(γ, γ) 反応による放射化について (第5報)

 $^{107,109}\text{Ag}(\gamma, \gamma)^{107\text{m},109\text{m}}\text{Ag}$ 反応の放射化断面積について

池田長生, 吉原賢二, 見塩規行

(東京教育大学理学部化学教室, 日本原子力研究所)

(昭和 33 年 5 月 10 日受理)

序 言

前報¹⁾²⁾³⁾⁴⁾にひきつづいてコバルト 60 γ 線源による (γ, γ) 反応の研究をおこなった。

銀の (γ, γ) 反応は $^{107}\text{Ag}(\gamma, \gamma)^{107\text{m}}\text{Ag}$ および $^{109}\text{Ag}(\gamma, \gamma)^{109\text{m}}\text{Ag}$ の 2 種が考えられる。Wiedenbeck⁵⁾ は Van de Graaff の装置によって銀の (γ, γ) 反応をおこなっている。しかしながらまだコバルト 60 γ 線源によって (γ, γ) 反応をおこなった例はなく, 反応断面積* も知られていない。

Wiedenbeck⁵⁾によると銀の (γ, γ) 反応のしきい値は 1.18 ± 0.03 MeV なので, コバルト 60 γ 線源から放出される 2 本の γ 線のうち, 1.33 MeV の γ 線は銀の (γ, γ) 反応をひき起すのに十分なものである。したがってコバルト 60 γ 線源を用いて $^{107}\text{Ag}(\gamma, \gamma)^{107\text{m}}\text{Ag}$ 反応あるいは $^{109}\text{Ag}(\gamma, \gamma)^{109\text{m}}\text{Ag}$ 反応をおこなうことは十分可能性のあるものと予想された。

しかしながら $^{107\text{m}}\text{Ag}$ にしても, $^{109\text{m}}\text{Ag}$ にしても, 半減期が短い**ために照射終了後の測定が困難である。また $^{107\text{m}}\text{Ag}$ と $^{109\text{m}}\text{Ag}$ とは半減期も γ 線エネルギーも似ているので生成放射能から両者を区別することは困難である。このような困難はあるけれども, 銀について (γ, γ) 反応をおこない, その放射化断面積を測定するための

実験をおこなった。

その結果, 明らかに銀の放射性同位体に相当する半減期を示す放射能の生成することがみとめられた。そして銀全体に対する (γ, γ) 反応の放射化断面積を求めたところ $(0.9 \sim 1.0) \times 10^{-32} \text{cm}^2$ という値が得られた。

実 験

γ 線源 コバルト 60 γ 線源は公称 1000 c のものを用いた。その構造は第3報に示したものと同様であるのでここでは省略する。直径 20mm, 厚さ 1mm のコバルト円板が 8 枚積み重ねられている。キュリー数はオークリッジ国立研究所の検定によると 1028 c である。

照射の方法 銀の薄板を 40mm × 40mm の正方形に切って使用した。その重さは 3.33 g で, 単位面積当りの質量は 0.208g/cm^2 となる。予備実験によると, 第3報のインジウムの場合のようにコバルト 60 γ 線源から数 cm 離れたところに銀の試料を支持した場合には, ほとんど放射能の生成がみとめられなかった。そこで今回の実験においては銀の試料を直接コバルト 60 γ 線源上にのせて照射をおこなった。

照射位置における γ 線量の決定 このような照射位置における線量の決定は困難である。化学的線量測定法はかなりの容積の溶液をガラス管につめて用いるので, 直接コバルト 60 γ 線源上におかれた薄板の受ける線量と比較対照することは困難である。それは γ 線源の近くでは線量率の勾配が急であるから誤差が大きく, 銀の試料と同様な位置に線量測定用の溶液をつめたガラス管を

* Van de Graaff の装置によって (γ, γ) 反応をおこなった場合も反応断面積の値は与えられていない。

** $^{107\text{m}}\text{Ag}$ の半減期は 44.3 秒, $^{109\text{m}}\text{Ag}$ の半減期は 39.2 秒。

において線量測定をおこなえば, 低めの結果が出る
ことが予想されるからである。また幾何学的条件
は, ガラス線量測定法によればもっともこの場合
の条件に近いものであるが, この方法を 10^7 r/hr
に近い線量率のところまで適用することはむず
かしい。そこでわれわれは第3報³⁾に述べたイン
ジウムの (γ , γ) 反応による放射化の結果から, 今
回の実験条件における線量率を測定することをこ
ころみた。すなわちインジウムのハクを銀と同じ
位置において, (γ , γ) 反応により生じたインジ
ウムの放射能を測定し, 既知の線量率のところ
(γ , γ) 反応により生じたインジウムの放射能と比
較することにより線量率を求めた。この(γ , γ)反
応による線量率測定法についてはなお後報にくわ
しく述べる予定である。このようにして銀の照射
位置における線量率を測定したところ, 7.4×10^6
r/hr の値を得た。なお念のためにセリウム塩に
よる化学的線量測定法⁶⁾によってこの位置の線
量率を求めたところ 6×10^6 r/hr という値が得
られ, (γ , γ) 反応による線量率測定法を適用し
た場合よりはやや低めの値となった。これはセリ
ウム塩溶液をガラス管につめて使用するときの容
積がかなり大きいために生じる誤差と思われる。
それでわれわれは今回の実験では線量率として
インジウムの (γ , γ) 反応による値 7.4×10^6 r/hr
を採用した。

照射の時間 Wiedenbeck⁵⁾によると Van
de Graaff の装置による (γ , γ) 反応で生成す
る銀の放射能は 40.4 ± 0.2 秒* であるので, こ
れが飽和に達すると見られる時間照射をおこな
った。10 分ないし 15 分の照射時間である。

放射能の測定装置 放射能の測定には第3報と
同じく Atomic Instrument Co. 製のシングル
チャンネル波高分析器 510 型を接続したウェル
タイプのシンチレーションカウンタ 810 型を使
用した。

測定器の計数効率の決定 酸化ウラン粉末の試

料を取り, UX_1 から出る 20% の γ 線 (エネ
ルギー 0.090 MeV) について計数効率の測定を
おこなった。 ^{107m}Ag の γ 線エネルギーは 0.094
MeV⁷⁾, ^{109m}Ag のそれは 0.087 MeV⁷⁾ である
ので, UX_1 の γ 線はこれらの計数効率測定の標
準となるものである。

UX_1 の γ 線に対する測定器の計数効率は, 酸
化ウランが十分古いという条件で, 重量法によ
って決定することができる。すなわち天然ウラン 1g
当りの ^{238}U の毎秒の崩壊数は 1.22×10^4 dps
であるから, 試料の重量を知れば ^{238}U の毎
秒の崩壊数, したがってこれと放射平衡にある UX_1
の毎秒の崩壊数が知られる。またこのうち内部転
換によって電子を放出するものがあるのでこれを
考慮しなければならない。内部転換率 e/γ は $\sim$
0.2⁸⁾ とされている。なお UX_1 からの子供の放
射能の影響はこの実験では無視して差支えなかつ
た。このようにして 0.090 MeV の γ 線に対す
る測定器の計数効率として $65 \pm 7\%$ の値が得
られた。

実験結果 つぎに銀の薄板をコバルト 60 γ 線
源上において放射能がほぼ飽和に達するまで照
射し, ただちに測定をおこなった結果を示そう。

Fig.1 Decay curve of produced radioactivity
Fig.1 に見られるように半減期約 40 秒の放射能
の生成がみとめられた。半減期が短かい関係上,
エネルギースペクトルをとることはできなかつ
たけれども, 全体の γ 線について測定した結果
と 0.090 MeV の付近にチャンネルを開いて測定

* これは ^{107m}Ag の半減期 44.3 秒と ^{109m}Ag の半
減期 39.2 秒の中間の値である。

した結果とを比較して、0.090 MeV 付近に光電ピークがあることが推定された。これは $^{107,109}\text{Ag}$ (γ, γ) $^{107\text{m}}, ^{109\text{m}}\text{Ag}$ の反応が起ったことを示すものである。

これを考慮した値は

$$560 \times \frac{100}{65} \times \frac{100}{100-18}$$

である。しかしながらこれには内部転換が考慮さ

Table 1. (γ, γ)-Reaction of silver caused by the Co-60 γ -ray irradiation

	I	II	III	IV	V
Co-60 γ -ray source (c)	1028	1028	1028	1028	1028
Weight of sample silver plate (g)	3.33	3.33	3.33	3.33	3.33
Dose rate (r/hr)	7.4×10^5	7.4×10^5	7.4×10^5	7.4×10^5	7.4×10^5
γ -Ray flux effective to this reaction (quanta/cm ² ·sec)	1.6×10^{12}	1.6×10^{12}	1.6×10^{12}	1.6×10^{12}	1.6×10^{12}
Time of irradiation (hr)	13	12	11	15	15
Radioactivity observed (at t=0) (cpm)	560	700	700	700	700
Counting efficiency (%)	65	65	65	65	65
Self-absorption of sample (%)	18	18	18	18	18
Radioactivity produced (dps)	210~300	260~370	260~370	260~370	260~370
Activation cross-section ($\times 10^{-32}\text{cm}^2$)	0.7~1.0	0.9~1.2	0.9~1.2	0.9~1.2	0.9~1.2

放射化をおこなった結果をまとめて Table 1 にあげておく。実験 I がやや少ない放射化の結果を与えているのを除いては、いずれも非常によく一致した結果を示している。

考 察

以上の実験結果をもとにして、 $^{107,109}\text{Ag}$ (γ, γ) $^{107\text{m}}, ^{109\text{m}}\text{Ag}$ 反応の反応断面積 σ (cm²) をつぎのようにして求め、Table 1 の最下段に示しておいた。

放射化にあずかる銀の原子数を N 、 γ 線の線束密度を f (quanta/cm²·sec)、生成放射能の飽和値を A (dps) とすると

$$\sigma = \frac{A}{Nf} \quad (1)$$

なる関係がある。

A を求めるにはつぎのようにした。実験 I を例にとって説明すると、実測放射能は 560 cpm、計数效率が 65 %、自己吸収が 18 % であるから、

れていない。内部転換率 e/γ は $^{107\text{m}}\text{Ag}$ の場合では約 16、 $^{109\text{m}}\text{Ag}$ の場合では約 11⁹⁾ であるが、生成する $^{107\text{m}}\text{Ag}$ と $^{109\text{m}}\text{Ag}$ との比率がわからないので、ここでは内部転換率として 16~11 をとり、銀全体の (γ, γ) 反応に対する放射化断面積を求めることにする。内部転換率が 16 の場合には

$$A = \frac{560}{60} \times \frac{100}{65} \times \frac{100}{100-18} \times (16+1) = 300 \text{ (dps)}$$

内部転換率が 11 の場合には、

$$A = \frac{560}{60} \times \frac{100}{65} \times \frac{100}{100-18} \times (11+1) = 210 \text{ (dps)}$$

である。

つぎに銀の原子数 N は銀の量が 3.33 g であるから銀の原子量 107.88 とアボガドロ数 6.023×10^{23} を用いて

$$N = \frac{3.33}{107.88} \times 6.023 \times 10^{23} = 1.86 \times 10^{22}$$

である。

また銀の受ける平均の γ 線の線束密度 f は $7.4 \times 10^6 \text{ r/hr}$ を第3報でおこなったように $\text{quanta/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 単位に換算して

$$f = 1/2 \times 7.4 \times 10^6 \times 4.4 \times 10^5 = 1.63 \times 10^{12} \quad (\text{quanta/cm}^2 \cdot \text{sec})$$

ここで $1/2$ の係数がかかっているのは、銀の (γ, γ) 反応の場合は ^{116}In の (γ, γ) 反応の場合と異なり、反応に有効な γ 線は ^{60}Co の出す2本の γ 線のうち 1.33 MeV の γ 線1本のみで、 1.17 MeV の γ 線は有効でないとしたからである。

そこで σ はこれらの値から求められる。 $A=300 \text{ dps}$ のとき

$$\sigma = \frac{300}{1.86 \times 10^{22} \times 1.63 \times 10^{12}} = 1.0 \times 10^{-32} \quad (\text{cm}^2)$$

また $A=210 \text{ dps}$ のとき

$$\sigma = \frac{210}{1.86 \times 10^{22} \times 1.63 \times 10^{12}} = 0.7 \times 10^{-32} \quad (\text{cm}^2)$$

すなわち、生成放射能の 100% が $^{107\text{m}}\text{Ag}$ であるとき、銀全体の (γ, γ) 反応に対する放射化断面積 σ は $1.0 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ に相当し、 $^{109\text{m}}\text{Ag}$ が 100% のときに σ は $0.7 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ に相当する。実際の場合はこの両者の中間の値をとるものと考えられる。したがって σ の値として $(0.7 \sim 1.0) \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ をとるのが妥当であろうと考えられる。

また実験Ⅱ～Ⅴについても同様にして、 σ としていずれも $(0.9 \sim 1.2) \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ の値が得られる。これらの実験データから σ として $(0.9 \sim 1.2) \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ の値を採用する。 $0.9 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ の値は 100% $^{109\text{m}}\text{Ag}$ が生成する場合の極限、 $1.2 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ の値は 100% $^{107\text{m}}\text{Ag}$ が生成する場合の極限の値である。

なおここで断っておかなければならないのは、われわれが求めた σ の値は $^{107\text{m}}\text{Ag}$ あるいは $^{109\text{m}}\text{Ag}$ の内部転換率と関連性をもっているけれども、これらの内部転換率の測定値が現在まだそれほど精度の高いものでないということである。したがって今後 $^{107\text{m}}\text{Ag}$ あるいは $^{109\text{m}}\text{Ag}$ の内部転

換率の値が改められるようになれば、われわれの求めた σ の値もそれにとまって改められなければならない。

また ^{60}Co の 1.17 MeV の γ 線は一応この反応に無効なものとして線束密度を求めたが、銀の (γ, γ) 反応のしきい値が $1.18 \pm 0.03 \text{ MeV}$ なので、 1.17 MeV の γ 線はちょうどこの誤差範囲内に来る値である。もしこの 1.17 MeV の γ 線が有効である場合には σ は前に求めた値の半分の値を取ることになる。これらについてはなお将来明らかにされるべき問題である。

1.18 MeV のところにある銀の (γ, γ) 反応の励起準位の幅はまだ計算されていないので、第4報でおこなったような σ の理論的誘導は本報ではおこなうことができなかった。

結 論

1000 c のコバルト 60γ 線源により $^{107, 109}\text{Ag}$ (γ, γ) $^{107\text{m}}, ^{109\text{m}}\text{Ag}$ 反応をおこない、その放射化断面積の値として $(0.9 \sim 1.2) \times 10^{-32} \text{ cm}^2$ を得た。またこの実験をおこなうにさいして、インジウムの (γ, γ) 反応による線量率測定法を採用した。この線量率測定法は新しいところみであるが本報における実験にはもっとも適したものと思われる。

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先生に心から感謝の意を表する。また実験に当って種々御便宜をはかって下さった五十嵐健治氏をはじめ日本放射性同位元素協会の方々にあつく御礼申上げる。

文 献

- 1) 池田, 吉原: *Radioisotopes*, **5**, (1) 11 (1956)
- 2) 池田, 吉原: *Radioisotopes*, **5**, (2) 11 (1956)
- 3) 池田, 吉原: *Radioisotopes*, **7**, 11 (1958)
- 4) 吉原, 池田: *Radioisotopes*, **7**, 17 (1958)
- 5) M. L. Wiedenbeck: *Phys. Rev.*, **67**, 92 (1945)
- 6) J. Weiss: *Nucleonics*, **10**, (7) 28 (1952)
- 7) H. Bradt, P. C. Gugelot, O. Huber, H. Medicus, P. Preiswerk, P. Scherrer, P. Steffen: *Helv.*

Phys. Acta, **20**, 153 (1947)

8) M. Heershap, O. P. Hok, G. J. Sizoo :

Physica, **16**, 767 (1950)

9) K. Siegbahn, E. Kondaiah, S. Johansson :

Nature, **164**, 405 (1949)

Radioactivation by the (γ, γ) -Reaction V

Radioactivation of Silver by the Cobalt-60 γ -Ray Irradiation

By

Nagao IKEDA, Kenji YOSHIHARA and Noriyuki MISHIO

(Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo University of Education and
Division of Isotope Applications, Japan Atomic Energy Research Institute)

(Received May 10, 1958)

Wiedenbeck⁵⁾ reported the (γ, γ) -reaction of silver using the Van de Graaff electrostatic generator as γ -ray source. No report, however, has yet been published on this problem using artificial γ -emitting radioisotopes, such as cobalt-60, as γ -ray source. In this paper, the authors studied on the radioactivation reaction of silver by γ -ray irradiation, and tried to calculate the cross-section of this reaction.

1028 curies cobalt-60 was used as the γ -ray source, and silver foil (3.33 g in weight and 40 mm $\times$ 40 mm in size) was subjected to the γ -ray irradiation for 10 ~ 15 min. The γ -ray flux (dose rate) was measured to be 7.4×10^6 r/hr by using the $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)^{115\text{m}}\text{In}$ reaction as the new dosimeter. The radioactivity produced in the silver foil was then measured with the

scintillation γ -ray counter made by the Atomic Instrument Co. connected to the pulse-height analyser (counting efficiency: 65%). In Fig. 1 is shown the decay curve of the activity, which corresponds to the half-life of 40 sec. It may be assignable to $^{107\text{m}}\text{Ag}$ (half-life: 44 sec., γ -ray energy: 0.093 MeV) or to $^{109\text{m}}\text{Ag}$ (half-life: 39 sec., γ -ray energy: 0.088 MeV) or to both of them. The half-lives and γ -ray energies of these metastable nuclides are so closely approached that it is difficult to distinguish them from each other in this experiment. The experimental data are shown in Table 1. The over-all cross-section for isomer-activation reaction of $^{107, 109}\text{Ag}(\gamma, \gamma)^{107\text{m}, 109\text{m}}\text{Ag}$ is calculated to be $(0.9 \sim 1.2) \times 10^{-32}$ cm².