選び出し、解析する γ 線エネルギーを決定する。

次に、ピークの中心位置を推定するためスペクトルのピークサーチを行い、一番低エネルギーピークより順次解析を行う。まずピーク付近を平滑化し、ピークの半値幅を推定し、解析するフィッティング領域を設定する。設定した領域内に次のピーク成分が含まれる場合は複合ピークとしてまとめて解析するために領域を広げる。

ピークを表示する関数であるフィッティング関数の各パラメータの初期推定値を求め、非線形最小二乗法により計算する。そして収束したパラメータによりピークのエネルギー、面積等を計算する。その結果をもとに核種の同定、元素の定量を行う。アイソトープライブラリを用いて各ピークの核種を決定し、半減期補正を行い、照射終了時の計数率(cps)を計算する。さらにスタンダードライブラリを使って、注目する元素の γ 線エネルギーごとの感度(cps/ μg)より含有量(μg)が自動的に求められ、濃度(ppm)まで計算される。結果の出力例を図2に示す。結果はファイルに保存され、核種順に並び換えて一覧表の形でプリンタに出力される⁸⁾。

4. ま と め

2台のパソコンを用いることにより、 γ 線スペクトル収集と解析が独立・平行して実行できる。ルーチン作業が簡単な操作で自動化され、解析においてもキー入力される条件はできるだけ少なく、分析元素を入力するだけで対応する核種の γ 線ピークが選出されるようになっている。

文 献

- 1) Murata, Y., Hirai, S., Okamoto, M. and Kaki-hana, H.: *J. Radioanal. Chem.*, **36**, 525-535 (1977)
- 2) 鈴木章悟, 平井昭司: *Radioisotopes*, **34**, 563-566 (1985)
- 3) Suzuki, S. and Hirai, S.: *Anal. Sci.*, **3**, 91-92 (1987)
- 4) 鈴木章悟, 本田庸郎, 平井昭司: *Radioisotopes*, **27**, 268-270 (1978)
- 5) 鈴木章悟, 平井昭司: 分析化学, **41**, 521-525 (1992)
- 6) 鈴木章悟, 平井昭司: *Radioisotopes*, **42**, 467-469 (1993)
- 7) 鈴木章悟, 平井昭司: *ibid.*, **34**, 155-158 (1985)
- 8) 鈴木章悟, 平井昭司: *ibid.*, **38**, 315-318 (1989)

2. 中性子誘起即発ガンマ線分析[†]

米沢伸四郎, 伊藤泰男*

日本原子力研究所東海研究所

319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

*東京大学原子力研究総合センター

319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Key Words: neutron-induced, prompt gamma-ray analysis, JRR-3M, cold neutron, thermal neutron, guide beam

1. はじめに

中性子放射化分析(NAA)は、主に中性子捕獲反応等で生成する放射性核種の壊変 γ 線の測定により行われるが、中性子捕獲反応等の

際、反応後 10^{-14} 秒以内に放出される捕獲 γ 線等の即発 γ 線測定により元素および同位体の分析も可能となる。この分析法は中性子誘起即発 γ 線分析(neutron-induced prompt gamma-ray analysis, PGA)*と呼ばれ、NAAでは分

図1 JRR-3M 即発 γ 線分析装置配置図 (熱中性子ビームポート)⁴⁾

析が困難な H, B, N, Si, P, S, Cd, Gd 等の分析も可能な多元素同時非破壊分析法という特長を持つ。しかし、これまでは良好な中性子源が得られないことから、PGA は分析感度が低く、検出限界も高いため、NAA の補足的な分析法として利用されるに過ぎなかった。

近年、冷中性子源および中性子ガイド管の開発により、 γ 線、熱外および高速中性子を含まないビーム質の優れた低速中性子ビームを利用

できるようになった。このような低速中性子ガイドビームを PGA の中性子源とした場合、① $1/v$ 則により反応断面積が増大する、② 中性子の遮蔽に減速用の含水素材料を必要とせず、水素からの即発 γ 線バックグラウンドが大幅に減少する、③ 試料による散乱 γ 線および中性子線と周囲の物質との反応による γ 線バックグラウンドが減少する、等従来の PGA では得られない利点が生じる。同時に試料と検出器間距離を小さくすることが可能となり、 γ 線の検出効率を大きくとることができ、分析感度と検出限界を大幅に改善することができる。このようなことからわが国においても、米国 NIST²⁾、ドイツ KFA Jülich³⁾と同様に、冷中性子および熱中性子ガイドビームを使用した恒久的な実験装置が日本原子力研究所の研究用原子炉 JRR-3M (熱出力 20 MW) に設置され⁴⁾、PGA の本格的な研究が開始された。

[†] 2. Neutron-induced prompt gamma-ray analysis. Chushiro YONEZAWA and Yasuo Iro*: Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-Pref. 319-11, Japan, *Research Center for Nuclear Science and Technology, The University of Tokyo, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-Pref. 319-11, Japan.

*本分析法は、中性子捕獲即発 γ 線放射化分析 (PGAA) または即発 γ 線中性子放射化分析 (PGNAA) 等とも呼ばれているが、ここでは Chrien¹⁾の提唱する PGA を使用する。

2. JRR-3M 冷中性子および熱中性子ガイドビームを使用した PGA の研究^{4),5)}

熱中性子ビームポートにおける実験装置の配置図⁴⁾を図1に示す。装置は、PGAにおいて最も重要な γ 線バックグラウンドを低減するため、①遮蔽材料および構造材料には即発 γ 線発生量の少ないLiFタイルおよびフッ素樹脂を使用、②試料の照射雰囲気として中性子の散乱断面積が小さく、即発 γ 線発生量の少ないHeを使用、③Ge-BGO検出器を用いた多モード γ 線スペクトロメータによりコンプトンバックグラウンドを低下させるとともに、複雑なスペクトルを単純化する、等の特徴を持つ。冷中性子および熱中性子ビームポートにおける試料位置の中性子束は、 1.4×10^8 (冷中性子)、 2.4×10^7 (熱中性子) $\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ となっている。本装置は、ビーム質の優れた低速中性子ガイドビームと低 γ 線バックグラウンドシステムの使用により、従来のPGA装置に比べ元素の分析

感度が高く、検出限界が低い。試料の即発 γ 線スペクトル測定は、He雰囲気中で中性子ビームを照射しながら500-50 000秒間行われる。

冷中性子ビームにおける元素の分析感度と検出限界のプロット⁵⁾を図2に示す。図2より冷中性子ビームを用いるPGAは、①B, Gd, Sm, Eu, Cdが最も高感度で、その検出限界はナノグラムレベルと低い、②他の方法では分析が困難なH, B, N, Si, S等を含む多くの元素を非破壊同時分析ができる。③有害元素のCd, Hgを比較的高感度で分析できる、等の特長を持つことがわかる。このような特長を生かし、これまでいくつかの応用例について検討した結果PGAは、①各種物質中の微量Bの定量法として有効であり、原子炉用黒鉛およびBe中の場合検出限界はppbレベルと低い、②化学的性質が類似な希土類元素間の分析に有効であり、高純度酸化セリウム(IV)中数百ppbレベルのSm, Gd, Eu, Erが検出された、③その他Zrおよびジルカロイ中のppmレベルのH, Hfの

分析が可能である、等が明らかになった⁵⁾。現在、多元素分析のための基礎検討とともに、環境試料、考古学試料、地球および宇宙化学的試料、生物および材料等の分析への応用研究も活発に行われている。さらに、PGAは同位体分析にも有効であり、Ca, Ni, Fe等の同位体比分析および同位体希釈分析等の検討も行われている。

3. おわりに

冷中性子等の低速中性子ガイドビームを使用したPGAは、その欠点とされていた低分析感度の問題が改善され、新規分析法としてさまざまな分野の分析に有用であることが明らかになった。さらに、PGAは元素および同位体の定量分析法としてのみならず、微小中性子ビームの使用により物質中の元素および同位体の分布分析

図2 JRR-3M 即発 γ 線装置の冷中性子ビームにおける元素の分析感度と検出限界⁵⁾

も可能となる。現在、集束ミラーやファイバー等により中性子ビームを数 mm² まで絞ることが可能とされており、この程度の分解能においても生物試料に対しては有効な分析法であると考えられる。今後、μm² またはそれ以下のサイズの中性子ビームの開発により、各種材料中の H, B, S 等の軽元素を含む元素および同位体の分布分析法として有用であると考えられる。さらに PGA は、極短寿命核種測定による NAA, B の反跳化学、荷電粒子測定によるデプスプロファイリング、核データ測定等の研究への発展も期待される。

文 献

- 1) Chrien, R. E. : "Neutron Radiative Capture", (Allen, B. J., Bergqvist, I., Chrien, R. E., Gardner, D. and Poenitz, W. P. eds.), pp. 187-213, Pergamon Press, Oxford (1984)
- 2) Lindstrom, R. M., Zeisler, R., Vincent, D. H., Greenberg, R. R., Stone, C. A., Mackey, E. A., Anderson, D. L. and Clark, D. D. : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **167**, 121-126 (1993)
- 3) Rossbach, M. : *Anal. Chem.*, **63**, 2156-2162 (1991)
- 4) Yonezawa, C., Haji Wood, A. K., Hoshi, M., Ito, Y. and Tachikawa, E. : *Nucl. Instrum. Methods, A* **329**, 207-216 (1993)
- 5) Yonezawa, C. : *Anal. Sci.*, **9**, 185-193 (1993)

3. 競合する分析法との比較†

重松俊男

日本電信電話(株)研究開発技術本部境界領域研究所機能材料研究部
319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 162

Key Words: charged particle activation analysis, substoichiometric analysis, inductively coupled plasma-mass spectrometry, accuracy, sensitivity, neutron activation analysis

各々の分析法はそれぞれに原理が異なり、特徴も異なる。また、分析の難易は試料の化学形態や分析に求められる条件によって大きく変わり、それにとまって分析法間の優位性も変わってくる。ここでは、中性子放射化分析および不足当量分析の特徴を紹介し、さらに痕跡量の分析法として知られる荷電粒子放射化分析および誘導結合プラズマ-質量分析 (ICP-MS) について中性子放射化分析と比較し述べる。

† 3. Comparison of NAA with competitive methods. Toshio SHIGEMATSU : Advanced Materials and Characterization Research Laboratory, NTT Interdisciplinary Research Laboratories, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-Pref. 319-11, Japan.

1. 中性子放射化分析

中性子放射化分析では、原子炉中性子を使用して Na より重い多くの元素の高感度定量が可能である。原理的に、① 原子核反応を利用しており外殻電子の影響を受けない、② 中性子は透過性が高く比較的大きな試料が均一に照射される、③ 放射化した後の元素の汚染は誤差の要因にならないなどの長所があり、確度の高い(真値からのズレで示される系統誤差が少ない)分析法である。特にバルク試料では、放射化した試料の表面を化学エッチして試料作製時の汚染を除去できるため、きわめて正確な分析が期待できる。

また、① 分析上の主要な問題点はほとんどす