



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	荷電粒子入射反応における医療用放射性核種 ^{169}Yb の生成断面積測定
Author(s)	花田, 萌美
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(医理工学)
Dissertation Number	甲第14118号
Issue Date	2020-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k14118
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/78121
Type	doctoral thesis
File Information	Moemi_Hanada.pdf



学 位 論 文

荷電粒子入射反応における医療用放射性核種 ^{169}Yb の
生成断面積測定

(Cross section measurements of charged-particle induced reactions
to produce medical radionuclide ^{169}Yb)

2020 年 3 月

北 海 道 大 学

花田 萌美

(Moemi HANADA)

学 位 論 文

荷電粒子入射反応における医療用放射性核種 ^{169}Yb の
生成断面積測定

(Cross section measurements of charged-particle induced reactions
to produce medical radionuclide ^{169}Yb)

2020 年 3 月

北 海 道 大 学

花田 萌美

(Moemi HANADA)

目次

発表論文目録および学会発表目録.....	1
1. 緒言.....	2
1.1 放射性核種とその応用.....	2
1.2 放射性核種の生成手法とその決定.....	3
1.3 イッテルビウム-169 (^{169}Yb)	4
1.4 ^{169}Yb の生成方法.....	5
1.4.1 ^{169}Tm への陽子入射反応.....	6
1.4.2 ^{169}Tm への重陽子入射反応.....	7
1.4.3 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応.....	8
1.4.4 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応.....	10
1.5 本研究の目的.....	11
略語表.....	12
2. 実験方法.....	13
2.1 放射化法 (activation method)	13
2.2 積層箔法 (stacked foil method)	13
2.3 ガンマ線分光法 (gamma-ray spectrometry)	14
2.4 検出器.....	15
2.5 モニター反応.....	16
3. 実験内容.....	17
3.1 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験.....	18
3.1.1 標的.....	18
3.1.2 モニター反応.....	19
3.1.3 核データ	20
3.1.4 誤差情報.....	21
3.2 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応実験.....	22
3.2.1 標的.....	22
3.2.2 モニター反応.....	24
3.2.3 核データ	24
3.2.4 誤差情報.....	25
4. 実験結果.....	26
4.1 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験.....	26

4.1.1 ^{169}Yb 生成	28
4.1.2 ^{169}Yb 生成量	29
4.1.3 副生成物の生成.....	30
4.2 ^{164}Er へのアルファ粒子入射反応実験.....	37
4.2.1 ^{169}Yb 生成.....	39
4.2.2 ^{169}Yb の生成量.....	40
4.2.3 副生成物の生成.....	41
5. 考察.....	48
6. 総括および結論.....	49
謝辞.....	50
引用文献.....	51

発表論文目録および学会発表目録

本研究の一部は以下の論文に発表した。

1. M. Saito, M. Aikawa, H. Haba, Y. Komori, S. Takács
Production cross sections of ^{169}Yb and Tm isotopes in deuteron-induced reactions on ^{169}Tm
Applied Radiation and Isotopes 125, 23-26, 2017
2. M. Saito, M. Aikawa, M. Sakaguchi, N. Ukon, H. Haba, Y. Komori, S. Takács
Production cross sections of ytterbium and thulium radioisotopes in alpha-induced nuclear reactions on natural erbium
Applied Radiation and Isotopes 154, 108874, 2019

本研究の一部は以下の学会に発表した。

- a. 齋藤萌美、合川正幸、羽場宏光、小森有希子、Sandor Takacs
 ^{169}Tm への重陽子入射における ^{169}Yb の生成断面積について
日本原子力学会「2016 年秋の大会」, 2016 年 9 月 7 日~9 日・久留米シティプラザ
- b. 齋藤萌美、合川正幸、坂口理哉、右近直之、小森有希子、羽場宏光
医療用放射性核種 ^{169}Yb 生成のための ^{nat}Er への 50 MeV アルファ粒子入射における生成断面積測定
日本原子力学会「2019 年春の年会」, 2019 年 3 月 20 日~22 日・茨城大学 水戸キャンパス
- c. 齋藤萌美、合川正幸、坂口理哉、右近直之、小森有希子、羽場宏光、Sandor Takacs
荷電粒子入射反応における医療用放射性核種 ^{169}Yb 生成断面積測定実験
日本原子力学会「2019 年秋の大会」, 2019 年 9 月 11 日~13 日・富山大学・五福キャンパス

1. 緒言

1.1 放射性核種とその応用

放射性核種は利便性が高い放射線源として、工学や医学等分野を問わず幅広く応用利用されている。放射線は高い透過力やエネルギーを持つため、医療分野の一つである核医学では、治療、診断共に広く利用されている。以下に、核医学における応用利用の例を示す。

ヨウ素-131 (^{131}I)

半減期 8.02 日のベータ線放出核種である。放射性核種を病巣に集積させて体内から放射線治療を行う内用療法で用いられる。ヨウ素自身が甲状腺に集積しやすいことから、甲状腺疾患に用いられる。

ヨウ素-125 (^{125}I)

半減期 59.4 日のオージェ電子・ガンマ線放出核種である。体内に永久留置した密封線源からの放射線により治療を行う低線量率小線源治療にて用いられる。前立腺がんにも用いられることが多い。

イリジウム-192 (^{192}Ir)

半減期 73.8 日のベータ線・ガンマ線放出核種である。密封線源を体内に一時的に留置し、その線源からの放射線により治療を行う高線量率小線源治療にて用いられる。

テクネチウム-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$)

半減期 6 時間のガンマ線放出核種である。ガンマ線（この核種では 140 keV）を検出することにより体内動態を調べる単一光子放射断層撮影（Single photon emission computed tomography, SPECT）に用いる。輸送するには半減期が短いため、親核である ^{99}Mo ($T_{1/2} = 66$ 時間) をジェネレータとし、病院で $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の抽出を行う。世界の医療用放射性核種の中でも 8 割を超える圧倒的な市場占有率を持つ。

フッ素-18 (^{18}F)

半減期 110 分の陽電子放出核種である。放出された陽電子と電子との対消滅ガンマ線 511 keV を検出することにより体内動態を調べる陽電子断層撮像法（Positron emission tomography, PET）に用いる。半減期が短いため長距離輸送に適しておらず、病院内の小型サイクロトロンにて生成されることが多い。

このように、放射性核種を用いた治療及び診断は、すでに確立された手法として病院で実施されている。特に、手術や化学療法に比べ、患者への負担が少ないなど、利点も多い。しかし、現在においても、患者の更なる生活の質の向上や負担軽減の為に、新たな放射性核種を用いた治療及び診断の研究開発が続けられている。研究中のものを含めた医療用核

種数は 100 種類を超えるとも言われ(U.S. Department of Energy)、個々の状況に応じた選択の幅が広がっている。

1.2 放射性核種の生成手法とその決定

新しい放射性核種の利用が決まった際には、大量生産に向けて効率的な生成手法を確立する必要がある。生成手法を比較検討する際に必要な情報の一つとして、生成確率を示す原子核反応データである生成断面積 (cross section) がある。しかし、未だこのデータは全ての核種に対しては揃っていない。また、データが存在する場合でも、データが古い、データ件数が不十分であるなど不備がある場合もあり、新しい実験による検証が必要とされている。

生成断面積が確率を表すのに対し、生成量を示す原子核反応データとしては厚い標的で得られる収量 (thick target yield, TTY) を用いる。しかしながら、生成断面積が普遍的な量であるのに対し、生成量は定義(Otuka and Sándor Takács, 2015)が複数存在する。そのため、生成量で比較検討する際には用いる定義に注意する必要がある。

生成手法の一つに、原子炉を用いる方法がある。原子炉では、中性子捕獲反応を用いて放射性核種を生成することができるため、 ^{99m}Tc のジェネレータである ^{99}Mo の生成などに利用されている。しかし、このジェネレータの生成で現在用いられている研究用原子炉について問題が生じている。将来的な国際的供給不足問題として取り上げられるように(Van Noorden, 2013)、現在医療用放射性核種生成に用いられている研究用の原子炉の多くが古く、廃炉もしくは建て直しが進められている。また、核兵器製造防止のため、高濃縮ウラン燃料から低濃縮ウランへの燃料変更が進められている。これらの影響を踏まえると原子炉による $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ ジェネレータの生産コストは現在の 15 倍にもなると言われている(Van Noorden, 2013)。他の医療用放射性核種に関しても、原子炉による中性子捕獲反応を用いる場合には生産コストの増加が考えられる。このような現状から、原子炉以外の手段を用いた医療用放射性核種の生成手法の探索が求められている。

そこで、我々は原子炉以外の手段の一つとして、加速器を用いた荷電粒子入射反応による医療用放射性核種の生成に着目し、系統的な実験を行なっている。

荷電粒子入射反応とは、陽子、重陽子及びアルファ粒子等の電荷を持つ粒子を入射する原子核反応のことである。荷電粒子入射反応では、標的に生成目的の元素とは異なる元素を用いるため、化学分離によって標的元素と目的元素の分離が可能である。そのため、中性子捕獲反応に比べ、比放射能の高い医療用放射性核種を得ることができる。

我々は、応用利用には不十分なデータの一つとして、イッテルビウム-169 (^{169}Yb) の生成に関する核データに着目した。

1.3 イッテルビウム-169 (^{169}Yb)

^{169}Yb は半減期 32.02 日で、49.8 keV から 307.7 keV のガンマ線 (平均 93 keV) を放出する核種である。このガンマ線が低線量率、高線量率双方の小線源治療に適したエネルギーであることから、 ^{125}I 及び ^{192}Ir を代替することが可能であると考えられている (Lymperopoulou et al., 2006)。それぞれの核種の比較を表 1 に示す。このように、半減期や放射線のエネルギー等が異なる核種について研究開発をすることにより、それぞれの核種ごとに適した小線源治療を行うことが期待できる。

表 1 ^{169}Yb と小線源治療に用いられている ^{125}I 及び ^{192}Ir の比較

核種	半減期	放出粒子	放出エネルギー	平均 エネルギー	生成反応
^{169}Yb	32.0 日	オージェ電子、 γ	49.8 - 308.7 keV	93 keV	$^{168}\text{Yb}(n,\gamma)^{169}\text{Yb}$
^{125}I	59.4 日	オージェ電子、 γ	35.5 keV (γ), 27.5 keV 及び 31.0 keV (特性 X 線)	28.5 keV	$^{124}\text{Xe}(n,\gamma)^{125}\text{Xe} \rightarrow ^{125}\text{I}$
^{192}Ir	73.8 日	β 、 γ	130 - 1060 keV (β), 256 - 672 keV (γ)	350 keV	$^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192}\text{Ir}$

また、177.21 keV ($I_\gamma=22.16\%$) と 197.96 keV ($I_\gamma=35.8\%$) のガンマ線が検出に適していることから、 ^{169}Yb 標識ジエチレントリアミン五酢酸 (^{169}Yb -DTPA) による脳槽造影法での使用も検討されている (DeLand et al., 1971)。

1.4 ^{169}Yb の生成方法

図 1-1 に ^{169}Yb 近傍の核図表を示す。

陽 子 数	71	^{165}Lu	^{166}Lu	^{167}Lu	^{168}Lu	^{169}Lu	^{170}Lu	^{171}Lu	^{172}Lu	^{173}Lu
	70	^{164}Yb	^{165}Yb	^{166}Yb	^{167}Yb	^{168}Yb 0.123%	^{169}Yb	^{170}Yb 2.982%	^{171}Yb 21.68%	^{172}Yb 16.103%
	69	^{163}Tm	^{164}Tm	^{165}Tm	^{166}Tm	^{167}Tm	^{168}Tm	^{169}Tm 100%	^{170}Tm	^{171}Tm
	68	^{162}Er 0.139%	^{163}Er	^{164}Er 1.601%	^{165}Er	^{166}Er 33.503%	^{167}Er 22.869%	^{168}Er 26.978%	^{169}Er	^{170}Er 14.910%
		94	95	96	97	98	99	100	101	102
		中性子数								

図 1-1 ^{169}Yb 近傍の核図表

黒背景は安定同位体を示し、自然存在比を併記した。

現在、研究用の ^{169}Yb の生成には原子炉の熱中性子による ^{168}Yb への中性子捕獲反応を用いている。しかしながら、 ^{168}Yb は自然存在比 0.123%と極めて少なく、高濃度の ^{169}Yb を得る為には照射前に同位体濃縮が必要となる。また、中性子吸収反応では同元素からの生成であるため、高い比放射能を得るためには照射後にも同位体濃縮が必要となる。

荷電粒子入射反応による ^{169}Yb 生成には、表 2 にあげた反応が考えられる。そこで、それぞれの反応に関する核反応断面積データ取得実験について、先行研究の調査を行った。先行研究件数およびエネルギー範囲は、国際原子力機関（International Atomic Energy Agency; IAEA）が提供する原子核反応実験データベース EXFOR(Otuka *et al.*, 2014)による検索結果を元に作成した。

表 2 ^{169}Yb 生成に関する荷電粒子入射反応

反応	先行研究 [件]	エネルギー範囲 [MeV]
$^{169}\text{Tm}(p,n)^{169}\text{Yb}$	4	4-50
$^{169}\text{Tm}(d,2n)^{169}\text{Yb}$	3	4-50
$^{169}\text{Tm}(\alpha,tn)^{169}\text{Yb}$	1	43-66
$^{169}\text{Tm}(\alpha,4n)^{169}\text{Lu} \rightarrow ^{169}\text{Yb}$	5	37-65
$^{\text{nat}}\text{Er}(\alpha,x)^{169}\text{Yb}$	4	10-84
$^{166}\text{Er}(\alpha,n)^{169}\text{Yb}$	2	11-17
$^{167}\text{Er}(\alpha,2n)^{169}\text{Yb}$	0	-
$^{168}\text{Er}(\alpha,3n)^{169}\text{Yb}$	0	-
$^{170}\text{Er}(\alpha,5n)^{169}\text{Yb}$	0	-

それぞれの反応について、先行研究とともに原子核反応理論に基づく計算結果（TENDL-2017）（Koning *et al.*, 2019）を示し、現状の問題点を以下 1.4.1 節から 1.4.4 節にて詳細に述べる。

1.4.1 ^{169}Tm への陽子入射反応

先行研究 4 件(Birattari *et al.*, 1973; Spahn *et al.*, 2005; Sonnabend *et al.*, 2011; Tárkányi *et al.*, 2012)について、入射粒子のエネルギーに対する生成断面積を図 1-2 に示した。このように、生成断面積をエネルギーの関数として表すことで、どのエネルギーにおいて生成断面積が一番大きいか一目でわかるようになり、効率的な入射エネルギーの選択に関する議論が可能になる。この図からわかるように、ピーク付近では、2 件(Birattari *et al.*, 1973; Spahn *et al.*, 2005)のデータがあるが、断面積はおおよそ 2 倍の違いがあり、新しい実験による精査が必要である。TENDL-2017(Koning *et al.*, 2019)は 8 MeV 付近までは実験値と良い一致を示すが、ピーク位置及び半値幅は実験値よりも小さく、15 MeV 以降は実験値よりも大きい値を示している。このような実験ごとのずれについては、それぞれの実験による系統誤差が大きな原因であると考えられる。

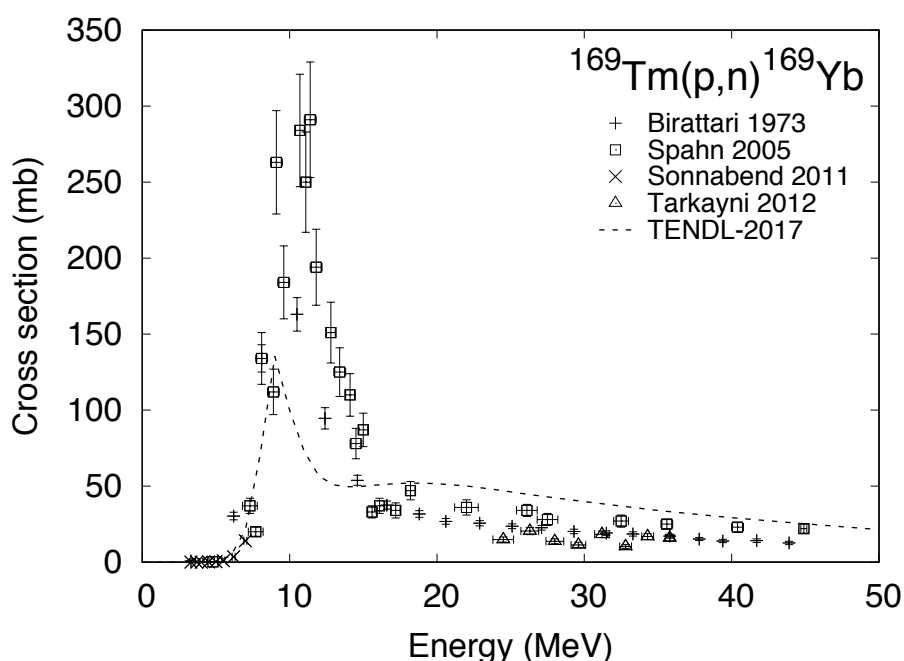


図 1-2 ^{169}Tm への陽子入射による ^{169}Yb 生成断面積。先行研究と TENDL-2017 の比較

1.4.2 ^{169}Tm への重陽子入射反応

(2016 年度理学院修士課程にて研究(Saito *et al.*, 2017))

我々のグループが研究を開始した時点で、先行研究は 3 件(Tárkányi *et al.*, 2007; Hermanne *et al.*, 2009, 2016)であった。これらは同じグループによる実験で、酸化ツリウム粉末 (Tm_2O_3) をアルミニウム箔に蒸着させたものを標的として使用しており、断面積算出の際には標的の厚さは一定であると仮定していた。しかしながら、標的の厚みの不均一からと考えられるデータのばらつきが結果に現れていることがわかった。そこで我々のグループでは、より精度の高い厚さが得られる金属箔を用いた検証が必要であると考え、実験を実施した。

図 1-3 は、先行研究 3 件と我々の実験結果を理論計算データベース値 TENDL-2017(Koning *et al.*, 2019)と比較した図である。傾向およびピーク位置は先行研究と一致する結果が得られたが、断面積は先行研究よりも大きい値となった。TENDL-2017 も傾向は一致したが、ピーク位置が少し低く出た。

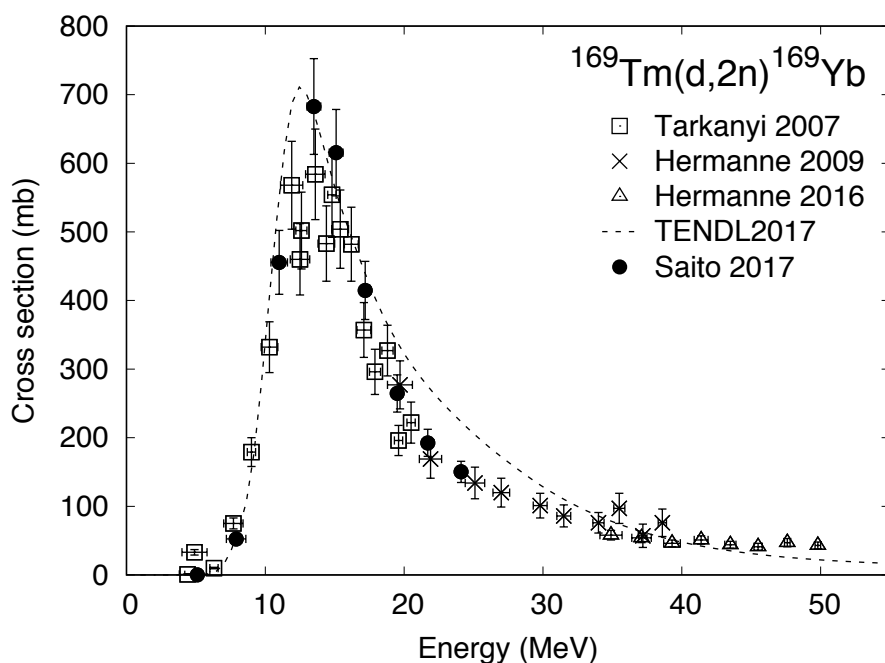


図 1-3 ^{169}Tm への重陽子入射による ^{169}Yb 生成断面積。実験結果と TENDL-2017 の比較

1.4.3 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応

先行研究は、7件(Sau, Demeyer and Chéry, 1968; Leyden and Murthy, 1988; Singh, Agarwal and Rama Rao, 1990; Mohan Rao, Mukherjee and Rao, 1992; Mohan Rao and Chintalapudi, 1994; Kiss *et al.*, 2011; Rauscher *et al.*, 2012)ある。しかしながら、測定目的が原子核モデルの構築や天体核生成における興味であったため、Lu 同位体生成のデータに偏っており、 ^{169}Yb 生成のデータは1件のみである。また、 ^{169}Yb 生成以外のデータに関しても、古いもしくはエネルギーが低い領域のみの測定であるため、再測定による検証が必要である。

図 1-4 に、 ^{169}Yb 生成実験の先行研究と理論計算データベース値である TENDL-2017 との比較を示す。

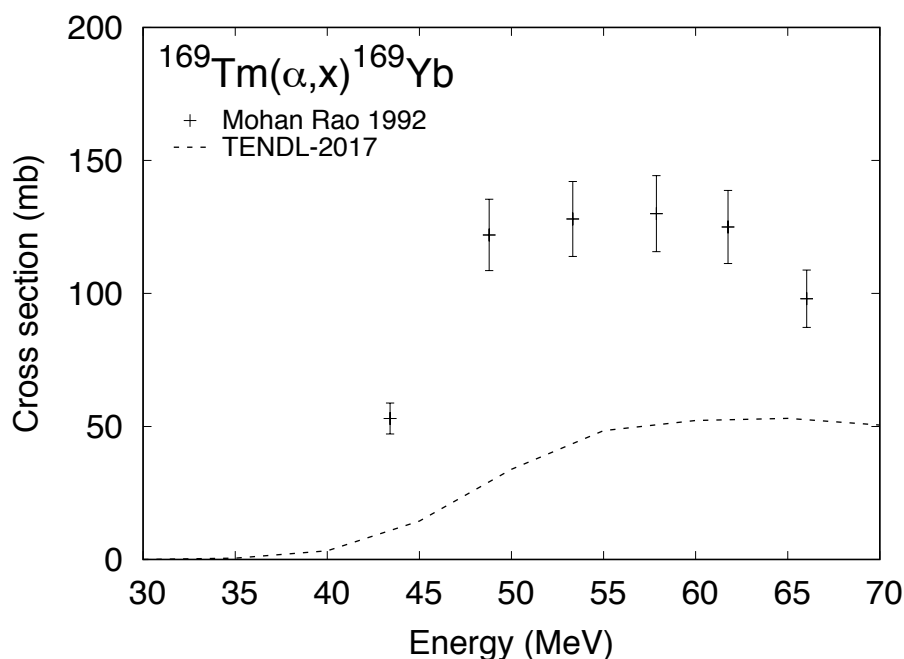


図 1-4 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射による ^{169}Yb 生成断面積。先行研究と TENDL-2017 の比較

この反応では ^{169}Yb 生成の他に、親核である ^{169}Lu ($T_{1/2}=34.06$ 時間) も生成される。図 1-5 に、 ^{169}Lu 生成実験の先行研究と TENDL-2017 との比較を示す。5 件の実験結果でピーク位置はほぼ一致しているが、ピークの高さが異なる結果となっている。また、実験値と TENDL-2017 はピーク位置、断面積共に異なる結果である。

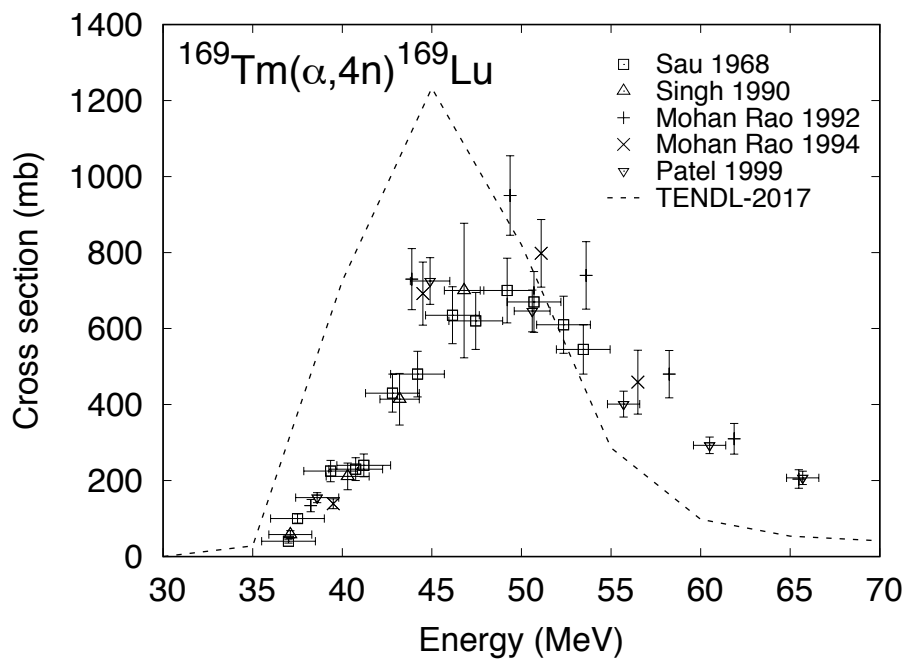


図 1-5 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射による ^{169}Lu 生成断面積。先行研究と TENDL-2017 の比較

1.4.4 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応

先行研究は 4 件(Homma *et al.*, 1980; Archenti *et al.*, 1985; Mohan Rao, Mukherjee and Rao, 1992; Sonzogni *et al.*, 1992; Király *et al.*, 2008; Kiss *et al.*, 2015)存在するが、図 1-6 に示す通り先行研究間での違いが大きく、どの値を信用すべきか判断できない。そのため、生成量を見積もることができず、他の核反応に関するデータとの比較も難しく、新たな実験データによる検証が必要であると考えられる。

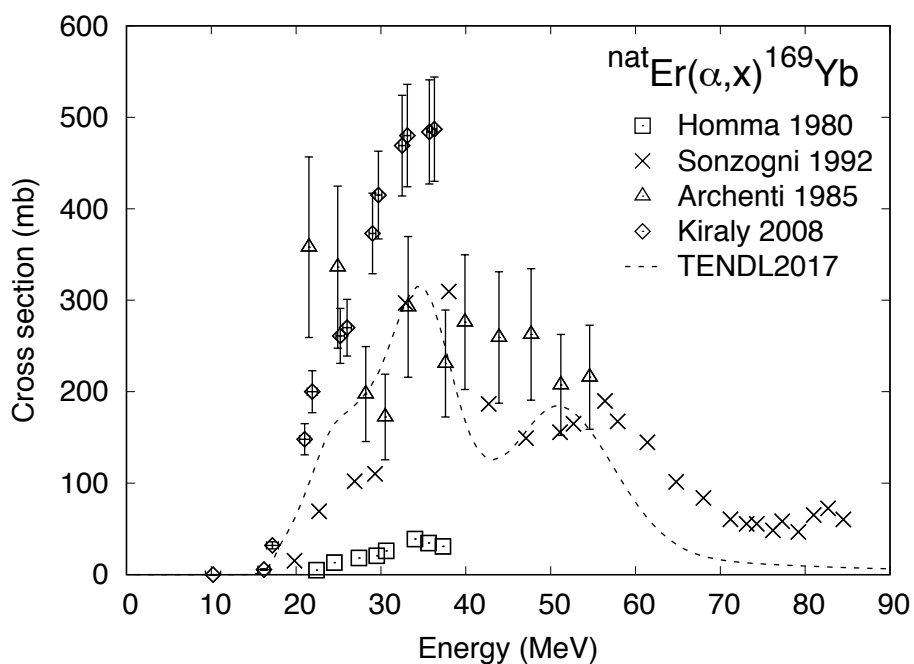


図 1-6 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射による ^{169}Yb 生成断面積。先行研究と TENDL-2017 の比較

1.5 本研究の目的

前章から、 ^{169}Yb 生成に関する荷電粒子入射生成核反応データは未だ不十分であることがわかった。そのため、荷電粒子入射反応による ^{169}Yb 生成核反応データを系統的に測定し、より精度の高いデータを測定することで核データの整備を進める。これにより、 ^{169}Yb を医療で利用する際の生成手法決定の一助となる事で、医療分野への貢献を目的とする。

本研究では、 ^{169}Yb の生成断面積を測定し、その生成量を見積もると同時に、副生成物である不要な放射性核種の生成についても調べる。修士課程における研究であった ^{169}Tm への重陽子入射実験(Saito *et al.*, 2017)に加えて、 ^{169}Tm および ^{167}Er へのアルファ粒子入射実験を博士課程において実施した。これにより、 ^{169}Yb の生成について、不純物が少なく効率的な核反応に関する知見を得ることができる。

略語表

本文中および図中で使用した略語は以下の通りである。（アルファベット順）

AVF	azimuthally varying field
PET	positron emission tomography
SPECT	single photon emission computed tomography

2. 実験方法

生成断面積測定実験で用いられる一般的な手法として、放射化法、積層箔法およびガンマ線分光法の3つが挙げられる。この章ではこれら3つの手法とそれらに伴って使用する機材やデータを紹介する。

2.1 放射化法 (activation method)

ビームを照射することにより標的を放射化させ、生成された核種が崩壊時に出す放射線の量を測定することで、生成された放射性核種の生成断面積を算出する手法である。我々の実験では、崩壊時のガンマ線を測定するガンマ線分光法を用いて、生成断面積を算出している。それぞれの放射性核種は崩壊時に固有のエネルギーを放出するため、このガンマ線により放射性核種を同定することが可能である。

生成断面積の算出式は以下の式ようになる。

$$\sigma = \frac{T_{\gamma}\lambda}{\varepsilon_d\varepsilon_{\gamma}\varepsilon_t N_t N_b (1 - e^{-\lambda t_b})e^{-\lambda t_c}(1 - e^{-\lambda t_m})}$$

なお、ガンマ線のカウント数を T_{γ} 、標的原子の面密度を N_t 、単位時間あたりの入射粒子数を N_b 、検出器の検出効率を ε_d 、ガンマ線の放出確率を ε_{γ} 、測定中の不感時間補正を ε_t 、崩壊定数を λ 、照射時間を t_b 、冷却時間を t_c 、測定時間を t_m としている。

2.2 積層箔法 (stacked foil method)

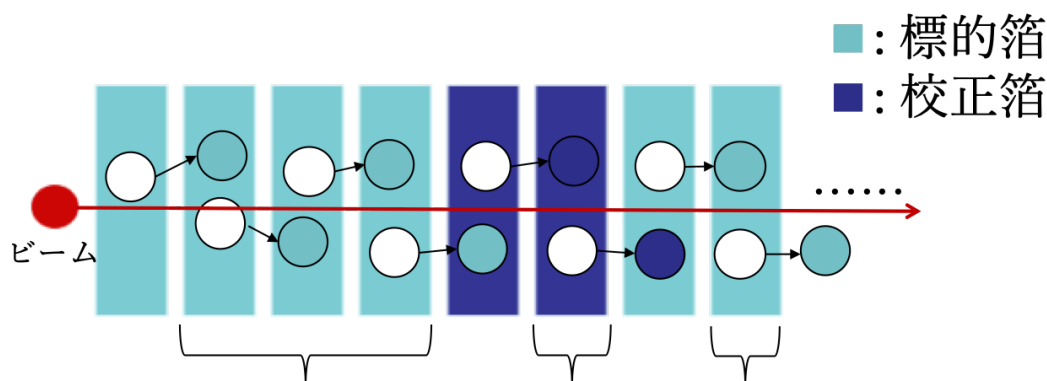
標的となる箔を複数重ねた積層箔標的を用いることにより、一度のビーム入射で複数のエネルギーに関するデータを得る手法である。これは荷電粒子のエネルギーが物質中で減衰していくことを利用している。積層箔標的は、実験の目的となる標的箔と評価データが存在する校正用の箔を重ねて構成する。

我々の実験では、それぞれの箔におけるエネルギーは、阻止能計算コード SRIM(Ziegler, Biersack and Ziegler, 2008)を用いることで算出し、入射エネルギーは飛行時間法 (Time of flight) (Watanabe et al., 2014)による測定値を使用している。

反跳効果

箔を重ねているため、図 2-1 に示す箔間の反跳粒子の効果を考慮しなくてはならない。反跳粒子が存在すると、入射粒子と反応を起こした標的中の粒子が飛び出し、次の箔へと移ってしまう。結果的に、反応が起こった数を過小評価することになる。そこで、連続する同一元素の箔における反跳粒子数が図 2-1 のように等しいと仮定すると、複数枚同じ箔を重ねて2枚目以降のみを測定することで反跳粒子の効果が打ち消されたとみなすことができる。複数枚重ねることが難しい高価な標的箔の場合は、標的箔とは原子番号が大きく異なる校正箔を使用し、標的箔とその直後の校正箔を同時に測定することで、標的箔の反跳粒子の効果は打ち消された状態となる。なおこの場合、校正箔からの放射線も同時に測

定しているため、標的箔からの放射線と区別がつくように双方から出るガンマ線が異なる校正箔を選ぶことも重要となる。



これらの箔を測定することで、反跳粒子の効果を考慮したデータが得られる

図 2-1 積層箔標的における箔間の反跳粒子の概念図

2.3 ガンマ線分光法 (gamma-ray spectrometry)

生成された放射性核種が崩壊する際に放出される、固有のエネルギーを持ったガンマ線を検出することで、核種の同定を行う。それぞれの核種に固有の放出ガンマ線エネルギーについては、原子核の崩壊に関するデータを扱っているデータベース(Chu, Ekström and Firestone, 1999; International Atomic Energy Agency, 2009; National Nuclear Data Center, 2017)を用いて取得する。

ガンマ線の測定には、解析用ソフトウェアであるガンマスタジオ (SEIKO EG&G) を使用した。このソフトウェアを利用し、放出ガンマ線をエネルギーごとに分けて測定する (図 2-2)。ここで、特定の放出ガンマ線エネルギーに着目することで、核種の同定を行うことが可能となる。

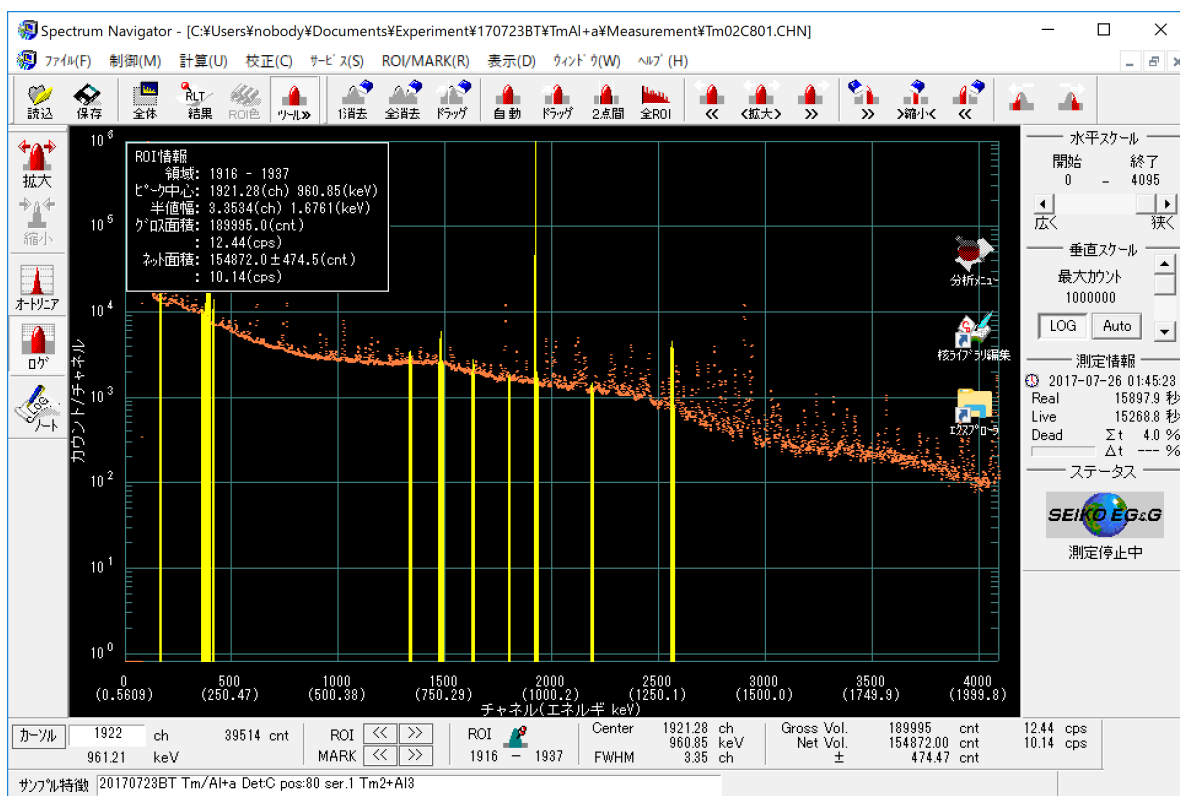


図 2-2 ガンマスタジオ使用画面例

2.4 検出器

検出器は理化学研究所 RI ビームファクトリーにある高純度ゲルマニウム（Hyper-pure Germanium, HPGe）検出器を使用した。同時期に実施している実験との兼ね合いで複数の検出器を使用した。表 3 に今回の実験で使用した検出器をまとめる。

表 3 使用した検出器一覧

	検出器	メーカー	使用実験
det. 1	GMX-25190-P	ORTEC	Tm+ α 実験 1
det. 2	GMX30P4-70	ORTEC	Tm+ α 実験 2, Er+ α 実験
det. 3	GEM30P4-70	ORTEC	Tm+ α 実験 2, Er+ α 実験

それぞれの検出器は、 $^{57,60}\text{Co}$, ^{88}Y , ^{109}Cd , ^{113}Sn , ^{137}Cs , ^{139}Ce 及び ^{241}Am から成る校正線源（Eckert & Ziegler Isotope Products Inc.）により各測定位置における検出効率曲線を算出している。



図 2-3 使用した校正線源

2.5 モニター反応

国際原子力機関（IAEA）では、放射化法を用いた生成断面積測定のスピンエネルギー及び箔の厚さを校正するために、いくつかの反応について推奨値(Hermanne *et al.*, 2018)を作成している。主に、 ^{27}Al , $^{\text{nat}}\text{Ti}$, $^{\text{nat}}\text{Cu}$ 等を標的とし、長寿命かつ大きな放出確率を持つガンマ線が存在する核種の生成反応が選ばれている。IAEA では、その断面積を測定するプロジェクト等が実施され、より信頼性の高い値が得られている。その推奨値とそれぞれの研究者が実施した実験結果と比較することで、個別の実験の信頼性が確保できると考えられている。積層箔法を用いた実験では、その推奨値と校正箔の結果を比較することでエネルギー計算の確認を行なっている。推奨値のデータは、IAEA の核データ部門ホームページ(IAEA - Nuclear Data Section)からダウンロード可能である。

3. 実験内容

実験は、理化学研究所 RI ビームファクトリーの AVF サイクロトロンを使用した。同施設は、共同利用施設であり、これまでに多くの断面積測定の実績がある。加速器及び測定設備が整っており、今回着目しているエネルギー領域である 50 MeV までアルファ粒子を加速した実験に適している。

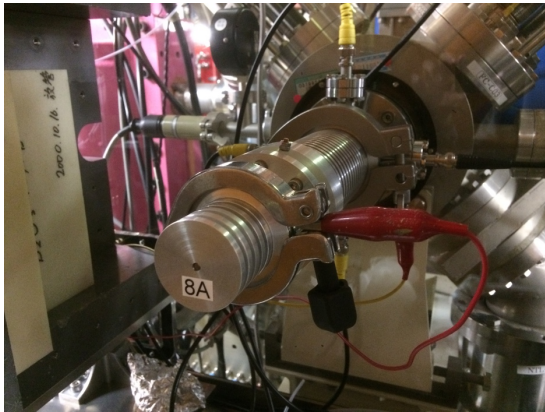


図 3-1 ビーム最下流に設置された標的容器（左）と AVF サイクロトロン（右）

それぞれの実験条件を、表 4 に示す。

表 4 ^{169}Tm 及び $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射実験条件

実験	実施	入射エネルギー	ビーム強度	照射時間
$^{169}\text{Tm}+\alpha$ #1	2017 年 7 月	51.6 MeV	178.6 nA	2 時間
#2	2019 年 2 月	50.7 MeV	186.8 nA	1 時間
$^{\text{nat}}\text{Er}+\alpha$	2018 年 9 月	50.9 MeV	200.3 nA	1 時間

表 4 に示した入射エネルギー及びビーム強度は測定値である。ビーム強度は、標的容器が電流計の一部を担っており、電流の単位で測定することができる。得られた電流から入射粒子数を計算することができる。

3.1 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験

^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験は、初回の 2017 年の実験結果が先行研究と大きく異なる結果を得たため、追試実験として 2019 年に 2 回目の実験を実施した。

3.1.1 標的

^{169}Tm へのアルファ粒子入射実験における積層箔標的は、 ^{169}Tm 箔 1 枚及び ^{27}Al 箔 2 枚を 1 組とし、9 組重ねた計 27 枚で構成した。2019 年の実験では、2017 年の実験とエネルギーを少し変えるために、 ^{27}Al 箔を 1 枚先頭に追加した計 28 枚とした。これは、今回特に重要となる 30 MeV 以上を重点的に測定するような構成となっている。標的には、図 3-2（左）に示す純度 99.0% の ^{169}Tm 金属箔（28.65 mg/cm², Goodfellow Co., Ltd., UK）と校正用に純度 99.6% の ^{27}Al 金属箔（1.50 mg/cm², Nilaco, Corp., Japan）を使用した。 ^{169}Tm 箔、 ^{27}Al 校正箔それぞれの厚さは裁断前の箔の質量と面積を測定することで算出した。標的の ^{169}Tm 金属箔は、2016 年 2 月に実施した重陽子入射実験で用いたものを 2017 年、2019 年の 2 回の実験においても繰り返し使用した。校正箔は実験ごとに新しいものを使用している。図 3-2 に裁断前の 25 mm 角 ^{169}Tm 箔と 8 mm 角に裁断後に番号を書き整列した ^{169}Tm 箔及び ^{27}Al 箔を示す。整列後は再度順番を確認しながら図 3-1 で示した標的容器に収納した。

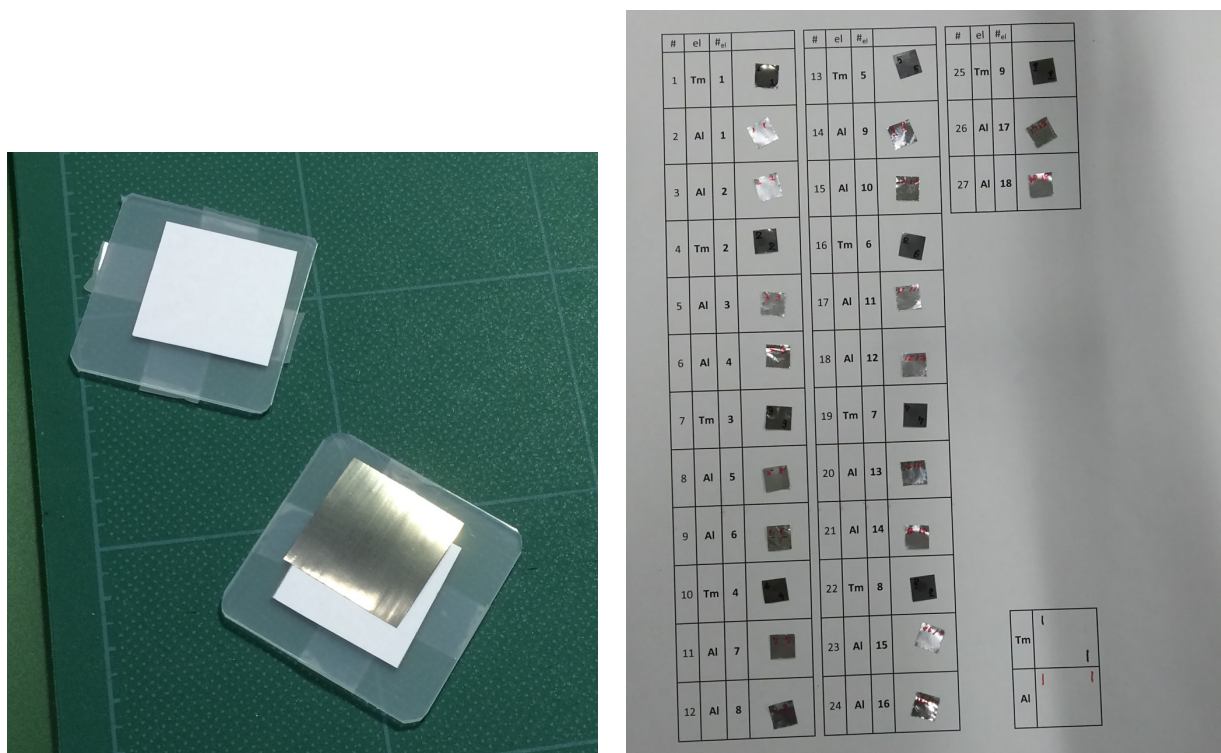


図 3-2 25 mm 角 ^{169}Tm 箔 (左) と 8 mm 角に裁断し印付、整列した ^{169}Tm 箔及び ^{27}Al 箔 (右)

3.1.2 モニター反応

測定したビームに関するパラメータ及び校正箔の厚さについての確認を行うため、校正箔から得られたモニター反応断面積の実験結果を IAEA 推奨値と共に図 3-3 に示す。モニター反応は、比較を容易に行うため、着目している入射エネルギーの範囲で断面積の変化が大きい反応を用いるのが一般的である。そこで、今回は 30 MeV 以上の領域で断面積の変化が大きい $^{27}\text{Al}(\alpha, x)^{22}\text{Na}$ 反応をモニター反応として用いた。

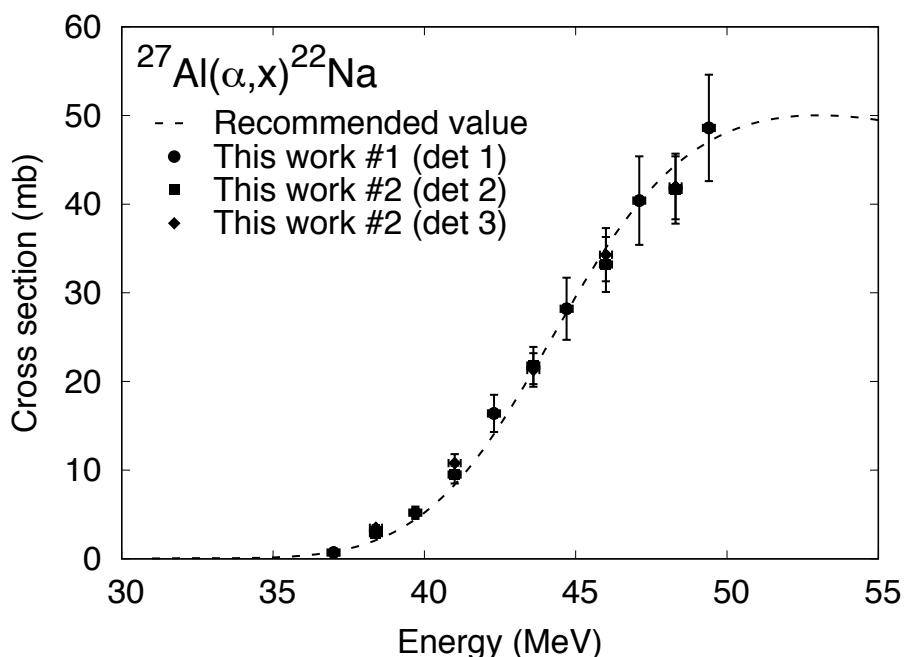


図 3-3 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射実験における $^{27}\text{Al}(\alpha, x)^{22}\text{Na}$ モニター反応断面積

この断面積は、 ^{22}Na ($T_{1/2} = 2.6027$ 年) の崩壊時に放出されるガンマ線 1274.53 keV ($I_\gamma = 99.944\%$) を測定することで算出した。

実験 1 は、3 日の冷却時間を置いたのち、不感時間が 0.3% 以下の状態で測定した。結果から、ビーム強度を測定値から約 10% 減らす補正を行い、IAEA 推奨値との良い一致を得た。補正を行わなければならなかった理由は、ビーム照射時に金属中の電子が放出されてしまい、電流計での測定値が実際よりも大きくなったと考えられたためである。

実験 2 は、2 つの検出器でそれぞれ測定を行い、その結果が IAEA 推奨値とよく一致したため、ビームパラメータは一切補正を行わなかった。それぞれに用いた校正箔の冷却時間及び不感時間は以下の通りである。

Det2; 冷却時間 6 日、不感時間 0.05% 以下。

Det3; 冷却時間 1 日、不感時間 0.4% 以下。

照射直後には複数の短寿命核種が存在し、より正確な測定が難しくなる。そのため、特にモニター反応の測定に関しては、できるだけ冷却時間を長めにとっている。これにより、実験の信頼性が担保されていることを確認した。

3.1.3 核データ

^{169}Tm への 50 MeV アルファ粒子入射反応実験において生成されるそれぞれの核種のガンマ線及び核反応に必要なエネルギー (Q 値) を表 5 に示す。ガンマ線に関する情報は、NuDat 2.7(National Nuclear Data Center, 2017)、Lund/LBNL Nuclear Data Search(Chu, Ekström and Firestone, 1999) 及び Live Chart(International Atomic Energy Agency, 2009) から、Q 値は QCalc(Pritychenko and Sonzogni, 2003)から取得した。

表 5 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応における核データ、生成核種、生成反応及び Q 値

生成核種	半減期	崩壊モード [%]	E_γ [keV]	I_γ [%]	生成反応	Q 値 [MeV]
^{172g}Lu	6.70 日	$\varepsilon(100)$	78.7426	10.6(3)	(α, n)	-10.2
			181.528	20.6(4)		
			810.064	16.63(25)		
			900.724	29.8(4)		
			912.125	15.25(25)		
			1093.657	62.5(13)		
^{171g}Lu	8.24 日	$\varepsilon(100)$	19.394	13.7(7)	$(\alpha, 2n)$	-17.2
			667.404	11.04		
			739.78	47.8(7)		
^{170g}Lu	2.012 日	$\varepsilon(100)$	84.25	9.0(5)	$(\alpha, 3n)$	-25.8
			193.13	2.14(7)		
			1280.25	8.18(23)		
^{169}Lu	34.06 時間	$\varepsilon(100)$	191.2137	20.6(5)	$(\alpha, 4n)$	-33.1
			960.622	23.4(5)		
			1449.74	9.92(21)		
^{167}Tm	9.25 日	$\varepsilon(100)$	207.8	41(6)	$(\alpha, \alpha 2n)$ $^{167}\text{Yb}(\varepsilon)$	-14.9
^{168}Tm	93.1 日	$\varepsilon(99.99)$, $\beta(0.01)$			$(\alpha, \alpha n)$	-8.0
^{170}Tm	128.6 日	$\varepsilon(99.87)$, $\beta(0.13)$	84.25	2.5	$(\alpha, {}^3\text{He})$	-14.0
^{167}Yb	17.5 分	$\varepsilon(100)$	-	-	$(\alpha, t3n)$	-37.4
^{169g}Yb	32.018 日	$\varepsilon(100)$	63.12	44.2(6)	(α, tn) $^{169}\text{Lu}(\varepsilon)$	-21.5
			109.78	17.47(18)		
			130.52	11.31(9)		
			177.21	22.16(18)		
			197.96	35.8(3)		

3.1.4 誤差情報

実験 1 での最終的な誤差は、**12.3-54.9%**の範囲となった。これは、統計誤差 (**0.3-49.7%**) 及び標的厚 (2%)、標的の純度 (1%)、ビーム強度 (10%)、検出効率 (6%)、ガンマ線強度 (<6%) 及びガンマ線のピークのフィット (3%) の系統誤差から 2 乗和平方根で算出した。

実験 2 での最終的な誤差は、**8.7-44.6%**の範囲となった。これは、統計誤差 (**0.1-43.8%**) 及び標的厚 (2%)、標的の純度 (1%)、ビーム強度 (5%)、検出効率 (6%)、ガンマ線強度 (<6%) 及びガンマ線のピークのフィット (3%) の系統誤差から 2 乗和平方根で算出した。

3.2 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応実験

3.2.1 標的

標的として用いたエルビウム (^{nat}Er) の自然存在比は表 6 に示す通りである。

表 6 ^{nat}Er の構成

^{162}Er	^{164}Er	^{166}Er	^{167}Er	^{168}Er	^{170}Er
0.139%	1.601%	33.503%	22.869%	26.978%	14.910%

一般的に、標的が一つの同位体からなる場合、一つのピークをもつ生成断面積が得られるため、上記のような複数の同位体から得られる生成断面積の形は、複数のピークが重なる複雑な形になる。

^{nat}Er へのアルファ粒子入射実験では、より多くのデータを得るために積層箔標的の構成を表 7 のように計 32 枚から成る変則的なものにした。標的には、図 3-4 (左) に示す純度 99% の ^{nat}Er 金属箔 (20.06 mg/cm², Goodfellow Co., Ltd., UK) と校正用に純度 99.6% の ^{nat}Ti 金属箔 (2.26 mg/cm², Nilaco Corp., Japan) を使用した。 ^{nat}Er 箔及び ^{nat}Ti 校正箔の厚さは、裁断前の質量及び面積を測定することで算出した。図 3-4 に裁断前の 50 mm 角 ^{nat}Er 箔と 8 mm 角に裁断後の ^{nat}Er 箔及び ^{nat}Ti 箔を示す。整列後は 3.1.1 節と同様に、順番を再度確認しながら、標的容器に収納した。

表 7 ^{nat}Er と ^{nat}Ti の標的構成

	箔		箔
1	Er	17	Ti
2	Er	18	Ti
3	Er	19	Er
4	Er	20	Er
5	Ti	21	Er
6	Ti	22	Ti
7	Er	23	Ti
8	Er	24	Er
9	Er	25	Ti
10	Er	26	Ti
11	Ti	27	Er
12	Ti	28	Ti
13	Er	29	Ti
14	Er	30	Er
15	Er	31	Ti
16	Er	32	Ti

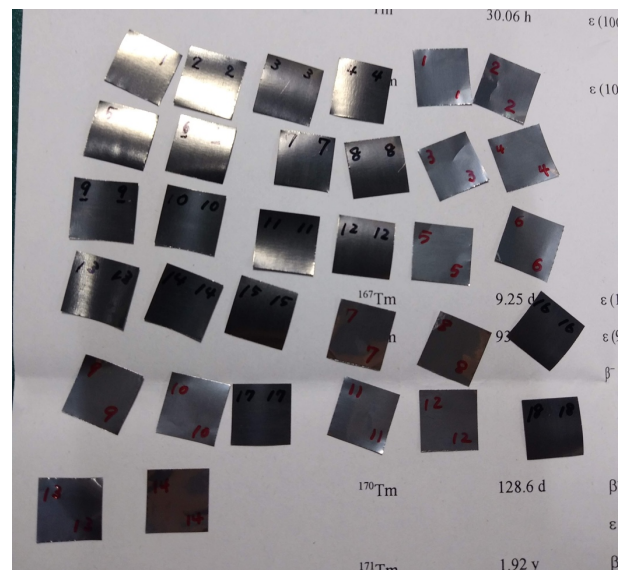


図 3-4 50mm 角 ^{nat}Er 箔（左）と 8mm 角に裁断し印付、整列した ^{nat}Er 箔及び ^{nat}Th 箔（右）

3.2.2 モニター反応

^{169}Tm 実験同様、測定したビームに関するパラメータ及び校正箔の厚さについての確認を行うため、校正箔の実験結果を IAEA 推奨値と共に図 3-5 に示す。この実験では、16-50 MeV の領域で比較することができる $^{\text{nat}}\text{Ti}(\alpha, x)^{51}\text{Cr}$ 反応をモニター反応として用いた。

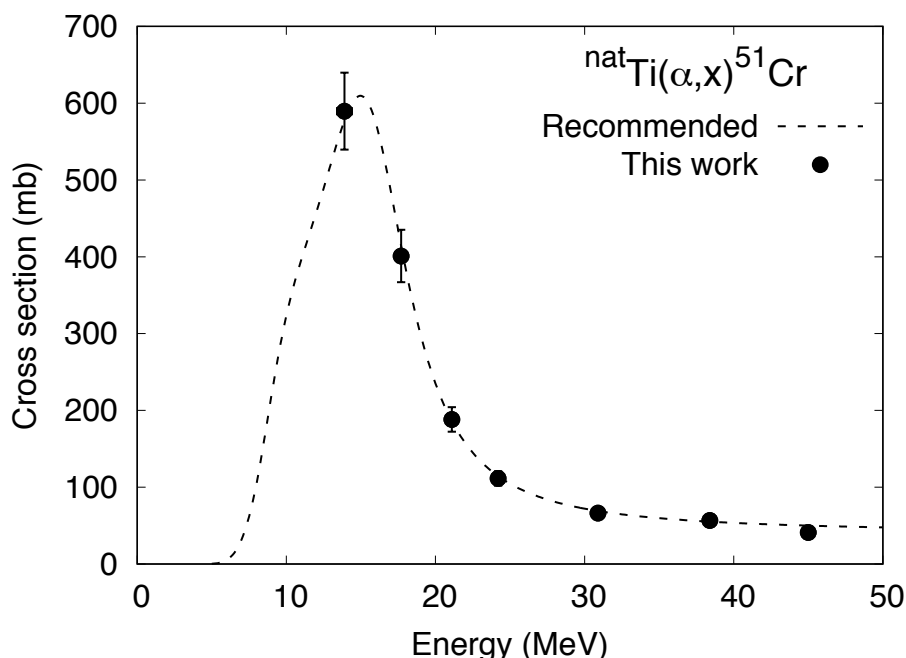


図 3-5 $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射実験における $^{\text{nat}}\text{Ti}(\alpha, x)^{51}\text{Cr}$ モニター反応断面積

この断面積は、 ^{51}Cr ($T_{1/2} = 27.7025$ 日) の崩壊時に放出されるガンマ線 320.08 keV ($I_\gamma = 9.910\%$) を測定することで算出した。12 日の冷却時間を置いたのち、不感時間 1.1% 以下の状態で測定を行った。 $^{\text{nat}}\text{Er}$ の厚さを誤差範囲内で補正 (-1%) することにより、IAEA 推奨値との良い一致を得た。厚さで補正を行った理由として、カタログに 2% までのタンタルが含まれている可能性があることが挙げられる。この不純物によるエネルギー減衰の変化を厚さにより調整を行った。

3.2.3 核データ

$^{\text{nat}}\text{Er}$ への 50 MeV アルファ粒子入射反応において生成されるそれぞれの核種のガンマ線及び Q 値を表 8 に示す。ガンマ線に関する情報は、NuDat 2.7 (National Nuclear Data Center, 2017)、Lund/LBNL Nuclear Data Search (Chu, Ekström and Firestone, 1999) 及び Live Chart (International Atomic Energy Agency, 2009) から、Q 値は QCalc (Pritychenko and Sonzogni, 2003) から取得した。

表 8 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応における核データ、生成核種、生成反応及び Q 値

生成核種	半減期	崩壊モード[%]	E_γ [keV]	I_γ [%]	生成反応	Q 値 [MeV]
^{169}Yb	32.02 日	ε (100)	63.12044(3)	43.62(23)	$^{166}\text{Er}(\alpha, n)^{169}\text{Yb}$	-10.2
			177.21307(4)	22.28(11)	$^{167}\text{Er}(\alpha, 2n)^{169}\text{Yb}$	-16.6
			197.95675(4)	35.93	$^{168}\text{Er}(\alpha, 3n)^{169}\text{Yb}$	-24.4
					$^{170}\text{Er}(\alpha, 5n)^{169}\text{Yb}$	-37.7
^{166}Yb	56.7 時間	ε (100)	82.29(2)	15.552	$^{162}\text{Er}(\alpha, \gamma)^{166}\text{Yb}$	-2.3
					$^{164}\text{Er}(\alpha, 2n)^{166}\text{Yb}$	-18.1
					$^{166}\text{Er}(\alpha, 4n)^{166}\text{Yb}$	-33.2
					$^{167}\text{Er}(\alpha, 5n)^{166}\text{Yb}$	-39.6
					$^{168}\text{Er}(\alpha, 6n)^{166}\text{Yb}$	-47.4
^{173}Tm	8.24 時間	β^- (100)	398.9(6)	87.9(9)	$^{170}\text{Er}(\alpha, p)^{173}\text{Tm}$	-8.7
^{170}Tm	128.6 日	β^- (99.87)	84.25474(8)	2.48(6)	$^{167}\text{Er}(\alpha, d)^{170}\text{Tm}$	-8.4
		ε (0.13)			$^{168}\text{Er}(\alpha, d)^{170}\text{Tm}$	-13.9
					$^{170}\text{Er}(\alpha, tn)^{170}\text{Tm}$	-20.9
^{168}Tm	93.1 日	β^- (0.01)	184.295(2)	18.15(16)	$^{166}\text{Er}(\alpha, d)^{168}\text{Tm}$	-14.3
		ε (99.99)	198.251(2)	54.49(16)	$^{167}\text{Er}(\alpha, t)^{168}\text{Tm}$	-14.5
			447.515(3)	23.98(11)	$^{168}\text{Er}(\alpha, tn)^{168}\text{Tm}$	-22.3
			815.989(5)	50.95(16)	$^{170}\text{Er}(\alpha, t3n)^{168}\text{Tm}$	-35.5
^{167}Tm	9.25 日	ε (100)	207.801(5)	42(8)	$^{164}\text{Er}(\alpha, p)^{167}\text{Tm}$	-8.3
					$^{166}\text{Er}(\alpha, dn)^{167}\text{Tm}$	-21.2
					$^{167}\text{Er}(\alpha, tn)^{167}\text{Tm}$	-21.3
					$^{168}\text{Er}(\alpha, t2n)^{167}\text{Tm}$	-29.1
					$^{170}\text{Er}(\alpha, t4n)^{167}\text{Tm}$	-42.4
^{166}Tm	7.70 時間	ε (100)	184.405(25)	16.2(10)	$^{164}\text{Er}(\alpha, d)^{166}\text{Tm}$	-14.8
			705.333(20)	11.1(7)	$^{166}\text{Er}(\alpha, tn)^{166}\text{Tm}$	-23.6
			778.814(15)	19.1(12)	$^{167}\text{Er}(\alpha, t2n)^{166}\text{Tm}$	-27.6
			785.904(15)	10.0(6)	$^{168}\text{Er}(\alpha, t3n)^{166}\text{Tm}$	-37.8
			1273.540(16)	15.0(9)		
^{165}Tm	30.06 時間	ε (100)	2052.36(3)	17.4(11)		
			242.917(7)	35.5(17)	$^{162}\text{Er}(\alpha, p)^{165}\text{Tm}$	-8.3
			297.369(6)	12.7(6)	$^{164}\text{Er}(\alpha, t)^{165}\text{Tm}$	-15.5
					$^{166}\text{Er}(\alpha, t2n)^{165}\text{Tm}$	-30.7
					$^{167}\text{Er}(\alpha, t3n)^{165}\text{Tm}$	-37.1
					$^{168}\text{Er}(\alpha, t4n)^{165}\text{Tm}$	-44.9

3.2.4 誤差情報

最終的な誤差は、8.5–29.0%の範囲である。これは、統計誤差（0.2–27.7%）及び、標的厚（1%）、標的の純度（1%）、ビーム強度（5%）、検出効率（6%）、ガンマ線強度（<19%）及びガンマ線のピークのフィット（3%）の誤差の2乗和平方根で算出した。

4. 実験結果

4.1 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験

^{169}Yb の他に、副生成物である $^{169,170,171,172}\text{Lu}$ 及び $^{167,168,170}\text{Tm}$ の生成断面積を獲得した。この反応に関しては、同じ入射エネルギーで実験を 2 回実施した。これから示す通り、初回の実験ではほとんどの反応において、先行研究よりもはるかに大きい値を得た。そこで、実験の設定や手順に誤りがないか確認も兼ねて追試を実施した。その結果、双方に違いは見られず同様の振る舞いを見せたため、我々の結果は正しいものと結論づけた。

それぞれの実験結果を図 4-1 から図 4-8 に示し、数値データは表 9 に示す。

表 9 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応における生成核種の生成断面積[mb]

エネルギー [MeV]	^{169}Lu	^{170}Lu	^{171}Lu	^{172}Lu	^{167}Tm	^{168}Tm	^{170}Tm	^{169}Yb
50.7 ± 1.0	1192.9 ± 148.5	280.3 ± 36.5	64.1 ± 8.2	3.8 ± 1.2	36.3 ± 8.4	65.5 ± 10.7	153.1 ± 36.5	365.0 ± 52.4
49.6 ± 1.1	1084.4 ± 96.8	256.3 ± 24.7	53.6 ± 4.9		35.8 ± 7.0			391.0 ± 45.2
48.4 ± 1.1	1170.3 ± 145.6	376.7 ± 47.9	76.6 ± 9.6	4.1 ± 1.0	30.9 ± 7.1	57.3 ± 9.4	160.3 ± 34.3	310.0 ± 44.4
47.3 ± 1.1	1037.5 ± 92.6	357.2 ± 33.8	61.2 ± 5.6	4.7 ± 1.0	32.7 ± 6.4			362.9 ± 42.0
46.0 ± 1.1	985.4 ± 122.6	534.9 ± 67.9	85.7 ± 10.8	5.7 ± 1.4	27.0 ± 6.3	50.9 ± 8.3	139.2 ± 28.5	290.7 ± 41.7
44.9 ± 1.1	859.5 ± 76.8	531.7 ± 49.5	73.2 ± 6.6	6.0 ± 1.2	25.1 ± 5.0			288.8 ± 33.8
43.6 ± 1.2	675.6 ± 84.1	819.4 ± 103.4	103.0 ± 12.9	6.7 ± 1.4	19.1 ± 4.5	45.8 ± 7.5	75.9 ± 17.0	206.1 ± 29.6
42.4 ± 1.2	566.3 ± 50.6	834.7 ± 77.1	91.8 ± 8.2	7.2 ± 1.3	17.8 ± 3.7			176.6 ± 21.4
41.1 ± 1.2	298.9 ± 37.4	1165.0 ± 147.0	128.9 ± 16.1	10.0 ± 2.2	9.5 ± 2.7	37.7 ± 6.2	50.5 ± 10.5	105.6 ± 15.5
39.8 ± 1.2	222.7 ± 20.2	1150.6 ± 105.7	112.3 ± 10.0	8.6 ± 1.5	9.8 ± 2.3			82.4 ± 11.1
38.4 ± 1.3	52.4 ± 7.0	1307.7 ± 165.1	172.8 ± 21.5	9.0 ± 1.9	2.9 ± 1.6	28.8 ± 4.8	17.1 ± 4.2	24.7 ± 4.3
37.1 ± 1.3	33.4 ± 4.1	1253.0 ± 115.1	163.5 ± 14.5	11.0 ± 1.6	3.7 ± 1.6			10.0 ± 3.3
35.7 ± 1.3		1145.4 ± 144.8	283.7 ± 35.1	11.3 ± 2.0		19.3 ± 3.3	9.3 ± 1.6	2.3 ± 0.3
34.3 ± 1.4		1096.5 ± 100.9	286.6 ± 25.3	13.9 ± 1.8				
32.7 ± 1.4		765.3 ± 97.4	614.7 ± 75.9	17.6 ± 2.6				
31.3 ± 1.4		652.2 ± 60.4	622.1 ± 54.8	14.8 ± 1.6				
29.6 ± 1.5		181.6 ± 23.8	1148.5 ± 141.7	20.1 ± 2.7				
28.0 ± 1.6		96.5 ± 9.1	1024.3 ± 90.0	20.3 ± 1.8				

4.1.1 ^{169}Yb 生成

^{169}Yb ($T_{1/2}=32.018$ 日) は、半減期 46 秒の核異性状態 (isomeric state) を持つが、冷却時間を実験 1 では 3 ヶ月、実験 2 では 1 ヶ月置いており、核異性状態が崩壊するのに十分な時間が経っている。そのため、結果の生成断面積は基底状態と核異性状態の累積値となっている。また、本反応では親核 ^{169}Lu ($T_{1/2}=34.06$ 時間) からの寄与が存在する。4.1.3.1 節で算出された結果 (図 4-3) を用いることで、 ^{169}Lu の寄与を差し引いた結果 (独立生成断面積、individual cross section (ind)) を得た。断面積の算出には 177.21 keV ($I_\gamma=22.28\%$) のガンマ線を用いた。図 4-1 に、算出した ^{169}Yb の断面積を ^{169}Lu の寄与が含まれた値 (累積断面積、cumulative cross section (cum))、寄与を差し引いた (ind) 共に示す。

50.7 MeV までの結果では、ピーク位置を示すことはできなかった。我々の結果は、先行研究よりも大きい値をとり、TENDL-2017 は実験結果と比較して過小評価している結果となった。更に、この反応における ^{169}Yb の生成には ^{169}Lu の寄与が大きく、重要であることがわかった。

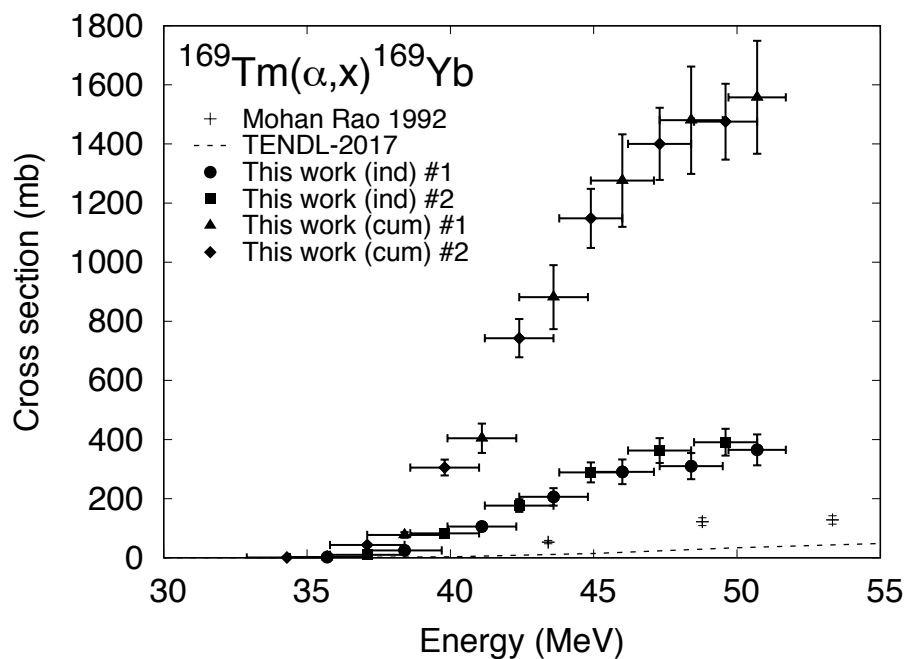


図 4-1 $^{169}\text{Tm}(\alpha, x)^{169}\text{Yb}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.2 ^{169}Yb 生成量

4.1.1 節で求めた断面積を元に算出した生成量を図 4-2 に示す。阻止能には SRIM code を用い、50.7 MeV まで生成量の一種である physical yield(Otuka and Sándor Takács, 2015)を算出した。

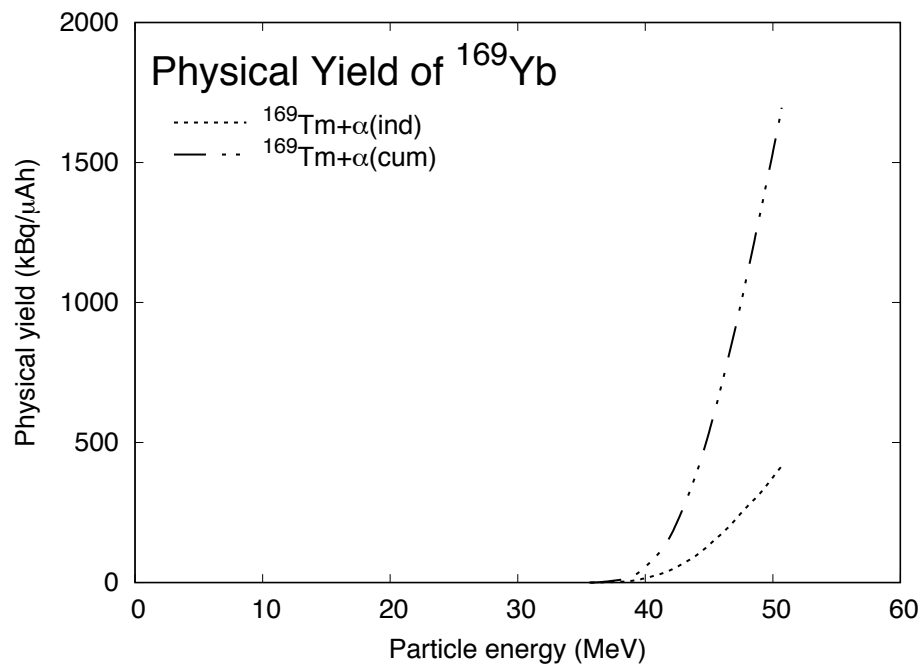


図 4-2 $^{169}\text{Tm}(\alpha, x)^{169}\text{Yb}$ 反応断面積の実験結果による生成量

4.1.3 副生成物の生成

^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応において、 ^{169}Yb の他に今回得られた副生成物として、 $^{169,170,171,172}\text{Lu}$ 及び $^{167,168,170}\text{Tm}$ がある。それぞれの生成断面積を以下に示す。

4.1.3.1 ^{169}Lu 生成

4.1.1 で議論した通り、 ^{169}Lu ($T_{1/2} = 34.06$ 時間) は ^{169}Yb 生成に重要な役割を担う生成核種である。この項では、副生成物である ^{169}Lu そのものの断面積について議論を行う。

960.62 keV ($I_\gamma = 23.4\%$) のガンマ線を用いて算出した ^{169}Lu の生成断面積を図 4-3 に示す。

我々の実験結果のピーク位置は、先行研究と概ね一致する結果となったが、ピーク位置における断面積が先行研究を 200mb から 500mb 程度上回る結果となった。TENDL-2017 は、全ての実験結果に対してピーク位置が低い方に異なるが、我々の実験結果とピークでの最大値が概ね一致する結果となった。

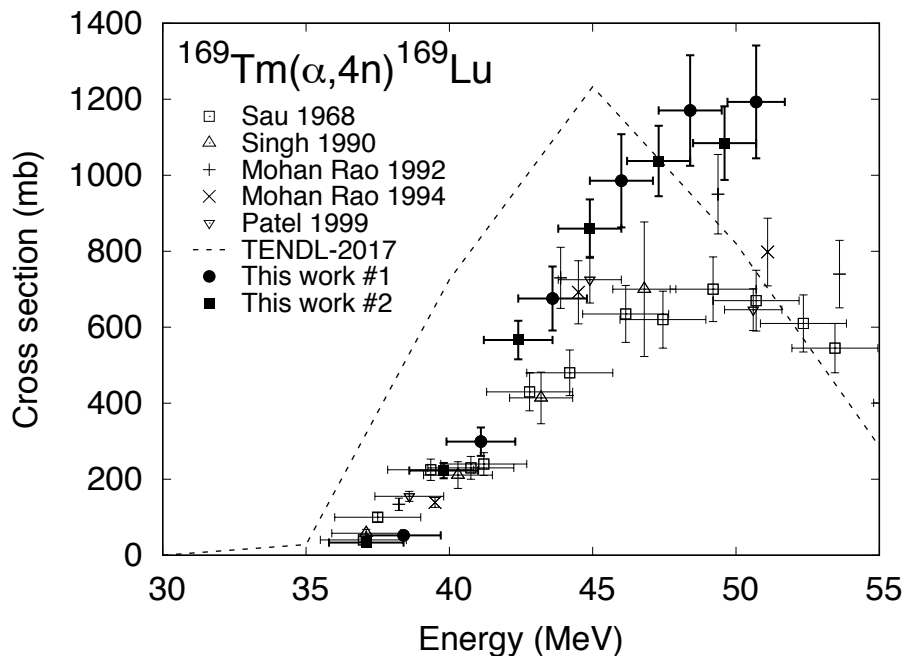


図 4-3 $^{169}\text{Tm}(\alpha,4n)^{169}\text{Lu}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.3.2 ^{170}Lu 生成

^{170}Lu ($T_{1/2} = 2.012$ 日) の生成断面積を 1280.25 keV ($I_\gamma = 8.18\%$) のガンマ線から算出した結果を図 4-4 に示す。冷却時間は実験 1、2 共に 3 日程度である。

我々の実験結果は先行研究とピーク位置は一致するが、断面積がおよそ 400mb から 500 mb 異なる結果となった。TENDL-2017 は、ピーク位置が実験値に対し低いエネルギーにあり、断面積も先行研究に対しては大きく、我々の実験に対しては小さい結果となった。

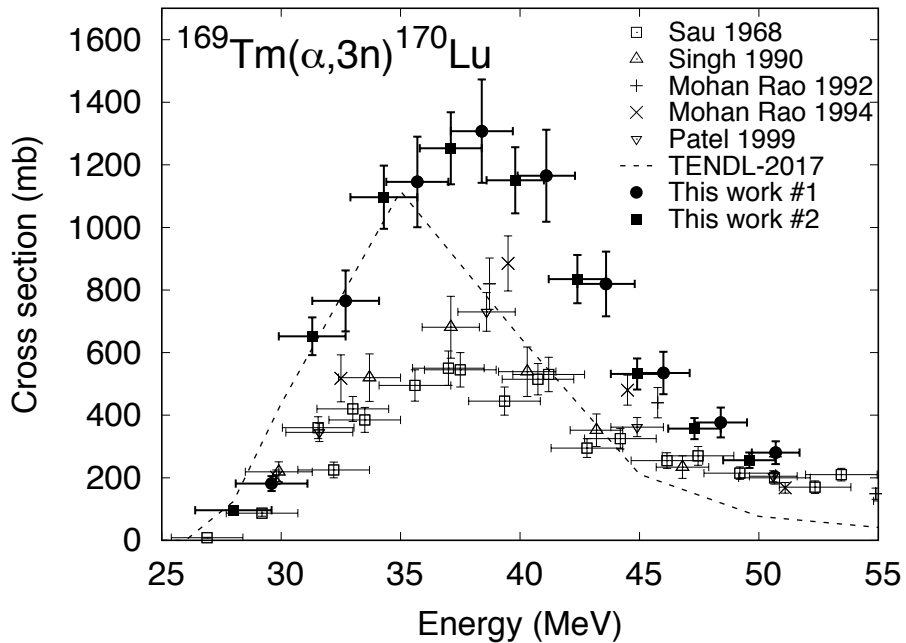


図 4-4 $^{169}\text{Tm}(\alpha,3n)^{170}\text{Lu}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.3.3 ^{171}Lu 生成

^{171}Lu ($T_{1/2}=8.24$ 日) には半減期 79 秒の核異性状態 $^{171\text{m}}\text{Lu}$ が存在する。これは、冷却時間 3 日の間に完全に崩壊すると考えられるため、基底状態である ^{171}Lu の崩壊ガンマ線 739.78 keV ($I_\gamma=47.8\%$) を測定することで、基底状態と核異性状態からの寄与が合計された ^{171}Lu の累積生成断面積が得られる。結果を図 4-5 に示す。

今回のエネルギー範囲が 28.0 MeV から 50.7 MeV のため、この生成反応に関してはピーク位置をカバーする結果は得られなかった。我々の実験結果は、先行研究よりも大きい値をとった。TENDL-2017 は先行研究 2 件(Singh, Agarwal and Rama Rao, 1990; Mohan Rao, Mukherjee and Rao, 1992)と傾向は一致するが、生成断面積は大きい値をとった。

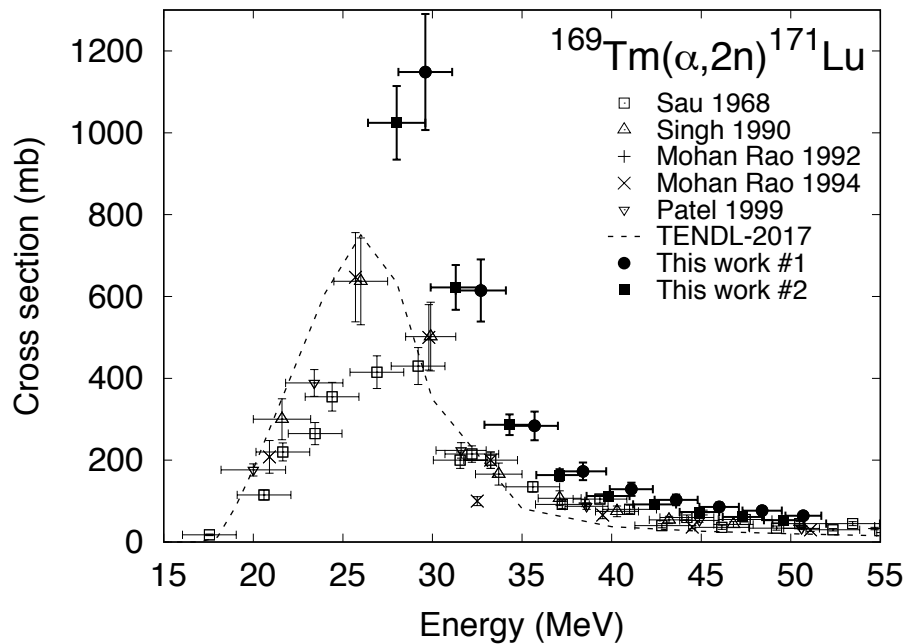


図 4-5 $^{169}\text{Tm}(\alpha, 2n)^{171}\text{Lu}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.3.4 ^{172}Lu 生成

^{172}Lu ($T_{1/2} = 6.7$ 日) は、半減期 3.7 分の核異性状態を持つ。しかしながら、実験 1、2 共に約 3 日の冷却時間を置いており、その間に核異性状態は基底状態に完全に崩壊したと考えられる。そのため、基底状態のガンマ線 1094.66 keV ($I_\gamma = 62.5\%$) を測定することで、基底状態と核異性状態の累積生成断面積が算出される。その結果を図 4-6 に示す。

先行研究によると、ピークは 20 MeV 前後に存在するため、28.0 MeV から 50.7 MeV を測定した今回の実験では観測できなかった。一方、高エネルギー領域の裾のみが得られた。傾向は先行研究と概ね一致するが、多少大きい値となった。TENDL-2017 は立ち上がりのエネルギー位置は実験結果と一致するが、ピークのエネルギー位置は実験値よりも低くなっており、ピーク位置よりも高いエネルギー領域では断面積は実験結果よりも低い値となっている。

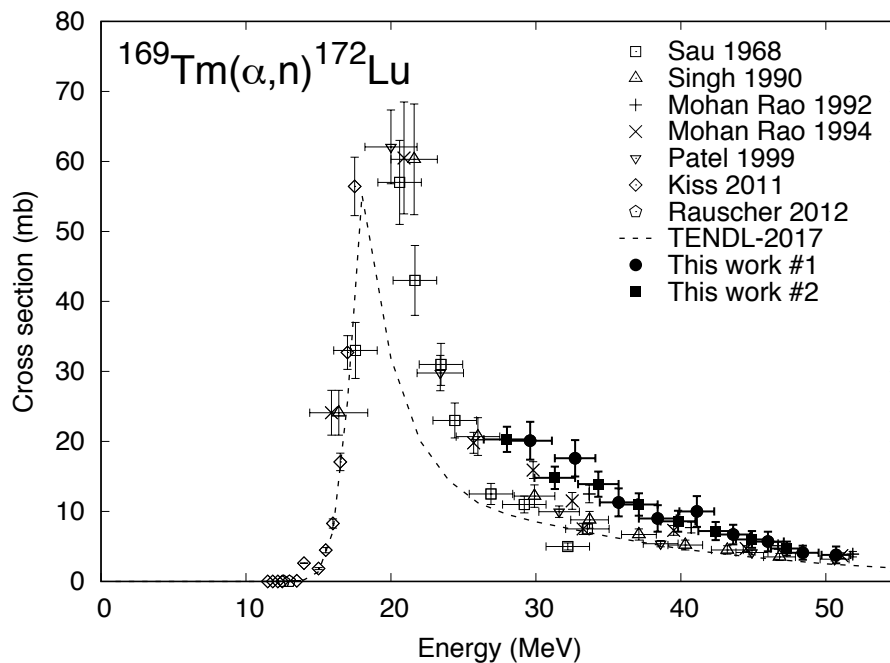


図 4-6 $^{169}\text{Tm}(\alpha, n)^{172}\text{Lu}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.3.5 ^{167}Tm 生成

^{167}Tm ($T_{1/2}=9.25$ 日) は、親核 ^{167}Yb ($T_{1/2}=17.5$ 分) の半減期が短いため、冷却時間の間に完全に崩壊していると考えられる。そのため、これらの核種の合計が累積断面積として算出できる。冷却時間は実験 1、2 共に約 3 日であった。また、生成断面積の算出に使用した 207.8 keV ($I_\gamma=41\%$) のガンマ線は、 ^{169}Lu の崩壊時のガンマ線 207.727 keV ($I_\gamma=0.390\%$) と重なっているため、4.1.3.1 節で算出した断面積から寄与分を見積もり差し引いて断面積の算出を行なった。その結果を図 4-7 に示す。

我々の実験結果は先行研究と概ね一致する結果となった。しかしながら、50.7 MeV までの結果であるため、ピーク位置を露わにすることはできなかった。TENDL-2017 は全体的に実験結果と比較して過大評価した。

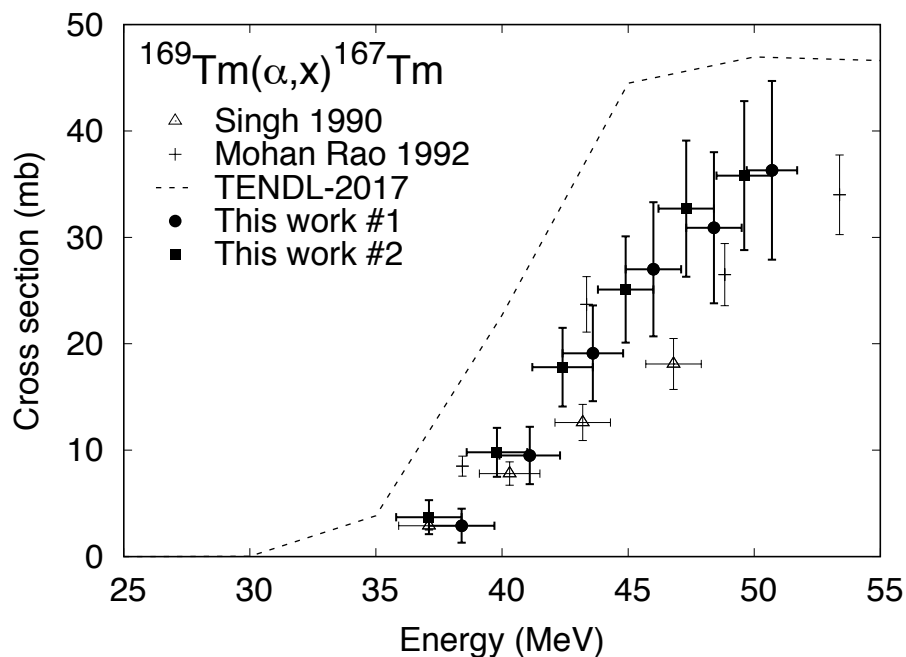


図 4-7 $^{169}\text{Tm}(\alpha,x)^{167}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.3.6 ^{168}Tm 生成

^{168}Tm ($T_{1/2}=93.1$ 日) は半減期が比較的長く、2016 年 2 月に実施した重陽子入射実験の際に生成された分が完全には崩壊しておらず、残留量を評価して 1 回目の実験から差し引いた。2 回目の実験では 2016 年重陽子入射実験の残留分に加えて 1 回目の残留分も考慮することとなり、誤差が大きくなってしまったため、算出を断念した。そのため、この生成反応に関しては、1 回目の実験結果のみを示す。断面積の算出には、815.99 keV ($I_{\gamma}=50.95\%$) のガンマ線を使用した。結果を図 4-8 に示す。

50.7 MeV までの結果ではピーク位置は現れなかった。我々の実験結果は、異なる結果を示していた 2 件の先行研究(Singh, Agarwal and Rama Rao, 1990; Mohan Rao, Mukherjee and Rao, 1992) の間に曲線を描く結果となった。また、TENDL-2017 は実験結果とピーク位置、断面積共に全く違う傾向を示した。

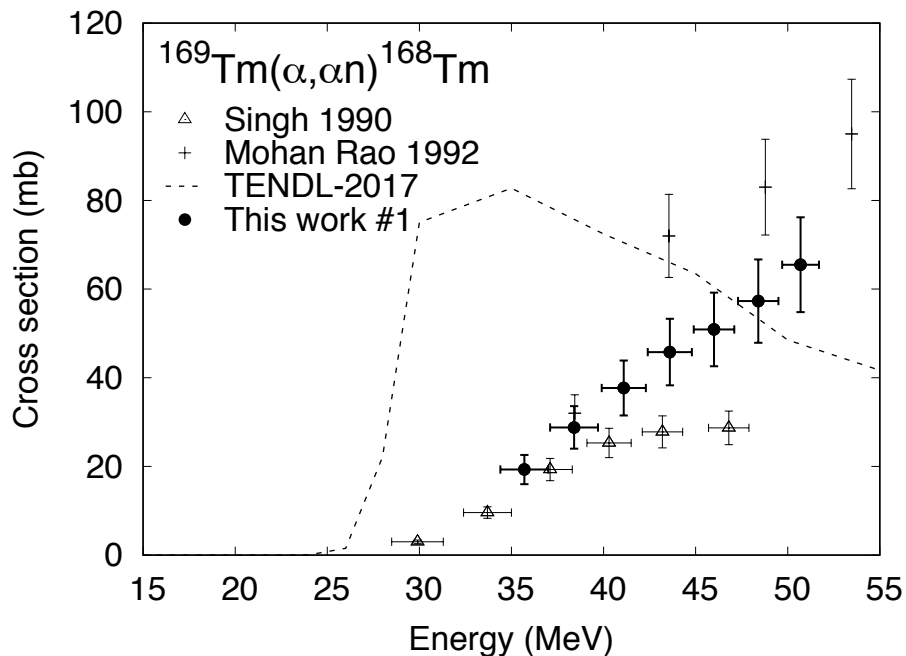


図 4-8 $^{169}\text{Tm}(\alpha, \alpha n)^{168}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.1.3.7 ^{170}Tm 生成

^{170}Tm ($T_{1/2} = 128.6$ 日) は、4.1.3.7 項の ^{168}Tm と同様に実験間隔と比較して寿命が長く、2016 年 2 月の重陽子入射実験の残留分を考慮しなければならない。そのため誤差が大きく、2 回目のアルファ粒子入射実験では算出を断念した。84.25 keV ($I_\gamma = 2.48\%$) のガンマ線を用いて算出した断面積を図 4-9 に示す。

この反応では EXFOR ライブラリに先行研究が存在せず、本実験が初測定となる。TENDL-2017 は我々の実験結果と比較して断面積を過小評価していることがわかった。

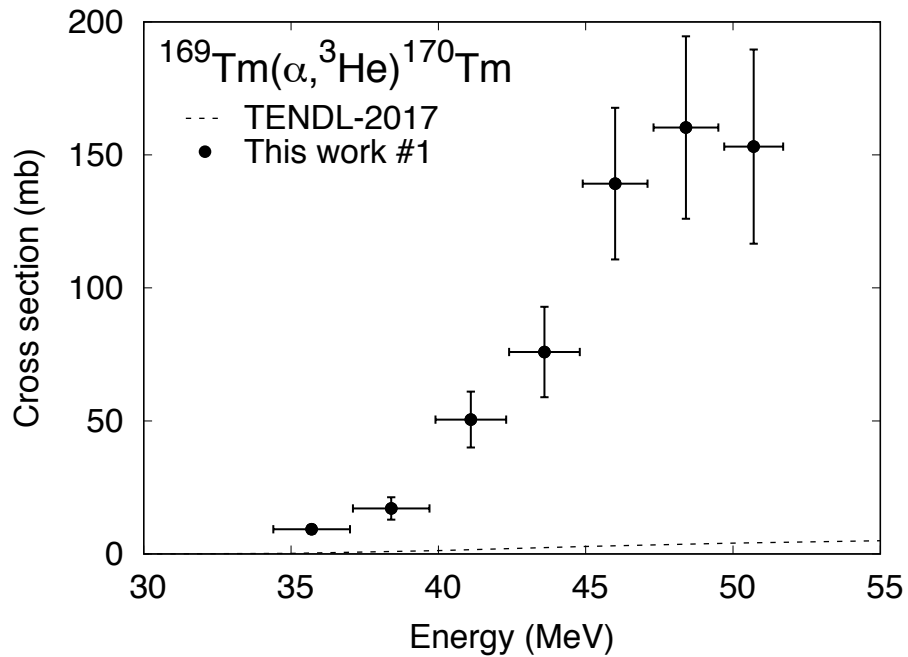


図 4-9 $^{169}\text{Tm}(\alpha, {}^3\text{He})^{170}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と TENDL-2017 の比較

4.2 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応実験

^{169}Yb の他に、副生成物である ^{166}Yb 及び $^{165,166,167,168,170,173}\text{Tm}$ の生成断面積を獲得した。それぞれの実験結果を図 4-10 から図 4-17 に示し、数値データは表 10 に示す。

表 10 ^{nat}Er へのアルファ粒子入射反応における生成核種の生成断面積 [mb]

エネルギー [MeV]	^{169}Yb	^{166}Yb	^{173}Tm	^{170}Tm	^{168}Tm	^{167}Tm	^{166}Tm	^{165}Tm
48.9 ± 0.8	170 ± 15	414 ± 37		14 ± 2	31 ± 3	531 ± 111	95 ± 14	23 ± 2
47.5 ± 0.8	156 ± 13	372 ± 34		16 ± 3	28 ± 3	534 ± 111	78 ± 10	18 ± 2
46.1 ± 0.8	144 ± 12	317 ± 29		16 ± 3	26 ± 2	542 ± 113	57 ± 8	19 ± 2
42.7 ± 0.9	186 ± 16	153 ± 14		11 ± 2	22 ± 2	572 ± 119	23 ± 4	24 ± 2
41.2 ± 0.9	236 ± 20	86 ± 8	0.39 ± 0.04	11 ± 2	19 ± 2	570 ± 119	3.8 ± 0.6	22 ± 2
39.6 ± 0.9	303 ± 26	38 ± 4	0.42 ± 0.04	9.1 ± 1.7	18 ± 2	559 ± 117	2.5 ± 0.3	22 ± 2
35.8 ± 1.0	398 ± 34		0.49 ± 0.04	7.4 ± 1.6	12 ± 1	427 ± 89		15 ± 1
34.1 ± 1.0	394 ± 34		0.53 ± 0.05	8.2 ± 1.7	9.3 ± 0.9	349 ± 73		9.9 ± 1.0
32.3 ± 1.0	379 ± 32		0.56 ± 0.05	6.8 ± 1.6	6.8 ± 0.7	235 ± 49		4.5 ± 0.4
27.9 ± 1.1	263 ± 22		0.55 ± 0.05	2.8 ± 0.8	1.9 ± 0.2	8.9 ± 1.9		0.26 ± 0.04
25.8 ± 1.2	218 ± 19		0.44 ± 0.04	2.3 ± 0.6	0.80 ± 0.10	2.5 ± 0.5		0.35 ± 0.04
22.9 ± 1.3	172 ± 15		0.15 ± 0.01		0.11 ± 0.04	4.2 ± 0.9		0.60 ± 0.06
19.7 ± 1.4	92 ± 8		0.019 ± 0.003			3.8 ± 0.8		0.35 ± 0.04
16.1 ± 1.6	6.2 ± 0.5					0.31 ± 0.07		0.031 ± 0.005

4.2.1 ^{169}Yb 生成

^{169}Yb は基底状態 ^{169g}Yb ($T_{1/2} = 32.02$ 日) に加えて、核異性状態 ^{169m}Yb ($T_{1/2} = 46$ 秒) が存在する。しかしながら、核異性状態は 11 日の冷却時間の間に基底状態に完全に崩壊しており、我々は基底状態と核異性状態の累積生成断面積を得ている。測定には、基底状態における崩壊時のガンマ線 177.21 keV ($I_{\gamma} = 22.28\%$) を使用した。我々の実験結果を先行研究及び TENDL-2017 と共に図 4-10 に示す。

Király らのデータと TENDL-2017 は我々の結果と同様の振る舞いをし、35 MeV 付近にピーク位置を持つが、それぞれ断面積の大きさが異なる結果となった。他の先行研究のデータは形も大きさも異なる。

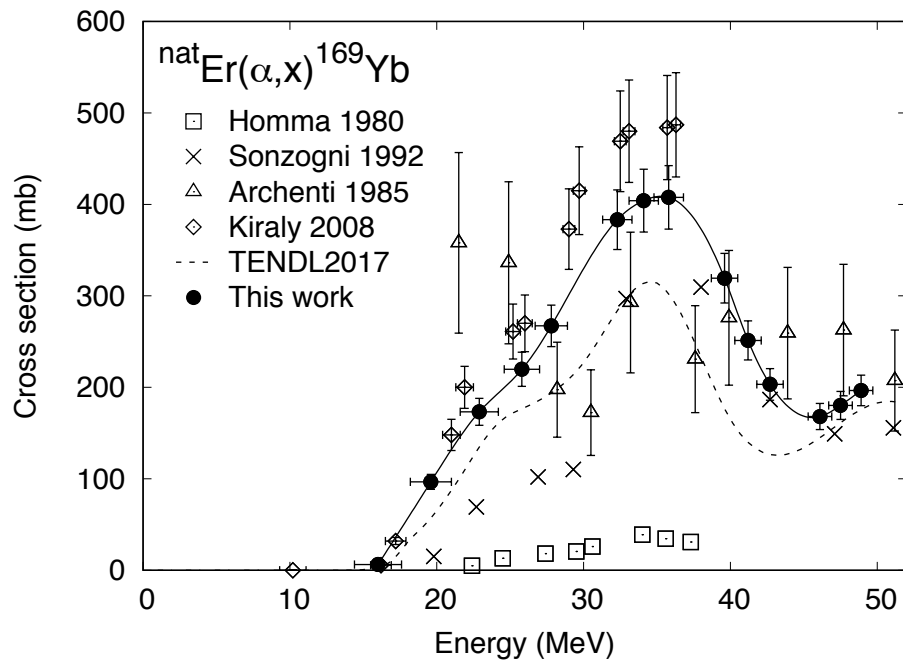


図 4-10 $^{nat}\text{Er}(\alpha, x)^{169}\text{Yb}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.2.2 ^{169}Yb の生成量

^{169}Yb の生成量を 4.2.1 節で求めた生成断面積を元に算出した。阻止能は SRIM code を用いて、physical yield を 48.9 MeV まで計算した。図 4-11 には先行研究である Király らのデータとの比較を示す。我々の求めた生成断面積は、図 4.2.1 でも見てきたように Király らの生成断面積よりも小さいため、図 4-11 のように Király らの生成量の見積もりよりも小さい結果となった。

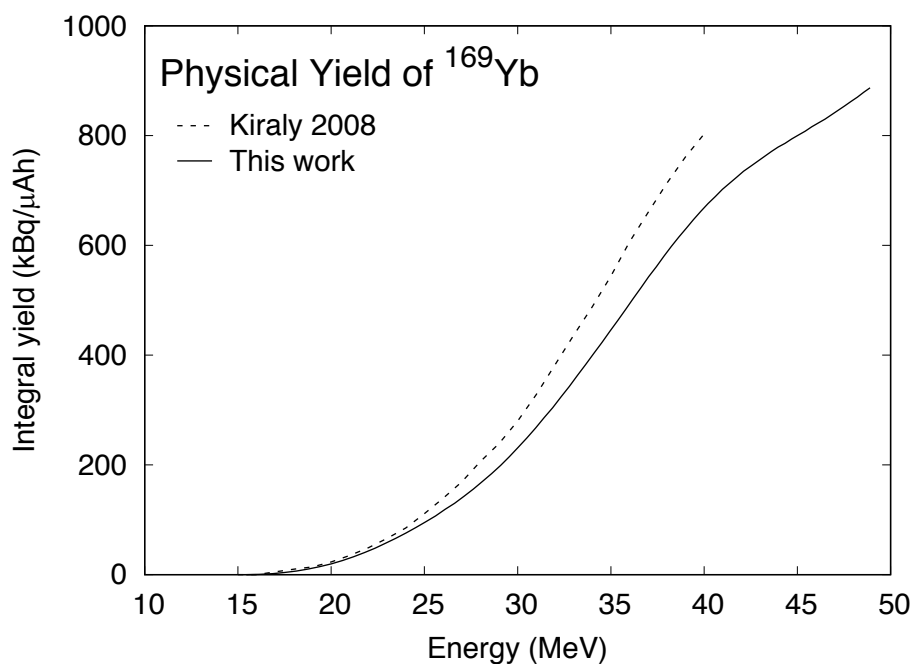


図 4-11 $^{nat}\text{Er}(\alpha, x)^{169}\text{Yb}$ 反応断面積の実験結果による生成量

4.2.3 副生成物の生成

この反応において、 ^{169}Yb の他に副生成物である ^{166}Yb 及び $^{165,166,167,168,170,173}\text{Tm}$ の生成断面積を得た。その結果を以下に示す。

4.2.3.1 ^{165}Tm 生成

^{165}Tm ($T_{1/2} = 30.06$ 時間) の生成断面積は、 242.92 keV ($I_{\gamma} = 35.5\%$) のガンマ線を測定することで算出した。2.2 時間の冷却時間の間に、親核である ^{165}Yb ($T_{1/2} = 9.9$ 分) は完全に崩壊しており、今回算出した生成断面積は、 ^{165}Yb と ^{165}Tm の累積値である。図 4-12 に結果を先行研究及び TENDL-2017 と比較したものを示す。Király らのデータは我々の結果と一致するが、Homma らのデータは我々よりも小さい値をとった。TENDL-2017 は 38 MeV 以上の領域で実験結果と異なる振る舞いをみせた。

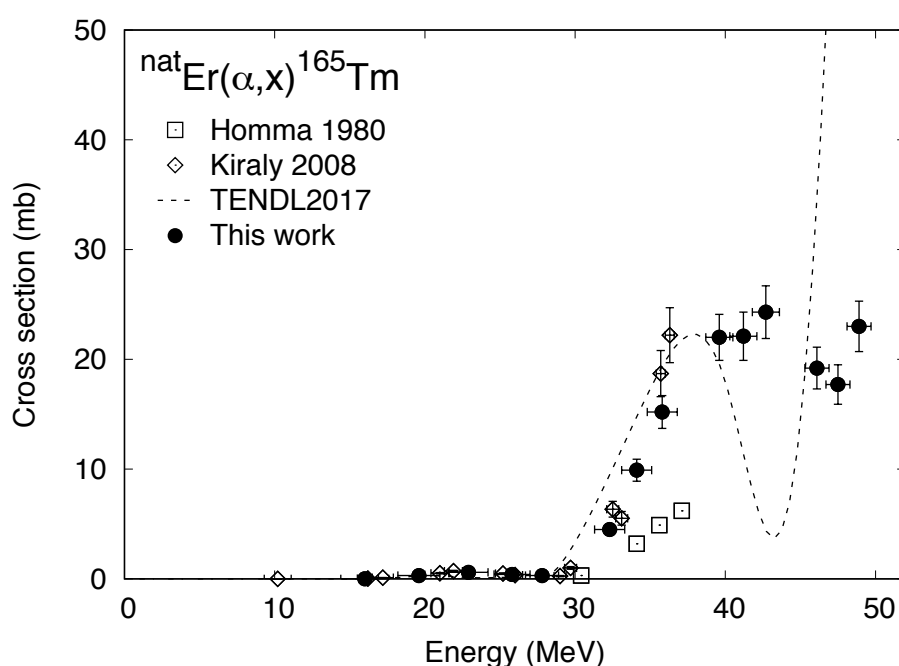


図 4-12 $^{\text{nat}}\text{Er}(\alpha, x)^{165}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.2.3.2 ^{166}Tm 生成

^{166}Tm は半減期 7.70 時間の基底状態の他に、半減期 340 ミリ秒の核異性状態が存在する。核異性状態は 11 時間の冷却時間を置いた今回の測定では、完全に崩壊している。また、親核である ^{166}Yb ($T_{1/2} = 56.7$ 時間) は、 ^{166}Tm よりも半減期が長いため、測定時には崩壊途中の親核による影響が混在した状態である。この影響は 4.2.3.7 節 (図 4-18) にて算出される断面積から見積もり、差し引いた。基底状態 ^{166}Tm の崩壊時のガンマ線 778.81 keV ($I_\gamma = 19.1\%$) から算出した生成断面積を図 4-13 に示す。

この反応は EXFOR ライブラリに先行研究が存在しなかったため、TENDL-2017 との比較のみを図に示した。TENDL-2017 は我々の実験データよりも値が小さく、振る舞いも違う結果となった。

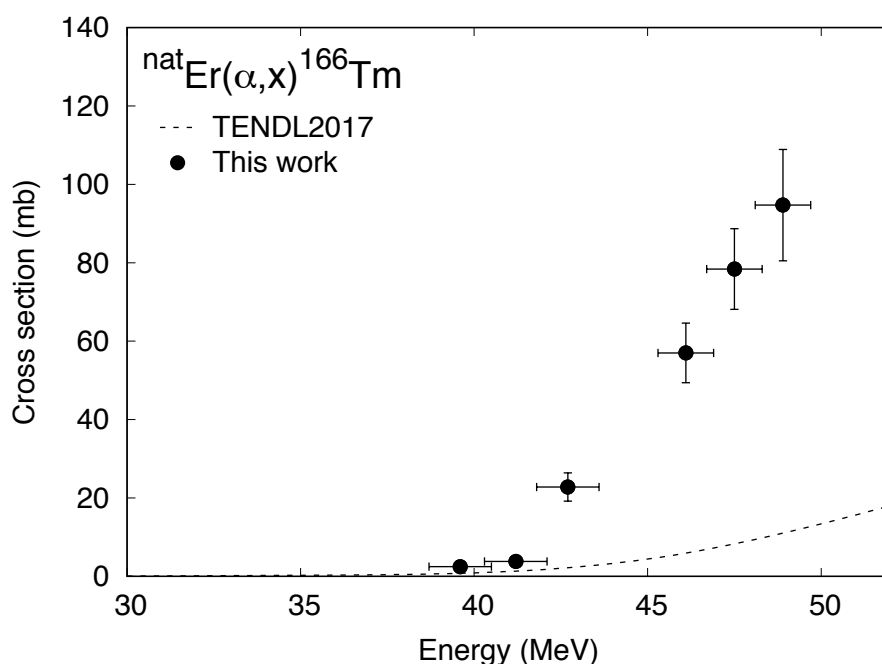


図 4-13 $\text{natEr}(\alpha, x)^{166}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と TENDL-2017 の比較

4.2.3.3 ^{167}Tm 生成

^{167}Tm ($T_{1/2} = 9.25$ 日) の生成断面積を 707.80 keV ($I_{\gamma} = 42\%$) のガンマ線によって算出した。測定は 11 日の冷却時間を置いて実施した。親核である ^{167}Yb ($T_{1/2} = 17.5$ 分) はこの冷却時間の間に完全に崩壊しているため、 ^{167}Tm の直接生成された分に加えて ^{167}Yb からの寄与が合計された累積生成断面積が算出されている。今回測定に使用したガンマ線の強度が 19% の誤差を持っているため、誤差が大きくなっている。実験結果と先行研究及び TENDL-2017 との比較を図 4-14 に示す。

我々の実験結果は先行研究 2 件の間に曲線を描いた。TENDL-2017 は 35 MeV までは実験データと良い一致を示したが、35 MeV 以降は実験データよりも小さい値をとった。

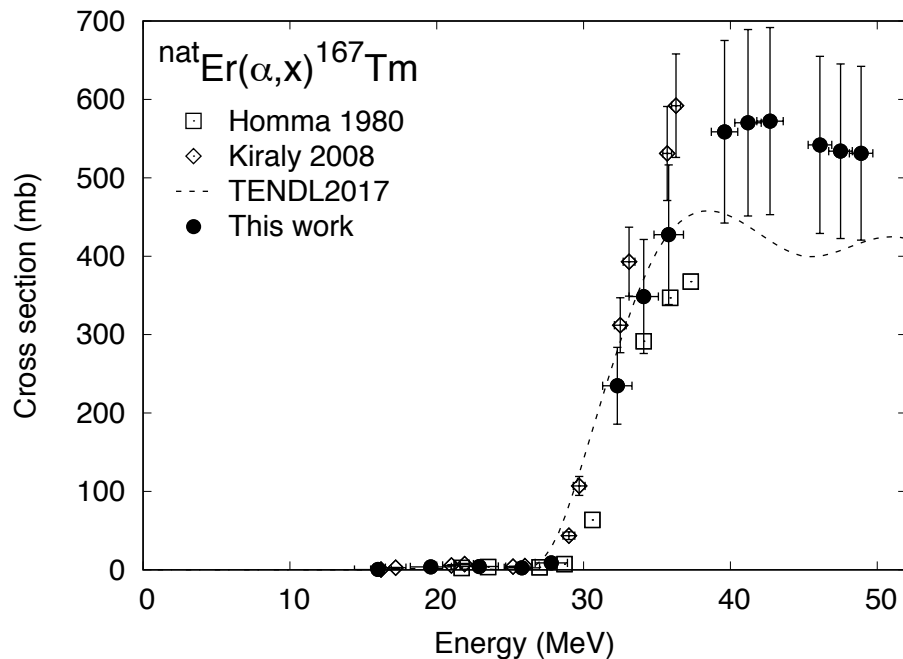


図 4-14 $\text{natEr}(\alpha, x)^{167}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.2.3.4 ^{168}Tm 生成

^{168}Tm ($T_{1/2}=93.1$ 日) の生成断面積は、247 日の冷却時間ののち、815.99 keV ($I_{\gamma}=50.95\%$) のガンマ線を測定して算出した。結果を先行研究及び TENDL-2017 と共に図 4-15 に示す。

我々の実験データは Sonzogni らとよく一致し、TENDL-2017 は傾向を再現しているものの、値は実験値を下回る結果となった。Homma らの実験データは振る舞いが我々や Sonzogni らの実験データ及び TENDL-2017 とかなり異なる結果となっている。

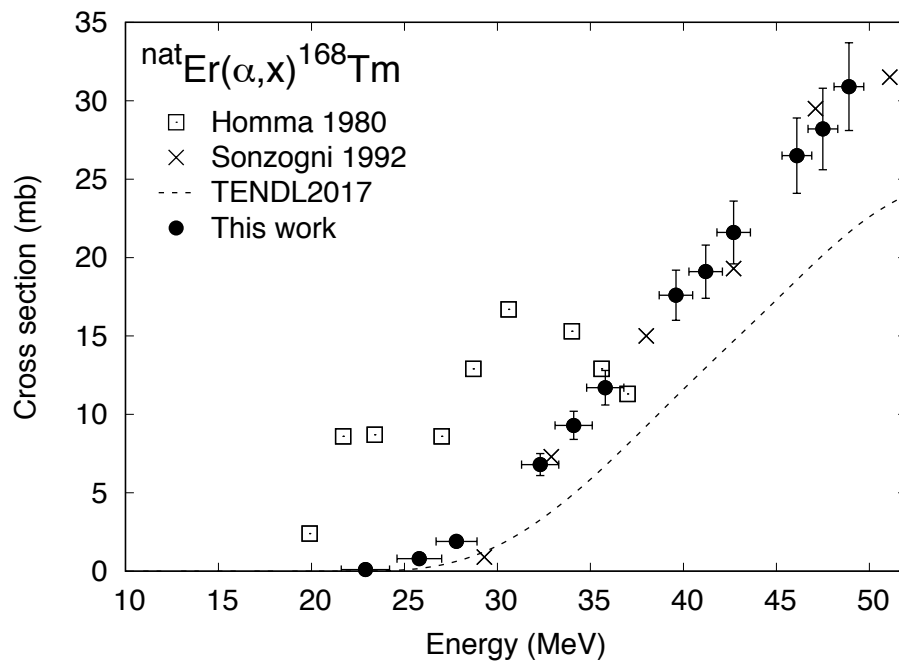


図 4-15 $^{nat}\text{Er}(\alpha,x)^{168}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.2.3.5 ^{170}Tm 生成

^{170}Tm ($T_{1/2} = 128.6$ 日) の生成断面積は、247 日の冷却時間を置いた後に 84.25 keV ($I_{\gamma} = 2.48\%$) 崩壊ガンマ線を測定することで得られた。図 4-16 にその結果と TENDL-2017 の比較を示す。

この反応の実験データは ENFOR データベースに存在しない。TENDL-2017 は実験データよりも低い値をとった。

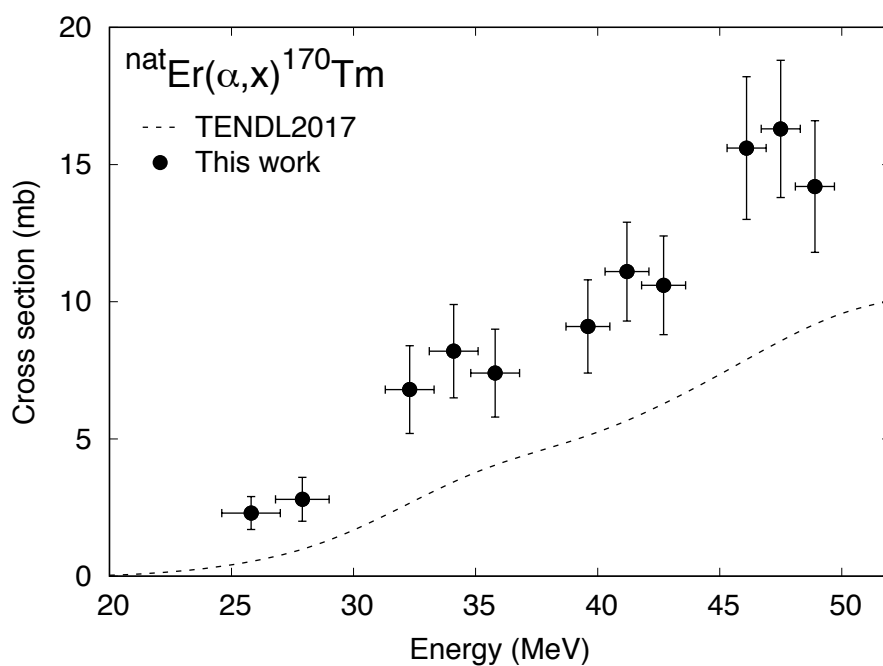


図 4-16 $^{\text{nat}}\text{Er}(\alpha, x)^{170}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と TENDL-2017 の比較

4.2.3.6 ^{173}Tm 生成

^{173}Tm ($T_{1/2}=8.24$ 時間) は、2.2 時間の冷却時間ののち 398.9 keV ($I_{\gamma}=87.9\%$) のガンマ線を測定することで図 4-17 に示す断面積を得た。

先行研究は我々の実験値よりも大きいのが、ピーク位置は一致した。TENDL-2017 は実験データよりも小さい値をとった。

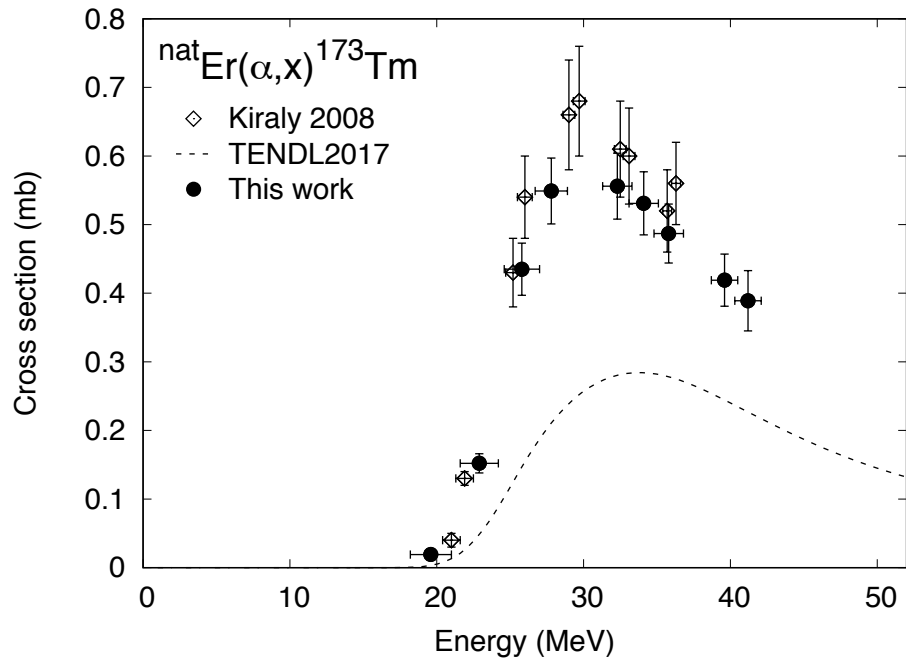


図 4-17 $\text{natEr}(\alpha, x)^{173}\text{Tm}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

4.2.3.7 ^{166}Yb 生成

^{166}Yb ($T_{1/2}=56.7$ 時間) は、82.29 keV ($I_{\gamma}=15.552\%$) の崩壊時のガンマ線を測定することで断面積を得た。冷却時間を 11 日置いて測定を実施した。我々の実験結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較を図 4-18 に示す。

先行研究 2 件とも、我々の実験データよりも小さい値を取ることがわかった。一方、TENDL-2017 は実験値よりも大きい値を示している。

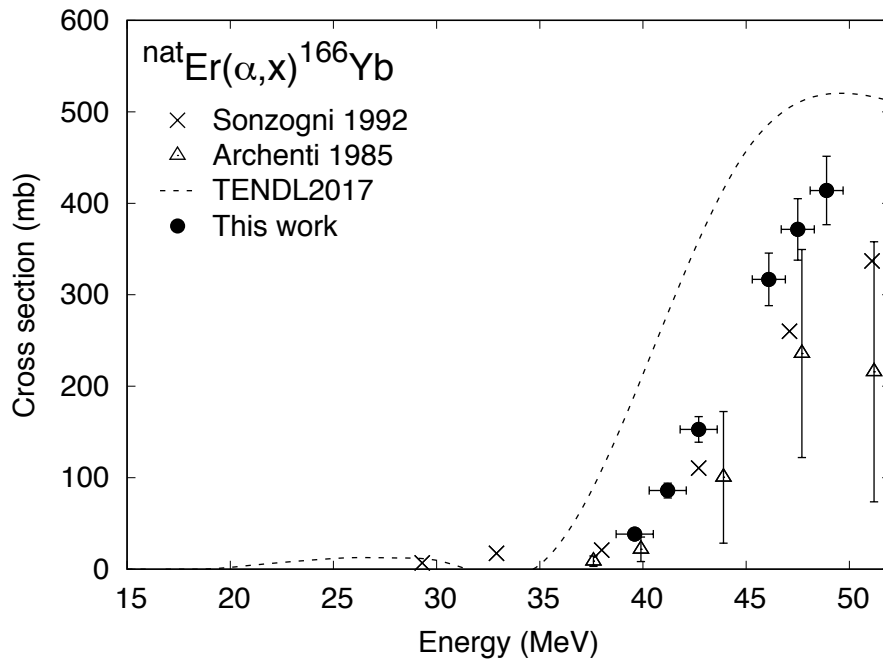


図 4-18 $^{nat}\text{Er}(\alpha,x)^{166}\text{Yb}$ 反応断面積の結果と先行研究及び TENDL-2017 の比較

5. 考察

これまで行なってきた ^{169}Tm への重陽子入射及びアルファ粒子入射、 $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射実験結果を用いて生成量 (thick target yield) を算出し、反応を比較する。

生成量の一つである physical yield (Otuka and Takács, 2015) を算出した結果の比較を図 5-1 に示す。

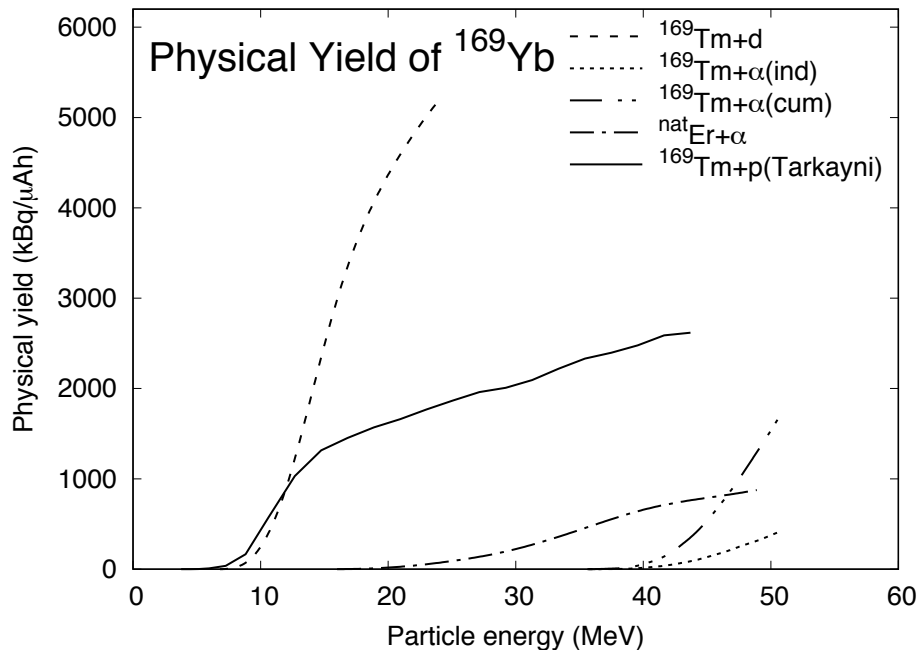


図 5-1 physical yield の比較

$^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応の結果は、20 MeV から緩やかに増加し、50 MeV で約 800 kBq/μAh になる。一方、 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応では、40 MeV から急激に増加し、50 MeV では 1600 kBq/μAh に到達する。また、 ^{169}Tm への重陽子入射反応は、さらに低いエネルギーである約 10 MeV から急激に増加し、24 MeV で約 5000 kBq/μAh となる。参考として Tárkányi らによる ^{169}Tm への陽子入射反応 (Tárkányi *et al.*, 2012) の値と比較すると、13 MeV まで重陽子と同様の傾向となるものの、より高いエネルギーでは生成量が少なくなることがわかった。

この結果から、 ^{169}Tm への重陽子入射反応が低いエネルギーで最も多くの ^{169}Yb を生成できることがわかる。よって、荷電粒子入射反応を用いた ^{169}Yb 生成の中では、 ^{169}Tm への重陽子入射が最も効率が良いと考えられる。

6. 総括および結論

医療用放射性核種の候補の一つである ^{169}Yb の生成について、荷電粒子入射反応実験のデータが不足している。そのため、 ^{169}Yb 生成に関する荷電粒子入射反応実験を系統的に実施してきた。これまでに、 ^{169}Tm への重陽子入射、アルファ粒子入射及び $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射実験を理化学研究所 AVF サイクロトロンにて実施した。放射化積層箔法及びガンマ線分光法にて生成断面積を算出した。

更にこれらの実験データを元に生成量の一つである *physical yield* を算出し、今まで実施してきた 3 つの実験と ^{169}Tm への陽子入射反応実験の先行研究を比較した。生成量の比較から、 ^{169}Tm への重陽子入射反応がより低いエネルギーで最も多くの ^{169}Yb を生成できることがわかった。生成量の観点から現時点では、荷電粒子入射反応による ^{169}Yb 生成では、 ^{169}Tm への重陽子入射が最も効率が良いと結論づけた。

謝辞

本稿の執筆にあたり、ご協力頂いた多くの方々へこの場を借りて深く御礼申し上げます。主任指導教員である合川正幸教授には、修士課程からの5年間に渡り研究の基礎から進め方全てにおいて数々の御指導及び御助言をいただきました。副指導教員久下裕司教授、平田雄一准教授には本論文を審査していただきました。また、羽場宏光チームリーダー、小森有希子研究協力員を始めとする理化学研究所の皆様及び Takács Sándor 上席研究員、Ditrói Ferenc 上席研究員、Szűcs Zoltán 上席研究員始めとする ATOMKI グループの皆様には、励起関数測定実験の基礎から御指導及び実験における御助言をいただきました。福島県立医科大学の右近直之助教は、医療系の知識がない私に数々の医学的な知識、分野の現状等を教えてくださいました。新渡戸スクール上級プログラムの教員及び同期生においては、文理問わず他分野の方々との交流の機会を頂き、初めて自分達の手によるワークショップの運営や自分の研究を他分野にいる人に向けて説明する貴重な機会となりました。東工大学の江幡修一郎特任助教におかれましては、原子核分野の基礎知識を身に着ける助けになっていただきました。北海道大学原子核理論研究室の皆様には、本研究室に学生が私一人であった頃から学生同士の交流・議論の場から孤立しないよう心配りいただきました。そして、本研究室構成員の皆様は私に同分野の学生同士の議論ができる機会を与えてくださりました。最後に、私に研究に従事する機会を与えてくれた父・齋藤実、生活を支えてくれた夫・悠毅を始めとする家族に感謝申し上げます。

引用文献

- Archenti, A. *et al.* (1985) ' (α, xn) Reactions on Natural Erbium', *Radiochimica Acta*, 38, pp. 65–68. doi: 10.1524/ract.1985.38.2.65.
- Birattari, C. *et al.* (1973) 'Not to be reproduced by photoprint or microfilm without written permission from the publisher PRE-EQUILIBRIUM PROCESSES IN (p, n) REACTIONS', ~ *Nuclear Physics*, 201, pp. 579–592. Available at: https://ac-els-cdn-com.afit.idm.oclc.org/0375947473903229/1-s2.0-0375947473903229-main.pdf?_tid=17219995-a6a6-4044-b2de-c1832396eda8&acdnat=1555419793_deb6a68d3761fe7aa7f4ed9133c989d4.
- Chu, S. Y. F., Ekström, L. P. and Firestone, R. B. (1999) *The Lund/LBNL Nuclear Data Search*. Available at: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
- DeLand, F. H. *et al.* (1971) 'Cisternography with ^{169}Yb -DTPA', *The Journal of Nuclear Medicine*, 12, pp. 683–689.
- Hermanne, A. *et al.* (2009) 'Excitation functions for production of medically relevant radioisotopes in deuteron irradiations of Pr and Tm targets', *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 267(5), pp. 727–736. doi: 10.1016/j.nimb.2008.12.017.
- Hermanne, A. *et al.* (2016) 'Extension of excitation functions up to 50 MeV for activation products in deuteron irradiations of Pr and Tm targets', *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 383(September), pp. 81–88. doi: 10.1016/j.nimb.2016.06.010.
- Hermanne, A. *et al.* (2018) 'Reference Cross Sections for Charged-particle Monitor Reactions', *Nuclear Data Sheets*, 148, pp. 338–382. doi: 10.1016/j.nds.2018.02.009.
- Homma, Y. *et al.* (1980) 'Cyclotron production of ^{167}Tm from natural erbium and natural holmium', *Applied Radiation and Isotopes*, 31, pp. 505–508. doi: 10.1016/0020-708X(80)90314-2.
- IAEA - Nuclear Data Section (no date) *Nuclear Data services*. Available at: <https://www-nds.iaea.org/>.
- International Atomic Energy Agency (2009) *LiveChart of Nuclides*. Available at: <https://www-nds.iaea.org/livechart/>.
- Király, B. *et al.* (2008) 'Excitation functions of alpha-induced nuclear reactions on natural erbium', *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 266, pp. 549–554. doi: 10.1016/j.nimb.2007.12.067.
- Kiss, G. G. *et al.* (2011) 'Activation method combined with characteristic X-ray counting: A possibility to measure (α, γ) cross sections on heavy p-nuclei', *Nuclear Physics A*. Elsevier B.V., 867(1), pp. 52–65. doi: 10.1016/j.nucphysa.2011.07.003.
- Kiss, G. G. *et al.* (2015) 'Measurement of (α, n) reaction cross sections of erbium isotopes for testing astrophysical rate predictions', *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*. IOP Publishing, 42, p. 055103. doi: 10.1088/0954-3899/42/5/055103.
- Koning, A. J. *et al.* (2019) 'TENDL: Complete Nuclear Data Library for Innovative Nuclear Science and Technology', *Nuclear Data Sheets*. Elsevier Inc., 155, pp. 1–55. doi: 10.1016/j.nds.2019.01.002.
- Leyden, D. E. and Murthy, R. S. S. (1988) 'Diffuse reflectance Fourier transform IR spectroscopy', *Trends in Analytical Chemistry*. Elsevier B.V., 7(5), pp. 164–169. doi: 10.1016/j.physletb.2010.11.052.

Lymperopoulou, G. *et al.* (2006) 'A dosimetric comparison of ^{169}Yb and ^{192}Ir for HDR brachytherapy of the breast, accounting for the effect of finite patient dimensions and tissue inhomogeneities', *Medical Physics*, 33(12), pp. 4583–4589. doi: 10.1118/1.2392408.

Mohan Rao, A. V. and Chintalapudi, S. N. (1994) 'Pre-Equilibrium Decay Process in Alpha Particle Induced Reactions on Thulium and Tantalum', *Journal of the Physical Society of Japan*, 63(1), pp. 84–91. doi: 10.1143/JPSJ.63.84.

Mohan Rao, A. V., Mukherjee, S. and Rao, J. R. (1992) 'Investigation of alpha particle induced reactions on thulium', *Pramana*, 38(3), pp. 279–290. doi: 10.1007/BF02875374.

National Nuclear Data Center (2017) *Nuclear structure and decay data on-line library, Nudat 2.7*. Available at: <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>.

Van Noorden, R. (2013) 'Radioisotopes: The medical testing crisis', *Nature*, 504(7479), pp. 202–204. doi: 10.1038/504202a.

Otuka, N. *et al.* (2014) 'Towards a More complete and accurate experimental nuclear reaction data library (EXFOR): International collaboration between nuclear reaction data centres (NRDC)', *Nuclear Data Sheets*, 120, pp. 272–276. doi: 10.1016/j.nds.2014.07.065.

Otuka, N. and Takács, Sándor (2015) 'Definitions of radioisotope thick target yields', *Radiochimica Acta*, 103(1), pp. 1–6. doi: 10.1515/ract-2013-2234.

Otuka, N. and Takács, Sandor (2015) 'Definitions of radioisotope thick target yields', *Radiochimica Acta*, 103(1), pp. 1–6. doi: 10.1515/ract-2013-2234.

Pritychenko, B. and Sonzogni, A. (2003) *Q-value Calculator (QCalc)*. Available at: <http://www.nndc.bnl.gov/qcalc/>.

Rauscher, T. *et al.* (2012) 'Astrophysical analysis of the measurement of (α, γ) and (α, n) cross sections of ^{169}Tm ', *Physical Review C - Nuclear Physics*, 86(1). doi: 10.1103/PhysRevC.86.015804.

Saito, M. *et al.* (2017) 'Production cross sections of ^{169}Yb and Tm isotopes in deuteron-induced reactions on ^{169}Tm ', *Applied Radiation and Isotopes*, 125, pp. 23–26. doi: 10.1016/j.apradiso.2017.04.010.

Sau, J., Demeyer, A. and Chéry, R. (1968) 'ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET ANALYSE DES FONCTIONS D'EXCITATION $^{165}\text{Ho}(\alpha, xn)$ ET $^{169}\text{Tm}(\alpha, xn)$ ', *Nuclear Physics A*, 121, pp. 131–144.

Singh, N. L., Agarwal, S. and Rama Rao, J. (1990) 'Comparative Study of Pre-Equilibrium Models and Mechanism of Alpha Particle Induced Reactions', *Journal of the Physical Society of Japan*, 59(11), pp. 3916–3924. doi: 10.1143/JPSJ.59.3916.

Sonnabend, K. *et al.* (2011) 'Activation experiments for p-process nucleosynthesis', *Journal of Physics: Conference Series*, 312(SECTION 4). doi: 10.1088/1742-6596/312/4/042007.

Sonzogni, A. A. *et al.* (1992) 'Alpha-induced reactions on natural erbium', *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*, 165, pp. 295–303. doi: 10.1007/BF02169776.

Spahn, I. *et al.* (2005) 'Cross-section measurement of the $^{169}\text{Tm}(p, n)$ reaction for the production of the therapeutic radionuclide ^{169}Yb and comparison with its reactor-based generation', *Applied Radiation and Isotopes*, 63(2), pp. 235–239. doi: 10.1016/j.apradiso.2005.03.006.

Tárkányi, F. *et al.* (2007) 'Activation cross sections of the $^{169}\text{Tm}(d, 2n)$ reaction for production of the therapeutic radionuclide ^{169}Yb ', *Applied Radiation and Isotopes*, 65(6), pp. 663–668. doi: 10.1016/j.apradiso.2007.01.008.

Tárkányi, F. *et al.* (2012) 'Activation cross-sections of proton induced nuclear reactions on thulium in the 20-45MeV energy range', *Applied Radiation and Isotopes*, 70(1), pp. 309–314. doi: 10.1016/j.apradiso.2011.08.020.

U.S. Department of Energy (no date) *NIDC: National Isotope Development Center*. Available at: <https://www.isotopes.gov/>.

Watanabe, T. *et al.* (2014) 'Beam energy and longitudinal beam profile measurement system at the RIBF', in *Proceedings of the 5th International Particle Accelerator Conference (IPAC 2014)*, pp. 3566–3568.

Ziegler, J. F., Biersack, J. P. and Ziegler, M. D. (2008) *SRIM: the Stopping and Range of Ions in Matter*. Available at: <http://www.srim.org>.