講座

核・放射線による分析——生物学・医学・薬学・農学・理工学への応用——

7. 中性子照射-即発 γ 線スペクトロメトリ†

重松恒信, 合田四郎*

近畿大学教養部, *同大学理工学部

577 東大阪市小若江3-4-1

Key Words: prompt γ ray spectrometry, neutron capture γ ray, prompt γ ray

1. はじめに

核反応に伴って放出される即発 γ 線を検出して分析を行う試みが1960年代初めからなされてきた。この即発 γ 線スペクトロメトリは中性子照射^{1),2)}による核反応と荷電粒子照射³⁾⁻⁵⁾による核反応とが利用される。熱中性子捕獲に伴う即発 γ 線スペクトロメトリは、1966年 Isenhour と Morrison^{1),2)} によってはじめて試みられた。

通常の熱中性子放射化分析は、多くの元素に高い感度をもつこと、高分解能のGe(Li)検出器が開発されたことによって、広範な試料中の多成分元素の高感度非破壊分析法として利用されているが、核反応で生成した核が放射性で測定可能な量生成すること、生成核の半減期が放射能測定にたえる程度に長いこと、また逆に測定に十分な量の放射性核種を生成するためには半減期があまり長すぎないこと、などの制約がある。したがってターゲット核の自然同位体存在比が小さすぎるもの、生成核が安定核種であるもの、あるいは γ 線を放出しないものについては適用が困難である。これに対して即発 γ 線スペクトロメトリでは、生成核の核特性に関係しない点に特徴がある。

表1に、中性子照射によって起こる核反応をエネル

表1 中性子のエネルギーと核反応型式

中性子の エネルギー	核反応型式	
	$25 \leq A < 80$	$80 \leq A < 240$
0 - 1 keV	(n, n) (n, γ)	(n, γ) (n, n)
1 - 500 keV	(n, n) (n, γ)	(n, n) (n, γ)
0.5 - 10 MeV	(n, n) (n, n') (n, p) (n, α)	(n, n) (n, n') (n, p) (n, γ)
10 - 50 MeV	(n, 2n) (n, n') (n, n) (n, p) (n, np) (n, 2p) (n, α) ...	(n, 2n) (n, n') (n, n) (n, p) (n, np) (n, 2p) (n, α) ...

ギー別に示した。

この稿では熱中性子によって起こる(n, γ), (n, n')反応のうち、最も典型的な(n, γ)反応に伴う即発 γ 線スペクトロメトリについて述べることにする。

中性子を捕獲した核は、中性子の運動エネルギーと中性子の結合エネルギーに相当する励起状態となり、励起エネルギー(5-11 MeV)は 10^{-14} 秒以内に1個以上の γ 線として放出される。

中性子捕獲による即発 γ 線はほとんどすべての核から放出され、半減期、壊変形式など生成核の核特性には無関係である。しかも即発 γ 線の測定は照射終了と同時に終了するので、迅速な非破壊分析が可能となる。即発 γ 線スペクトロメトリには、大きな中性子密度の得られる原子炉は有利であるが、経済的、利用の簡便さ、線源の移動などの点で、中性子密度は原子炉に比べて小さいが、アイソトープ中性子源も実用面で有効に利用できる。とくに ^{252}Cf 線源は、環境試料や原料^{6),7)}の分析にとどまらず、管理分析^{8),9)}や資源探査^{10),11)}などのフィールドでの分析、生の生物試料や人体の成分分析^{12),13)}などへ即発 γ 線スペクトロメトリを応用する上できわめて有用である。

† Chemical Analyses by means of Nuclear and Radiation Methods — Applications to biology, medicine, pharmaceutical sciences, agriculture, science and engineering—. 7. Neutron Irradiation-Prompt γ Ray Spectrometry. Tsunenobu SHIGEMATSU and Shiro GODA*: College of General Education, *Faculty of Science and Technology, Kinki University, 4-1, Kowakae 3-chome, Higashiosaka-shi, Osaka 577.

2. 即発 γ 線の生成

一樣な熱中性子ビーム中に試料をおいたとき、ある特定のエネルギーの即発 γ 線の計数率(R)は、

$$R = \varepsilon N \phi \sigma I \quad (1)$$

となる。ここで N は標的核の数、 ϕ は熱中性子密度、 σ は熱中性子の捕獲断面積、 I は標的核による捕獲中性子当りのそのエネルギーの γ 線放射数、 ε は計数効率である。

中性子ビームが均質な試料を透過するとき、照射ビームの減衰のおこるときは、試料の厚さにより、中性子密度 $\phi(x)$ が変化する。

$$dR = \varepsilon N \sigma I d\phi \quad (2)$$

$$\phi(x) = \phi_0 \exp(-\sigma Cx) \quad (3)$$

ϕ_0 は試料への入射中性子密度、 x は試料の厚さ、 C は試料 cm^3 当りの標的核濃度をあらわす。

また、

$$\frac{d\phi}{dx} = -C\phi_0 \sigma \exp(-\sigma Cx) \quad (4)$$

したがって、特定エネルギーの γ 線の試料全体からの全計数率は、一樣な試料中での γ 線の吸収を無視すると、

$$R = \varepsilon N \sigma I \int_0^x C \phi_0 \sigma \exp(-C\sigma x) dx$$

したがって

$$R = \varepsilon N \phi_0 \sigma I [1 - \exp(-C\sigma x)] \quad (5)$$

となる。

n 成分を含む試料では、全成分について

$$\phi = \phi_0 \left[1 - \exp\left(-\sum_{i=1}^n C_i \sigma_i x\right) \right]$$

であり、混合物中の j 番種については、

$$R_j = \varepsilon_j N_j \phi_0 \sigma_j I_j \left[1 - \exp\left(-\sum_{i=1}^n C_i \sigma_i x\right) \right] \quad (6)$$

となる。 $\sum_{i=1}^n N_i \sigma_i x$ が極めて大きい場合、たとえば熱中性子反応断面積が大きい原子核を多量に含む試料では、 N_j で表わされる原子核の計数率は濃度の増加とともに一定値に近づいてゆく。たとえばホウ素 2 mg cm^{-3} を含む試料(厚さ 1 cm)の計数率は、 1 mg cm^{-3} 濃度の試料の2倍にならないで1.1倍となるに過ぎない。一般的には試料中での中性子密度の減少は無視しているが、いずれの場合も、試料中の2つの種の計数率の比は、試料中の両成分の濃度の比に比例する。

2つの成分、 j と k に対する計数率の比は、

$$\frac{R_j}{R_k} = \frac{\varepsilon_j N_j \sigma_j I_j}{\varepsilon_k N_k \sigma_k I_k} \quad (7)$$

アボガドロ数を L 、試料中の j の重量を W_j 、原子量を A_j とすると、 $N_j = W_j L A_j^{-1}$ であるから(k についても同様)、

$$\frac{R_j}{R_k} = \frac{\varepsilon_j W_j \sigma_j I_j A_j^{-1}}{\varepsilon_k W_k \sigma_k I_k A_k^{-1}} \quad (8)$$

このことは、即発 γ 線スペクトロメトリにおいて内部標準法が中性子の不均一性およびジオメトリの影響を受けない点で有用であることを示している^{2), 14)}。

3. 検出感度

3.1 即発 γ 線スペクトロメトリの感度

数元素を含む試料では、各元素の特定の γ 線の強度の比は、 $I\sigma/A$ に比例する。この値を感度指数(capture γ -ray sensitivity index, S)と呼んでいる^{15), 16)}。 I の値を100中性子捕獲当りの γ 線数としたものが多い。

$$S = I\sigma/A \quad (9)$$

Isenhour¹⁷⁾は、つぎのような感度因子(sensitivity factor, S)を定義して、放射化分析の感度を比較している。同じ記号であるので混同しないようにしたい。すなわち、感度因子(計数効率100%, 単位中性子密度での元素の最小検出量)は、

$$S = \frac{AR}{\theta L \sigma (1 - e^{-\lambda t}) I} \quad (10)$$

θ は自然同位体存在比、 t は照射時間である。即発 γ 線スペクトロメトリでは $(1 - e^{-\lambda t})$ の項は除く。放射化分析の S は1時間照射した場合、半減期が $< 1 \text{ m}$ で 10^3 cpm , $1 \text{ m} - 1 \text{ h}$ で 10^2 cpm , $> 1 \text{ h}$ で 10 cpm と計算され、即発 γ 線の S は計数率 10 cpm と求めている。

3.2 一般放射化分析と即発 γ 線スペクトロメトリの感度

放射化分析では、飽和まで照射したのち、時間 t_D 間に計数される崩壊数は、

$$n_D = N \phi \sigma \frac{(1 - e^{-\lambda t_D})}{\lambda} \varepsilon_D \quad (11)$$

となる。 ε_D は崩壊に対する全体としての計数効率である。即発 γ 線スペクトロメトリでは、同一試料で、時間 t_P 中に計数される γ 線数は、

$$n_P = N \phi \sigma t_P \varepsilon_P \quad (12)$$

となる。 n , ε , t の添え字 D と P はそれぞれ遅延 γ 線と即発 γ 線を表す。 ε_D は ε_P と同様の計数効率、今 $\varepsilon_P \approx \varepsilon_D$ と仮定して、両法の感度(計数値)を比較すると、

$$\frac{n_P}{n_D} = \frac{\lambda}{(1 - e^{-\lambda t_D}) t_P} \quad (13)$$

表 2 即発 γ 線スペクトロメトリと熱中性子放射化分析の推定感度因子の比較

元素	遅延 γ 線				即発 γ 線			$\log (S_D/S_F)$
	生成核	$T_{1/2}$	E_γ (m.e.v.)	S_D	反 応	E_γ (m.e.v.)	S_F	
Ag	^{110m}Ag	24 s	0.340	7×10^2	$^{108}\text{Ag}(n, \gamma)$	0.202	1×10^1	+2
Al	^{28}Al	2.3m	1.78	4×10^2	$^{27}\text{Al}(n, \gamma)$	7.73	1×10^2	0
As	^{76}As	27 h	0.561	5×10^2	$^{75}\text{As}(n, \gamma)$	7.05	3×10^2	0
Au	^{198}Au	2.7 d	0.412	6×10^1	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)$	0.2149	4×10^2	-1
B	b				$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$	0.477	4×10^{-3}	
Ba	^{138}Ba	85m	0.165	1×10^3	a	4.10	2×10^2	+1
Be	b				$^9\text{Be}(n, \gamma)$	6.80	4×10^2	
Bi	b				$^{209}\text{Bi}(n, \gamma)$	4.170	1×10^4	
Br	^{80}Br	17.6m	0.62	4×10^2	a	7.579	2×10^2	0
C	b				$^{12}\text{C}(n, \gamma)$	4.95	1×10^3	
Ca	^{48}Ca	8.8m	3.10	6×10^2	$^{40}\text{Ca}(n, \gamma)$	6.42	3×10^1	+1
Cd	^{115}Cd	54 h	0.523	3×10^5	$^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$	0.56	2×10^{-2}	+7
Ce	^{143}Ce	32 h	0.29	4×10^4	a	0.120	3×10^2	+2
Cl	^{38}Cl	37m	3.75	4×10^3	$^{35}\text{Cl}(n, \gamma)$	1.165	8×10^{-1}	+4
Co	^{60}Co	10.3m	1.17	1×10^1	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)$	0.562	3×10^0	+1
Cr	^{51}Cr	27 d	0.323	2×10^4	$^{53}\text{Cr}(n, \gamma)$	8.88	3×10^1	+4
Cs	^{134m}Cs	2.9 h	0.127	6×10^1	$^{133}\text{Cs}(n, \gamma)$	0.120	6×10^1	0
Cu	^{64}Cu	12.8 h	1.34	2×10^4	$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)$	7.91	2×10^1	+3
Dy	^{165}Dy	1.3m	0.108	8×10^{-1}	$^{154}\text{Dy}(n, \gamma)$	0.104	9×10^{-2}	+1
Er	^{171}Er	7.5 h	3.08	4×10^2	a	0.828	8×10^{-1}	+3
Eu	^{152m}Eu	9.3 h	1.327	3×10^1	$^{151}\text{Eu}(n, \gamma)$	0.090	5×10^{-2}	+3
F	^{20}F	11 s	1.632	3×10^4	$^{19}\text{F}(n, \gamma)$	1.36	1×10^3	+1
Fe	^{59}Fe	45 d	1.289	1×10^7	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)$	7.639	2×10^1	+6
Ga	^{72}Ga	14 h	3.350	5×10^2	a	6.359	1×10^2	+1
Gd	^{158}Gd	18 h	0.364	1×10^4	$^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$	0.079	2×10^{-3}	+7
H	b				$^1\text{H}(n, \gamma)$	2.23	8×10^{-1}	
Hf	^{179m}Hf	19 s	0.160	3×10^2	$^{177}\text{Hf}(n, \gamma)$	0.213	9×10^{-1}	+2
Hg	^{197}Hg	65 h	0.077	4×10^3	$^{198}\text{Hg}(n, \gamma)$	0.37	4×10^{-1}	+4
Ho	^{168}Ho	27 h	1.37	6×10^1	$^{165}\text{Ho}(n, \gamma)$	0.142	2×10^0	+1
I	^{123}I	25m	0.45	5×10^2	$^{127}\text{I}(n, \gamma)$	0.135	2×10^1	+2
In	^{115m}In	54m	1.09	8×10^0	a	0.558	3×10^0	0
Ir	^{194}Ir	19 h	0.328	1×10^2	a	5.68	8×10^0	+1
K	^{42}K	12.5 h	1.53	1×10^4	$^{39}\text{K}(n, \gamma)$	0.770	2×10^1	+3
La	^{140}La	40 h	1.597	3×10^2	$^{138}\text{La}(n, \gamma)$	0.440	3×10^1	+1
Mg	^{27}Mg	9.5m	0.843	3×10^4	$^{24}\text{Mg}(n, \gamma)$	3.92	2×10^2	+2
Mn	^{56}Mn	2.6 h	0.845	1×10^1	$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)$	7.26	1×10^1	0
Mo	^{99}Mo	67 h	0.140	3×10^4	$^{92}\text{Mo}(n, \gamma)$	0.770	1×10^1	+3
Na	^{24}Na	15 h	2.75	3×10^2	$^{23}\text{Na}(n, \gamma)$	0.475	2×10^1	+1
Nb	^{94m}Nb	6.6m	0.042	3×10^2	$^{93}\text{Nb}(n, \gamma)$	6.85	3×10^3	-1
Nd	^{147}Nd	11.6 d	0.091	7×10^5	a	0.695	1×10^0	+6
Ni	^{55}Ni	2.6 h	1.48	2×10^4	$^{58}\text{Ni}(n, \gamma)$	8.997	1×10^1	+3
P	b				$^{31}\text{P}(n, \gamma)$	0.43	7×10^1	
Pr	^{142}Pr	19 h	1.57	3×10^3	$^{141}\text{Pr}(n, \gamma)$	5.67	1×10^2	+1
Pt	^{198}Pt	31m	0.540	3×10^3	$^{196}\text{Pt}(n, \gamma)$	0.35	3×10^1	+2
Re	^{188}Re	17 h	0.155	1×10^2	$^{187}\text{Re}(n, \gamma)$	5.94	4×10^1	+1
Rh	^{104m}Rh	4.4m	0.077	2×10^1	$^{103}\text{Rh}(n, \gamma)$	6.20	1×10^1	0
S	^{37m}S	5.0m	3.09	5×10^6	a	5.44	4×10^1	+5
Sb	^{122}Sb	2.8 d	0.564	1×10^3	a	6.50	4×10^2	+1
Sc	^{46}Sc	84 d	1.19	3×10^3	$^{45}\text{Sc}(n, \gamma)$	8.18	7×10^0	+3
Se	^{75}Se	120 d	0.402	2×10^6	$^{75}\text{Se}(n, \gamma)$	6.586	5×10^1	+5
Si	^{31}Si	2.6 h	1.264	4×10^5	$^{23}\text{Si}(n, \gamma)$	4.93	1×10^2	+3
Sm	^{153}Sm	47 h	0.1032	1×10^2	$^{149}\text{Sm}(n, \gamma)$	0.338	1×10^{-2}	+4
Sn	^{125m}Sn	9.5m	0.326	2×10^5	a	9.35	1×10^4	+1
Sr	^{87m}Sr	2.8 h	0.388	5×10^2	$^{85}\text{Sr}(n, \gamma)$	7.53	4×10^2	0
Ta	^{182}Ta	112 d	1.22	1×10^4	$^{181}\text{Ta}(n, \gamma)$	0.272	3×10^0	+4
Te	^{131}Te	25m	0.147	1×10^4	$^{129}\text{Te}(n, \gamma)$	0.609	2×10^1	+3
Ti	^{51}Ti	5.8m	0.323	2×10^4	$^{49}\text{Ti}(n, \gamma)$	1.387	3×10^0	+4

元素	遅延 γ 線				即発 γ 線			$\log (S_D/S_F)$
	生成核	$T_{1/2}$	E_γ (m.e.v.)	S_D	反 応	E_γ (m.e.v.)	S_F	
Tl	b				a	5.63	1×10^2	
Tm	^{170}Tm	127 d	0.084	7×10^3	$^{150}\text{Tm}(n, \gamma)$	0.150	5×10^0	+3
V	^{52}V	3.8 m	1.433	3×10^1	$^{51}\text{V}(n, \gamma)$	6.51	2×10^1	0
W	^{187}W	24 h	0.686	7×10^2	$^{186}\text{W}(n, \gamma)$	5.25	7×10^1	+1
Zn	$^{69\text{m}}\text{Zn}$	14 h	0.438	2×10^4	$^{68}\text{Zn}(n, \gamma)$	0.45	1×10^2	+2
Zr	^{97}Zr	17 h	0.747	4×10^5	$^{91}\text{Zr}(n, \gamma)$	6.30	9×10^2	+3

a: 適当な情報無。b: 適当な反応無。

となる。 t_D を長くすると

$$n_F/n_D = \lambda t_F \quad (14)$$

となる。 t_D は生成核の数半減期を越えられないが, t_F には制限がないので即発 γ 線スペクトロメトリの感度は, いくらでも高くすることができる。実際には, それぞれ利用できる装置, 可能な計数時間など多くの制約があるので, それぞれの方法の優劣があらわれてくる。表 2 に感度因子をもとに放射化分析法と即発 γ 線スペクトロメトリの感度を比較した結果¹⁾を示しておく。

熱中性子照射による即発 γ 線スペクトロメトリの基本的な問題に, 同時に検出器に到達する種々の放射線の区別, すなわち目的 γ 線を正しく計数するという問題がある。即発 γ 線スペクトル自身も相当複雑なものがあり, またエネルギー値によってスペクトロメトリの難易が考えられる。中性子捕獲 γ 線 スペクトル, 0-3 MeV¹⁶⁾ と 3-10 MeV¹⁷⁾ が集められていて参考になる。

4. 中性子源

高い中性子密度を必要とするときは, 原子炉を利用して中性子を炉外に引きだし, コリメートして試料に照射する。アイソトープ・ベリリウム型中性子源では, あまり大きな中性子密度は得られないが ^{252}Cf 線源で高中性子密度が得られる。これらアイソトープ中性子源を利用する場合には, 比較的簡単な照射設備で実験でき, 経済的で, しかも線源の移動が可能なので, どこでも利用できる有利さがある。 ^{252}Cf は 1 g 当り 2.3×10^{12} n/秒の自発核分裂による中性子を発生する。 γ 線を放射するが, 他のアイソトープ線源に比べて線量は低く, $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ の 10 分の 1, $^{238}\text{Pu}-\text{Be}$ の 5 分の 1 程度である。また中性子のエネルギーが低いために即発 γ 線スペクトロメトリ用中性子源として有利な点も多い。

よく利用される中性子源 1 Ci 当りの中性子発生量を表 3 に比較して示した。

表 3 アイソトープ中性子源 1 Ci 当りの中性子収量

型	中性子源	半減期	平均エネルギー	収量 (n/s)
(γ, n)	$^{124}\text{Sb}+\text{Be}$	60 d	24 keV	1.6×10^6
(α, n)	$^{210}\text{Po}+\text{Be}$	138 d	4.3 MeV	2.5×10^6
	$^{226}\text{Ra}+\text{Be}$	1 620 y	3.6 MeV	1.5×10^7
	$^{238}\text{Pu}+\text{Be}$	89 y	4 MeV	2.8×10^6
	$^{239}\text{Pu}+\text{Be}$	24 360 y	4.5 MeV	2.0×10^6
	$^{241}\text{Am}+\text{Be}$	458 y	4 MeV	2.0×10^6
	$^{242}\text{Cm}+\text{Be}$	163 d	4 MeV	4×10^6
	$^{244}\text{Cm}+\text{Be}$	18 y	4 MeV	3×10^6
S. F.	^{252}Cf	2.65 y	2.3 MeV	4.4×10^9

5. 照射装置

原子炉を利用する場合には, 試料を炉内に置き, 炉外で γ 線を測定する方法と, 中性子を炉外に引き出し, 試料を検出器に近接させた状態で照射する 2 つの方法がある。前者の場合は高中性子密度が得られるが, 測定幾何学的効率が悪い。後者は全くその逆であるが, つぎのような点で有利であり, 一般的方法である。

①熱や放射線による損傷を抑えられる。

②試料の形状や測定装置に融通性を持たせられる。

③中性子ビーム中にフィルタを置き, ビームからの γ 線やあるエネルギー域の中性子を除去できる。

④試料の残留放射能を抑制できる。

一方, アイソトープ中性子源を利用する場合には, 中性子密度を大きくするために, 試料を線源に近接させる配置が必要である。

原子炉を利用した装置¹⁸⁾の一例を図 1 に示した。

常圧でヘリウムガスを充満した 2 つのアルミニウムかんをベリリウム反射体, グラファイト反射体を通して炉心 (最大中性子密度: 10^{14} n/cm² s) に隣接させる。炉心表面では速中性子や γ 線量が極めて高いので, 4 つのシリコン単結晶 (全長 50 cm) をビームポートの深い位置に置き, 速中性子と γ 線を抑制するフィルタとした。生体遮蔽の外側近くには 2 つのコリメータを置いた。初めのコリメータは円筒状の鉛とメゾナイトか

らできており、最終的に内径が 5 cm になるように先細にした全長 38 cm の円錐形である。2 番目のコリメータも鉛とメソナイトからできていてロータリービームシャッター内に配置している。試料位置での中性子密度は $5 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ で、カドミウム比は 42/1 であり、ビームの直径は約 6.5 cm、ビーム強度の変動は $\pm 5\%$ 以内である。 γ 線のバックグラウンドを低下させ、検出器の損傷を抑制し、作業の安全性のために外側を遮蔽してある。試料ボックスは中性子吸収によるビーム強度の低下と窒素の中性子捕獲 γ 線を抑制するために減圧できるようにしてあり、試料支持台はビーム軸と検出器に対して 45° の角度に配置している。

6. 検出器

図 1 に示したように Ge(Li) 検出器は入射中性子ビームに対して 90° 、試料位置から 75 cm の位置に配置してある。Ge(Li) は円筒状 NaI(Tl) (外径 24 cm、長さ 32 cm) の中央に置き、入射 γ 線を除去するため、組合せた検出器の周囲を厚さ 10 cm の鉛で遮蔽してある。試料からの γ 線は直径 2.5 cm、長さ 35 cm のコリメータを通して測定する。検出器は速中性子、熱中性子いずれに対しても損傷を受ける可能性があるため、Ge(Li) には溶融 ^6LiF 製のキャップをつけた。 ^6Li は熱中性子に対して 950 b の反応断面積をもち、 $^6\text{Li}(\text{n}, \alpha)^3\text{H}$ で中性子を吸収する。しかも生成する ^3H は γ 線を放出しないので都合がよい。この装置で、熱中性子および速中性子のバックグラウンドはそれぞれ $1 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ 、 $2 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ であった。

7. 計測システム

マルチモードの計測システムに使用される電子回路の典型的なブロックダイアグラム¹⁸⁾を図 2 に示した。測定される 3 つのモードは、シングルスペクトル、

図 1 MURR の即発 γ 線スペクトロメトリ装置の配置図

図 2 即発 γ 線スペクトロメトリにおける計測システムの電子回路ダイアグラム

コンプトンサプレッションスペクトルおよびベアスペクトルで、5 台のマルチチャンネル波高分析器を使って 0.05 - 3 MeV、3 - 11 MeV 領域のシングルおよびコンプトンサプレッションスペクトルおよび 2 - 11 MeV 領域のベアスペクトルが測定できるシステムを使用した。

シングルモードでは Ge(Li) に入る全シグナル、すなわち光電ピーク、エスケープピーク、コンプトンを測定するが、光電ピークとエスケープピークの妨害がしばしば起こり分析の信頼性が低いため、分析結果のチェック用としてデータを保存する。

コンプトンサプレッションモードでは、NaI 検出器と Ge(Li) 検出器の反同時計数シグナルだけを計数する。このスペクトルは、一般にシングルスペクトルに

図3 シングル、コンプトンサプレスおよびベアスペクトル[USGS ハワイ産玄武岩(BHVO-1)]

比較してコンプトンが1.5～4分の1に減少するので、検出限界は向上し、小さなピークも鮮明になる。シングル、ダブルエスケープピークがそれぞれ1/4, 1/8に減少でき、シングルピークエリアの損失は1%以下にできる。

ベアスペクトルモードで記録される事象は、NaI (TI) の1022 keV のエネルギーで得られる事象と対応していて、得られるスペクトルは極めて単純で、ダブルエスケープピークだけが非常に低いバックグラウンドの上に現れる。ピーク/バックグラウンド比が改善され、シングルスペクトルの2倍以上となる。ともかくダブルエスケープピークの効率はシングルスペクトルの約40%を占めるため、ベアスペクトルは定性的な同定目的に最も有効である。

これら3つのモードで測定したスペクトルを比較して図3に示しておいた。

8. 試料の調製

粉末試料はそのままカベレットに加圧成形したものをマイラー膜やテフロンフィルムで密封するか、さらにポリエチレン製容器あるいはグラファイト製試料ホルダに封入している場合が多い。しかし、非常に大きな反応断面積をもつ元素(ホウ素、カドミウム、サマリウム、ガドリニウム)では、中性子の自己遮蔽を防ぐために表面密度を小さくする工夫が必要な場合がある。たとえば、ガドリニウムでは自己遮蔽を1%以下におさえるためには150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下となるように試料を調整する必要がある¹⁰⁾。

さらに標準試料に含まれる不純物についても十分に吟味しておく必要がある。とくに吸収断面積の大きいカドミウム、サマリウム、ガドリニウムなどが存在すると即発 γ 線の同定を困難にすることがある。

図4 NBSフライアッシュの即発 γ 線スペクトル(70～520 keV)

図5 NBSフライアッシュの即発 γ 線スペクトル(515～890 keV)

図6 NBSフライアッシュの即発 γ 線スペクトル(5800～6720 keV)

図 7 NBSフライアッシュの即発 γ 線スペクトル (6720-7700 keV)

9. 応 用

初期はNaI(Tl)検出器を使っていたので即発 γ 線スペクトロメトリは比較的単純なマトリックス中の1ないし数元素の分析に利用されていた。現在では分解能の高いGe(Li)検出器の出現と計測システムの工夫、さらには即発 γ 線の同定が容易になったことによって、その応用範囲は飛躍的に拡がり、岩石、土壌などの地球化学試料、オーチャードリープスやボーバイリバーなどの生物試料、セメント、コンクリート、鉄鋼などの工業材料中の多元素の同時定量と迅速非破壊分析が可能となってきた^{19), 20)}。

NBSのフライアッシュを熱中性子密度 10^8 n/cm² sで照射して得られた即発 γ 線スペクトルを4つのエネルギー領域に分けて図4 - 図7に示した¹⁹⁾。

図4に示したエネルギー (70-520 keV) 領域では、ピーク密度は小さいが、ビームからの散乱 γ 線、コンプトン散乱によって低エネルギー領域の広範囲にわたって高いバックグラウンドがあることを示している。この高いバックグラウンドも、先に示したコンプトンサプレッス γ 線計数法により1/4程度に抑えることができ、さらにビームシャッタにビスマス単結晶を配置することにより、中性子ビームからの γ 線を吸収することができる。

図5の500-900 keV 領域では γ 線ピークが密集しており、特に中性子捕獲断面積の大きいサマリウム (5900 b) とガドリニウム (39100 b) のスペクトルは極めて複雑で、2 MeV 付近まで続く。

図6と図7の5.8-7.7 MeV 領域では低エネルギー領域に比べて複雑さは少なくなるが、全エネルギーピークと511 keV, 1022 keVに関連するシングルエスケープピークとダブルエスケープピークの3つが現われる。高エネルギー域の光電ピークを利用すると核種の

同定が容易になる。フライアッシュでは低エネルギー領域で、特にサマリウムとガドリニウムの光電ピークが顕著で、しかもスペクトルを複雑にしているが、生体試料、たとえばボーバイリバーなどでは、これらの元素含量が少ないため、フライアッシュの場合に比べて単純なスペクトルが得られる。

フライアッシュでは、高エネルギー域に鉄、ケイ素、チタンなど地殻元素の中性子捕獲 γ 線ピークが優勢であるが、ボーバイリバーでは塩素、窒素、硫黄、カリウムなどの放射化による光電ピークが優勢となる。

中性子放射化分析を生物試料や海洋試料に適用するときの大きな問題は、生成する²⁴Na, ⁴²K, ³⁸Clの強烈な誘導放射能のため、半減期が数日以下の生成核種の分析が困難になることである。この点、即発 γ 線スペクトロメトリではナトリウム、カリウムの妨害を小さくできる。しかし³⁵Clの即発 γ 線は広領域にわたって強い光電ピークを示す。

即発 γ 線の純度を確認するためには、目的元素のエネルギーの異なる2つ以上のピーク強度比を調べる必要がある。たとえば図5のスペクトルに見られる¹¹⁸Cdの558 keVの光電ピークの約15%が¹⁴⁹Sm(558 keV)からの寄与によるものであることが、¹⁴⁹Smの333, 439, 505および736 keVピークと558 keVピークの強度比から見積られる。妨害元素の影響を除去することはほとんど不可能であるが、妨害元素について信頼できるスペクトルを収集しておくことで容易に、しかも正確に分析ができる。

環境試料に利用できる即発 γ 線のエネルギー、可能性の高い妨害元素については表4に示した。

NBSのフライアッシュ、石炭、生物試料に適用し、水素、ホウ素、炭素、窒素、ナトリウム、マグネシウム、アルミニウム、ケイ素、リン、硫黄、塩素、カリウム、カルシウム、チタン、バナジウム、マンガン、鉄、カドミウム、ネオジム、サマリウム、ガドリニウムなど16-17元素の非破壊分析が可能であるという。

環境測定に重要な硫黄の分析には最も強度の大きい³²S 841 keVのピークは³⁹Kの843 keVピークが³²Sの841 keVピークのショルダとして現われるので、その補正が必要である。またカルシウムの濃度が高い試料では⁴⁰Caの837 keVの妨害を受ける。K/S, Ca/S比の高い試料では、841 keVでの定量は困難で、感度は若干低くなるが、2380 keVピークによる方が有利である。

マグネシウム、バナジウムについては熱中性子放射化分析の方が信頼度は高い。

中性子照射して十分飽和させておく。より半減期の長い ^{56}Mn (2.6 h) や ^{24}Na (15 h) に対しては照射時間を正確に測定しておき、照射後(即発 γ 線測定後)飽和係数によってデータを補正することができる。あらかじめ照射時間を変えて、既知量の個々の元素について γ 線スペクトルを測定してデータを保存しておけば標準との比較で定量できる。

10. おわりに

即発 γ 線スペクトロメトリは環境試料中の多数の主要元素の測定ができ、有機物質の主要元素である水素、炭素、窒素および硫黄の分析が可能である点で一般放射化分析法と大きく異なる。さらに即発 γ 線スペクトロメトリは大きな捕獲断面積をもつホウ素、カドミウム、サマリウム、ガドリニウムの高感度分析が可能である。

現在、即発 γ 線スペクトロメトリで種々の試料中の約15元素が分析可能であり、熱中性子放射化分析法では30近い元素の分析が可能である。したがって、両分析法を組合せることにより、岩石、土壌、石炭、フライアッシュなどについて45元素が、生物試料について30元素が分析できる可能性がある。両者の組合せで石炭中の測定可能な元素を図8に示した¹⁹⁾。

即発 γ 線スペクトロメトリは試料にほとんど生成放射能を残さないで、同じ試料を原子炉で再照射して熱中性子放射化分析することも可能である。現在では、即発 γ 線スペクトロメトリはまだまだ熱中性子放射化分析法の補助的手段としての域を脱していない。

今後小型中性子源の利用が広まれば、現場における管理分析、調査研究にさらに発展が期待できる。

文 献

- 1) Isenhour, T.L. and Morrison, G.H.: *Anal. Chem.*, **38**, 162 (1966)
- 2) Isenhour, T.L. and Morrison, G.H.: *ibid.*, **38**, 167 (1966)
- 3) Pierce, T.B., Peck, P.F. and Henry, W.M.: *Nature*, **204**, 571 (1964)
- 4) Deconninck, G. and Demortier, G.: *J. Radioanal. Chem.*, **12**, 189 (1972)
- 5) Clark, P.J., Neal, G.F. and Allen, R.O.: *Anal. Chem.*, **47**, 650 (1975)
- 6) Wiggins, P., Duffey, D. and El-Kady, A.A.: *Anal. Chim. Acta*, **61**, 421 (1972)
- 7) Lutz, G. J.: *Anal. Chem.*, **46**, 618 (1974)
- 8) Duffey, D., Balagna, J.P. and Wiggins, D.F.: *Amer. Geophys. Union Trans.*, **54**, 261(1973)
- 9) Pouraghabagher, A.R. and Profio, A.E.: *Anal. Chem.*, **46**, 1223 (1974)
- 10) Tanner, A.B., Moxham, R.M., Senftle, F.E. and Baicker, J.A.: *Nucl. Instrum. Methods*, **100**, 1 (1972)
- 11) Wogmen, N.A., Riech, H.G., Korsorok, J.R. and Perkins, P.W.: *J. Radioanal. Chem.*, **15**, 591 (1973)
- 12) Morgan, W.D., Vartsky, D., Ellis, K.J. and Cohn, S.H.: *Phys. Med. Biol.*, **26**, 413(1981)
- 13) Cummins, P.E., Dutton, J., Evans, C.J. et al.: *J. Radioanal. Chem.*, **71**, 561 (1982)
- 14) Heurtebise, M. and Lubkowitz, J.A.: *Anal. Chem.*, **48**, 2143 (1976)
- 15) Henkelmann, P. and Born, H.J.: *J. Radioanal. Chem.*, **16**, 473 (1973)
- 16) Senftle, F.E., Moore, H.D., Leep, D.B. et al.: *Nucl. Instrum. Methods*, **93**, 425 (1971)
- 17) Duffey, D., El-Kady, A. and Senftle, F.E.: *ibid.*, **80**, 149 (1970)
- 18) Hanna, A.G., Brugger, R.M. and Glascock, M.D.: *ibid.*, **188**, 619 (1981)
- 19) Failey, M.P., Anderson, D.L., Zoller, W.H. and Gordon, G.E.: *Anal. Chem.*, **51**, 2209 (1979)
- 20) Anderson, D.L., Gordon, G.E. and Lepel, E. A.: *Can. J. Chem.*, **61**, 724 (1983)