッテルビウム特性

2.1 イッテルビウムの性質

イッテルビウムの物理、化学的性質⁸⁾を表1に示した。

原子炉照射中の放射線や温度での照射安定性、高い中性子捕獲断面積による中性子自己遮蔽の影響を小さくするための分散効果、生成放射能による周りの汚染を避けるため、水に対する溶解度が小さく、適度の硬度を有すること等を考慮して、ターゲットの化学形は酸化物(Yb_2O_3)とすることとした。しかし、将来、

医療用の高線量率リモートアフターローディングシステム (RALS) 用線源の開発では、より微小化の要求に応じ金属を使用することも考えられる。

2.2 ^{169}Yb の特性

イッテルビウムの放射性同位体⁹⁾は表2に示す核種であるが、原子炉中性子で生成し放射化分析、RIトレーサ、非破壊検査用線源として利用が可能な核種は、 ^{169}Yb (半減期30日)、 ^{175}Yb (半減期4.19日)、 ^{177}Yb (半減期1.93時間)である。中でも ^{169}Yb は高い比放射能で小さい線

表2 イッテルビウムの放射性同位体

核 種	半減期	崩壊形式	放射線エネルギー (keV) と放出率 (%)	
^{160}Yb	4.8 min	EC β^+	γ	132.2(9.9 r), 140.4(16.6 r), 173.8(77.4 r), 215.8(32.0 r) $\rightarrow$ ^{160}Tm
^{161}Yb	4.2 min	EC β^+	γ	78.2(100 r), 599.8(79.3 r), 631.3(43.7 r)
^{162}Yb	18.9 min	EC $\geq 98\%$ $\beta^+ \leq 2\%$	γ	44.66(2.2), 118.77(24.5), 163.47(35.6)
^{164}Yb	75.8 min	EC 100%	γ	37.49(0.40), 40.79(0.19) $\rightarrow$ ^{164}Tm
^{165}Yb	9.8 min	EC β^+	β^+	1 580
			γ	80.01(0.37), 118.1(1.78), 147.3(0.67), 304.0(0.59), 956.5(0.63), 1 090.1(2.59)
^{166}Yb	56.7 h	EC 100%	γ	82.229 $\rightarrow$ ^{166}Tm
^{167}Yb	17.5 min	EC 99.6% $\beta^+ 0.4\%$	β^+	650(0.4)
			γ	62.9(4.9), 106.16(22.5), 113.32(55.0), 116.57(2.8), 131.99(2.8), 143.46(2.1), 176.23(20.4) $\rightarrow$ ^{167}Tm
^{169}Yb	30.01 d	EC 100%	γ	63.12(41.6), 109.78(17.4), 130.52(11.5), 177.21(22.3), 197.95(35.9), 307.73(9.9)
$^{169\text{m}}\text{Yb}$	46 s	IT 100%	γ	24.3(0.00038)
^{175}Yb	4.19 d	β^- 100%	β^-	71(10.3), 216(0.8), 353(3.3), 467(86.5)
			γ	113.80(1.91), 282.52(3.1), 396.32(6.5)
$^{176\text{m}}\text{Yb}$	11 s	IT 100%	γ	96.1(73.2), 190.1(81.5), 292.9(92.6), 389.7(90.7)
^{177}Yb	1.9 h	β^- 100%	β^-	152(3.9), 162(7.2), 243(1.3), 1 104(2.2), 1 243(13.0), 1 271(9.0), 1 393(62)
			γ	121.62(3.4), 138.61(1.3), 150.39(20.0), 1 080.1(5.5), 1 241.4(3.4)
				$\rightarrow$ ^{177}Lu (Daughter) $T_{1/2}=6.7$ d
			β^-	175(6.7), 249(0.3), 385(3), 497(90)
			γ	71.6(2.4 r), 112.97(100 r), 136.68(0.74 r), 208.36(171 r), 249.7(3.3), 321.4(3.4 r)
^{178}Yb	74 min	β^- 100%	β^-	250(~ 10), 640(~ 90)
			γ	42.4(6.7 r), 348.4(64 r), 390.8(100 r)
				$\rightarrow$ $^{178\text{m}}\text{Lu}$, ^{178}Lu

源が得られること、またベータ線を放出しないことから、 ^{60}Co 、 ^{192}Ir に比較して半減期が多少短い欠点はあるが、非破壊検査用低エネルギー γ 線源として優れた特性を有している。

^{169}Yb は $^{168}\text{Yb}(n, \gamma)^{169}\text{Yb}$ 反応により生成する。その γ 線エネルギー¹⁰⁾と崩壊図¹¹⁾を図1に示す。 β -線を放出せず、EC崩壊し、63.1 keV (43.7%)、109.78 keV (17.4%)、130.5 keV (11.1%)、177.2 keV (21.5%)、197.9 keV (34.9%)、307.7 keV (10.8%) 等の γ 線を放射する。 ^{169}Yb の減衰曲線を図2に示す。平均エネルギーは約 200 keV であり、1 cm 線量当量

率定数¹²⁾は $0.0653 \mu\text{Sv} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{MBq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ 、空気衝突カーマ率定数は $0.0426 \mu\text{Gy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{MBq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ である。

γ 線の強さを1/10にする γ 線エネルギーと各種物質の厚さの関係¹³⁾を図3に示す。一方、 ^{169}Yb γ 線の鉛、ジルコニウム、ステンレス鋼、チタン、アルミニウムに対する透過率を電離箱線量計 (Radocon-II) で実測した結果を図4に示す。図3、図4から ^{169}Yb γ 線は実効エネルギーが約 200 keV で、ジルコニウムやステンレス鋼に対しても高い減弱率を示し γ 線ラジオグラフィによる非破壊欠陥検査に有用なことがわかる。さらに鉛 5 cm 厚さで、ほぼ 1/100 に減弱できることから、小型で可搬性に優れた照射器の開発が期待される。

^{169}Yb (32.022 8 d)
 Mode: ϵ
 Δ : -60374 s keV
 SpA: 2.4128×10^4 Ci/g
 Prod: $^{168}\text{Yb}(n, \gamma)$, $^{169}\text{Tm}(d, 2n)$;
 daughter ^{169}Lu ; protons on Ta

Photons (^{169}Yb)		
(γ)=312.1 22 keV		
γ_{mode}	$\gamma(\text{keV})$	$\gamma(\%)^{\dagger}$
Tm L _γ	6.341	0.81 8
Tm L _α	7.176	20.5 13
Tm L _β	7.310	0.268 20
Tm L _γ	8.224	19.8 17
γ M1+0.1% E2	8.4099 8	0.332 10
Tm L _γ	9.536	3.3 3
γ M1+0.08% E2	20.7437 4	0.192 14
Tm K _{α2}	49.772	53.5 14
Tm K _{α1}	50.742	94.3 25
Tm K _{β1}	57.444	29.6 8
Tm K _{β2}	59.296	8.21 25
γ E1	63.12080 19	43.7 11
γ M1+3.3% E2	93.6151 4	2.66 6
γ M1+2.3% E2	109.7802 3	17.4 3
γ [M1]	117.25 3	0.019 7
γ E2	118.1901 8	1.88 3
γ E2	130.5239 3	11.1 4
γ [E1]	156.7359 4	0.031 7
γ M1+15% E2	177.2144 4	21.5 4
γ M1+9.3% E2	197.9581 4	34.9
γ E1+0.9% M2	240.3351 4	0.128 7
γ E1+0.1% M2	261.0788 4	1.90 4
γ [M1]	284.98 14	0.0028 3
γ [M1]	294.47 3	0.0070 7
γ [M1]	304.0 3	0.084 7 ?
γ E2	307.7382 4	10.80 22
γ [M3]	316.1481 8	$\sim 3 \times 10^{-5}$?
γ	328.07 9	0.007 3 ?
γ	336.48 9	0.009 3 ?
γ [M2]	354.6938 6	0.020 5
γ [M2]	370.8588 4	0.0066 4
γ	424.99 3	~ 0.0007
γ	452.8 4	4.9×10^{-5}
γ	465.5 3	0.000234 21
γ	474.6 3	0.000196 21
γ [M1+E2]	494.10 12 ?	
γ (M1)	514.84 12	0.00409 17
γ	562.3 3	0.000133 14
γ (M1)	579.45 14	0.00185 10
γ (M1)	600.19 14	0.00112 7
γ	614.1 3	9.1×10^{-5}
γ (M1)	624.62 12	0.0049 4
γ	642.5 3	7.7×10^{-5}
γ	709.9 3	3.8×10^{-5}

$\dagger$ 0.14% uncert(syst)

図1 ^{169}Yb の γ 線エネルギーと崩壊図

図2 ^{169}Yb の減衰曲線 図3 γ 線の強さを1/10にする γ 線エネルギーと各種物質の厚さ

3. ^{169}Yb 線源の製造

3.1 ターゲット作成

^{169}Yb を非破壊検査用 γ 線源として利用するには、できる限り小寸法の焦点で、放射能強度が185 Bq (5 Ci) 程度が望まれる。また、原研では、照射後のハンドリングでの放射能汚染を避けるため、アルミニウム製インナーカプセルに封入して照射することとした。 ^{169}Yb 線源の製造方法を図5に示す。

^{169}Yb を製造するには、加速器により ^{169}Tm ($d, 2n$) ^{169}Yb 反応を利用し、無担体の ^{169}Yb を得ることもできるが、量的制限、安定供給を考慮すると実用的でない。そこで最も大量に安定して製造するには、原子炉を利用して $^{168}\text{YbO}_3$ ターゲットを中性子照射することにより ^{168}Yb (n, γ) ^{169}Yb 反応で製造するのが一般的である。しかし、天然のイットリウムには、 ^{168}Yb 同位体が0.14%しか含まれず、そのままでは必要な放射能強度をもつ小型の線源は得られない。そこで、 ^{168}Yb 同位体存在比を20.6%まで

図 4 ^{169}Yb γ 線の各種金属に対する透過率

濃縮した $^{168}\text{YbO}_3$ をターゲット原料として用い ^{169}Yb 線源を製造することとした。

ターゲットとして使用する濃縮 ^{168}Yb 原料の同位体存在比は次のとおりである。

安 定 同位体	存 在 比 (%)	
	天 然	使用ターゲット
^{168}Yb	0.135	20.6
^{170}Yb	3.1	10.65
^{171}Yb	14.4	24.65
^{172}Yb	21.9	17.3
^{173}Yb	16.2	8.8
^{174}Yb	31.6	14.0
^{176}Yb	12.6	4.0

この $^{168}\text{YbO}_3$ の一部を原子炉照射し、陽イオン交換樹脂を用いて不純物を分析した結果、 ^{174}Yb から生成する ^{175}Yb 、 ^{176}Yb から生成する ^{177}Yb の崩壊により生ずる ^{176}Lu および同属希土類の微小不純物 Sm から生成する ^{153}Sm を検出したが、いずれも図 6 に示すように問題となる量ではなく、精製しないで使用できることを確認した。また、試作した ^{169}Yb 線源を原子炉照射の 10 日後、その γ 線スペクトルを測定し

図 5 ^{169}Yb 線源製造方法 図 6 ^{169}Yb に対する不純物核種の比率
 ^{168}Yb 20.6%濃縮ターゲット

た結果を図 7 に示すが、半減期 4.19 日の ^{165}Yb をわずかに検出したのみで、ラジオグラフィの画質に影響を与える不純物核種は検出されなかった。この試料を 2 か月間冷却後、再測定した結果でも放射性核種の純度に問題がないことがわかった。

^{169}Yb 線源ターゲットの形状、寸法は精度、少量加工等の観点からペレット化することとし、 $0.65\text{ mm}\phi \times 0.65\text{ mm}$ 、 $0.80\text{ mm}\phi \times 0.80\text{ mm}$ 、 $1.0\text{ mm}\phi \times 1.0\text{ mm}$ の 3 種類を試作、検討した。

ターゲットイッテルビウム原料の化学形を水酸化イッテルビウム、それに塩化アンモニウム

図7 ^{169}Yb 線源の γ 線スペクトル

図8 加熱による各種イッテルビウム試料の重量変化

を添加した混合物およびシュウ酸イッテルビウムと変化させ、 1150°C まで加熱して重量変化を調べた結果、図8に示すように塩化アンモニウム混合物およびシュウ酸イッテルビウムでは、急激な重量変化により十分強度のあるペレットが得られなかった。しかし、水酸化イッテルビウムでは温度上昇とともに徐々に重量が減少し、 1150°C では寸法が約20%収縮し、高密度、高強度のペレットが得られた。そこ

で、 $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ または、 $^{168}\text{Yb}(\text{OH})_3$ 粉末をタングステンカーバイド鋼およびハイス特殊鋼で作った特殊成形金型でペレット成形することとした。 $^{168}\text{Yb}(\text{OH})_3$ から加工する場合、 1150°C で1時間加熱・焼結すると、 $1.0\text{ mm}\phi$ および $0.80\text{ mm}\phi$ の焼結前ペレットは、焼結後それぞれ $0.8\text{ mm}\phi$ および $0.65\text{ mm}\phi$ に仕上がる。焼結体の重量は $0.65\text{ mm}\phi \times 0.65\text{ mm}$ で2 mg、 $0.8\text{ mm}\phi \times 0.8\text{ mm}$ で5 mg、 $1.0\text{ mm}\phi \times 1.0\text{ mm}$ で7 mgである。

これらの $^{168}\text{Yb}_2\text{O}_3$ 焼結体を照射前後で放射能汚染なしに、安全に原子炉照射およびその後の線源密封化加工をするため、誘導放射能が少なく、 ^{169}Yb の γ 線出力の吸収が少ない高純度アルミニウム製インナーカプセルへ封入する。3種類のペレットを収納するアルミニウム製インナーカプセルの外形寸法は $1.8\text{ mm}\phi \times 3.0\text{ mm}$ で、プラズマ溶接で密封化し、原子炉照射用ターゲットとする。

3.2 原子炉照射

^{169}Yb を生成する ^{168}Yb の熱中性子捕獲断面積は、 $11\,000\text{ b (barn)}$ 、 $3\,470\text{ b}$ 、 $3\,200\text{ b}$ 、 $2\,300\text{ b}$

と多くの報告^{9), 12), 14)}があるが、原研での実測値から評価すると3 400 bであったので3 470 b⁵⁾のデータを採用した。¹⁶⁹Ybの生成核反応は図9のとおりであり、生成した¹⁶⁹Ybは3 600 bと高い熱中性子捕獲断面積を有し安定な¹⁷⁰Ybになる。このバーンアップを最小にし、効率良い¹⁶⁹Yb高比放射能線源を得るには、熱中性子束密度の高い原子炉で短時間に生成することが望ましい。一方、高速中性子に対する¹⁶⁸Ybの放射化断面積も16 000 bと大きく、高速中性子束密度を低下させずに熱中性子のみを最適照射量に調整することにより高比放射能の¹⁶⁹Ybを生成するため、ステンレス鋼を中性子吸収材としてスペーサーに利用した。

¹⁶⁹Yb比放射能値と熱中性子照射量(nvt)の関係性を求めた結果を図10に、また、研究炉JRR-3Mおよび材料試験炉JMTRで照射した実績を表3に示す。この結果、照射直後の比放射能は45～60 GBq(1.2～1.6 Ci)/mg Ybであり、1.0 mmφ×1.0 mmペレットでは260 GBq

図9 ¹⁶⁹Ybの生成核反応

(7 Ci), 0.65 mmφ×0.65 mm ペレットでは4.8 GBq(1.6 Ci)の線源強度が得られることがわかった。

3.3 放射能測定

¹⁶⁹Yb放射能の測定には、ゲルマニウム検出器、電離箱およびマイクロカロリメータを用途に応じ利用している。¹⁶⁹Ybの放射性核種の純度はγ線スペクトロメータにより求め、99.9%以上であることを確認した。一方、線源の値付けには、標準線源(既知試料)により校正した電離箱(キュリメータ)で測定している。市販の電離箱では、1.7 GBq(460 mCi)が測定範囲の上限なので、試料を適当な遮蔽体に入れ測

図10 熱中性子照射量と¹⁶⁹Yb比放射能の関係表3 ¹⁶⁹Yb線源放射能生成量

原 子 炉	照 射 時 間 (時間)	照 射 孔	ペレット寸法 (mm)	照射直後生成量 GBq(Ci)/個
JRR-3M	600	VT-1	1.0φ×1.0	271 (7.1)
	600	VT-1	0.80φ×0.81	121 (3.3)
	600	VT-1	0.64φ×0.67	67 (1.8)
	600	RG	1.0φ×1.0	233 (6.3)
	600	BR	1.0φ×1.0	211 (5.7)
JMTR	530	H-5	1.0φ×1.0	233 (6.3)
	530	F-12	1.0φ×1.0	204 (5.5)
	530	H-9	1.0φ×1.0	226 (6.1)
	530	*E-7	1.0φ×1.0	276 (7.5)
	530	*E-7	1.0φ×1.0	267 (7.2)
	530	E-7	1.0φ×1.0	207 (5.6)

*熱媒体(ステンレス鋼)使用

定している。定常的な頒布に備えた電離箱の校正にカロリメトリによる ^{169}Yb の絶対測定技術の開発¹⁶⁾を進めている。

3・4 線源密封化

^{169}Yb を低エネルギー γ 線ラジオグラフィ用線源として利用するには、照射後のターゲット（アルミニウム製インナーカプセル入り）をアウターカプセルに溶接封入し、表面汚染のない照射器に取り付け易い密封線源とする必要がある。線源被覆材としては、出力 γ 線の吸収が少なく、機械的強度、耐蝕性に優れ、気密溶接封入加工の難易等を考慮して、チタンを使用することとした。図 11 に線源カプセルの形状・寸法を示す。アウターカプセルの形状は A 型および B 型の 2 種類である。線源の横方向からの γ 線を利用する場合は A 型が、前方向からの γ 線を利用する場合は B 型が適当である。ネジ部分は、照射器の回転移動部分、リリースワイヤ等前後移動部分等への着脱部である。

溶接は、治具にセットされたアウターカプセルに照射済ターゲットを挿入後、遠隔操作によりプラズマ溶接で密封線源とする。

溶接後の線源は、外観検査、ゲージ検査、煮沸試験、拭取り試験等を行い、放射能の漏洩、汚染の有無をチェックし、健全性を確認する。

図11 ^{169}Yb 線源カプセル形状、寸法

3・5 供給体制

^{169}Yb 線源は、半減期が 32 日と比較的短く海外においても常時ストックできる製品ではなく、安定した製造・供給を継続するには複数の高出力の原子炉の稼働が欠かせない。またターゲットに安定濃縮同位体 (^{168}Yb) を使用するため、ターゲットの安定した確保も ^{169}Yb 線源の安定供給には重要な条件である。原研では原料として必要な安定濃縮同位体の確保を踏まえて、高出力の研究炉 JRR-3M、材料試験炉 JMTR を効率良く利用し、年間 6 回（2 か月間隔）の供給頻度で 200 個/年程度の線源を供給し、需要に応じる計画である。

4. ^{169}Yb 線源の非破壊検査への適用性

工業用 γ 線ラジオグラフィ線源として利用される放射性核種としては、表 4 に示す ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{192}Ir , ^{75}Se , ^{169}Yb , ^{170}Tm がそのエネルギーの高低に合わせて厚物から薄物鋼材の非破壊検査に使われている。しかし、国内では線源の線質、比放射能、供給体制等から γ 線ラジオグラフィ装置の使用台数は約 900 台で、使用核種としては、その 70% が ^{192}Ir (エネルギー：0.37–0.65 MeV) であり、残りの約 30% は ^{60}Co (エネルギー：1.17, 1.33 MeV) および ^{137}Cs (エネルギー：0.662 MeV) である。

最近、薄肉小口径配管溶接部等の欠陥検査が重要視され、 ^{192}Ir よりさらに低エネルギー γ 線を放出する ^{169}Yb 線源によるラジオグラフィ技術の研究開発が進められてきた^{17)–27)}。これらの技術をさらに発展させ国内における実用化と普及を図るため、日本溶接協会に臨時専門委員会「低エネルギー γ 線源実用化試験委員会 (Yb 委員会、大岡紀一委員長)」を設置し、試験・研究の実施、結果の評価検討、作業標準化が実施され、成果がまとめられつつある。非破壊検査に関する詳細はその報告^{28), 29)}によることとし、ここでは原研で検討した基本的な部分を述べる。

^{169}Yb 線源の特徴は、 β^- 線を放出せず、低エネルギー γ 線を放出し欠陥識別度が高いこと、遮蔽が容易なことから照射装置が小型、軽量に

表 4 非破壊検査に用いる γ 線源

核 種	実効エネルギー (keV)	半 減 期	鋼材厚適用範囲 (mm)	備 考
^{60}Co	1 250	5.27年	20 - 150	厚物材の溶接部検査
^{137}Cs	662	30.0 年	10 - 100	厚物材の溶接部検査
^{192}Ir	400	73.8 日	5 - 80	広範囲に利用 年間1 800 個の線源
^{75}Se	260	119.8 日	3 - 60	比放射能に難点
^{169}Yb	200	32 日	1 - 10	薄物材に最適
^{170}Tm	84	128.6 日	≤ 3	比放射能に難点 検査に長時間

なること、放射線管理区域を小さく設定できることから他作業と並行して昼間の作業が可能なこと等である。

4・1 空間線量率と遮蔽

^{169}Yb の γ 線エネルギーとその崩壊率は主に 63.1 keV (43.7%), 109.78 keV (17.4%), 130.5 keV (11.1%), 177.2 keV (21.5%), 197.9 keV (34.9%), 307.7 keV (10.8%) であり、これらを合算して、370 GBq (10 Ci) の ^{169}Yb 点線源から 1 m の距離における 1 c m 線量当量率を求める³⁰⁾ と、13 mSv/h となる。この値は平均エネルギーを 200 keV として計算した値とほぼ等しく、また、 ^{192}Ir 線源 370 GBq (10 Ci) の場合の 54 mSv/h の約 1/4 となる。原子炉照射後のペレット (Yb_2O_3 , 1.0 mm ϕ × 1.0 mm) を密封加工し、実測した結果実効照射線量率¹⁷⁾ は $0.041 \mu\text{Sv} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{MBq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ であり、1 m での 370 GBq (10 Ci) 線源の線量当量率は、15 mSv/h であった。

一方、 ^{169}Yb の鉛に対する遮蔽効果は高く、約 5 mm の厚さで透過線量率を 1/100 に減弱できる。現在使用されている照射装置（外部線源撮影装置：H 社製，B 社製，内部線源撮影装置：M 社製， ^{192}Ir 撮影装置転用：I 社製）に ^{169}Yb を装着し、照射時の線源から 1 m での線量当量率は、外部線源撮影装置で 370 GBq (10 Ci)，内部線源撮影装置で 111 GBq (3 Ci) で $86 \mu\text{Sv/h}$ および $34 \mu\text{Sv/h}$ 以下であり、管理区域の設定は 2 m 以下として十分安全に撮影できることがわかった。

重量は線源容器が 3 kg 以下であり遮蔽体を加えても 13 kg 以下である。さらに照射装置の改良で 5 - 10 kg 程度に軽量化が可能と思われる。

4・2 撮影方法

配管溶接部欠陥検査のための γ 線透過写真撮影法には、図 12 に示す外部線源二重壁片面撮影法、二重壁両面撮影法および小口径管内部に線源を配置し、一度に全周を撮影する内部線源撮影法がある。 ^{169}Yb 線源はそれぞれに適用でき、外部線源撮影法には 5 Ci，内部線源撮影法には 1 Ci の線源供給を予定している。

日本溶接協会、低エネルギー γ 線源実用化試験委員会によって、 ^{169}Yb 線源 (1.01 mm ϕ × 1.01 mm l, 0.81 mm ϕ × 0.83 mm l, 0.64 mm ϕ × 0.66 mm l) および ^{192}Ir 線源 (1.0 mm ϕ × 1.0 mm l) を使用し、それぞれの方法により各種小口径管の溶接部の透過写真を撮影し、撮影方法、SFD (線源-フィルム間距離)、使用フィルムとコントラスト、線源寸法、分割数等の影響を、主として針金形透過度計によって透過写真の像質を比較した実験が行われた。厚さ 3 - 12 mm の平板の場合、 ^{169}Yb は ^{192}Ir に比べ透過度計で 2 本小さい線が識別でき、外径が 13.8 - 60.5 mm の小口径管の二重壁両面撮影方法の場合、 ^{169}Yb は ^{192}Ir に比べ透過度計で 2 本小さい線を識別できた。

これらの成果の詳細は同委員会報告書²⁹⁾ にまとめられている。

図12 配管溶接部透過写真撮影方法

4.3 識別度と撮影例

ステンレス鋼 (SUS 304) について、厚さを変えたときのフィルム濃度の変化を ^{169}Yb 線源と ^{192}Ir 線源について求めた結果を図 13 に示した。

^{169}Yb 線源は厚さ 5 mm 以下で著しく高いフィルムコントラストが得られる。また、3 および 5 mm の厚さをもつ階段状ステンレス鋼

図13 ステンレス鋼の厚さとフィルム濃度の関係
階段状試験片でのラジオグラフィ
フィルム：富士100，鉛増感紙：なし
線源-フィルム間距離：30 cm (^{169}Yb),
60cm (^{192}Ir)

製試験片の ^{169}Yb 線源と ^{192}Ir 線源によるラジオグラフの濃度をマイクロデンシトメータにより走査した結果を図 14 に示した。厚さ 2 mm によってつくられるフィルムコントラストは、 ^{169}Yb 線源による場合 0.42, ^{192}Ir 線源による場合 0.17 であり、前者はこの厚さ領域で約 2 倍のフィルムコントラストを与え、 ^{169}Yb 線源の有効性を示している。

一般構造物のラジオグラフの一例として、ス

図14 ^{169}Yb , ^{192}Ir 線源によるフィルム濃度の変化
2 段階試験片 (ステンレス鋼 3 mm および 5 mm) でのラジオグラフ
フィルム：富士100，鉛増感紙：なし

図15 ^{169}Yb , ^{192}Ir 線源によるストップウォッチの γ 線ラジオグラフ

^{169}Yb 線源（中央） 線源寸法：1 mm ϕ ×1 mm，線源-フィルム間距離：30 cm

^{192}Ir 線源（右側） 線源寸法：2 mm ϕ ×2 mm，線源-フィルム間距離：60 cm

図16 ステンレス配管の内部線源 (^{169}Yb) 撮影法による一例

トップウォッチの撮影結果を， ^{192}Ir 線源との比較で図15に示す。さらに，内部線源撮影法により薄肉小口径配管溶接部のラジオグラフの一例を図16に示した。

5. おわりに

非破壊検査のための工業用ラジオグラフィ線源として ^{60}Co ， ^{192}Ir が有用な役割を果たしているが， ^{169}Yb 線源は，「薄物」に対する線源として ^{192}Ir や X 線でカバーできない範囲で，欧米では早くから注目されていた。 ^{169}Yb 線源は当初，アマシャム社（英国）で開発され，英国，仏国が核燃料再処理プラントの小口径配管の溶接検査に利用し，その有用性が認められた。国内においても，最近，各種プラントのサンプリング管等における小口径配管溶接部の非破壊検査への実用化が検討されている。日本溶接協会の低エネルギー γ 線源実用化試験委員会では，原研での線源製造技術の開発と相まって，その試作線源を利用し，多くの基礎実験を行った。その結果，薄物に有効な軽量小型な照射装置で，小さい管理区域を設定して実施できる ^{169}Yb 線源による非破壊検査が実用化できるとの結論を得た。現在，標準的な作業手順書の作成が進められているので， ^{169}Yb 線源を使用した撮影方法，その利用状況等については，別報での報告を待ちたい。

利用の普及を図るため，高価なターゲットの再利用，価格設定，頒布ルートの確立，使用済線源の回収など必要な開発，整備が並行して検討されている。

これらの成果を踏まえて、原研では近々、年間 200 個程度の ^{169}Yb 線源を供給できるように準備を進めている。これによって工業分野における各種プラント部品、航空機部品、熱交換機等の非破壊検査等への利用のほか、将来は医学分野におけるがん治療用線源としての利用の進展を期待したい。

6. 謝 辞

^{169}Yb 線源製造技術の開発にあたり、製造技術に関する部分で助言をいただいた日本アイソトープ協会アイソトープ部長梅澤弘一氏、利用開発に関する基礎データ取得部分で協力いただいた和田延夫氏、実用化試験を推進されている日本溶接協会、低エネルギー γ 線源実用化試験委員会の大岡紀一委員長、東京工業大学小林英男教授ほか各委員の方々に深く謝意を表します。

文 献

- 1) 大木道則, 大沢利昭, 田中元治, 千原秀昭 編: “化学大辞典”, 東京化学同人 (1989)
- 2) Dobrowolski, M. and Jedrzejewski, A.: *Brit. J. NDI*, **17**, (1), 15-20 (1975)
- 3) 古田純一郎, 平岡英一, 藤代正敏, 辻井幸雄, 桂山幸典, 辻本 忠, 岡本賢一: NDI 資料 1803 (1981)
- 4) Pullen, D. and Hayward, P.: *Brit. J. NDI*, **21**, (7), 179-184 (1979)
- 5) Walla, K. C. and Elliot, L. J.: ANST Natl. Conf. D837B, pp. 83-84 (1982)
- 6) 中新威彦: 第10回中性子ラジオグラフィ利用技術研究会 (1989)
- 7) *Nucl. Eng. Intern.*, **33**, (407), 48-50 (1988)
- 8) 日本化学会編: “化学便覧 (改訂 3 版) 基礎編 I”, 丸善, 東京 (1984)
- 9) 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林昌敏 編: “放射線データブック”, 地人書館, 東京 (1982)
- 10) Brown, E., Firestone, R. B. and Shirley, V. S.: “Table of Radioactive Isotopes”, John Wiley & Sons, Inc., New York (1986)
- 11) Lederer, C. M., Hollander, J. M. and Perlman, I.: “Table of Isotopes”, Sixth edition, John Wiley & Sons, Inc., New York (1967)
- 12) (社)日本アイソトープ協会: “アイソトープ手帳 第 6 版, 第 8 版”, 日本アイソトープ協会 (1990)
- 13) Moteff, J.: *Nucleonics*, **13**, (7), 24 (1955)
- 14) 武蔵工業大学研究所報 (1986)
- 15) Mughabghab, S. F.: “Neutron Cross Sections”, Academic Press Inc., New York (1984)
- 16) 源河次雄, 大久保昌武: 放射線科学, **36**, No. 12 (1993)
- 17) 和田延夫, 上沖 寛, 今橋 強, 木暮広人, 富永 洋, 清川輝行, 吉田好道, 藤岡俊和, 吉谷 晶, 松山径助: 第28回理工学における同位元素研究発表会 (1991)
- 18) 今橋 強: 日本原子力研究所放射線利用研究成果報告会, pp. 32-41 (1991)
- 19) 古田純一郎, 平岡英一, 藤代正敏, 辻井幸雄, 桂山幸典, 辻本 忠, 岡本賢一, 田淵泰平, 中村和夫: NDI 資料1826 (1982)
- 20) 中新威彦: 第10回中性子ラジオグラフィ利用技術研究会資料 (1989)
- 21) 古田純一郎, 平岡英一, 藤代正敏, 辻井幸雄, 桂山幸典, 辻本 忠, 岡本賢一, 田淵泰平, 中村和夫: NDI 関西支部研究発表会概要集, pp. 145-150 (1982)
- 22) 辻井幸雄, 平岡英一, 藤代正敏, 古田純一郎, 桂山幸典, 辻本 忠, 岡本賢一, 田淵泰平, 中村和夫: NDI 資料1865 (1983)
- 23) 辻井幸雄, 藤代正敏, 平岡英一, 岡本賢一, 辻本 忠, 古田純一郎, 桂山幸典, 中村和夫, 田淵泰平: NDI 資料10049 (1990)
- 24) 古田純一郎, 平岡英一, 藤代正敏, 辻井幸雄, 桂山幸典, 辻本 忠, 岡本賢一, 田淵泰平, 中村和夫: NDI 関西支部研究発表会概要集, pp. 195-196 (1983)
- 25) Halmshaw, R., Manly, T. and Dowd, M.: *Brit. J. NDT*, **13**, (7), 102-105 (1971)
- 26) 山林尚道: 日本原子力研究所第16回放射線利用研究成果報告会 (1993)
- 27) 藤岡俊和, 大岡紀一, 石川 勇, 山林尚道, 上沖 寛, 早川雄一, 吉谷 晶: NDI 資料 10122, pp. 35-39 (1993)
- 28) 大岡紀一, 藤岡俊和: 第21回日本アイソトープ・放射線総合会議, B-4 (1994)
- 29) (社)日本溶接協会, 低エネルギー γ 線源実用化試験 (I) 成果報告書 (1993), 非公開
- 30) (財)原子力安全技術センター: “放射線施設の γ (X) 線遮蔽計算実務マニュアル” (1990)