(γ, γ) 反応による放射化について (第4報)

$^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の放射化断面積に関する理論的考察

吉原賢二, 池田長生

(日本原子力研究所, 東京教育大学理学部化学教室)

(昭和 33 年 1 月 31 日受理)

序 言

われわれは第3報¹⁾において, コバルト 60 γ 線源による $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の放射化断面積を実験的に求め, $2 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ 程度の値を得た。Harbottle²⁾はこの値を 10^{-33} cm^2 のオーダーのものとしているけれども, われわれがかれの実験データからこの値を再計算するとやはり 10^{-32} cm^2 のオーダーの値が得られて, われわれの実測値とほぼ一致する結果を示した。

(γ, γ) 反応は従来ファン・ド・グラーフの装置で行われて来て, 人工放射性同位元素を利用した例はむしろ特殊なものであるが, まだ両者の間の差違を詳細に考察した報文はない。

(γ, γ) 反応は核異性体への励起反応であって, ある特定エネルギーの γ 線のシャープな選択吸収によるものである。それゆえ γ 線のエネルギー分布が異なれば, 全体としての放射化の様子が異なるのは当然である。

ファン・ド・グラーフの装置によって (γ, γ) 反応を行う場合は加速された電子ビームの Bremsstrahlung によっており, また人工放射性同位元素を用いて (γ, γ) 反応を行う場合には Compton 散乱 γ 線によっている。したがって両者の間には全体としての放射化断面積にも差違が生じてくる。そこでわれわれはこの両者の間の関係を理論的に考察することをこころみた。

ファン・ド・グラーフの装置による場合も, 人工放射性同位元素による場合も, ある特定エネルギーの γ 線の選択吸収という点では同じであり, この特定エネルギーの γ 線に対する原子核の吸収断面積は同一であると考えなければならない。

Miller と Waldman ら³⁾はインジウムの $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応に関して, この特定エネルギーの γ 線に対する吸収断面積をかれらの実験データから算出し, 10^{-22} cm^2 という値を出している。

われわれはコバルト 60 γ 線源を用いる場合に, Compton 散乱によって生じる (γ, γ) 反応に有効な γ 線フラックスを Klein-仁科の式から誘導し, Miller と Waldman が求めた上述の吸収断面積値を考慮に入れて, $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の全体としての放射化断面積を求める式を作った。

これによって求められた値は 10^{-32} cm^2 のオーダーの値となり, われわれが第3報で求めた値とオーダーは一致する。したがってわれわれが求めた値はファン・ド・グラーフの装置による実験からも正しいことが裏付けられる。これらのことを以下に述べよう。

本 論

(1) コバルト 60 による (γ, γ) 反応に関する考察

(γ, γ) 反応は本来 γ 線の共鳴吸収にもとづくものである。 ^{115}In の場合, 励起準位は $1.04 \pm 0.02 \text{ MeV}$, $1.42 \pm 0.02 \text{ MeV}$ などにある³⁾。これらの準位に相当するエネルギーの γ 線が ^{115}In に吸収されて, ^{115}In が励起準位にまで上り, きわめて短時間の平均寿命の経過したのちにメタステーブルの準位に落ちる。この準位は 0.338 MeV のところにあるが, この準位から安定準位に転移することは高度に禁止されているので, 観測し得る程度 (ここでは 4.5 時間) の半減期を示すに至る*。 0.338 MeV の準位にあるものが (γ, γ) 反応の結果

* 安定準位 → メタステーブルの準位の転位も同様に禁止されている。

生成する $^{115\text{m}}\text{In}$ である。

一般に励起準位の幅はきわめて狭いものである。Guth⁴⁾の計算によると上に述べた 1.04 MeV の準位の幅は 0.004 eV であるに過ぎない。このように狭い幅の準位であるから、これに共鳴吸収される γ 線はきわめてシャープな線状となる。この線に対する ^{115}In の γ 線吸収断面積は、Miller と Waldman の計算によると 10^{-22} cm^2 のオーダーのものとされている³⁾。

コバルト 60 γ 線源を用いるインジウムの放射化は、 ^{60}Co の γ 線の Compton 散乱によって生じた 1.04 MeV の散乱 γ 線の存在に帰することができる²⁾。この散乱 γ 線が ^{115}In に共鳴吸収されて ^{115}In を励起準位にもち上げ、核異性体を作るものである。

ところで ^{60}Co からは 1.33 MeV と 1.17 MeV の 2 本の γ 線が出るから、これらについての Compton 散乱を考慮する必要がある。

いま 1.33 MeV と 1.17 MeV の γ 線が Compton 散乱によって 1.04 MeV の散乱 γ 線を生じるような電子との衝突を考えてみる。Fig. 1 に示すように、 ν_0 なる振動数の γ 線が静止質量 m なる電子に衝突して、 θ なる角度だけ向きをかえた振動数 ν なる散乱 γ 線を生じるとする。 c を光速度とすれば

$$\nu = \frac{\nu_0}{1 + \frac{h\nu_0}{mc^2}(1 - \cos \theta)} \quad (1)$$

であるから

$$\frac{h\nu_0 - h\nu}{h\nu} = \frac{h\nu_0}{mc^2}(1 - \cos \theta) \quad (2)$$

ここで $mc^2 = 0.51$ (MeV 単位), $h\nu_0 = 1.33$ (MeV 単位), $h\nu = 1.04$ (MeV 単位) を入れて上の式を

Fig. 1 Compton scattering

とくと、

$$\theta = 26^\circ 40'$$

また $h\nu_0 = 1.33$ の代りに $h\nu_0 = 1.17$ (MeV 単位) を入れれば、

$$\theta = 18^\circ 10'$$

を得る。

すなわち ^{60}Co の 2 本の γ 線により 1.04 MeV の γ 線が生じるのは ^{60}Co γ 線源と散乱体とを結ぶ方向から $26^\circ 40'$ および $18^\circ 10'$ だけ向きを変えた γ 線を生じるような Compton 散乱によるのである。したがって ^{115}In が放射化されるのは ^{60}Co γ 線源、散乱体、 ^{115}In 試料の 3 者の角度が $153^\circ 20'$ および $161^\circ 50'$ の条件を満足するときに限られる。

散乱体としてはコバルト 60 γ 線源自身、途中の物質、周囲の壁、インジウム試料自体などが考えられる。それゆえ $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の放射化断面積 σ はこれらに関する項の和

$$\sigma = \sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3 + \sigma_4$$

であらわされる。ただし σ_1 はコバルト 60 γ 線源自身の散乱、 σ_2 は中間物質による散乱、 σ_3 は壁による散乱、 σ_4 はインジウム試料中での散乱に関するものである。

σ_1 は線源の大きさに関係する。これについては後にもっとくわしくふれる。 σ_2 は中間物質の効果であるが、Harbottle の結果によると 1.5 cm のルサイトでは 20%, 1.84 g/cm² の鉛では 30% ぐらい全体に寄与している。 σ_3 は壁の効果であるが、前に述べた散乱角の考察から、これが問題になる場合には考慮に入れなくてはならない。第 3 報におけるわれわれの実験では無視しても差支えない。 σ_4 はインジウム自身の散乱に関するものであるが、インジウムの試料が少ないうちは問題にならない。われわれの実験の場合には考慮に入れなくても差支えない程度であろう。

(2) 理論式にもとづく σ の計算

さきに述べた通り、 ^{60}Co の γ 線によるインジウムの放射化は、 ^{60}Co の γ 線が Compton 散乱によって 1.04 MeV の γ 線を生じ、これがインジウムの放射化をひきおこしたのと考えられる。

ところで $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma) ^{115\text{m}}\text{In}$ 反応はすでにファン・ド・グラッフの装置によって実験され、全体としての放射化断面積も、また 1.04 MeV の γ 線に対する吸収断面積も求められている。ただしファン・ド・グラッフの装置によって (γ, γ) 反応を行わせるときは、加速された電子ビームの **Bremsstrahlung** を利用しているの、コバルト 60 γ 線源を用いる場合とは全体としての放射化断面積が異なる。したがってファン・ド・グラッフの装置による実験結果からただちにコバルト 60 γ 線源による実験結果に言及することができないのは当然のことである。

しかし 1.04 MeV の γ 線に対しての ^{115}In の吸収断面積はファン・ド・グラッフの装置を用いた場合でも、コバルト 60 γ 線源を用いた場合でも同一でなければならない。

またコバルト 60 γ 線源によって **Compton** 散乱 γ 線が生じる場合には、**Compton** 散乱 γ 線のフラックスを Klein-仁科の式から誘導することができる。電子の **Compton** 散乱断面積がこの式によって与えられることを用いるのである。

1.04 MeV の γ 線に対しての ^{115}In の吸収断面積と、1.04 MeV の γ 線のフラックスを知ることにより、 $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma) ^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の放射化断面積が誘導される。以下には、このことについて考察してみよう。

まず $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma) ^{115\text{m}}\text{In}$ 反応について、生成放射能を A 、反応に関与する ^{115}In の原子数を N 、放射化断面積を σ 、 γ 線フラックスを f とすると

$$A = N\sigma f \quad (3)$$

である。

ところで 1.04 MeV の散乱 γ 線に対する反応断面積を σ_a 、フラックスを f_a とすると

$$A = N\sigma_a f_a \quad (4)$$

でなければならない。したがって (3) と (4) から

$$\sigma = \frac{\sigma_a f_a}{f} \quad (5)$$

なる関係が得られ、 σ_a と f_a を知って σ が計算できることになる。 σ_a は前節でも述べたように Miller と Waldman が 10^{-22} cm^2 のオーダーの

ものと計算している。問題は 1.04 MeV の γ 線のフラックス f_a である。

f_a を求めるためにつぎのような仮定を設けよう。

(a) 前節で述べた σ に寄与する 4 つの項のうち、第 1 の項、すなわち線源自体の中での自己散乱のみが問題となり、そのほかの項、すなわち中間物質による散乱、壁による散乱、インジウム試料自体中での散乱などは考えなくてもよいものとする。

(b) 線源は第 3 報の実験条件では球ではなく、何枚かの円板の重なりであるが、ここでは線源が球形をしているものと仮定しよう。かつすべての放射能が中心の一点に集中しているものと仮定しよう。すなわち中心の ^{60}Co から放出される γ 線が球体内部の物質によって散乱を受けるとするのである。このような条件のもとでは散乱 γ 線のエネルギー分布は 4π のいずれの方向でも同一であるはずである。

(c) 散乱は γ 線が 1 回電子に衝突して **Compton** 散乱を受ける場合のみを考え、2 回以上のいわゆる多重散乱の場合は考えない。散乱体が十分薄い場合には 1 回かぎりの散乱を考えれば足りる。

上のような仮定に立って f_a を求めてみる。(5) 式で f_a/f は散乱 γ 線のエネルギー分布が 4π の空間のいずれの方向でも同一であるゆえ、全フラックスの比 F_a/F で置きかえることができる。すなわち

$$\sigma = \frac{\sigma_a F_a}{F} \quad (6)$$

である。

Compton 散乱により 4π の全立体角にわたって放出される 1.04 MeV (幅 0.004 eV) の γ 線的全フラックス F_a はつぎのようにして求められる。

Compton 散乱の現象は γ 線と電子との相互作用であるので、 F_a は散乱を生じさせる電子の数、電子の散乱断面積および γ 線フラックスの 3 者の積であらわされる。

いま球体の半径を r_0 、球体を形成する物質の

単位体積当りの電子密度を n_0 とする。 γ 線フラックスは球体内部において一様ではなく、中心から離れるにしたがって小さくなるから、つぎのように積分を行わなければならない。中心より r なる距離にある厚さ dr の球殻を考える。 ^{60}Co の 1.33 MeV と 1.17 MeV の 2 本の γ 線に対する散乱断面積をそれぞれ ϕ_1, ϕ_2 とし、全体としてはこの平均値 $(\phi_1 + \phi_2)/2$ をとることにする。散乱を起す電子の数は $n_0 \times 4\pi r^2 dr$ であり、また γ 線のフラックスは $F/4\pi r^2$ であらわされるから、これら 3 者の積を作り、積分することにより、

$$F_a = \int_0^{r_0} 4\pi n_0 r^2 dr \times \frac{\phi_1 + \phi_2}{2} \times \frac{F}{4\pi r^2} \\ = \frac{1}{2} n_0 (\phi_1 + \phi_2) r_0 F \quad (7)$$

ところで ϕ_1 と ϕ_2 とは Klein-仁科の式からつぎのように誘導される。

$$\phi_1 = \pi r_e^2 \frac{mc^2}{k_1} \frac{\Delta k}{k} \left[1 + \left(\frac{k}{k_1} \right)^2 - \frac{2(\gamma_1 + 1)}{\gamma_1^2} \right. \\ \left. + \frac{1 + 2\gamma_1}{\gamma_1^2} \left(\frac{k}{k_1} \right) + \frac{1}{\gamma_1^2} \frac{k_1}{k} \right] \quad (8)$$

$$\phi_2 = \pi r_e^2 \frac{mc^2}{k_2} \frac{\Delta k}{k} \left[1 + \left(\frac{k}{k_2} \right)^2 - \frac{2(\gamma_2 + 1)}{\gamma_2^2} \right. \\ \left. + \frac{1 + 2\gamma_2}{\gamma_2^2} \left(\frac{k}{k_2} \right) + \frac{1}{\gamma_2^2} \frac{k_2}{k} \right] \quad (9)$$

$$\text{ただし} \quad \gamma_1 = \frac{k_1}{mc^2}, \quad \gamma_2 = \frac{k_2}{mc^2},$$

r_e は電子半径であって $\pi r_e^2 = 2.46 \times 10^{-25} \text{ cm}^2$, k_1, k_2 はもとの γ 線エネルギーで、ここではそれぞれ 1.33 MeV, 1.17 MeV である。 k は散乱線のエネルギーでここでは 1.04 MeV, Δk は散乱線のエネルギーの幅でここでは $4 \times 10^{-9} \text{ MeV}$, m は電子質量, c は光速, $mc^2 = 0.51 \text{ MeV}$ である。

(7) を (6) に代入して

$$\sigma = n_0 r_0 \sigma_a \frac{\phi_1 + \phi_2}{2} \quad (10)$$

を得る。

しかし今の式の誘導には γ 線の吸収を考慮していないから、実際にはこれに対する補正をした式が必要である。球体外における F は吸収を受けているから、吸収を受ける以前においては $F e^{\mu r_0}$

である。ここで μ は 1.33 MeV と 1.17 MeV の 2 本の γ 線に対する平均の吸収係数である。また同様に F_a も吸収を受ける以前には $F_a e^{\mu' r_0}$ であったと見なせる。ここで μ' は 1.04 MeV の γ 線に対する吸収係数である。さらに (7) 式では γ 線フラックスとして $F/4\pi r^2$ を用いたけれども、吸収を考慮すればこの代りに $F e^{\mu r_0} \times e^{-\mu r}/4\pi r^2$ を用いなければならない。したがって (7) 式はつぎのようにあらためられる。

$$F_a e^{\mu' r_0} = \int_0^{r_0} 4\pi n_0 r^2 dr \times \frac{\phi_1 + \phi_2}{2} \times \frac{F e^{\mu r_0} e^{-\mu r}}{4\pi r^2} \\ \therefore F_a = \frac{1}{2} n_0 (\phi_1 + \phi_2) \frac{F}{\mu} e^{(\mu - \mu') r_0} (1 - e^{-\mu r_0}) \quad (11)$$

これを (6) に代入して

$$\sigma = \frac{1}{2} n_0 (\phi_1 + \phi_2) \frac{\sigma_a}{\mu} e^{(\mu - \mu') r_0} (1 - e^{-\mu r_0}) \quad (12)$$

が得られる。

(12) 式に実験条件を入れて σ を計算してみよう。

実験においては線源はコバルト金属であるから

$$n_0 = 2.5 \times 10^{24} \text{ 個/cm}^3$$

実験にもちいた線源は球形ではないが、厚さ 1 枚 1 mm のコバルトの円板 4 枚と 8 枚の場合につき、ちょうど中央に放射線源が集中しているものとして

$$r_0 = 0.2 \text{ cm}$$

$$r_0 = 0.4 \text{ cm}$$

の二つの場合を考える。

前に述べたように

$$\sigma_a = 10^{-22} \text{ cm}^2$$

$$\text{また} \quad \phi_1 = 5.2 \times 10^{-34} \text{ cm}^2$$

$$\phi_2 = 7.0 \times 10^{-34} \text{ cm}^2$$

$$\mu = 0.48$$

$$\mu' = 0.51$$

これらの値を入れると $r_0 = 0.2 \text{ cm}$ の場合は

$$\sigma = 2.9 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$$

同様に $r_0 = 0.4 \text{ cm}$ の場合は

$$\sigma = 5.6 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$$

となる。

これらの値を実験値と比較すると、 $r = 0.2 \text{ cm}$

の場合はよい一致を示しており, $r=0.4\text{ cm}$ の場合は実験値に比して理論値はやや大きいオーダーは一致している。

上述の計算には Miller と Waldman が計算した σ_a の値 10^{-22} cm^2 を用いているが, これはオーダーだけが示されているものであって精度は悪い。またいくつかの仮定をもうけているが, 実際には γ 線源は球形ではなく薄い円板を重ねたものであること, 放射線源が一点に集中しているのではなく, ある体積にひろがっていること, そして多少は多重散乱も放射化反応に寄与しているであろうということなどを考えれば, このようにして得られた理論値が, 実験値に完全に一致していないのもやむを得ないであろう。

このようにしてともかくもコバルト 60 γ 線源による $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の放射化断面積が 10^{-32} cm^2 のオーダーの値になることは, ファン・ド・グラーフの装置による実験にもとづいて理論的に証明できることがわかった。

また放射化断面積 σ を実測して (12) 式から σ_a を求めることもできる。第3報の実験 I ~ III から

は $0.4 \times 10^{-22}\text{ cm}^2$, IV と V から $0.7 \times 10^{-22}\text{ cm}^2$ の値が得られる。

結 言

本報においては, コバルト 60 γ 線源を用いる $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応を理論的に考察し, ファン・ド・グラーフの装置を用いる (γ, γ) 反応との関係を明らかにした。Miller と Waldman のファン・ド・グラーフの装置による $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の実験結果から, 理論的にコバルト 60 γ 線源を用いる $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の放射化断面積を計算し, 前報の実験結果を裏付ける 10^{-32} cm^2 のオーダーの値を得た。

終りにのぞみ終始御指導をたまわった日本原子力研究所木村健二郎博士にあつく御礼申し上げます。

文 献

- 1) 池田, 吉原: *Radioisotopes*, **7**, 11 (1958)
- 2) G. Harbottle: *Nucleonics*, **12**, No. 4, 65 (1954)
- 3) W.C. Miller, B. Waldman: *Phys. Rev.*, **75**, 425 (1949)
- 4) E. Guth: *Phys. Rev.*, **59**, 325 (1941)

Radioactivation by the (γ, γ)-Reaction IV. Theoretical Considerations on the Activation Cross-section of ^{115}In for $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ Reaction

By Kenji YOSHIHARA and Nagao IKEDA

(Japan Atomic Energy Research Institute; Department of Chemistry,
Faculty of Science, Tokyo University of Education)

In the previous paper¹⁾, the authors reported the value of the order of 10^{-32} cm^2 for the activation cross-section of ^{115}In for $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ reaction using cobalt-60 γ -ray source. This value differs from that obtained by Harbottle²⁾, but recalculation using his experimental data also shows the value of the order of 10^{-32} cm^2 . In this

paper, the authors discussed the (γ, γ) reaction using cobalt-60 γ -ray source, and showed that the above mentioned value of the cross-section is also justified by the theoretical calculation which is shown below.

The (γ, γ)-reaction is the nuclear excitation reaction which occurs only by absorbing the effective γ -rays of discrete energies,

so that the extent of radioactivation for the definite element differs according to the energy distribution of the γ -rays. Miller and Waldman³⁾ studied $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma) ^{115\text{m}}\text{In}$ reaction using the Van de Graaff electrostatic generator as the γ -ray source, but the extent of the activation reaction with the use of this equipment largely differs from that in the case of using cobalt-60 γ -ray source. When the Van de Graaff electrostatic generator is used, the (γ, γ) -reaction occurs by Bremsstrahlung caused by the accelerated electron beams. On the other hand, in the case of cobalt-60 γ -ray source, it occurs by the γ -rays of discrete effective energy produced by Compton scattering. The cross-section for the (γ, γ) -reaction in regard to this effective γ -rays is, however, the same for the both cases. Miller and Waldman calculated the cross-section (σ_a) for the $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma) ^{115\text{m}}\text{In}$ reaction in regard to the effective γ -rays of 1.04 MeV (width: 0.004 eV⁴⁾) and obtained the value of the order of 10^{-22}cm^2 . This value is

considered also to hold good in the case of using cobalt-60 γ -ray source.

The flux of Compton scattering of the effective γ -rays of 1.04 MeV (f_a) can be estimated theoretically by using the Klein-Nishina's formula considering the geometrical condition of the cobalt-60 γ -ray irradiation. Then, the radioactivity of $^{115\text{m}}\text{In}$ produced (A) is shown as follows;

$$A = N\sigma_a f_a \quad (1)$$

where N is the numbers of ^{115}In atoms irradiated. On the other hand, the activity (A) is, of course, expressed as follows in terms of the over-all cross-section of ^{115}In (σ) and the flux of the total γ -rays of various energies (f):

$$A = N\sigma f \quad (2)$$

From (1) and (2),

$$\sigma = \frac{\sigma_a f_a}{f} \quad (3)$$

The value for σ calculated from the equation (3) is of the order of 10^{-32}cm^2 , and is in fairly good accordance with the experimental data reported in the previous paper.