

JAERI-M

6 6 6 3

ラジオグラフィ用<sup>170</sup>Tm線源の製造技術の研究

1976年8月

前 田 頌

日 本 原 子 力 研 究 所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

ラジオグラフィ用 $^{170}\text{Tm}$ 線源の製造技術の研究

日本原子力研究所アイソトープ事業部利用開発室

前 田 頌

( 1976年7月15日受理 )

トリウム・ターゲットをJRR-2で照射して $^{170}\text{Tm}$ 小線源を試験製造し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の製造に必要なターゲットの調製、原子炉照射、ホットセル内における $^{170}\text{Tm}$ 線源のハンドリング、線源カプセルなどについて検討を行なった。

それらの結果をもとにして、JMTRによる実用規模(3mm $\phi$ ×3mmで1個29-49Ci)のラジオグラフィ用 $^{170}\text{Tm}$ 線源の試験製造を行なった。

Studies on the Method of Producing  
Radiographic  $^{170}\text{Tm}$  Source

Shō MAEDA

Application and Development Section  
Radioisotope Center, JAERI

( Received July 15, 1976 )

A method of producing radiographic  $^{170}\text{Tm}$  source has been studied, including target preparation, neutron irradiation, handling of the irradiated target in the hot cell and source capsules. On the basis of the results, practical  $^{170}\text{Tm}$  radiographic sources (29 ~ 49Ci, with pellets 3mm in diameter and 3mm long) were produced in trial by neutron irradiation with the JMTR.

## 目 次

I	序 論	1
II	製造技術の開発	3
1	ターゲット調製	3
1.1	概 説	3
1.2	材 料	3
1.2.1	金属トリウム	4
1.2.2	酸化トリウム	4
1.3	酸化トリウム・ペレットの調製	4
1.3.1	成型と焼成	4
1.3.1.1	実 験	4
1.3.1.2	結果と考察	4
1.3.2	焼成容器	8
1.4	ま と め	10
2	原子炉照射	10
2.1	概 説	10
2.2	熱中性子自己遮蔽	10
2.2.1	理 論	10
2.2.2	実 験	10
2.2.3	結果と考察	11
2.3	照射条件と $^{170}\text{Tm}$ 生成量の関係	11
2.3.1	理 論	11
2.3.2	実 験	13
2.3.3	結果と考察	13
2.4	JMTR用照射カプセル	13
2.4.1	構 造	13
2.4.2	検 査	15
2.5	ま と め	16
3	線源カプセル	16
3.1	概 説	16
3.2	材質と形状	16
3.3	$^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ ペレット封入法の問題点	19
3.3.1	$^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 微粒子発生の原因	19
3.3.2	実 験	19
3.3.3	結果と考察	19
3.3.4	$^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 微粒子の分析	19
3.3.5	結果と考察	21

3.4	封入法問題点の対策	21
3.5	封入方法	24
3.6	ま と め	25
Ⅲ	JMTRによる試験製造	27
1	概 説	27
2	ターゲット	27
3	ターゲットの熱中性子照射	28
4	放射化学ケーブル	28
5	ケーブル内における線源の取扱い	28
6	$^{170}\text{Tm}$ 生成量	34
6.1	測定結果	34
6.2	計算結果	34
7	考 察	37
Ⅳ	む す び	38
謝 辞		38
文 献		39

# I 序 論

放射線透過撮影試験法は非破壊試験法のうちでは歴史的にもっとも古く、しかも実用上有力な方法である。X線およびγ線は物体を透過する能力が大きく、かつフィルムを感光する能力があるので、この性質を利用して、物体内部の状態を調べようとする方法である。放射線源としては、工業用X線装置、ベータートロン、エレクトロン・リニヤアグセラレータなどのほかに、ラジオアイソトープを利用したγ・X線源などが用いられる。ラジオアイソトープ線源の特徴は、軽量、小型、電源が不要なことであり、ことにγ・X線発生部分が小さいことから、複雑な構造物などで、X線装置の持込みができないような条件下での検査に利用されることが多い。放射線透過検査に利用されるラジオアイソトープ線源のおもなものは、そのγ・X線エネルギー順に列挙すると、 $^{60}\text{Co}$  (γ, 1.17 MeV, 1.33 MeV),  $^{137}\text{Cs}$  (γ, 0.66 MeV),  $^{192}\text{Ir}$  (γ, 平均 0.23 MeV) および  $^{170}\text{Tm}$  (γ, 0.084 MeV, X, 0.052 MeV) である。このうち  $^{60}\text{Co}$  はもっとも古くから使用されている線源で鉄で 3 cm ~ 10 cm 程度の厚物検査に用いられる。線源は 1 個 1 mmφ × 1 mm, 1 Ci の線源を, Ci 数に応じて SUS カプセルに詰め合せ, 2 重に溶接封入したものである。 $^{137}\text{Cs}$  は  $^{60}\text{Co}$  に比べてやや薄物の検査を対象にした線源で,  $^{137}\text{CsCl}_2$  (形状は一例をあげると, 4 mmφ × 6 mm, 5 Ci) を SUS 製カプセルに 2 重に封入して用いる。 $^{192}\text{Ir}$  線源は昭和 45 年度から国産されるようになって急速にその利用が広まった線源である。その透過検査使用範囲は鉄で 50 mm 以下であり, 2 mmφ × 2 mm, 1 個 10 Ci の線源が SUS 製カプセルに封入されて使用されている。 $^{170}\text{Tm}$  はエネルギー的には,  $^{192}\text{Ir}$  よりさらに低い部分を受け持つ線源で, 鉄で 10 mm 以下の薄物および軽合金などの放射線透過撮影試験に用いられる<sup>(1)~(5)</sup>。国外の製造例をカタログよりみると, 英国 (RCC) では 3 mmφ × 3 mm の  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  で 30 Ci の線源,<sup>(6)</sup> フランス・ベルギー・イタリア (共通のカタログ) では 3 mmφ × 3 mm で 100 Ci 以下の線源<sup>(7)</sup> が製造されている。

国内における  $^{170}\text{Tm}$  線源の使用例は (本研究がなされる前) 研究例<sup>(4)</sup> が一例あるだけで, 実用に供された例はない。しかし短半減期のラジオアイソトープ線源は, 国産化されないと利用されにくい面があり, したがって国産化され, 供給が安定すればまた事情も変ると思われる。

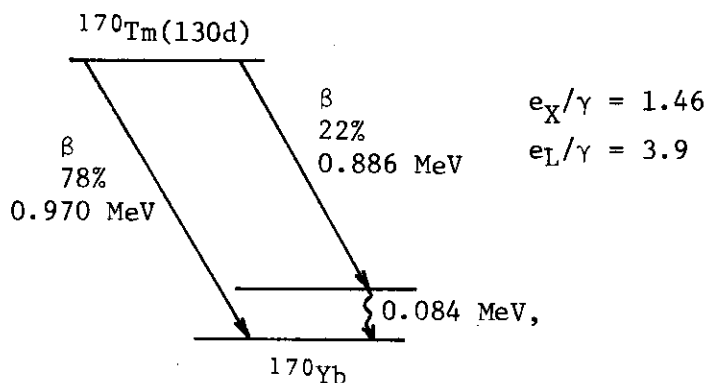


Fig. 1 Decay scheme for  $^{170}\text{Tm}$

$^{170}\text{Tm}$ 線源から放射される放射線は、Fig 1 にみられるように一次放射線として0.970 および0.886 Mevの $\beta$ 線、84 Kevの $\gamma$ 線(3%)、内部転換による52 KevのYb KX線(5%)があり、二次放射線として $\beta$ 線の吸収にともなって発生する制動X線および各放射線に励起されて発生するTm KX線(50.7 Kev)がある。

$^{170}\text{Tm}$ 線源はRhm値が0.0025 (R/hr·Ci at 1m)と小さく( $^{60}\text{Co}$ は1.3 R/hr·Ci at 1m)、実用線源としては $10\sim 10^2$  Ciの線源が要求される。しかし線源寸法を大きくすることは、利用上線源特性の低下をまねくために限度があり、寸法をできるだけ小さく押えて線量率の大きな線源をつくる必要がある。また出力 $\gamma$ 、X線に制動X線および特性X線の二次放射線を含むため、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の線量率およびそのエネルギースペクトルは、線源形状によって複雑に変化するの、線源を設計するさいにはこの関係を知らなければならない。

$^{170}\text{Tm}$ 線源の開発研究は昭和44年度から開始した。当時建設中のJMTRが、昭和46年度には完成、運転開始の予定であり、この原子炉による高熱中性子束( $4\times 10^{14}$  n·cm $^{-2}$ ·sec $^{-1}$ )で照射すれば、比放射能の高い $^{170}\text{Tm}$ 線源の製造が可能であると考えた。昭和44~45年に酸化トリウム・ペレットおよび金属トリウム・ペレットをJRR-2でくり返し照射して、 $^{170}\text{Tm}$ 小線源を試作し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源製造に関するいくつかの問題点、たとえばホットセル内におけるハンドリング、線源カプセル、原子炉照射、線源形状と出力線量率の関係などについて検討を行なった。

昭和45年度(この年度よりJMTRが試験照射を開始した)にこれまでの実験結果をもとにして、金属トリウムをターゲットにした1個30 Ciの $^{170}\text{Tm}$ 線源13個を試験製造した。さらに昭和46年度には酸化トリウム・ペレットをターゲットにした約44 Ciの $^{170}\text{Tm}$ 線源を10個試験製造した。

昭和45年度には英国RCCより22 Ci線源を購入し、それを用いて $^{170}\text{Tm}$ ラジオグラフィに関する実験データ(露出曲線、欠陥識別能、増感率など)を集積した。<sup>(8)</sup>その応用として航空機械体の非破壊検査に $^{170}\text{Tm}$ 線源を適用して成功した。<sup>(5)</sup>また昭和46年度には $^{170}\text{Tm}$ 線源用照射機を設計・製作した。<sup>(9)</sup>従来 $^{170}\text{Tm}$ 線源の使用された例は国内においては一例しかなくそのために照射機が使用されたことはない。しかし一般にその利用を広めるためには、専用の照射機が必要であり、また照射機の設計には、線源の放射線特性および形状など線源製造サイドのデータが必要であるため、著者らがこれを行なった。

本報告は昭和44年度以降行なってきた非破壊検査用 $^{170}\text{Tm}$ 線源の設計・製造法についての検討結果<sup>(9), (10)</sup>およびそれをもとにして行なったJMTRによる実用線源の試験製造例についてまとめたものである。 $^{170}\text{Tm}$ 線源の非破壊検査用線源としての特性、応用例および照射機については、次の機会にまとめて報告する予定である。



## II 製造技術の開発

### 1 ターゲットの調製

#### 1.1 概 説

$^{170}\text{Tm}$ は $^{169}\text{Tm}$ を熱中性子照射し、 $^{169}\text{Tm}(n, \gamma)^{170}\text{Tm}$ の反応によってつくられる。 $\text{Tm}$ を含む化合物は種々あり、 $^{170}\text{Tm}$ を線源として用いる場合は、化学的、物理的にどのようなターゲットを用いるべきかいくつかの選択がある。ここでは材料、加工方法などを含めて、 $^{170}\text{Tm}$ 線源のターゲットの調製法について検討した。なお $\text{Tm}$ は一般に用途の少ない希土類元素であり、化学的、物理的特性に関するデータは少ないが、最近における研究成果<sup>(1)~(15)</sup>を参考にした。

#### 1.2 材 料

##### 1.2.1 金属ツリウム

金属ツリウムのおもな特性はTable 1に示すとおりである。融点および沸点はそれぞれ1580℃および1680℃と酸化ツリウムのそれと比較して低く、とくに蒸気圧が高いので、1000℃程度ですでに昇華が行なわれ、普通の電気炉で加熱すると融点に達しないうちに気化する。

Table 1 Thermophysical properties of thulium oxide and metal

	$\text{Tm}_2\text{O}_3$	$\text{Tm}$
Structure	To 2550°K: Body-centered cubic, $a=10,482\text{\AA}$ To melting: Hexagonal, $a=3.78\text{\AA}$ $c=6.04\text{\AA}$	Hexagonal, $a=3.5375\text{\AA}$ $c=5.5546\text{\AA}$
Density, $\text{g/cm}^3$	8.884 X-ray	9.318, X-ray
Melting point, °K	2650 ± 25	1818 ± 5
Boiling point, °K	4420 ± 300	2005
Heat of formation, Kcal/mole, 298°K	-451.4	4.025
Heat of vaporization, Kcal/mole, 298°K	748.3	59.1
Vapor pressure, atm	$\log P=7.37 - \frac{31500}{T(\text{K})}$ $4.2 \times 10^{-9}$ (at 2000°K)	$\log P=2.24 - \frac{12552}{T(\text{K})}$ $8.7 \times 10^{-3}$ (at 1500°K)

また耐酸性も小さく、火災などの事故を考えると安全上不安が残る。

また金属ツリウムは、製造工程（高温で酸化ツリウムを還元して得るが、溶解用ルツボにタンタル製のものを用いるのでタンタルによる汚染が生じる）においてタンタルが不純物として混入してくるが、タンタルは放射化されるとエネルギーの高い $\gamma$ 線を放射する。 $^{182}\text{Ta}$  ( $\gamma$ , 0.066 ~ 1.29 MeV) が生成し、 $^{170}\text{Tm}$  線源を貯蔵する場合の妨害核種として作用する。さらに金属ツリウムを溶解、加工するには特別な経験、技術が必要であるが、調査の限りでは、国内で金属ツリウムを取り扱った経験のあるメーカーはなかった。

金属ツリウムは、密度  $9.3 \text{ (g/cm}^3\text{)}$  で、酸化ツリウムの理論密度  $8.3 \text{ (g/cm}^3\text{)}$  より大きく、生成放射能もそれだけ大きくなる。しかし $^{170}\text{Tm}$  の $\gamma$ ・X線は低エネルギーであるため、線源内での自己吸収が大きく、線源密度をある程度以上大きくしても、結果的にエネルギーの高いX線成分が相対的に増加することになり、必ずしも良い結果は得られない。 $^{170}\text{Tm}$  線源の線量率は、線源密度よりむしろ観測点から線源を見込む角度の大きさ、すなわち被写体からみた線源の大きさでほぼきまり、線源-観測点方向の厚さは約  $2.5 \text{ g/cm}^2$  (3mm) が実用的に限界である。したがって金属ツリウムをターゲットに用いて放射能を大きくしても多くの効果な期待できない。

### 1.2.2 酸化ツリウム

酸化ツリウムは、融点  $2380^\circ\text{C}$ 、沸点  $4200^\circ\text{C}$  であり、金属ツリウムに比較して熱的安定性が大きい。また耐蝕性もよく、化学的にも比較的安定である。原料も純度  $99.9\%$  の市販の粉末がそのまま使用できる。粉末試料をダイスで加圧成型し、電気炉で焼成すると、任意の形状のペレットが調製できる。実際に作り得る酸化ツリウムペレットの密度は約  $8 \text{ (g/cm}^3\text{)}$  であり、金属ツリウムのそれに比較して小さい。しかしこの程度の密度の差では線源の性能に有意な差は生じない。さらに安全性、価格などの条件を考慮すると、ターゲットとしては酸化ツリウムが優ると思われる。

## 1.3 酸化ツリウムペレットの調製

### 1.3.1 成型および焼成

#### 1.3.1.1 実験

純度  $99.9\%$  の酸化ツリウム粉末を、Fig 2 に示す  $3.7 \text{ mm}\phi \times 3.7 \text{ mm}$  のダイスを用い、約  $1500 \text{ kg/cm}^2$  の圧力で加圧成型した。これを電気炉で  $1500^\circ\text{C}$ 、約 3 時間か焼し、さらに真空高温炉 (Fig 3) で  $2200^\circ\text{C}$ 、約 1 hr 焼成した。か焼を行なうのは、高温炉で焼成するさいのハンドリングを容易にするためである。

#### 1.3.1.2 結果と考察

酸化ツリウム粉末をダイスで成型直後は、ペレットのかさ密度は  $5.5 \text{ (g/cm}^3\text{)}$  程度<sup>06</sup> であるが、焼成後は約  $8 \text{ (g/cm}^3\text{)}$ 、寸法は  $3 \text{ mm}\phi \times 3 \text{ mm}$  になる。また成型圧力の若干の大小は十分な焼成を行なった場合、最終製品のかさ密度に大きな影響を与えないので、加圧力は成型可能な程度の圧力で十分である。Tab 2 は焼成条件を変えた場合のペレット密度の変化を示す。Fig 4 および Fig 5 は  $2200^\circ\text{C}$ 、1 hr 焼成した酸化ツリウム・ペレットの外観写真および顕微鏡写真である。

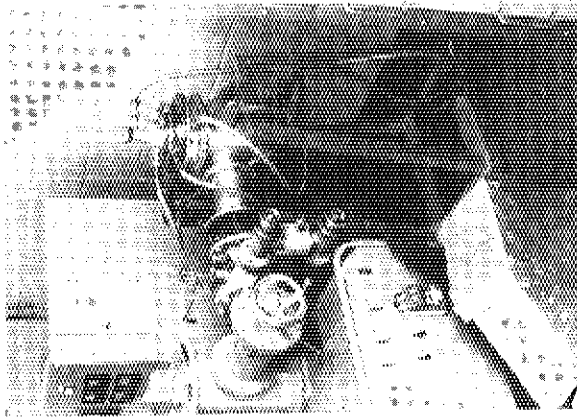


Fig. 3 High temperature electric furnace used for sintering thulium oxide pellets

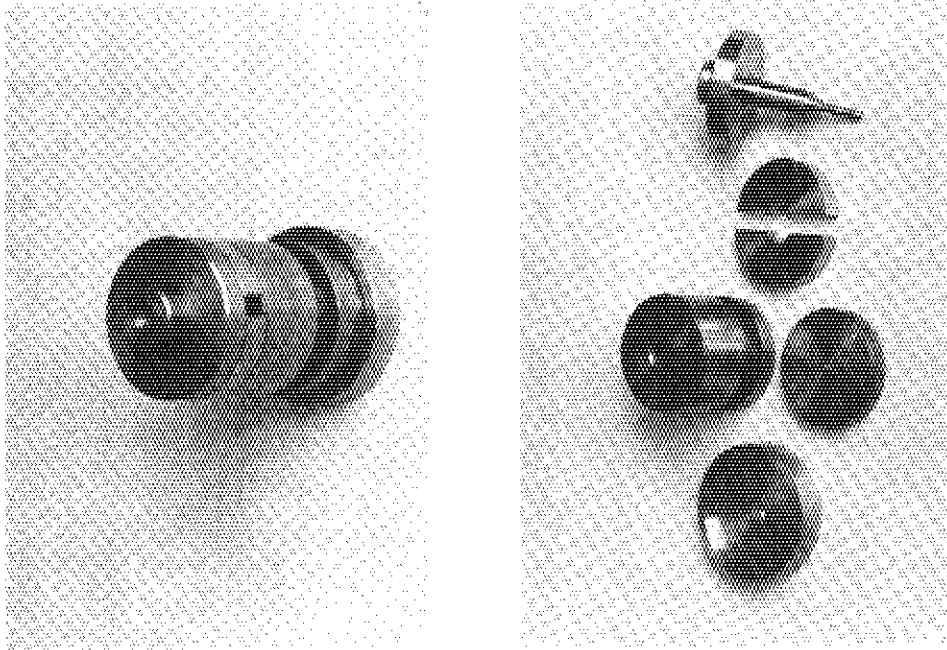


Fig. 2 Die set for pressing the thulium oxide pellets

Table 2 Relation between Density of thulium oxide pellets after sintering and sintering conditions

Sintering condition	Size (mm)	Weight (mg)	Density (g/cm <sup>3</sup> )
2000°C 1 hr	3.3φ × 3.4	208.1	7.16
	3.3φ × 3.5	212.9	7.11
			Average, 7.13
2100°C 1 hr	3.25φ × 3.55	210.3	7.14
	3.2φ × 3.75	209.9	7.30
			Average, 7.22
2200°C 1 hr	3.15φ × 3.65	206.2	7.91
	3.15φ × 3.6	205.9	8.01
	3.15φ × 3.9	202.9	7.29
	3.15φ × 3.8	206.6	7.62
	3.18φ × 3.28	201.8	8.62
	3.1φ × 4.0	211.5	7.43
	3.15φ × 4.0	210.8	7.38
	3.23φ × 3.6	209.0	8.08
	3.15φ × 3.8	212.1	7.82
	3.1φ × 3.65	206.1	7.94
			Average, 7.81
2250°C 1 hr	3.1φ × 3.3	201.0	8.07
	3.1φ × 3.3	202.4	8.13
			Average, 8.10

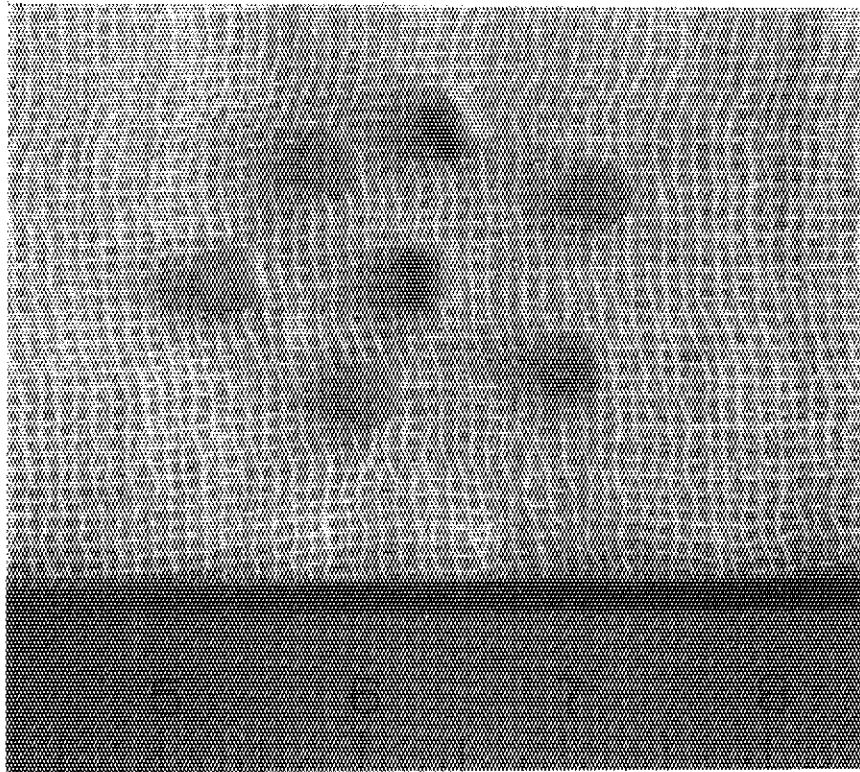
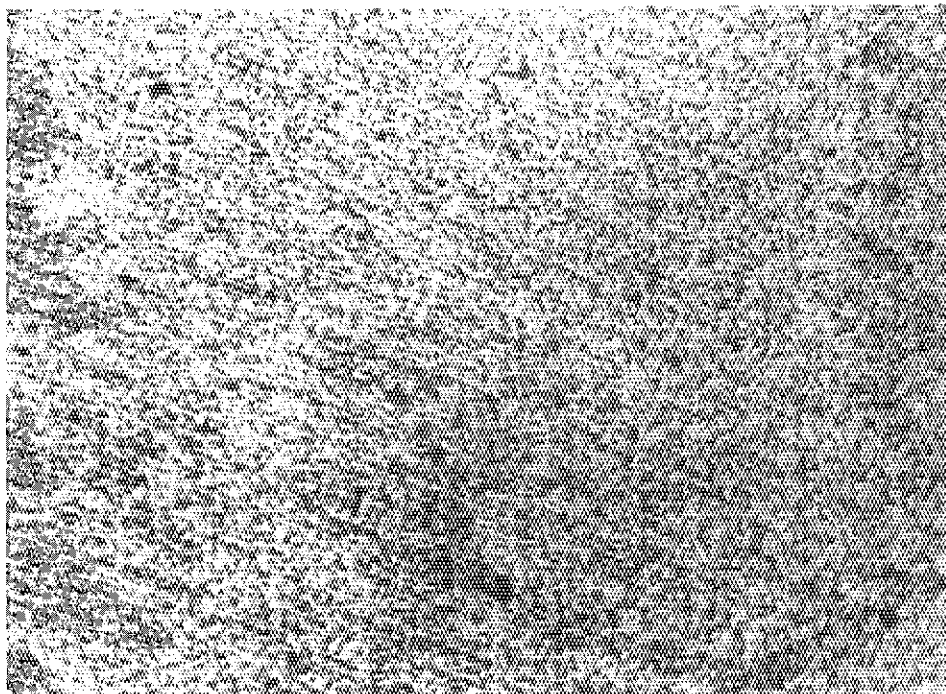


Fig. 4 Thulium oxide pellets aged 2300°C for 1 hour



0.5mm

Fig. 5 Microscope photograph of the  $Tm_2O_3$  pellet aged 2300°C 1 hour

### 1.3.2 焼成容器

焼成するさいには、容器の材料に注意する必要がある。2200℃の高温でペレット焼成容器として使用可能な材料は、タングステン、タンタルおよびグラファイトなどである。このうちタンタルは加工性が良く、一見適当な材料に思える。しかし2200℃の高温下で酸化トリウムと接触させると、拡散現象によって、酸化トリウム・ペレットがタンタルで汚染される。この酸化トリウム・ペレットを熱中性子照射すると、 $^{170}\text{Tm}$ のほかに $^{182}\text{Ta}$ （半減期115日、 $E_\gamma$  0.066~1.29 MeV）が生成される。

Fig 6はタンタルツボ内で2200℃、1時間焼成した酸化トリウム・ペレットの熱中性子照射後の $\gamma$ 、X線エネルギー・スペクトルであるが、 $^{182}\text{Ta}$ の $\gamma$ 線ピークがみられる。 $^{170}\text{Tm}$ の $\gamma$ 、X線に比べて量的には少ないが、遮蔽容器に入れた場合、エネルギーの高い $^{182}\text{Ta}$  $\gamma$ 線のために、予想以上の漏洩線量になる。Fig 7に $^{182}\text{Ta}$ で汚染した $^{170}\text{Tm}$ 線源を2 cm厚さの鉛容器に入れた場合の $\gamma$ 、X線スペクトルを示す。容器に入れた場合、エネルギーの高い $^{182}\text{Ta}$  $\gamma$ 線成分の強度が相対的に大きくなっていることがわかる。

グラファイトは高温において酸化トリウムを還元し、トリウムを分離する。もちろん分離されたトリウムは高温中でただちに気化する。このようにグラファイトを容器に用いると、結果的に酸化トリウムは気化することになるので、焼成容器としては使用できない。熱中性照射でタングステンから生成される放射性核種には、利用上も貯蔵にさいしても、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の妨害になるものはない。したがって、タングステンを酸化トリウム・ペレット焼成の容器として用いる場合は、多少タングステンがペレットに混入しても実用上さしつかえない。以上、検討の結果、酸化トリウム・ペレットを高温で焼成する容器の材料には、タングステン（実際に手づくりするにはタングステン・ワイヤーでFig 8に示すようなバスケットを作って使用するとよい）が最適と思われる。

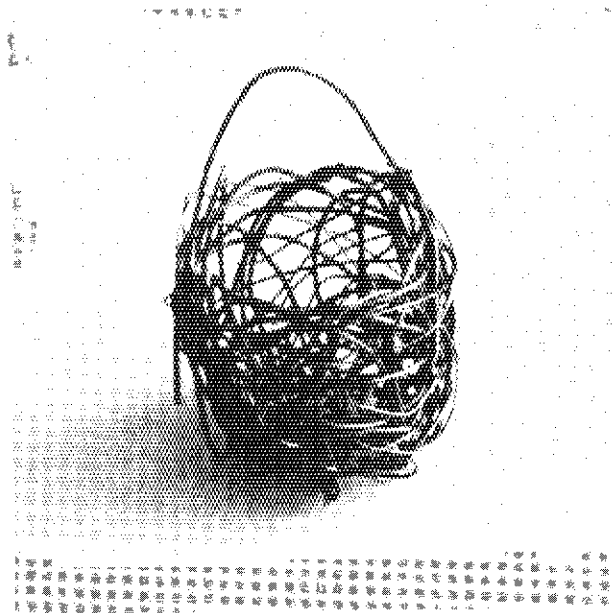


Fig. 8 Tungsten basket used for sintering of thulium oxide pellets

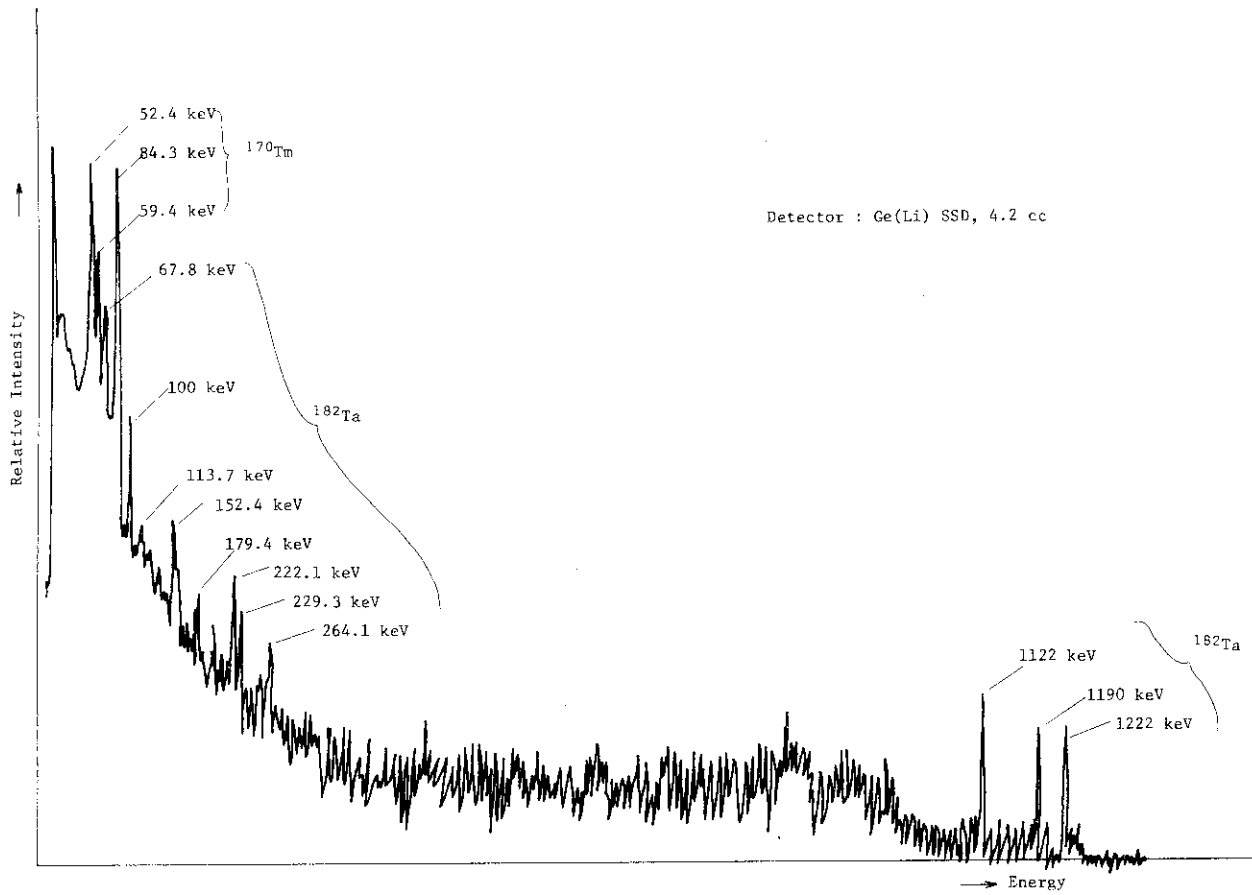


Fig. 6  $\gamma$  and X-ray energy spectrum of  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  was contaminated by  $^{182}\text{Ta}$

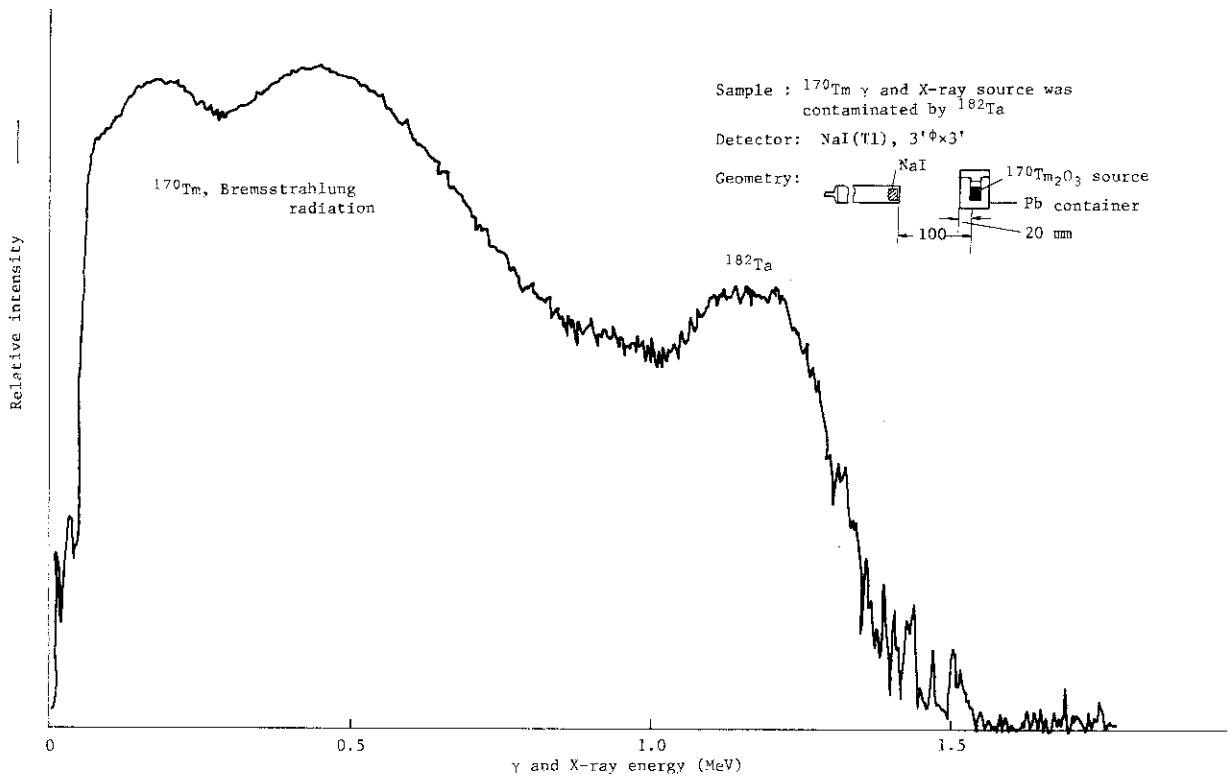


Fig. 7  $\gamma$  and X-ray energy spectrum of  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  contaminated by  $^{182}\text{Ta}$  in the lead container of 20 mm thick.

## 1.4 ま と め

ターゲットの材料としては、金属ツリウムと酸化ツリウムを比較検討したが、耐熱性、耐蝕性などの安全上の問題、加工が簡単なことなどを考慮して、酸化ツリウムを用いることにした。酸化ツリウムを成型後2200℃で1時間焼成を行なうと、密度約8のペレットができる。ペレットを焼成する容器は、高温下で長時間試料を接触しているので、拡散による容器からの試料の汚染または容器物質との化学反応などが起ることを防ぐためにタングステンを用いた。

## 2 原子炉照射

### 2.1 概 説

原子炉で酸化ツリウム・ペレットを熱中性子照射し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源を製造する場合、大きな放射能の線源が得られるような効率の良い照射方法の検討と $^{170}\text{Tm}$ 生成放射能の前もつての推定が必要である。そのために以下に示す3つの項目について検討した。(1)ターゲットの熱中性子自己遮蔽効果、(2)自己遮蔽効果のない場合の照射条件と $^{170}\text{Tm}$ 生成量の関係、(3)JMTRで試料を照射する場合の照射カプセル。

### 2.2 熱中性子自己遮蔽

#### 2.2.1 理 論

酸化ツリウム・ペレットを原子炉で熱中性子照射する場合、ペレットの大きさに応じて熱中性子の試料中での吸収が起り、みかけ上熱中性子線束が減少する。平均熱中性子線束密度  $\phi_0$  ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ ) の中に  $1 \text{ cm}^3$  の物体をおいた場合、その物体によって1秒間に吸収される熱中性子数は

$$\sigma \Phi = \sigma (\Phi / \phi_0) \phi_0 \equiv \sigma F \phi_0 \dots\dots\dots (1)$$

と表わせる。 $\sigma$ はその物体の中性子吸収断面積、 $\Phi$ はみかけの中性子線束密度 ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ )、 $F$ は中性子自己遮蔽係数である。試料形状を半径  $a$  の球とすると、 $F$ は理論的に次式で表わされる。<sup>(17)</sup>

$$F = \frac{3}{4} \left( \frac{1}{\sigma a} \right)^3 \left[ (\sigma a + \frac{1}{2}) e^{-2\sigma a} + (\sigma a)^2 - \frac{1}{2} \right] \dots\dots\dots (2)$$

3mm $\phi$ ×3mmの酸化ツリウム・ペレットを同体積の球として、すなわち  $a = 0.17 \text{ cm}$ 、そして  $\sigma = 125 \text{ (barn)}$  として(2)式から  $F$ を計算すると、 $F = 0.66$ となる。

#### 2.2.2 実 験

3mm $\phi$ ×3mmの酸化ツリウム・ペレット(175mg)と8.4mgの金属ツリウム(実験的に中性子自己遮蔽が無視できる量)小片をJRR-2において熱中性子照射した(熱中性子束密度  $3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ 、照射時間20min)。しばらく冷却した後、それぞれ試料を塩酸溶液に溶解したうえ、定量的に希釈し、その一部(約4m $\mu$ Ci)をライフアン膜(厚さ0.55mg/cm $^2$ )上にとって蒸発乾固し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の自己吸収が無視できる状態(計算上1%の減弱)にして、4 $\pi$ ガスフロー型比例計数管(TEN, MODEL, GM-917)で $\beta$ 線計測を行なった。測定された両試料の放射能の比較から(2)式によって熱中性子自己遮蔽係数を求めた。



### 2.2.3 結果と考察

実験の結果、3mmφ×3mmの酸化トリウム・ペレットの熱中性子自己遮蔽係数Fは0.64であった。この値を理論値のF=0.66と比較すると良い一致がみられるが、この結果は、この程度の大きさの酸化トリウム・ペレットならば、円柱試料を球状試料とみなして計算しても、大きな誤差にはならないことを示している。

Fig 9は3mmφ×3mmの酸化トリウム・ペレットを熱中性子照射して作った<sup>170</sup>Tm線源のピンホール写真の黒化度をマイクロトメータで走査して、放射線出力分布に直したものである。線源中央部の放射線出力が周囲のそれよりも低くなっているのがわかる。

## 2.3 照射条件と<sup>170</sup>Tm生成量

### 2.3.1 理論

トリウムを含むターゲットを熱中性子照射する場合、t時間後の<sup>170</sup>Tm生成量A(Ci/g)は次式で示される。

$$A = \frac{\theta \lambda N_0 \phi F \sigma_a M}{3.7 \times 10^{10} (F \phi \sigma_b - F \phi \sigma_a + \lambda)} \{ \exp(-F \phi \sigma_a t) - \exp(-F \phi \sigma_b t - \lambda t) \} \dots \dots \dots (3)$$

ここで

$\theta$  : ターゲット中の<sup>169</sup>Tmの割合

$\lambda$  : <sup>170</sup>Tmの壊変定数 (sec<sup>-1</sup>)

$N_0$  : ターゲット1gの原子数

$\phi$  : 熱中性子線束密度 (cm<sup>-2</sup>・sec<sup>-1</sup>)

F : 熱中性子自己遮蔽係数

$\sigma_a$  : <sup>169</sup>Tm → <sup>170</sup>Tmの熱中性子放射化断面積, 125 (barn)

$\sigma_b$  : <sup>170</sup>Tm → <sup>171</sup>Tmの熱中性子放射化断面積, 150 (barn)

t : 照射時間 (sec)

M : ターゲットの重量 (g)

トリウムを熱中性子照射する場合、生成された<sup>170</sup>Tmは<sup>170</sup>Tm(n, γ)<sup>171</sup>Tm反応によってさらに<sup>171</sup>Tmに変換される。したがって<sup>170</sup>Tmの生成がある程度進むと<sup>170</sup>Tm → <sup>171</sup>Tmの反応も進行し<sup>170</sup>Tm量は減少してくる。熱中性子線束密度をパラメータにとった場合の照射時間と<sup>170</sup>Tm生成量の関係はFig 10にみられるように、高線束密度、長時間照射の場合、<sup>170</sup>Tm量の減少が著しい。

<sup>170</sup>Tm実用線源の製造に利用できる原子炉は、国内では材料試験炉(JMTR)であるが、1サイクルの照射期間を28日とし、熱中性子線束密度 $3 \times 10^{14}$  n・cm<sup>-2</sup>・sec<sup>-1</sup>の照射位置で2サイクル照射すると、生成される<sup>170</sup>Tm線源(3mmφ×3mm)は1個約50~80Ciと計算される(サイクル間の休止期間および照射終了後の冷却期間によって、生成量はことなってくるが、大まかな値として)

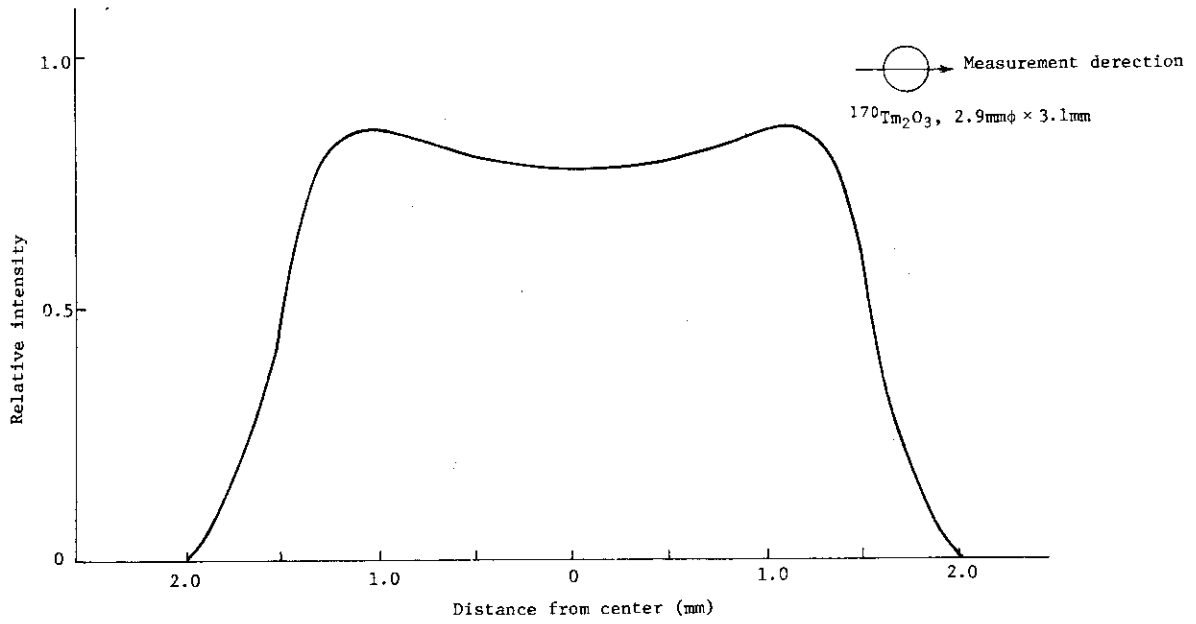


Fig. 9 Distribution of  $\gamma$  and X-ray intensity of the  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  radiographic source

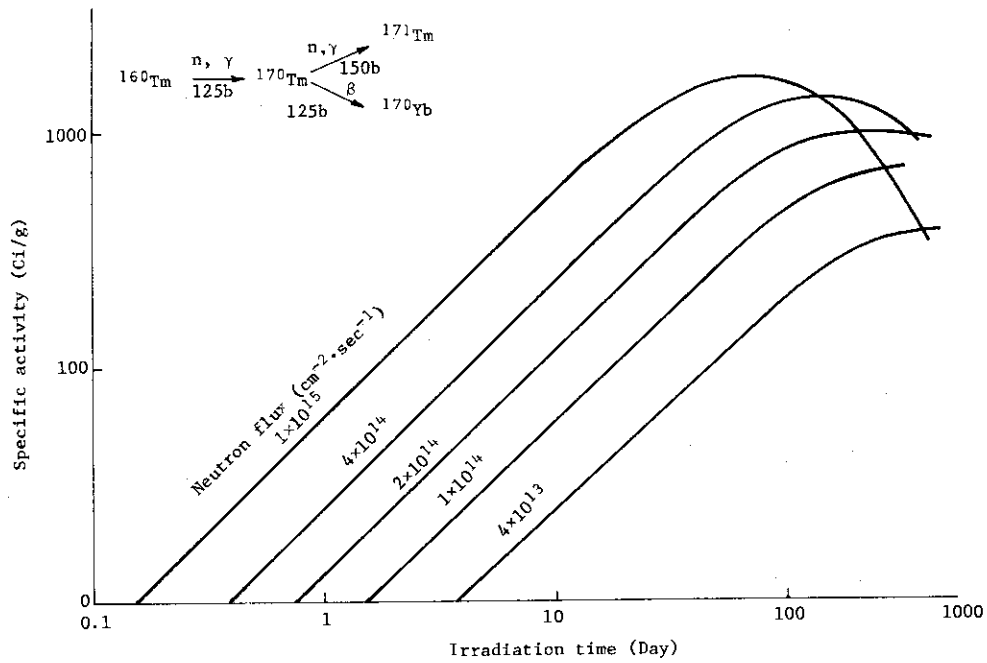


Fig. 10 Relation between  $^{170}\text{Tm}$  yield and neutron irradiation conditions

### 2.3.2 実験

ツリウムを原子炉で照射する場合の $^{170}\text{Tm}$ 生成量を(3)式から推定する方法の妥当性を確認するために以下の実験を行なった。金属ツリウムおよび1.3で示した方法で調製した酸化ツリウム・ペレットを原子炉で熱中性子照射した後、その放射能を測定し、あらかじめ理論的に求めた値と比較した。 $^{170}\text{Tm}$ 線源の放射能測定は、2.2において行なった方法にしたがった。

### 2.3.3 結果と考察

Table 3はツリウムをJRR-2で照射した場合の $^{170}\text{Tm}$ 生成量の実測値と理論値との比較であるが、誤差は平均12%となっている。中性子線束密度の測定には、コバルト・ワイヤーを試料と同時に照射し、生成される $^{60}\text{Co}$ の放射能を測定してそれから算出した。原子炉はJRR-2を使用したので、 $^{170}\text{Tm}$ 線源としては放射能レベルの低いところでの照射実験であり、この結果がそのまま高比放射能線源の製造結果に結びつくとは限らないが、生成放射能の計算値の誤差範囲は推定できる。

Table 3 Comparison of theoretical and experimental values of radioactivities of the  $^{170}\text{Tm}$  source produced by neutron irradiation of thulium oxide and metal targets in JRR-2

Target material	Size (mm)	Weight (mg)	Neutron flux ( $\text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$ )	Irradiation time	$^{170}\text{Tm}$ yield		Experimental Theoretical
					Theoretical	Experimental	
Tm	3.0φ×3.0	170.6	$2.5 \times 10^{13}$	288 hr	2.4 Ci	2.4 Ci	1.0
		172.7			2.4 Ci	2.6 Ci	0.92
		172.8			2.4 Ci	2.6 Ci	0.92
		174.7	$3.7 \times 10^{13}$	20 min	4.4 mCi	6.2 mCi	0.71
		172.6	$5.0 \times 10^{13}$	1 min	0.25 mCi	0.29 mCi	0.86
Tm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.2φ×3.2	181.2			0.26 mCi	0.27 mCi	0.96

## 2.4 JMTR用照射カプセル

### 2.4.1 構造

JRR-2で試料を照射する場合は、アルミニウムまたはポリエチレンの簡単なカプセルを使用するが、JMTRの場合は、中性子束線密度も大きく、照射時間も長いので、照射カプセルはきびしく規格化されている。

Fig 11およびFig 12はJMTRで酸化ツリウム・ペレットを照射するためのカプセルである。外筒は厚さ3mmのアルミニウム(2S)を用い、上部はヘリウム雰囲気中でアーク溶接で封入する。試料ホルダは、アルミニウム円柱に5本の孔を開けたもので、この孔に酸化ツリウム・ペレットとアルミニウム・スペーサを交互に結める。中央の孔はフラックスモニターを入れる孔である。試料ホルダ1個の孔に酸化ツリウム・ペレット5~8個入れることができるので、照射カプセル1個で20~30個の酸化ツリウム・ペレットの照射が可能である。照射カプセル材料をすべてアルミニウムとしたのは、照射後の放射能が短期間で減衰すること、熱伝導の良いこと、酸化ツリウムと化学的に反応しないこと、溶接封入が容易であること、照射後の切断開封が容易であることなどのためである。照射後はカプセル材料中の不純物などにより生成された放射能の減衰をまつため、2週間程度の冷却期間をとってホットセル内でカプセル・カッターを用いて上部を切断し、内部の試料を取り出す。

①	Plug
②	Outer cylinder
③	Spacer
④	Holder
⑤	Spacer
⑥	Sample case
⑦	Quartz wool

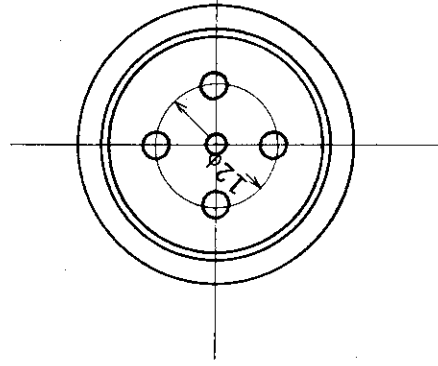
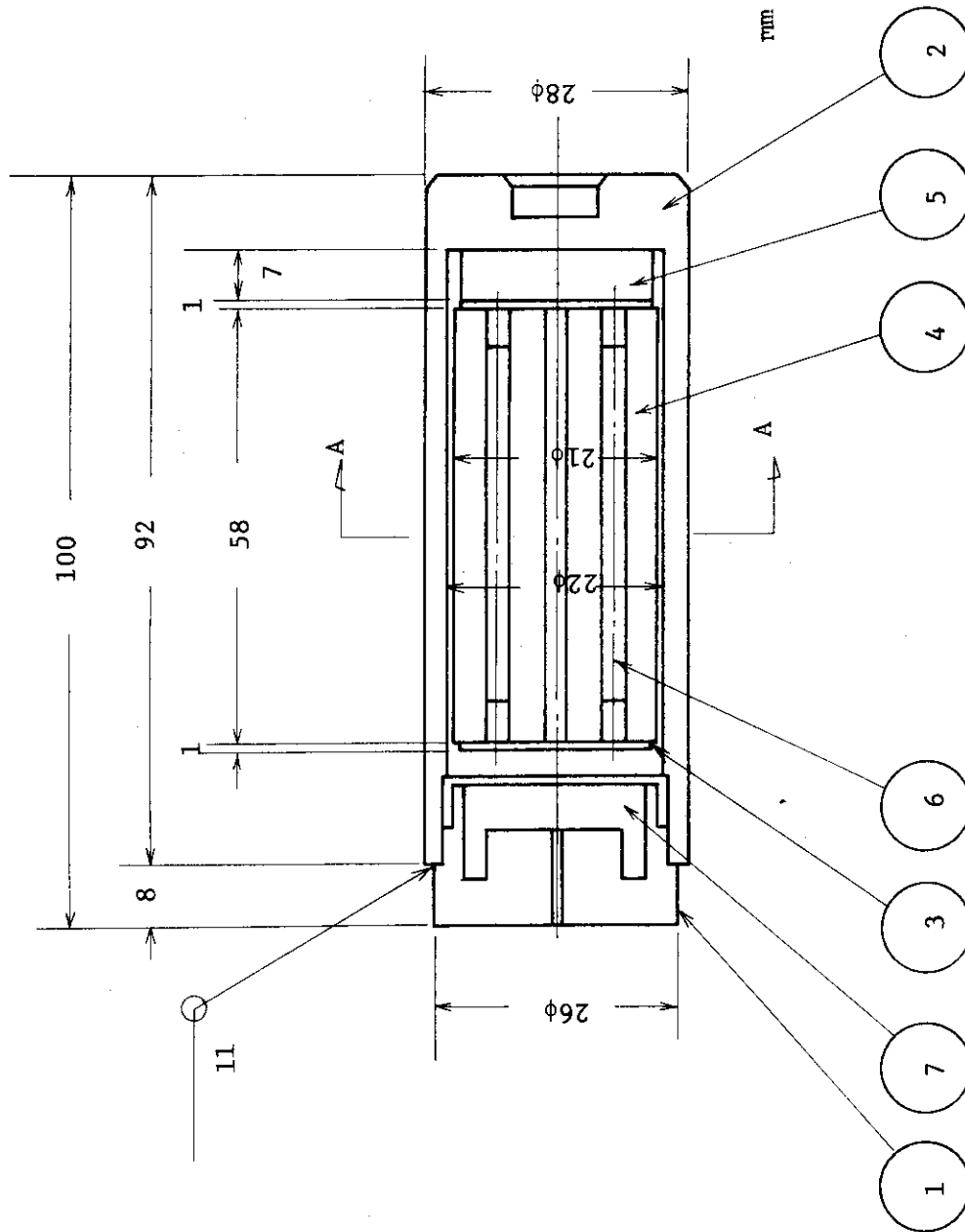


Fig. 11 JMTR irradiation capsule used for irradiation of thulium oxide pellets

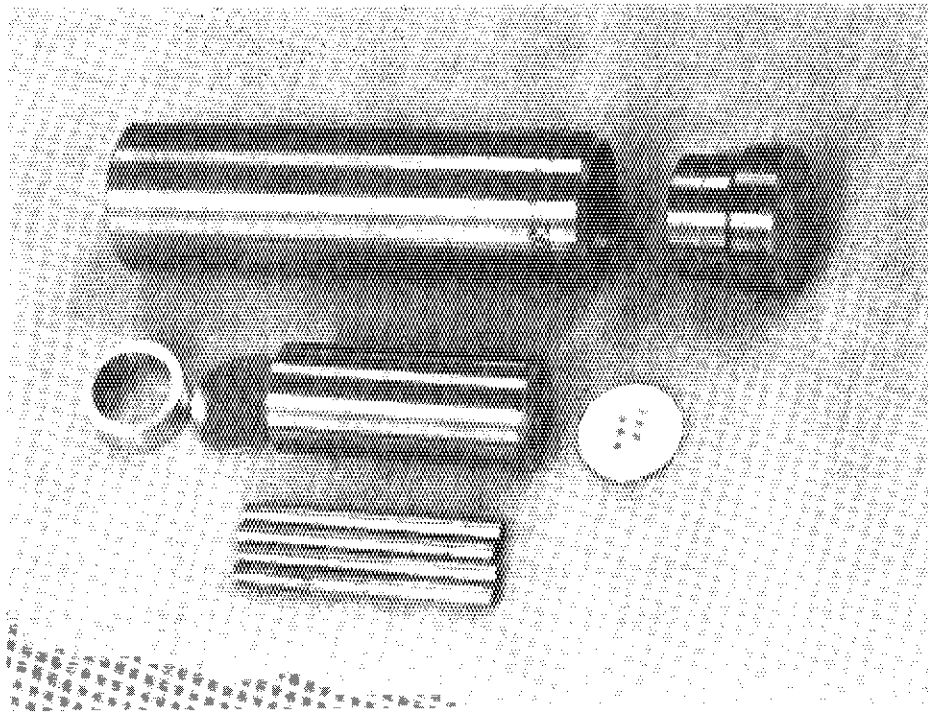


Fig. 12 Photograph of JMTR irradiation capsule for thulium oxide pellets

#### 2.4.2 検 査

照射カプセルの各部品は製作された段階で、以下に示す単品検査を行なう。

- (1) 外観検査
- (2) 寸法検査
- (3) 真直度検査 (  $1/1500$  以下であること )
- (4) 素材組成および材料試験
- (5) 表面欠陥検査
- (6) 重量測定

つぎにカプセルに照射試料を入れ、上部をヘリウム雰囲気中でアーク溶接で封入した後、カプセル完成後の検査を以下の項目について行なう。

- (1) 外観検査
- (2) 寸法検査
- (3) 真直度検査 (  $1/1500$  以下であること )
- (4) 溶接部 X 線検査
- (5) 全体の X 線透過撮影検査
- (6) ヘリウム・リーク試験 ( 洩れ速度  $1 \times 10^{-6}$  atm $\cdot$ cc/sec 以下であること )
- (7) 重量測定

## 2.5 ま と め

3mm $\phi$ ×3mm, 密度8 (g/cm<sup>3</sup>)の酸化トリウム・ペレットの熱中性子自己遮蔽係数を実験的に求めた結果0.64が得られた。この円柱形ペレットを同体積の球におきかえて、これの熱中性子自己遮蔽係数を理論的に求めると0.66が得られるが、推定値としては良い値といえる。

原子炉で酸化トリウム・ペレットを照射する場合の<sup>170</sup>Tm生成量を理論的に求め、実験値と比較したが、その差は平均12%であった。

酸化トリウム・ペレットをJMTRで照射する場合の専用の照射カプセルについては、照射中の安全性、照射後の取扱い、さらに試料の効率的な照射などを考慮して設計した。

## 3 線源カプセル

### 3.1 概 説

密封線源について、カプセルの形状および材質の選定は、利用上および安全上重要である。ことに利用上の要請は安全上の必要性と相反することがしばしばであるため、このかねあいでカプセルは設計される。

<sup>170</sup>Tm線源のカプセル封入法として、初めは、酸化トリウム・ペレットを裸で照射し、照射後これをカプセルに溶接封入する方法をとったが、封入過程で<sup>170</sup>Tmによる汚染空気が発生した。検討の結果、<sup>170</sup>Tm汚染空気発生の原因をつきとめることができ、2重カプセル封入法でこのトラブルをさけることができた。また線源の密封作業は、ホットセル内で遠隔操作によって行なうが、小さな線源のセル内での取扱いは、かなりめんどうな作業であり、各種治具の採用および作業手順の検討が必要である。ここではカプセルの形状および材質の問題、<sup>170</sup>Tmによる汚染空気発生の原因の究明、その対策としての2重カプセル封入法、ホットセル内における線源のカプセル封入時のハンドリングなどについて検討した結果をまとめた。

### 3.2 材質と形状

ラジオグラフィ線源は、通常SUS製の線源カプセルに封入し、さらにSUS製の線源ホルダに固定させて照射機に装備する。しかし<sup>170</sup>Tm線源のように低エネルギー $\gamma$ 、X線源になると、カプセルおよびホルダによる $\gamma$ 、X線の吸収が大きく、線源をSUSで2重に封入することは得策でない。そこで線源カプセルには、原子番号が小さく、密度が小さい(吸収係数が小さい)わりに機械的強度が大きく、耐熱性の優れているチタンを用いることにした。さらに線源ホルダは、線源全体を覆う方式をさけて、<sup>170</sup>Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ペレット部分は覆わずに固定する方式をとった。また線源のカプセルへの封入方法は、2重カプセル封入法を採用した。すなわち酸化トリウム・ペレットを原子炉照射前にチタン製インナー・カプセルに封入し、照射後さらにチタン製アウター・カプセルに封入する方法をとった。Fig13およびFig14は<sup>170</sup>Tm線源カプセルの断面図および写真であり、Fig15は<sup>170</sup>Tm線源用カプセルとホルダとの接続状態を示す。ホルダ先端をはずして線源カプセルをはめ込み、ネジでホルダ本体に接続する。

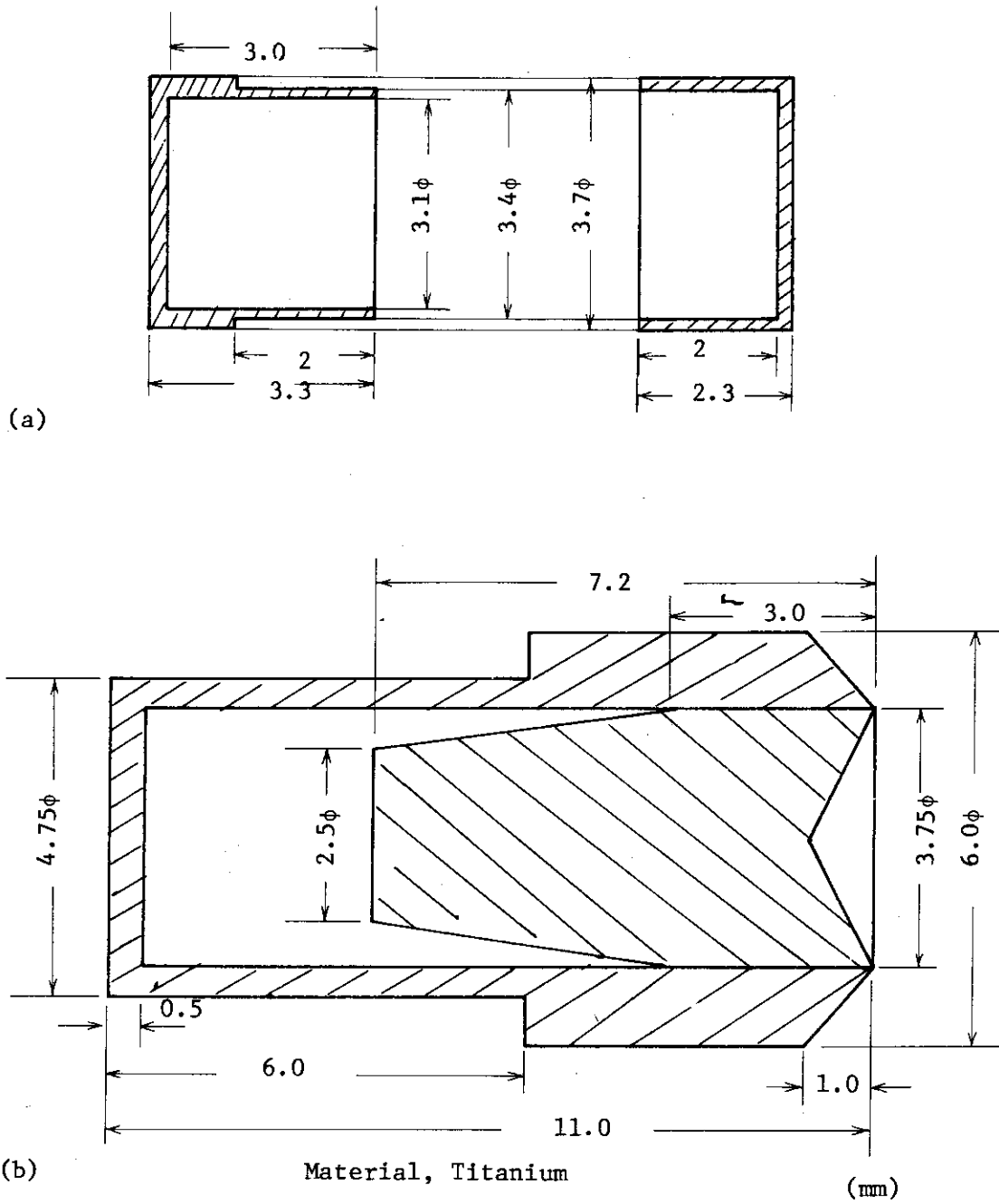


Fig. 13  $^{170}\text{Tm}$  source capsules: (a) Inner capsule, (b) Outer capsule

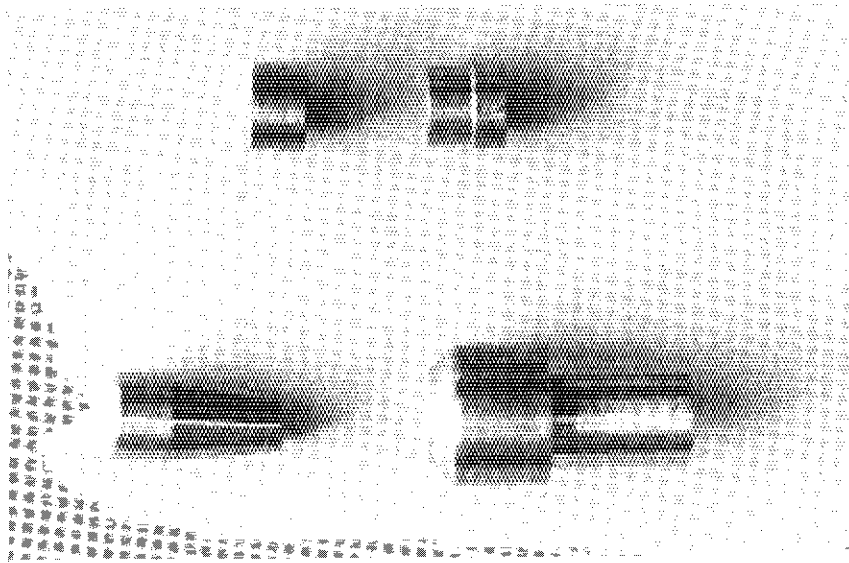


Fig. 14 Photographs of  $^{170}\text{Tm}$  source capsules: (a) Inner capsule, (b) Outer capsule

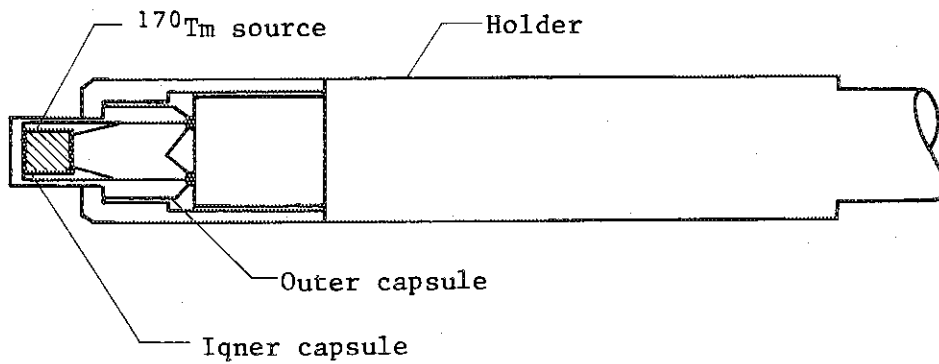


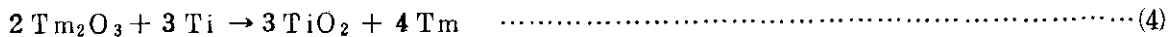
Fig. 15 Schematic connection diagram of the  $^{170}\text{Tm}$  source capsule and the holder



### 3.3 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ ペレット封入法の問題点

#### 3.3.1 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 微粒子発生の原因

ラジオグラフィ用 $^{170}\text{Tm}$ 線源はセラミックであることおよび比放射能が約 $50\text{Ci}/200\text{mg}$  ( $3\text{mm}\phi\times 3\text{mm}$ , 1個分)と大きいことから, $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ ペレットをそのまま線源カプセルに封入するときに,カプセル表面を汚染させやすい。比放射能を $50\text{Ci}/200\text{mg}$ とすると $0.1\text{mg}$ で $^{170}\text{Tm}$   $100\mu\text{Ci}$ となり,その汚染量は大きい。線源カプセル上部が $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ で汚染され,その部分をアルゴン・アーク溶接で封入する場合,汚染物質の $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ がアークの高温下(部分的には $3000^\circ\text{C}\sim 4000^\circ\text{C}$ になると思われる)でカプセル材のチタンと次式の反応を起し還元される。



生成した金属ツリウムは,蒸気圧が高いので直ちに気化し,空気中で酸化されて $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 微粒子となって飛散する。

#### 3.3.2 実験

3.3.1で示された $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 空気汚染の発生機構を確認するために以下の実験を行なった。

- (1) Fig 14(a)に示すように,チタン・カプセルに酸化ツリウム・ペレットを入れ,ふたをしたあと上部をアルゴン・アーク溶接で封入した。
- (2) カプセルに $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ ペレットを入れるとき,その入口を $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ で汚染させて溶接封入した場合を想定して, Fig 14(b)に示すように,チタン・カプセル上部に非放射性酸化ツリウムの小片を置き,その部分をアルゴン・アークで溶解した。
- (3) Fig 14(c)に示すように,非放射性酸化ツリウムだけをアルゴン・アークで溶解した。

#### 3.3.3 結果と考察

Fig 14(a)の実験において,酸化ツリウム微粒子の発生は観察することはできなかった。この場合,カプセル上部から酸化ツリウム・ペレットまでは $6.5\text{mm}$ の距離があり,またカプセルの下半分は鉄のチャックで押えられているので,冷却効果もあり,酸化ツリウム・ペレットが高温にさらされることはないので当然な結果と思われる。

Fig 14(b)の実験においては, Fig 15に示す酸化ツリウムと思われる微粒子を捕えることができた。しかしFig 14(c)の実験においては,微粒子の発生は観察できなかったが,このことは, $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 微粒子の発生の機構が(4)式で示される反応に原因していることを間接的に示している。

#### 3.3.4 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 微粒子の分析

Fig 14(b)の実験において,電子顕微鏡で捕えた微粒子が酸化ツリウムであることを確認するために以下の実験を行なった。

気体状の酸化ツリウムがより発生しやすい条件として,酸化ツリウム粉末とチタン粉末を1:1に混合し,プレスして $10\text{mm}\phi\times 10\text{mm}$ のペレットを作った。これをアルゴン・アーク溶接したとき,発生して周囲に飛散した数 $\text{mg}$ の黒微粉体を集め,X線回析によりこれの分子形を決定した。さらにこの試料を熱中性子照射による放射化分析し,元素分析を行なった。

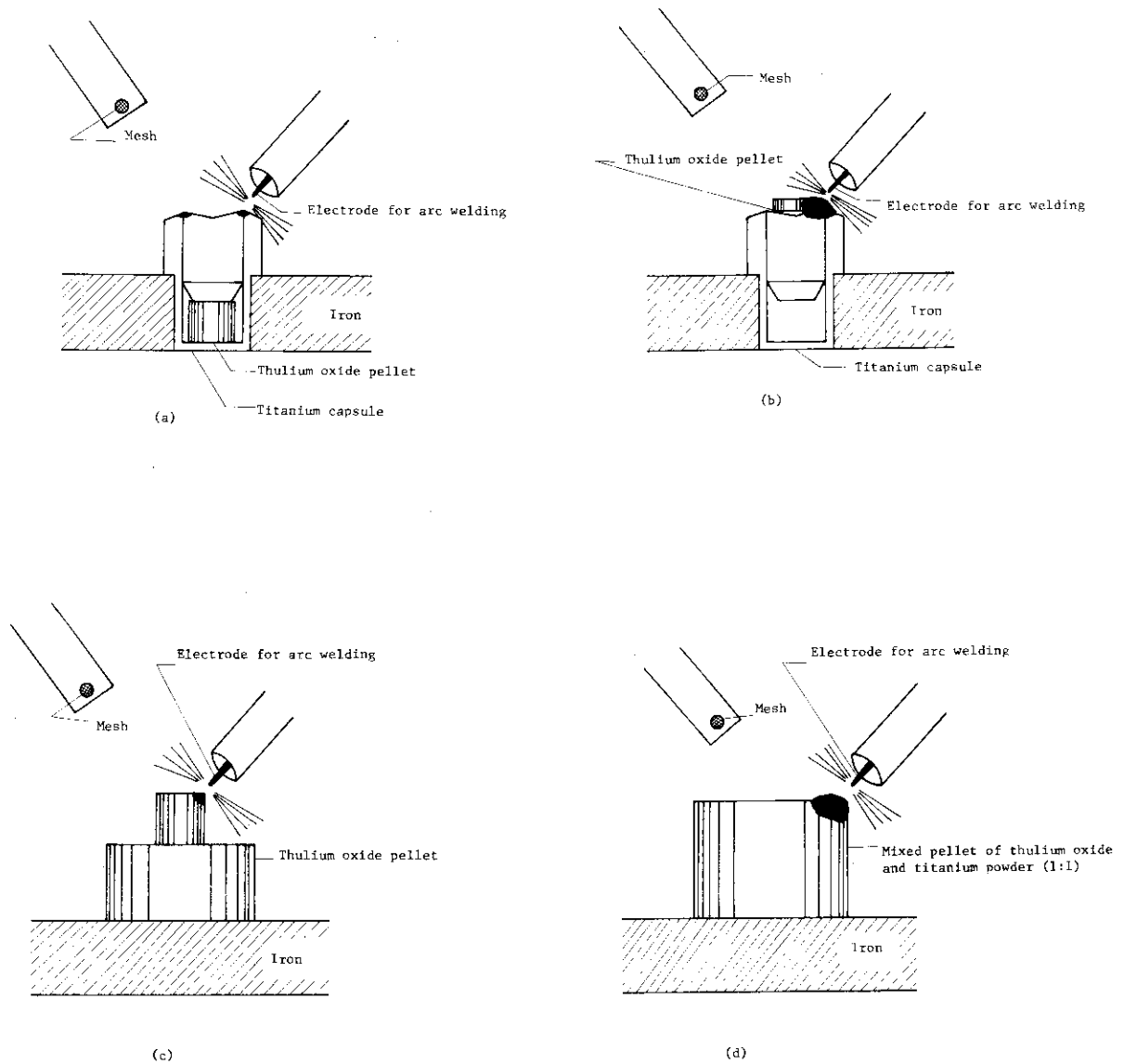


Fig. 14 Experiments for clearing up cause of the air contamination by  $Tm_2O_3$  in welding the  $^{170}Tm$  capsule

### 3.3.5. 結果と考察

Fig 16 は黒微粉体の X 線回折の結果であり、結晶面間隔  $d$  を ASTM カードの値と比較すると、その良い一致からこの粉体が酸化ツリウムであることが確認できる。さらにこの粉体を放射化分析した結果、 $^{170}\text{Tm}$  だけがみられ (Fig 17), それが  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  からのものだとすると試料の 99% が酸化ツリウムであることが確認された。またこの黒微粉体が発生するとき、電子顕微鏡用メッシュを近くにおき、発生する微粒子をとらえて電子顕微鏡で観察したが、Fig 18 に示すように Fig 14 (b) の実験で得られたのと同様な微粒子が観察された。

以上、実験の結果、酸化ツリウムとチタンを接触させて、そこにアルゴン・アークをとばすと、酸化ツリウム微粒子が発生することが確認されたが、その原因は (4) 式に示される反応によるものであることは、Fig 14 (c) の実験では酸化ツリウム微粒子の発生がみられないことから推定できる。

### 3.4 封入法問題点の対策

$^{170}\text{Tm}$  線源の密封作業中の  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  微粒子発生を防止する方法としては、以下に示す 3 つの方法が考えられる。

- (1) カプセル材にチタンを用いないこと、すなわち SUS を用いることであるが、これは低エネルギー  $\gamma$ 、X 線源である  $^{170}\text{Tm}$  線源としてはできるだけきたい。
- (2) 酸化ツリウム・ペレットをチタン・カプセルに封入した状態で原子炉照射を行ない、それをそのまま線源として使用する方法である。この場合カプセル封入時には、酸化ツリウム・ペレットが非放射性であるため、溶封時のトラブルは起らない。またカプセルは酸化ツリウム・ペレットと同時に熱中性子照射されるので、カプセル材から放射性核種が生成されるが、これも  $^{170}\text{Tm}$  線源の妨害になることはない。すなわちチタンは熱中性子照射されると  $^{50}\text{Ti}(n, \gamma)$   $^{51}\text{Ti}$  の反応により  $^{51}\text{Ti}$  が生成されるが、半減期が 5.8 min であり、照射後数時間でその放射能は無視できる。またチタン中の不純物から生成される放射性核種も  $^{170}\text{Tm}$  線源の放射能に比較して、実用上量的に無視できる。しかしわずかでも線源カプセルに放射能があるとき、その線源は非密封線源となり、法律上の規制が強化され、ラジオグラフィ用線源として使用することは、特別な設備を有するところの外かなりの困難になる。以上の理由からこの方法は実現はむずかしい。
- (3) 2重カプセル封入法である。すなわち酸化ツリウム・ペレットをあらかじめ薄いインナー・カプセルに封入する。この場合は、インナー・カプセルに入った  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  ペレットをアウター・カプセルに封入するので、アウター・カプセル表面を  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  で汚染させることはない。したがって溶接封入時における  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  微粒子の発生を防止できる。この方法の安全であることは、実験的に確かめた。インナー・カプセルを原子炉照射した後の  $\gamma$  線エネルギー・スペクトルには、 $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ , ……などの生成放射性核種がみられるが、 $^{170}\text{Tm}$  の  $\gamma$ 、X 線に比較して量的に少なく、実用的には無視できる。

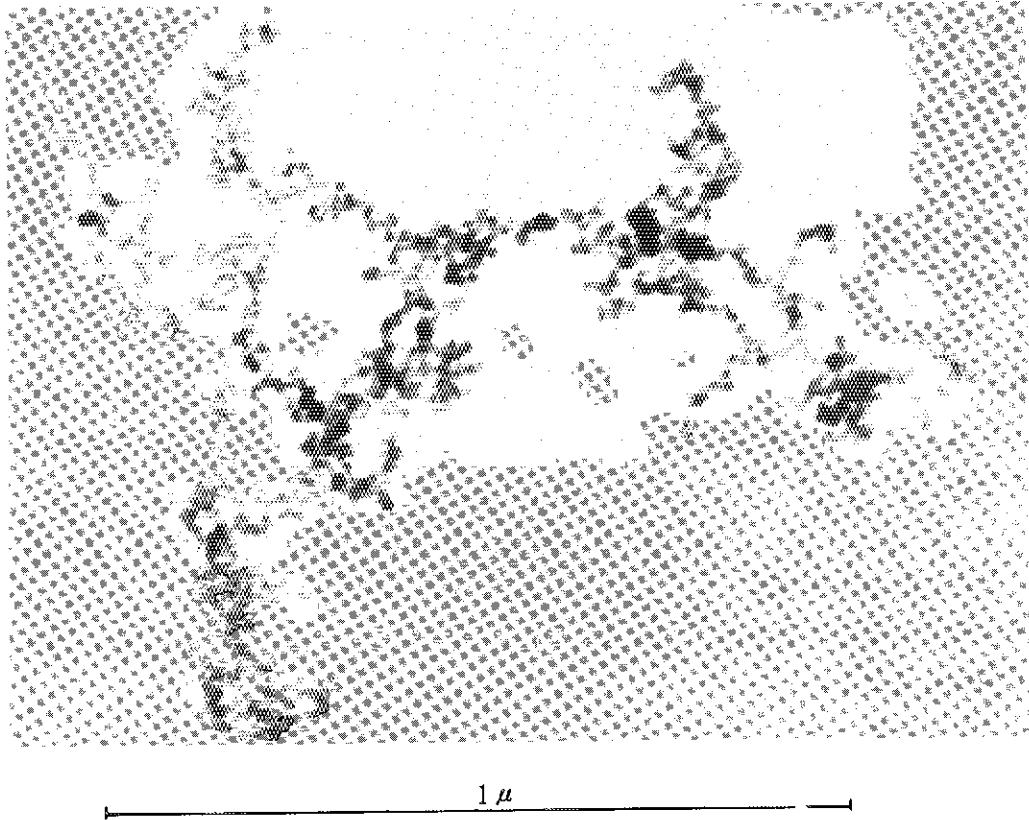


Fig. 15 Electron microscope photograph of particles caught on the mesh in the experiment of Fig. 14 (b)

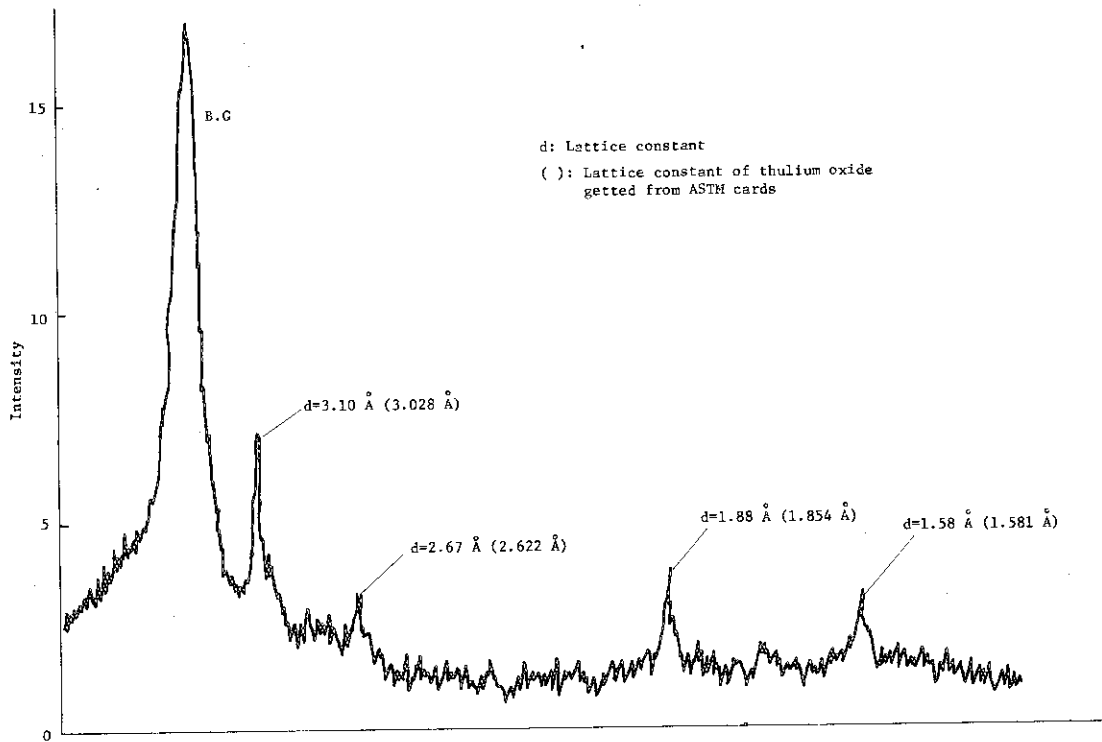


Fig. 16 X-ray diffraction pattern of particles caught in the experiment of Fig. 14(d)

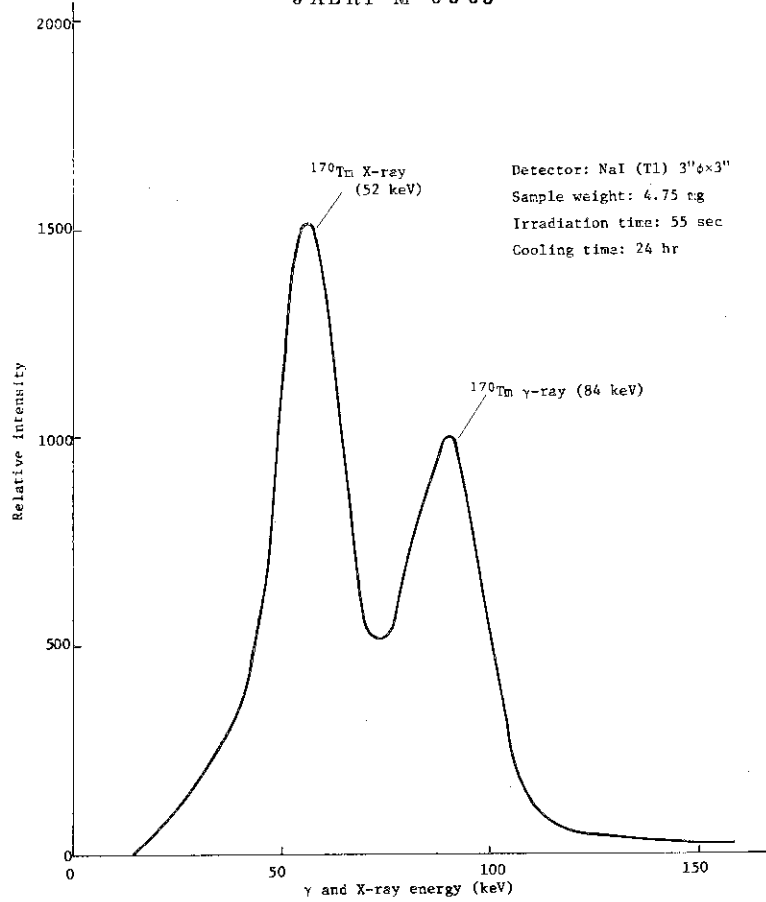


Fig. 17  $\gamma$  and X-ray energy spectrum after neutron irradiation of particles catch in the experiment of Fig. 14 (d)

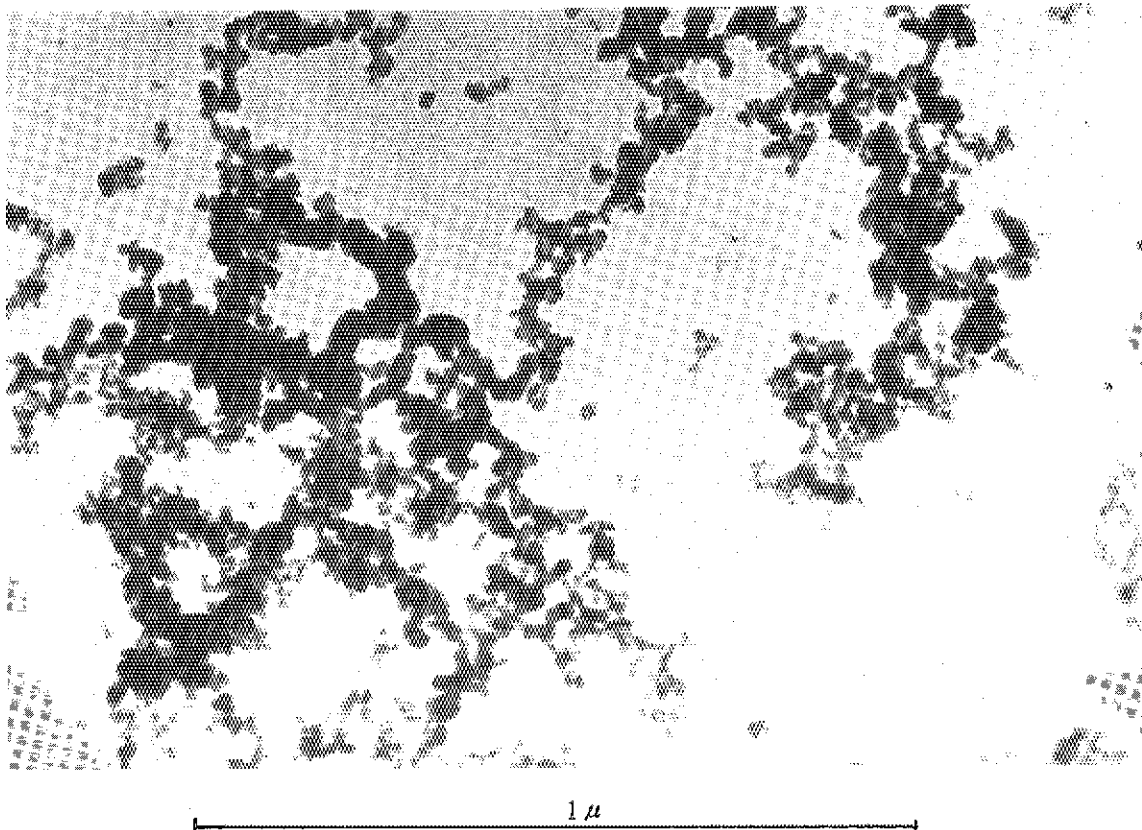


Fig. 18 Electron microscope photograph of particles caught on the mesh in the experiment of Fig. 14 (d)

## 3.5 封入方法

照射カプセルから $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ ペレットをとり出しトング操作により、アウター・カプセルに入れ、さらにふたをして溶接装置にかける作業は、かなり困難であり、このためにいくつかの治具を採用した。Fig 19はインナー・カプセルに入れて照射した線源ペレットをアウター・カプセルに入れるための治具である。アウター・カプセルは前もってアクリル板に穴を開けて埋め込んでおく。Fig 20は溶接装置のカプセル固定部の穴に $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ ペレットの入った線源カプセルを入れるための治具である。いずれも操作はトングで行なうが、トングの爪先に歯科用ピンセットを固定し、それにより行なった ( Fig 21 )。

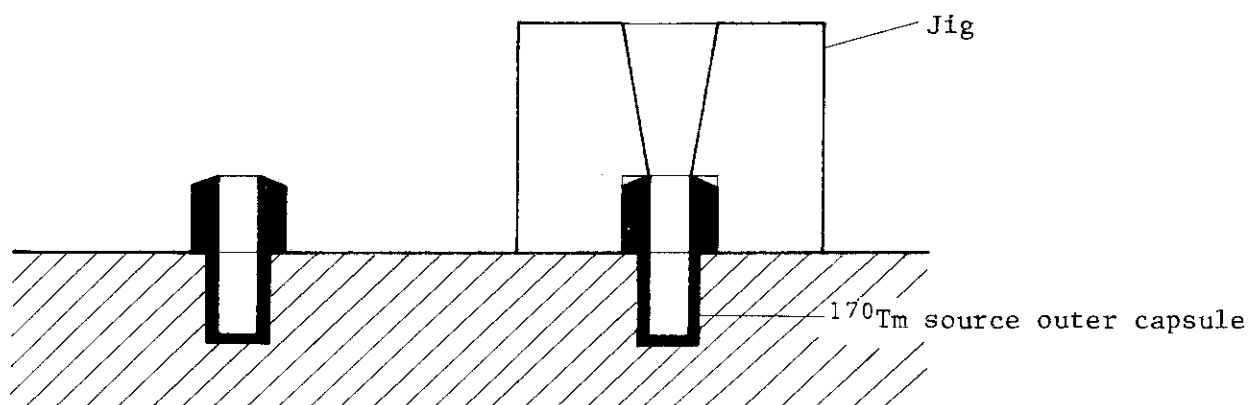


Fig. 19 Jig for inserting the  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  pellet in the outer capsule

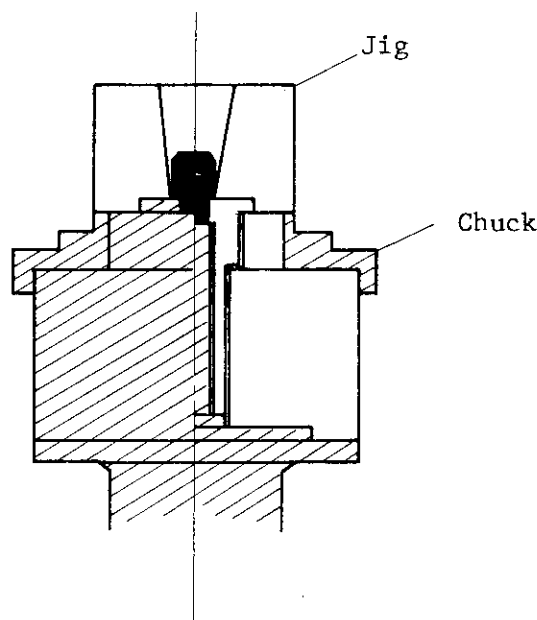


Fig. 20 Jig for setting on the welding machine the  $^{170}\text{Tm}$  source inserted in the outer capsule

溶接装置はこの作業のために特に設計したもので、トーチは上下左右に移動可能とした。まずカプセル固定部に線源カプセルを固定するための治具をはめこみ、線源カプセルを治具の上から入れた後、治具をはずす。カプセル固定部は回転するようになっており、カプセル上部周囲を遠隔操作で自動溶接する。Fig 22は溶接装置の線源カプセル固定部の写真、Fig 23は

線源カプセルをアルゴン・アーク溶接で封入しているところである。

溶接条件は、くり返し試験を行なった後つぎのように決定した。

溶接電流：直流14A

アルゴン流量：5 ℓ/min

回転数：30RPM

溶接電極：トリウム入りタングステン電極1 mmφ

Fig 24 は線源アウター・カプセルの溶接部断面の写真であるが、溶着部の深さは0.5 mm以上となっており、よく溶着されていることがわかる（なお溶接部の外観写真はFig 45 に示す）。

### 3.6 ま と め

$^{170}\text{Tm}$  は低エネルギー  $\gamma$ 、X線源なので、出力線量率のカプセルによる吸収損失を小さくするために、カプセル材料には原子番号が小さく、密度も小さい（放射線の吸収係数が小さい）わりに機械的強度および耐熱性の大きなチタンを用いた。 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  ペレットをそのままチタン・カプセルに入れ、アーク溶接で封入する方法は、カプセル上部をわずかでも $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  で汚染させた場合、その部分のアーク溶接の結果、チタンと $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  との反応により、 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  微粒子が発生するという事実が確認された。この対策として、酸化トリウム・ペレットをインナー・カプセルに入れた状態で原子炉で熱中性子照射し、照射後それをさらにアウター・カプセルに溶接封入する2重封入法を採用した。この方法が実用上および安全上問題ないことは実験的に確認した。

インナー・カプセルに入った $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  ペレットをさらにアウター・カプセルに入れ、溶接封入するまでのホットセル内におけるハンドリングについては、各種治具を工夫して用い、またこの目的で製作した溶接装置により、定常作業としても十分行なえる見通しを得た。

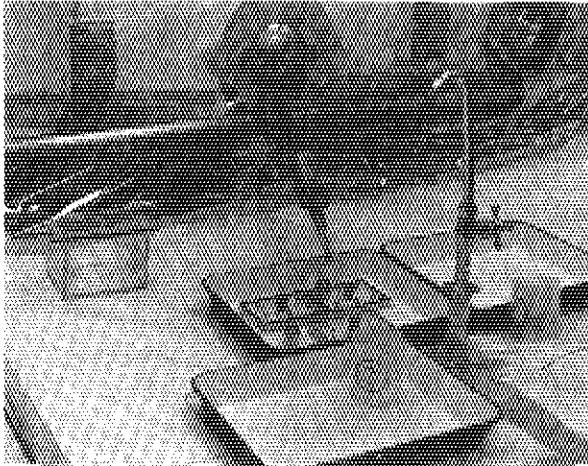


Fig. 21 Handling of  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  pellets in the hot cell

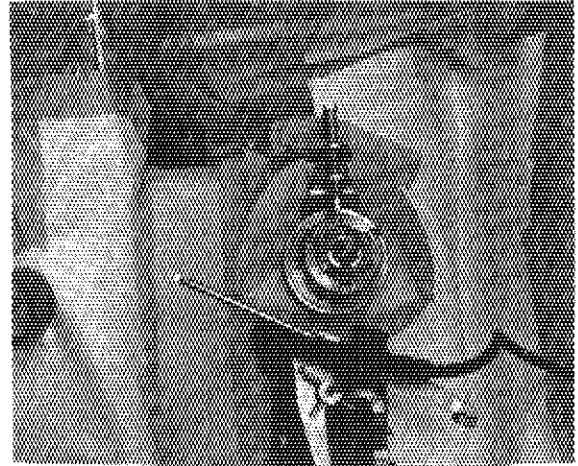


Fig. 22 Top view of the automatic welder for the  $^{170}\text{Tm}$  source capsule

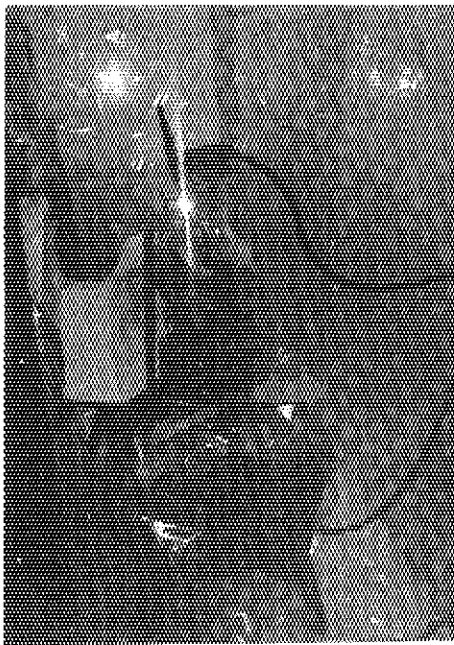


Fig. 23 Automatic welder for the  $^{170}\text{Tm}$  source capsule in use

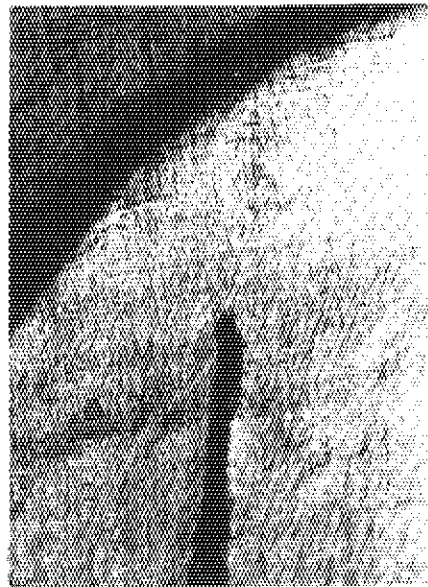


Fig. 24 Sectional view of the  $^{170}\text{Tm}$  source capsule weld



### Ⅲ JMTRによる試験製造

#### 1 概 説

昭和44年度から46年度の間、JRR-2での試料照射によって小線源を試作し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源製造上解決しなければならない多くの事項について検討を行なってきた。これらの結果をもとにして、昭和45年度および46年度にJMTRによる照射で実用線源の試験製造を行なった。

JRR-2の最大熱中性子線束密度は $1 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 、1サイクル照射時間は288時間であり、したがってターゲット形状 $3 \text{ mm} \phi \times 3 \text{ mm}$ として20Ci以上の $^{170}\text{Tm}$ 線源を製造することは困難である。これに対してJMTRは、最大熱中性子線束密度は $4 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 、1サイクルの照射期間は28日であり（昭和46年9月までは試験照射期間であり、最大熱中性子線束密度は $3 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 、1サイクル21日間であった） $3 \text{ mm} \phi \times 3 \text{ mm}$ の酸化トリウム・ペレットをターゲットにすると、1個約50Ciの $^{170}\text{Tm}$ 線源の製造は可能と考えられた。

#### 2 ターゲット

第1回の照射実験には、 $3 \text{ mm} \phi \times 3 \text{ mm}$ 、172mgの金属トリウムを、第2回の照射実験には約 $3 \text{ mm} \phi \times 3 \text{ mm}$ の酸化トリウム・ペレットをターゲットに用いた。酸化トリウム・ペレットのターゲットについては、純度99.9%の酸化トリウム粉末を加圧成型し、真空高温炉（小林理化器械（株）製、最高2200℃、タンタル・ヒーター使用）を用いて、2200℃で1時間焼成した。密度は粉末原料の粒度分布、プレス圧力、焼成温度などにより、微妙に変化するもので、予想通りの形状を得ることはむずかしく、Table 4に示すと通りの不均一な形状となった。

Table 4 Thulium oxide pellets used for irradiation in JMTR

Sample number	Size (mm)	Weight (mg)	Density (g/cm)
1	2.85 $\phi$ ×3.15	169	8.36
2	2.90 $\phi$ ×3.25	168	7.83
3	2.95 $\phi$ ×3.27	171	7.70
4	3.10 $\phi$ ×3.40	168	7.48
5	2.95 $\phi$ ×3.30	168	7.47
6	3.12 $\phi$ ×3.27	204	8.16
7	3.12 $\phi$ ×3.27	207	8.28
8	3.10 $\phi$ ×3.25	207	8.45
9	3.10 $\phi$ ×3.30	209	8.40
10	3.12 $\phi$ ×3.30	209	8.30

### 3 ターゲットの熱中性子照射

第1回は照射孔G-5 ( Fig 25 ) において、第4, 5サイクル連続照射を行なった。Fig 26 に照射条件を示す。使用した照射カプセルは、Fig 27 に示すもので、ホルダの材料にはグラファイトを用いた。

第1回照射実験の結果、照射カプセルは簡単な構造に改造し、ホルダはアルミニウム製とした。照射孔の熱中性子線束密度はAl-Co ( 0.17% ) ワイヤ数 mg をフラックス・モニターとしてターゲットと同時照射し、生成した<sup>60</sup>Coの放射能を測定して決定した。

第2回は照射孔G-8 において、第9, 10, 11サイクルの連続照射を行なった。照射条件はFig 28 に示すとおりである。照射カプセルはFig 11 に示したものをを用いた。

### 4 放射化学ケープ

<sup>170</sup>Tm線源の照射カプセルからの取り出し、線源カプセルの溶接封入、線量測定など一連のホット作業は、すべてRI利用開発棟放射化学ケープ ( Fig 29 ) で行なった。このケープは貯蔵ケープ、化学ケープ、線源加工ケープおよびサービスエリアに区切られており、前面は鉛10 cm、後面および側面はそれぞれ30 cmおよび50 cmのコンクリートで遮蔽され、周囲は広く放射能管理区域とされている。化学ケープ後面はガラス引戸に、また線源加工ケープ後面はアクリル製窓のドアになっている、いずれもエアタイトになっている。貯蔵ケープから化学ケープを通過して線源加工ケープまでは、ケープ作業面床下に試料運搬用台車が通っており各ケープ間の試料の移動に用いられる。貯蔵ケープには深さ94 cm、直径30 cmのラジオアイソトープ貯蔵用ピットが2箇所設けられ、上部を遮蔽したプラグ試料棚が挿入されている。これらの操作は電動ホイストによって遠隔操作され、各種ラジオアイソトープを貯蔵できる。

換気は各ケープ独立になっており、6回/時 ( 計算値 ) の換算量になっている。各ケープ内は常時負圧に保たれ、その値は0~10 mmHgの間で調節でき、一定の圧力以下になると警報が鳴る。排気系にはプレフィルター1段、AECフィルター2段を1組としたダストフィルターが設けられ、空気汚染物質のスタックよりの排出防止を行っている。さらにダストフィルターとスタックの間にはダストモニターを設置し、汚染物質の排出を常時監視している。またサービスエリア後面には放射線エリアモニターを設置し、化学ケープおよび線源加工ケープ内の空間線量率を監視している。

### 5 ケープ内における線源の取扱い

JMTRで照射された試料は、ホットラボで外側の一次カプセルが解体されたあと、その中の二次カプセルをRI利用開発棟放射化学ケープに搬入され、そこで<sup>170</sup>Tm線源の密封作業を行なった。

貯蔵ケープでキャスクより出された照射カプセルは、ケープ作業面床下を通過している試料運搬用台車で中央の化学ケープに運ばれる。ここでカプセル・カッター ( Fig 30 ) で上部を切断し、中のホルダを出して、用意しておいたバット上に<sup>170</sup>Tmペレットをあける。これをII 3.5で述べた方法で線源カプセルに入れ、ふたをしてまた試料運搬用台車によって線源ケープ

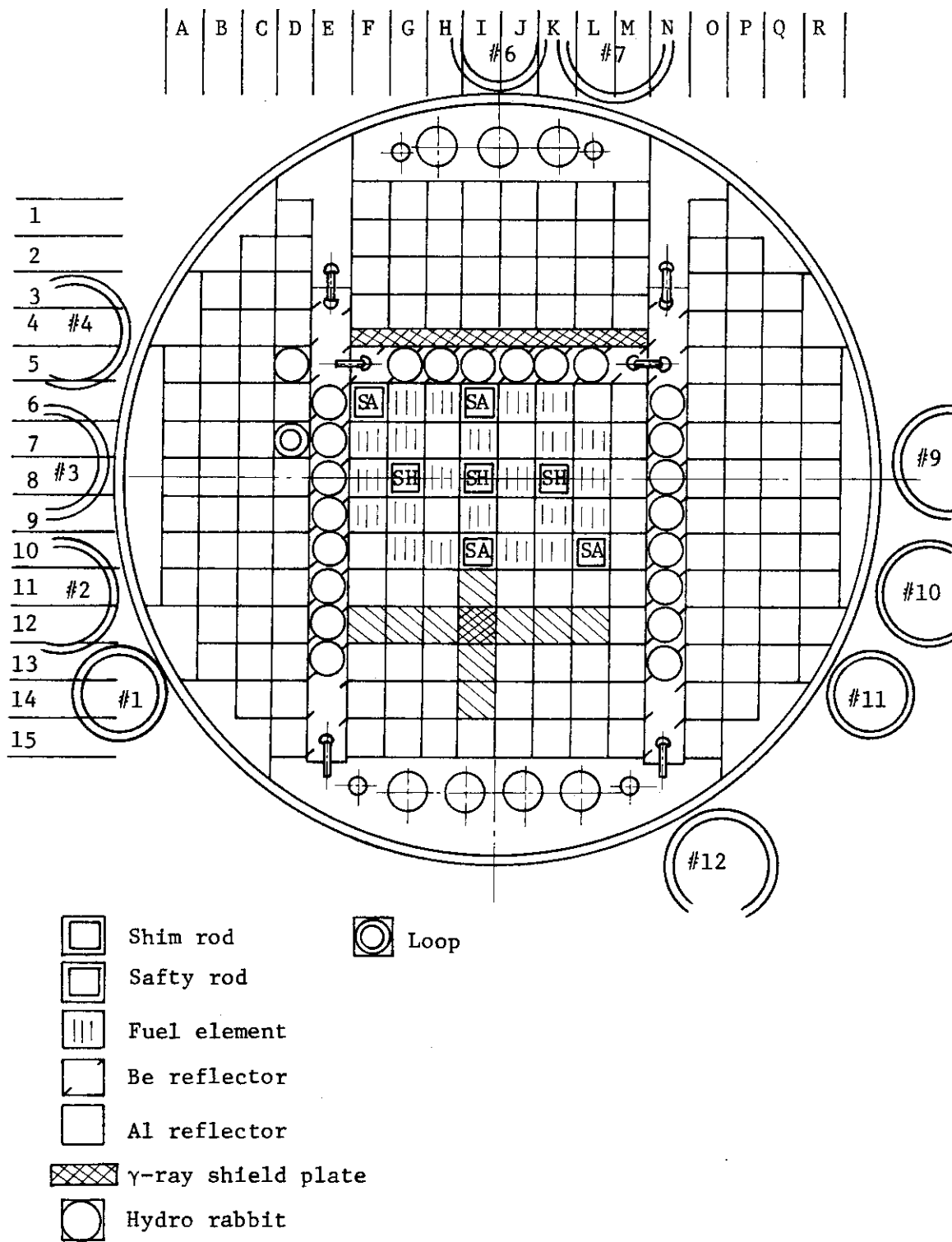


Fig. 25 JMTR lattice pattern

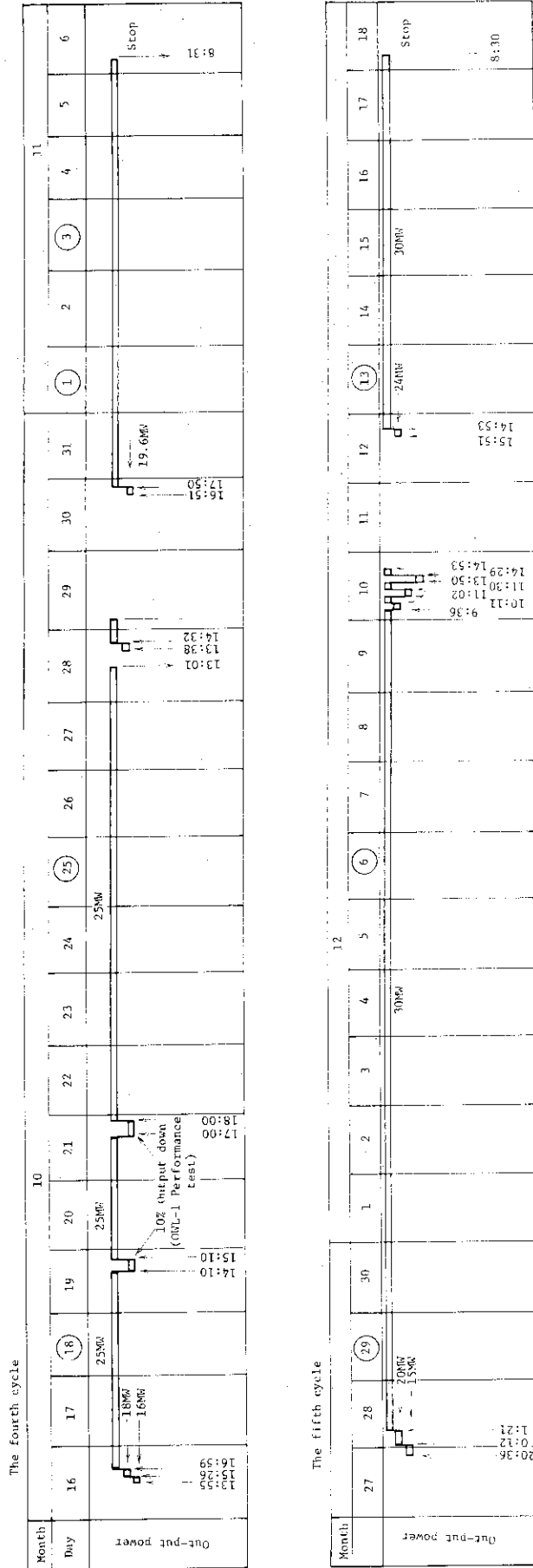


Fig. 26 The operation results of JMTR

①	Plug
②	Outer cylinder
③	Spacer
④	Spacer
⑤	Holder
⑥	Aluminium wire
⑦	Plug
⑧	Neutron flux monitor
⑨	Sample case
⑩	Sample case

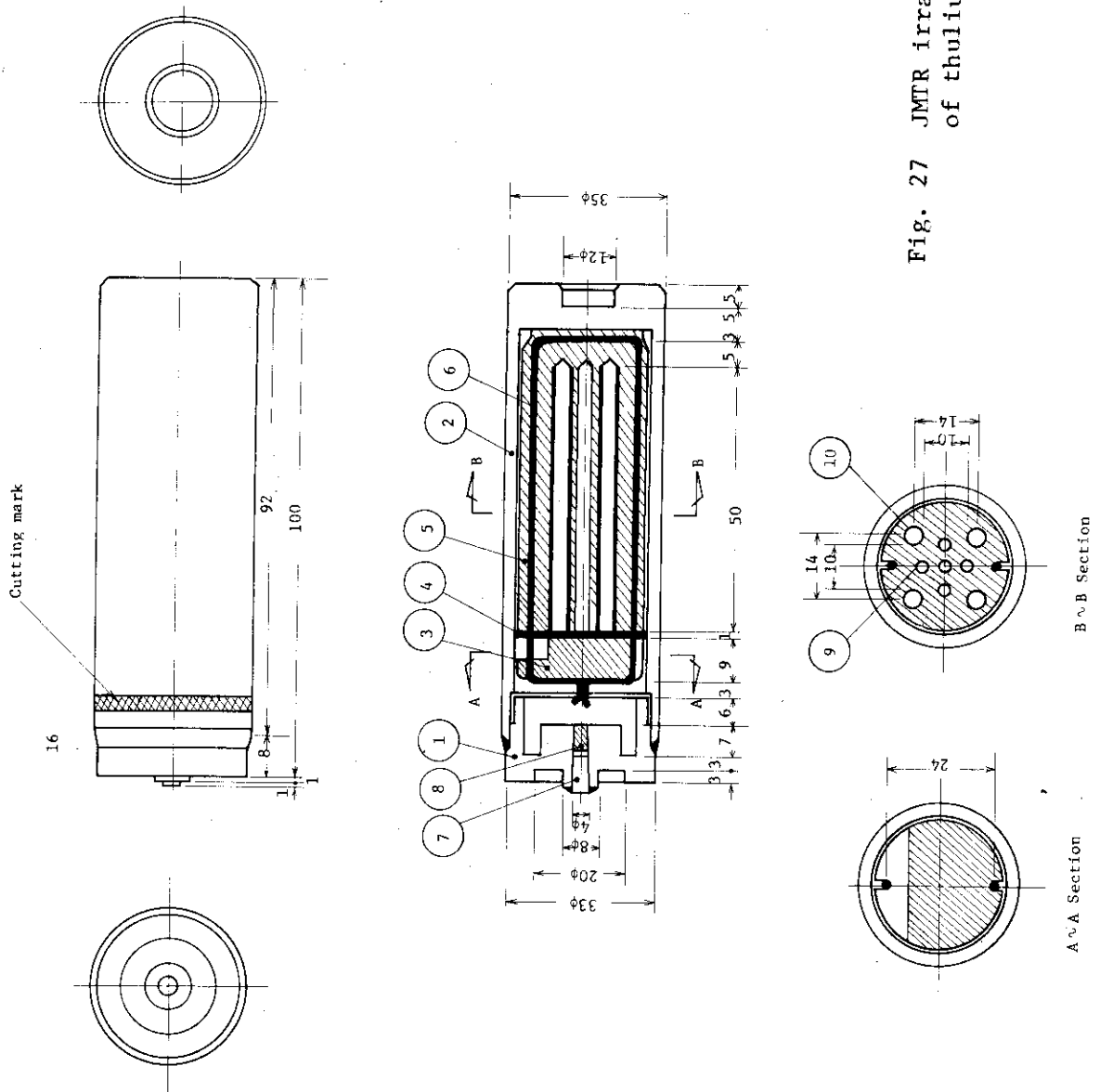


Fig. 27 JMTR irradiation capsule used for irradiation of thulium metal pellets

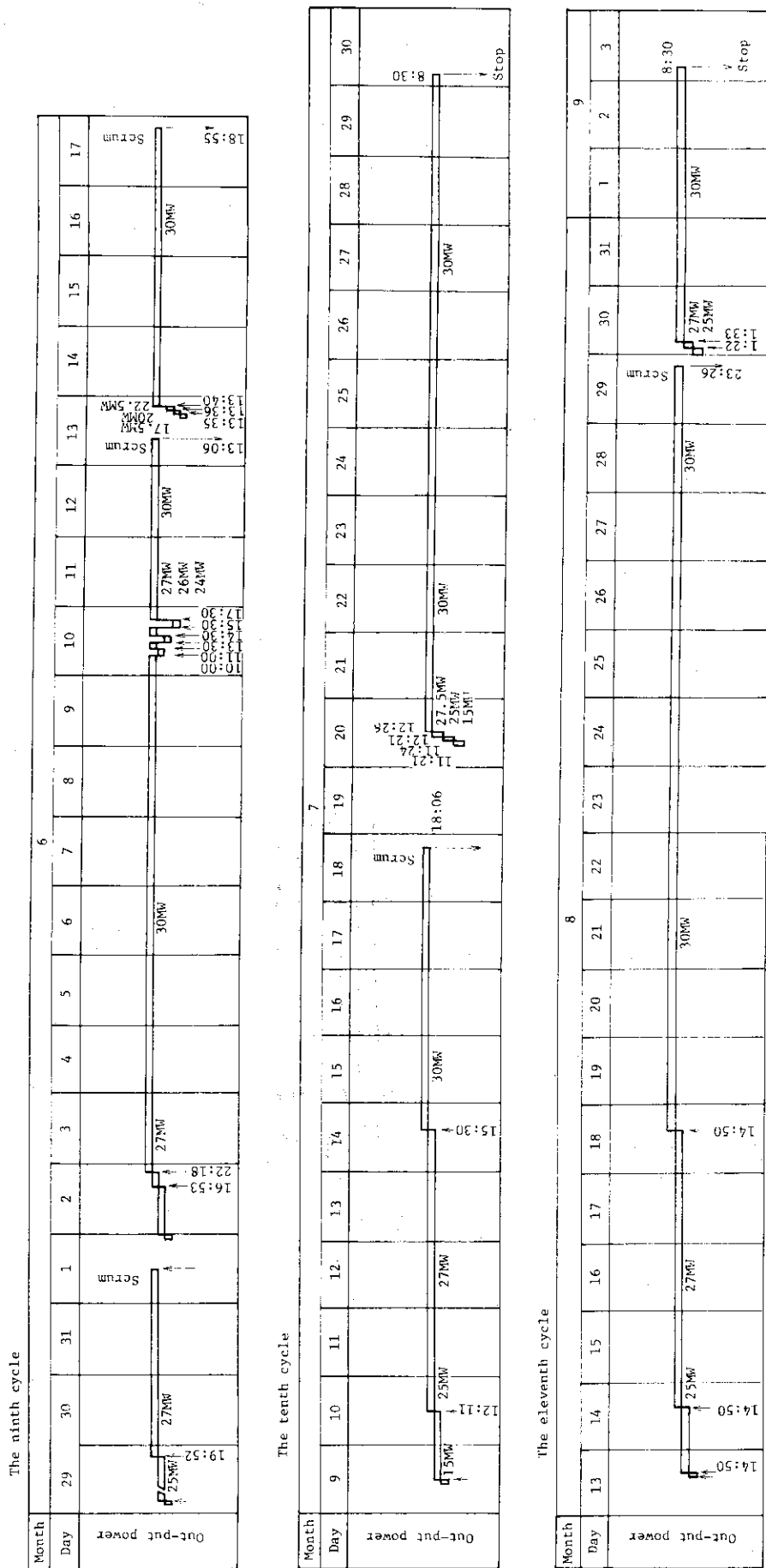


Fig. 28 The operation results of JMTR

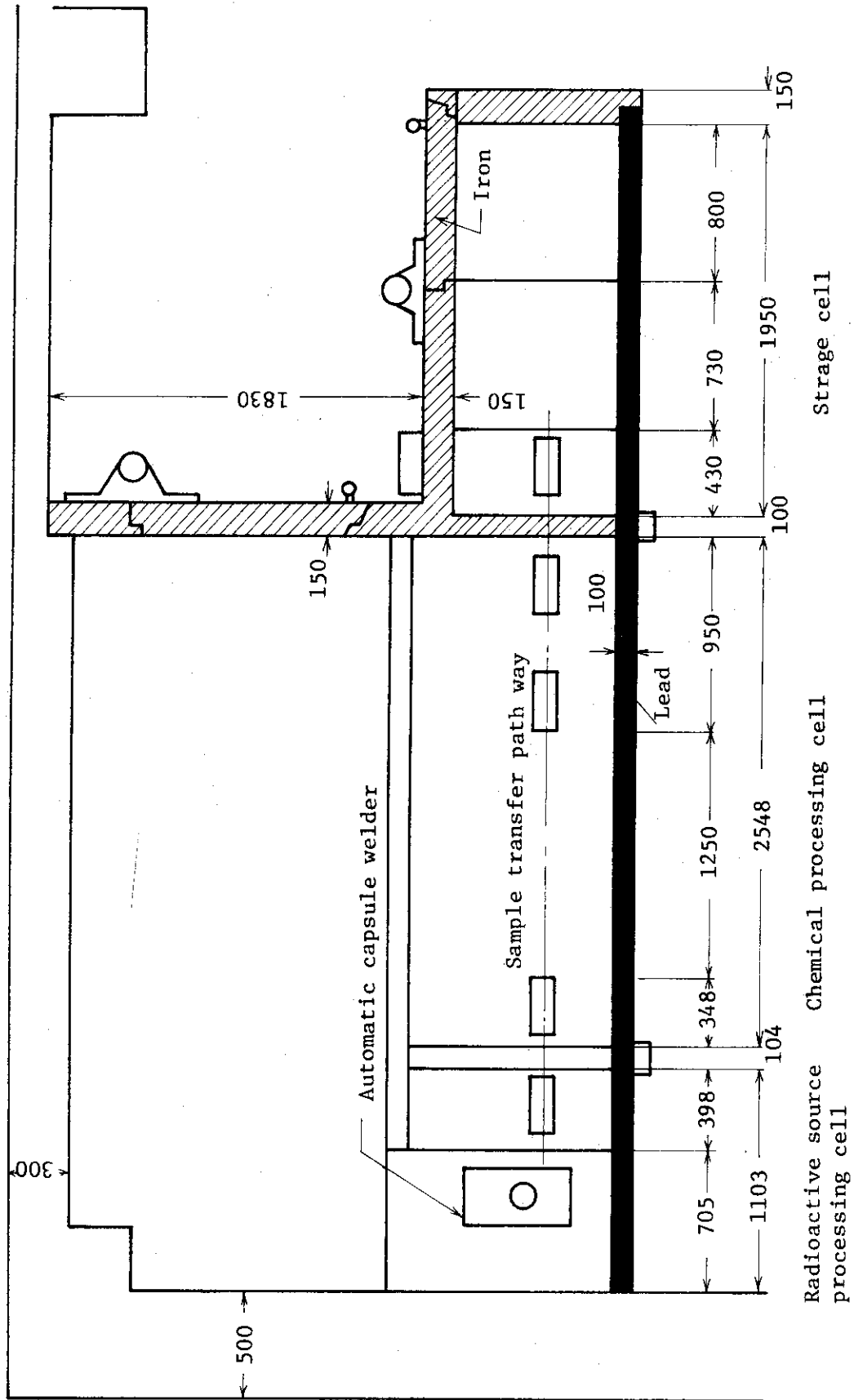


Fig. 29 Plane view of chemical processing cave

に運び、そこで自動溶接機にかけて溶接封入した。Fig 3 1 および Fig 3 2 は第 2 回の照射実験で試験製造した $^{170}\text{Tm}$ 線源の外観図および X 線透過写真である。

## 6 $^{170}\text{Tm}$ 生成量

### 6.1 測定結果

カプセルに溶接封入した $^{170}\text{Tm}$ 線源については、化学セル内で出力線量率を測定し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の Rhm 値を  $0.0025$  ( $\text{R/hr}\cdot\text{Ci at 1m}$ ) としてその放射能を決定した。

測定は球形電離箱 (タケダ理研 GR-50) に振動容量型電位計を接続し、線源-電離箱間距離を  $50\text{ cm}$  として行なった。また線量率の較正には $^{137}\text{Cs}$ 標準線源 (RCC製  $15.5\text{ mR/hr at } 50\text{ cm}$ ) を用いた。結果は Table 5 ~ 6 に示す。第 1 回および第 2 回照射における照射孔の熱中性子線束密度は、フラックス・モニタとして同時照射した  $\text{Al-Co } 0.17\%$  ワイヤーから生成した $^{60}\text{Co}$ 量を測定して、それから計算した結果、それぞれ  $1.9 \times 10^{14}$  および  $3.0 \times 10^{14}$  ( $\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$ ) と決定した (各 2 サイクルおよび 3 サイクルの平均値)。

### 6.2 計算結果

2 サイクルおよび 3 サイクル連続照射によって生成するターゲット 1 個当りの $^{170}\text{Tm}$ 量を計算する。それぞれのサイクル照射によって生成される放射能は、(13)式に  $\theta$  …… M の値をそれぞれの照射条件から算出し代入して求められる。

ターゲットを 2 サイクル以上照射する場合、後のサイクルの照射においては、ターゲット中の $^{169}\text{Tm}$ の減量を考慮する必要がある。 $n$  個の $^{169}\text{Tm}$ 原子は  $t$  時間熱中性子照射すると、 $^{169}\text{Tm}(n, \gamma)^{170}\text{Tm}$  反応によって、 $fn\sigma t$  個だけ $^{170}\text{Tm}$ に変換される。したがって 2 回目の照射においては、 $^{169}\text{Tm}$ の原子数は  $n(1-f\sigma t)$  個となる。第 1 回照射実験の第 4, 5 サイクル連続照射実験において、第 4 サイクル照射によって生じた $^{169}\text{Tm}$ の減量は  $3.5\%$  であり、第 5 サイクル照射時の計算においてはこれを差引いた。第 2 回照射実験の第 9, 10, 11 サイクル連続照射実験においては、 $148\text{ mg}$  の照射前のターゲット $^{169}\text{Tm}$ が第 9 サイクル照射後には  $146\text{ mg}$ 、第 10 サイクル照射後には  $140\text{ mg}$  となる。

つぎに連続サイクル照射の場合の前のサイクル照射で生成した $^{170}\text{Tm}$ の測定時における放射能を計算する場合、後のサイクル照射において $^{170}\text{Tm}(n, \gamma)^{171}\text{Tm}$ 反応による $^{170}\text{Tm}$ の減量も考慮しなければならない。

以上の考慮をして各照射実験後の $^{170}\text{Tm}$ 量を計算すると、Tab 5 および Tab 6 に示す通りとなる。



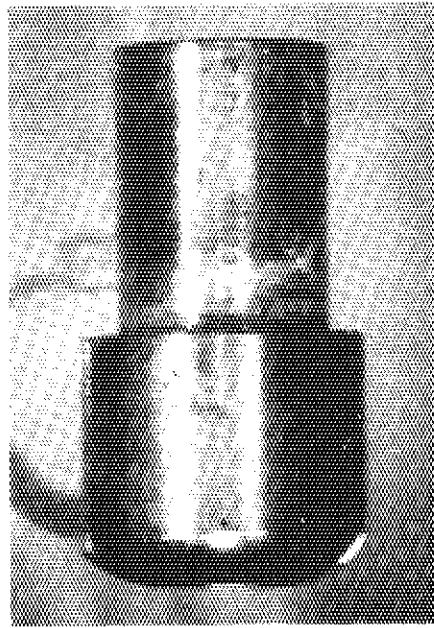
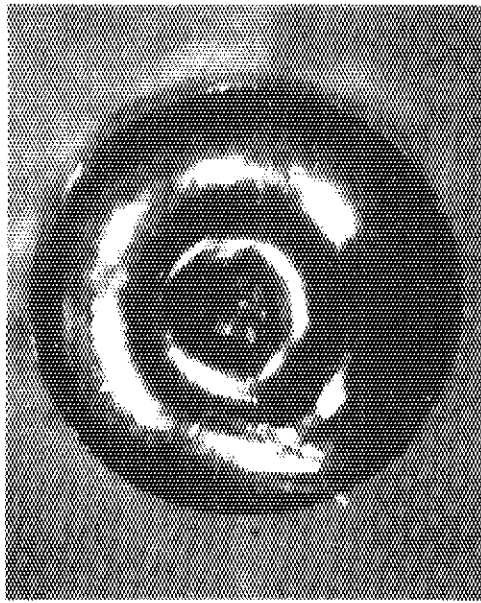


Fig. 31  $^{170}\text{Tm}$  radiographic source produced by neutron irradiation of the thulium oxide pellet in JMTR; (a) top view, (b) side view

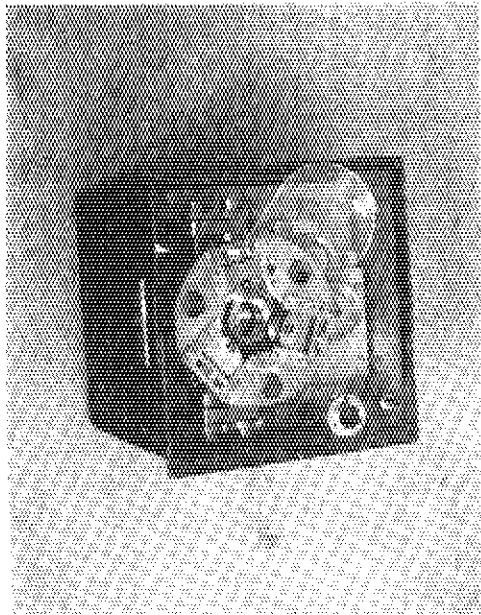


Fig. 30 JMTR irradiation capsule cutter

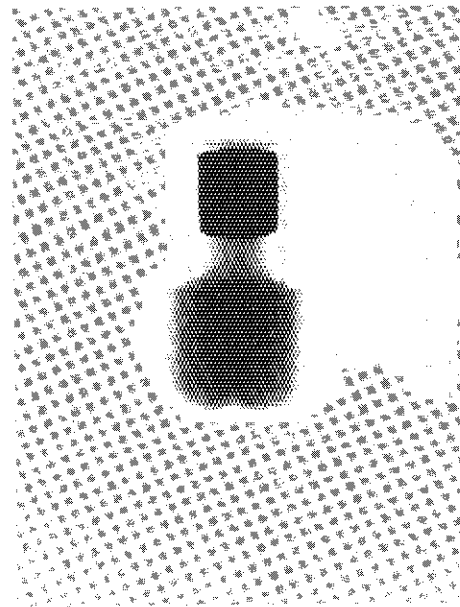


Fig. 32 X-ray radiograph of the  $^{170}\text{Tm}$  radiographic source

Table 5 Radioactivities of  $^{170}\text{Tm}$  radiographic sources produced by neutron irradiation of thulium metal pellets in JMTR

Weight of thulium pellets	Experimental	Theoretical
$172 \pm 5$ mg	30.6 (Ci)	33.5 Ci
	30.1	
	30.1	
	29.6	
	29.4	
	29.4	
	29.4	
	29,2	
	29.2	
	29.0	
	(Average) 29.6	

Table 6 Radioactivities of  $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$  radiographic sources produced by neutron irradiation of thulium oxide pellets in JMTR

Weight of thulium oxide pellets (Tm)	Experimental	Theoretical
169 (mg)	40 (Ci)	47 (Ci)
168	40	47
171	41	48
168	39	47
168	39	47
204	47	55
207	48	56
207	49	56
209	49	56
209	48	56

## 7 考 察

第1回の照射実験においては、ターゲットに金属ツリウムを用いたので、線源のカプセル封入時におけるハンドリングにおいては汚染はほとんどみられず、またペレット形状も正確に調製されている利点があった。しかしⅢ-1.2.1に述べたように火災などの場合を考えると安全上多少不安があり、価格の点からも現在では酸化ツリウムをターゲットに用いるべきであるとの結論に達している。

第2回の照射実験にはターゲットに酸化ツリウム・ペレットを用いた。線源カプセル封入時のカプセル汚染をさけるため、2重カプセル封入法を採用し、実験的にもその安全性を確かめた。またここで用いた酸化ツリウム・ペレットは、形状が不ぞろいであるが、これも定常的に製造するようになれば、プレスの加圧条件、形状、原料の純度および粒度分布、焼成温度などを一定にして、これを一定にすることは可能である。

$^{170}\text{Tm}$ 線源の線量率の測定は、線源カプセルに封入した状態で行なったが、0.5mm厚さのチタン・カプセルに封入した $^{170}\text{Tm}$ 線源は、裸線源の場合と比較して約3%の出力線量率の低下がある。したがって実際の放射能は出力線量率から計算した値より約3%大きい。しかし線源使用者の立場から知りたいのは、放射能ではなく、出力線量率であり、それを表示するために放射能の値を便宜的に用いてるだけである。したがって一旦Rhm値を0.0025 (R/hr·Ci at 1m)と定めたら、それにしたがってカプセルに封入された線源の出力線量率から計算して放射能をきめた方が実用的である。このような放射能のきめ方は正確さにおいては欠けるが、ラジオグラフィ線源は工業的に使用されるものであり、また低エネルギー $\gamma$ 、X線源のRhm値はその程度の精度で考えられるべきものである。

## Ⅳ む す び

昭和44年度に本研究を始めてから、約2年間は酸化トリウムおよび金属トリウムによるターゲットの調製、さらにJRR-2でこれら試料を照射しては $^{170}\text{Tm}$ 小線源を試作し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源製造に関して必要な事からの検討を行なった。これらの成果をもとにしてその後JMTBによる実用 $^{170}\text{Tm}$ 線(1個29~49Ci)の試験製造を行なった。

結果として成果にまとめられた内容は、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の開発研究であるが、その過程で検討され、解決してきた多くの事項は、 $^{170}\text{Tm}$ 線源製造固有の問題ではなく、ほとんどが原子炉照射によって製造される他のラジオアイソトープ線源に共通のものである。さらに広くは線源全般に関するものである。したがってこれら項目の検討結果は今後一般的に広く利用していただけると思う。

また、ホットセルの製備、カプセル・カッターおよびカプセル自動溶接機の製作、JMTBホットラボからの照射試料運搬用キャスクおよび廃棄物運搬用キャスクの製作など元来サブ・ワーク的な面に多くの労力と時間を費した。

研究内容については、セラミック(酸化トリウム)の焼成、カプセル材料の選択、溶接方法の検討、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の放射線特性の検討、放射線( $\beta$ ,  $\gamma$ , X線)測定、原子炉照射技術の検討、ホットセル内のハンドリングなど多方面にわたっている。したがって本研究を遂行するにあたっては、各分野の専門家の助言、協力、指導を得た。

現在、製造部においては、本研究をもとにして $^{170}\text{Tm}$ 線源の定常的な製造を行なっている。

## 謝 辞

本研究の遂行にさいしては、各分野の方々に助言および御指導をいただいた。

研究計画の段階から終始御指導、御討議下さった小林昌敏ラジオアイソトープ・原子炉研修所次長、榎本茂正利用開発室長、また $^{170}\text{Tm}$ 線源密封作業にさいしての $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 汚染空気発生の原因究明についての有益な助言、御指導をいただいた本島健次ラジオアイソトープ、原子炉研修所長、放射線測定に関して指導をいただいた富永洋利用開発室トレーサー利用係長、ホットセル内のハンドリングについて有益な助言をいただいた立川克浩製造部製造課長代理、JMTB用照射カプセルの設計、製作について御協力いただいたJMTB部照射第一課の大友昭敏氏および工作課の井上利昭氏、酸化トリウム・ペレットの製作について御指導いただいた日本発条(株)研究開発本部長大野明氏、カプセル自動溶接機の設計、製作について御指導いただいた日本アイソトープ協会技術課長柴田隆三氏、研究全般にわたって協力して下さった近藤新助代(元利用開発室員)、これらの方々に心から感謝します。

## Ⅳ む す び

昭和44年度に本研究を始めてから、約2年間は酸化ツリウムおよび金属ツリウムによるターゲットの調製、さらにJRR-2でこれら試料を照射しては $^{170}\text{Tm}$ 小線源を試作し、 $^{170}\text{Tm}$ 線源製造に関して必要な事からの検討を行なった。これらの成果をもとにしてその後JMTBによる実用 $^{170}\text{Tm}$ 線(1個29~49Ci)の試験製造を行なった。

結果として成果にまとめられた内容は、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の開発研究であるが、その過程で検討され、解決してきた多くの事項は、 $^{170}\text{Tm}$ 線源製造固有の問題ではなく、ほとんどが原子炉照射によって製造される他のラジオアイソトープ線源に共通のものである。さらに広くは線源全般に関するものである。したがってこれら項目の検討結果は今後一般的に広く利用していただけると思う。

また、ホットセルの製備、カプセル・カッターおよびカプセル自動溶接機の製作、JMTBホットラボからの照射試料運搬用キャスクおよび廃棄物運搬用キャスクの製作など元来サブ・ワーク的な面に多くの労力と時間を費した。

研究内容については、セラミック(酸化ツリウム)の焼成、カプセル材料の選択、溶接方法の検討、 $^{170}\text{Tm}$ 線源の放射線特性の検討、放射線( $\beta$ ,  $\gamma$ , X線)測定、原子炉照射技術の検討、ホットセル内のハンドリングなど多方面にわたっている。したがって本研究を遂行するにあたっては、各分野の専門家の助言、協力、指導を得た。

現在、製造部においては、本研究をもとにして $^{170}\text{Tm}$ 線源の定常的な製造を行なっている。

## 謝 辞

本研究の遂行にさいしては、各分野の方々に助言および御指導をいただいた。

研究計画の段階から終始御指導、御討議下さった小林昌敏ラジオアイソトープ・原子炉研修所次長、榎本茂正利用開発室長、また $^{170}\text{Tm}$ 線源密封作業にさいしての $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 汚染空気発生の原因究明についての有益な助言、御指導をいただいた本島健次ラジオアイソトープ、原子炉研修所長、放射線測定に関して指導をいただいた富永洋利用開発室トレーサー利用係長、ホットセル内のハンドリングについて有益な助言をいただいた立川克浩製造部製造課長代理、JMTB用照射カプセルの設計、製作について御協力いただいたJMTB部照射第一課の大友昭敏氏および工作課の井上利昭氏、酸化ツリウム・ペレットの製作について御指導いただいた日本発条(株)研究開発本部長大野明氏、カプセル自動溶接機の設計、製作について御指導いただいた日本アイソトープ協会技術課長柴田隆三氏、研究全般にわたって協力して下さった近藤新助代(元利用開発室員)、これらの方々に心から感謝します。

## 文 献

- (1) West, R.: "Low-Energy Gamma-Ray Sources" *Nucleonics*, **11**, [2], 21 (1953)
- (2) Halmshaw, R.: "Thulium 170 for Industrial Radiography" *British Journal of Applied Physics*, **6**, 9(1955)
- (3) Clarke, E.T.: "Gamma Radiography of Light Metals" *Nondestructive Testing*, **16**, 265 (1958)
- (4) Oshida T., Kato M., Watanabe T. and Fuji T.: "Use of Radioisotopes for Nondestructive Inspection in Japan", *Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, Vol. 19, United Nations Publication, 135 (1958)
- (5) 小林昌敏, 榎本茂正, 前田頌, 土井達夫, 中村信治: "<sup>170</sup>Tm線源を用いる航空機機体のγ線透過撮影検査", *非破壊検査*, Vol. 20, 20, 121 (1971)
- (6) The Radiochemical Centre, Amersham: "Radiation sources for industry and research" 1971
- (7) CEA-IRE-SORIN: "Radioactive products" 1974
- (8) 前田頌, 近藤新助: "<sup>170</sup>Tm線源を用いたγ線ラジオグラフィ", *NDI資料-1459* (1969)
- (9) 小林昌敏, 榎本茂正, 前田頌他: "ラジオアイソトープによる航空機の非破壊検査", *JAERI-memo 4163* (公開) (1970)
- (10) 前田頌: "ラジオグラフィ用<sup>170</sup>Tm線源の試作", *NDI資料-1466* (1970)
- (11) Smith P.K., Keski J.R. and Angerman C.L.: "Properties of Thulium Metal and Oxide", *DP-1114* (1969)
- (12) Smith P.K.: "High Temperature Stability of Thulium Oxide", *DP-1116* (1967)
- (13) Spedding F.H., Barton R.J. and Daane A.H.: "The Vapor Pressure of Thulium Metal", *J. Am. Chem. Soc.* **79**, 5160 (1957)
- (14) Manning W.R. and Hunter J.R. O.: "Elastic Properties of Polycrystalline Thulium Oxide and Lutetium Oxide from 20° to 1000° C", *J. Amer. Ceram. Soc.*, **53**, 5, 279 (1969)
- (15) Nelson C. A., Andersom R.W., Fink C.R., Tse A. and Fretagne W.J.: "Thulium Oxide for Thermal Source Applications", *SNC-3693-2* (1970)
- (16) 前田頌, 大野明: "JRR-2 によるラジオグラフィ線源の試作" *JAERI-memo 3795* (公開) (1969)
- (17) Robert, C. McMaster (Editor): "Nondestructive Testing Handbook" Vol. 1, The Ronald Press Company, New York (1963)

JAERI -M 6663 正 誤 表

ページ	行など	誤	正
2	上から 1 2	高熱中性子束	高熱中性子線束
3	上から 1 3	1580℃および1680℃	1545℃および1727℃
3	Tab. 1 中 右上から 5	2005	2000
4	上から 3	放射する。 <sup>182</sup> Ta	放射する <sup>182</sup> Ta
4	上から 1 6	4200℃	4150℃
16	下から 4	Fig 13およびFig 14	Fig 13(A)およびFig 13(B)
16	下から 3	Fig 15	Fig 13(C)
17	下から 1	Fig 13	Fig 13(A)
18	上から 1	Fig 14	Fig 13(B)
18	下から 2	Fig 15	Fig 13(C)
25	上から 8	Fig 45	Fig 31
38	上から 5	<sup>170</sup> Tm 線	<sup>170</sup> Tm 線源