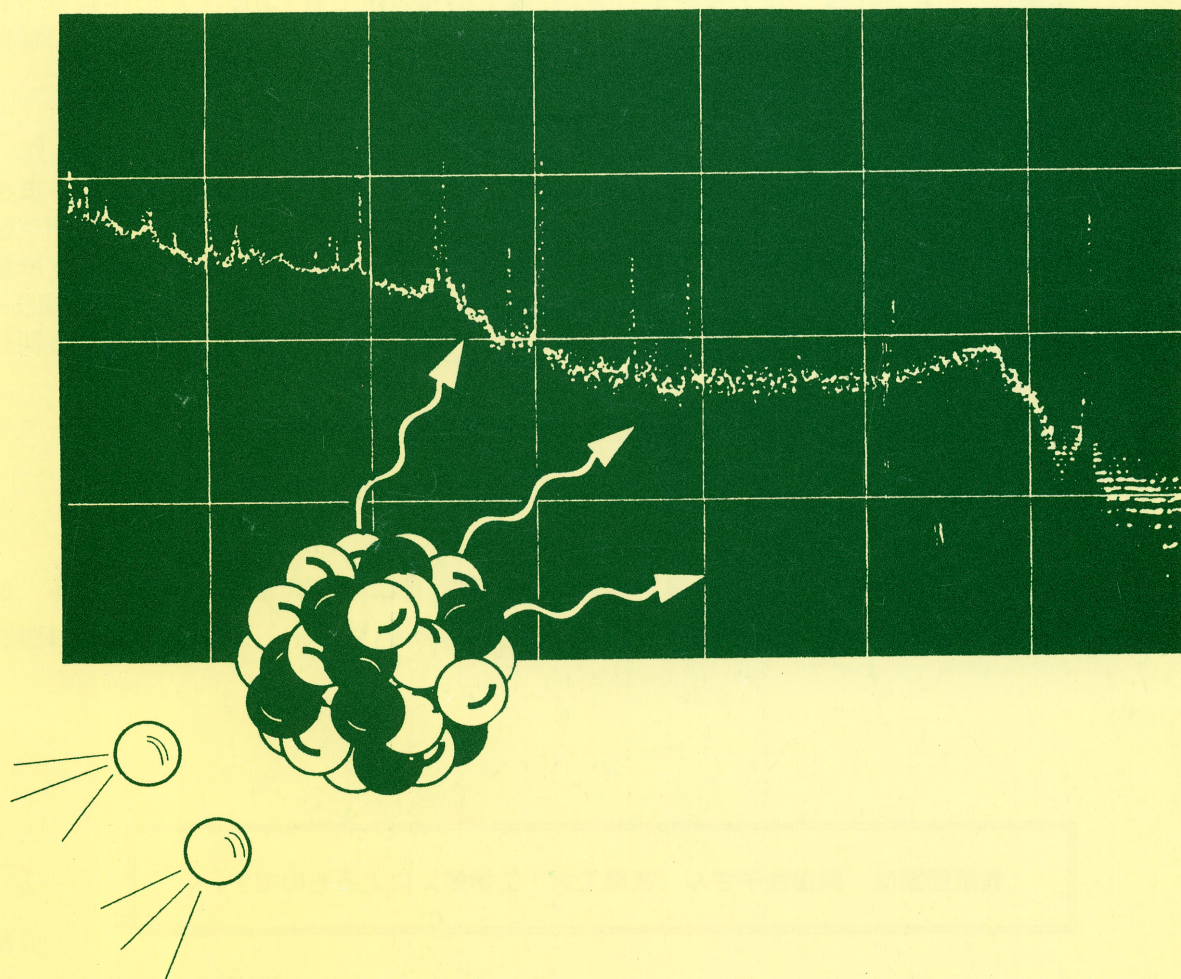


2010年1月

放射化分析

No.25



放射化分析研究会

放射化分析研究会

Japan Association of Activation Analysis

(JA³)

会誌

「Activation Analysis」

表紙図案は 岡田往子さん（武蔵工大・工学部）によるものです。

「放射化分析」誌の電子アーカイブ化についての告知(お願い)

会員ならびに著者各位

放射化分析研究会は、1995年の設立以来、「放射化分析」を刊行して参りました。15年にわたり本誌を刊行できましたことは、ひとえに会員各位のご支援、ご協力の賜物と深く感謝申し上げます。

このたび、「放射化分析」誌の創刊号以来の全号を電子アーカイブ化し、国立情報学研究所の電子図書館(NII-ELS)を通してWeb上で公開することといたしました。このNII-ELSは、我が国の学協会が発行する学術雑誌を電子化して収録するもので、国立情報学研究所のCiNii(NII論文情報ナビゲータ)を利用して検索することができます。

このNII-ELSでの公開は、著作権が本研究会に帰属していることが条件となります。しかしながら、本研究会では会誌に掲載された著作の著作権に関する取り決めはこれまでありませんでしたので、著作権の委譲が明確にされていない状態となっております。そのため、公開に当たって、著者の許諾が前提となります。これらの事情から本電子アーカイブ化を進めるにあたり、創刊号以来の著作について著作権は本会に帰属していただく事といたしたいと存じます。本来であれば会員ならびに著者の皆様お一人ずつに「著作権の許諾手続き」を行うべきではございますが、学会ホームページ、「放射化分析」誌(No.25)上のこの告知により、著作権の譲渡をお願い申し上げる次第です。

万一、この件に関しましてご了承いただけない場合、あるいはご不審の点がある場合は、2010年3月31日までに本研究会事務局に文書または電子メールでお申し出下さい。何らかの事情でこの件をお知りになる機会がなかった場合には、期限を過ぎましても、あらためて個別にご相談させていただく所存です。なお、お申し出のない場合には、ご了承いただいたものとし、電子アーカイブの準備ができた段階で、順次公開していきたいと存じます。なお、2010年3月31日以後であっても、NII-ELSでの公開を希望されない旨のお申し出があれば、その時点で可能な限り速やかに当該論文の公開を停止させていただきます。

電子アーカイブ化へのご理解とご協力を重ねてお願い申し上げます。

なお、本号より、本会誌の著作の著作権は本研究会に帰属するものいたします。また、NII-ELSの詳細につきましては、http://www.nii.ac.jp/nels_soc/ をご参照ください。

2010年1月

連絡先：

放射化分析研究会事務局

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究開発機構内 大学開放研究室

TEL: 029-282-5516 FAX: 029-287-2464

E-mail: JA3-jimu@kaihoken.nuclear.jp

放射化分析 No.25

目次

特集 「多重ガンマ線測定を用いた放射化分析」

はじめに	大浦泰嗣	1
多重ガンマ線検出による中性子放射化分析		
大島真澄, 村上幸弘, 藤暢輔, 初川雄一, 金政浩, 木村敦, 小泉光生		3
J-PARC 1MW パルス核破碎中性子源	前川 藤夫	15
多重ガンマ線放射化分析法を用いた地球科学試料の分析研究		
初川雄一, 大島真澄, 藤暢輔, 木村敦, 小泉光生, 古高和禎		26
NAAMGによるたたら製鉄試料の分析	鈴木章悟	29
MPGA法の肥料及び植物分析への適用可能性の検討	木方展治	36
多重即発ガンマ線分析法を用いた底質標準試料および干潟底質試料中のカドミウムの分析		
松尾基之, 小豆川勝		39
多重即発ガンマ線分析法の宇宙地球化学的試料への適用		
渡部良, 大浦泰嗣, 海老原充		41

研究会報告

2009年日本放射化学会年会・第53回放射化学討論会	大浦泰嗣	46
----------------------------	------	----

施設便り

日本原子力研究開発機構原子力科学研究所	48
東京大学共同利用管理本部	49
京都大学原子炉実験所	49
東北大学原子核理学研究施設	49

事務局より

2009年度第1回放射化分析研究会拡大幹事会議事録	51
第53回放射化学討論会 放射化分析分科会報告	52

カレンダー	54
-------	----

編集後記

広告

特集

多重ガンマ線測定を用いた放射化分析

はじめに

首都大学東京大学院理工学研究科 大浦泰嗣

Ge 半導体検出器の出現により、放射化分析は非破壊多元素同時分析の地位が確立した。その後、Ge 検出器とシンチレータを組み合わせたコンプトン散乱計数の低減や、2 台の Ge 検出器を用いた同時計数によって、検出限界の向上が図られた。同時計数による計数効率の低下の欠点を改善したのが、多数の Ge 検出器で 4π 立体角を覆う検出器システムで、核物理の研究で利用されてきた。現在、この一つである日本原子力研究開発機構のタンデム加速器施設に設置されている多重ガンマ線検出装置 GEMINI-II が、中性子放射化分析の測定器として使用されている。この方法は、微弱なガンマ線を多数のガンマ線の中から検出することができるため、極低濃度の元素定量に威力を発揮している。この利点を即発ガンマ線分析にも応用するべく、最近、JRR-3 の冷中性子ビームラインにも多重ガンマ線測定装置 STELLA が完成した。また、J-PARK の加速器中性子源のビームラインにも多重ガンマ線測定装置 NNRI が設置された。これらは、近いうちに一般共用利用が開始される予定となっている。そこで、多重ガンマ線測定装置を利用する、あるいは利用を検討するための参考になるように、本特集を企画した次第である。

本特集は下記の論文からなります。

- | | |
|---|------------|
| 1. 多重ガンマ線検出による中性子放射化分析 | 大島真澄 他 |
| 2. J-PARC 1MW パルス核破碎中性子源 | 前川藤夫 |
| 3. 多重ガンマ線放射化分析法を用いた地球科学試料の分析研究 | 初川雄一 他 |
| 4. NAAMGによるたたら製鉄試料の分析 | 鈴木章悟 |
| 5. MPGA法の肥料及び植物分析への適用可能性の検討 | 木方展治 |
| 6. 多重即発ガンマ線分析法を用いた底質標準試料および干潟底質試料中のカドミウムの分析 | 松尾基之、小豆川勝見 |
| 7. 多重即発ガンマ線分析法の宇宙地球化学的試料への適用 | 渡部良 他 |

1 は、多重ガンマ線放射化分析を開発したグループによる多重ガンマ線測定の原理や利点、多重ガンマ線測定装置の解説です。2 は、J-PARC での加速器中性子源の紹介で、放射化分析ではなじみが薄いパルス中性子源とこれから得られる中性子の特性が詳しく解説されています。3 と 4 は、多

重ガンマ線放射化分析を利用した研究例で、3 は地球化学的試料中のイリジウム分析、4 では考古学金属試料への適用されています。5,6,ならびに7 は、多重即発ガンマ線分析を利用した研究例です。MPGA は装置が完成してまもないため、本格的な利用を目指した、肥料と植物(5)、環境試料(6)、宇宙地球化学的試料(7)への適用の検討状況を紹介していただきました。

なお、論文4~7 は、連携重点研究による JAEA グループとの共同研究の成果であることを申し添えます。

多重ガンマ線検出による中性子放射化分析

日本原子力研究開発機構

大島真澄、村上幸弘、藤暢輔、初川雄一、金政浩、木村敦、小泉光生

Prompt Gamma-ray Analysis with High Resolution Ge Detectors

M. Oshima^{a*}, Y. Murakami^a, Y. Toh^a, Y. Hatsukwa^a, T. Kin^a, A. Kimura^a, M. Koizumi^a

^aNuclear Science and Engineering Directorate, Japan Atomic Energy Agency

*e-mail: oshima.masumi@jaea.go.jp

ABSTRACT

The multiple gamma-ray coincidence method has been proved to be a high-resolution and high sensitivity method in application to nuclide quantification. This method has been successfully applied to neutron activation analysis. To extend this method to neutron prompt gamma-ray analysis (MPGA) a gamma-ray detector array has been constructed at JRR-3 neutron guide hall. The expected performance for MPGA as well as for neutron activation analysis is presented.

1. まえがき

中性子放射化分析は原子炉・加速器等で生成した中性子を試料に照射し、中性子捕獲反応で生成された不安定原子核から放出されるガンマ線を用いて核種の定性・定量分析をする分析法であり、宇宙地球科学、考古学など学術分野から、環境、医療、食品安全性など広い分野で用いられている。その特徴は、中性子およびガンマ線の透過性が高いので表面状態に依らない、完全非破壊で迅速、高精度、かつ多元素を同時に定量出来る点にある。しかし、中性子放射化分析では一般に多数のガンマ線が放出されるために、ガンマ線スペクトルが複雑になり、特定の弱いガンマ線の定量が困難になり、定量感度に限界がある。このことが分析法の広範囲の分野への適用を妨げていた。我々はこれまでに、多くの放射性核種が複数のガンマ線を同時発生することに着目し、これらのガンマ線を同時測定して得られる2次元マトリクスを解析して核種定量する多重ガンマ線検出法を開発し、分解能と感度をそれぞれ600倍改善することを可能にした。¹⁾⁻¹⁰⁾これを壊変ガンマ線を利用する機器中性子放射化分析に適用して、pptまでの高感度、49種までの多元素同時定量を実証することが出来た。即発ガンマ線分析法は原子炉・加速器等で生成した中性子をビームとして原子炉外部に取り出し、試料に照射する。この際に核反応と同時に発生する即発ガンマ線を用いて核種の定性・定量分析をする分析法であり、これに多重ガンマ線検出法を適用することにより(多重即発ガンマ線分析)、迅速、非破壊、多元素同時分析を可能にし、広い分野への応用が期待される。¹⁰⁾⁻¹⁴⁾以下ではまず高感度ガンマ線検出を可能とするゲルマニウム検出器について紹介した後、多重ガンマ線検出法の原理から中性子放射化分析法、多重即発ガンマ線分析法の特徴を紹介する。

2. ゲルマニウム検出器の特性

最近開発され注目されている LaBr₃ シンチレーターや CdTe, CdZnTe 等の室温半導体と比較してもゲルマニウム半導体検出器(以下 Ge 検出器と略す。)は10倍以上という圧倒的に優れ

た分解能を有する（小型で最高 830 だが、大型のもので実効的には約 600）。この理由でガンマ線検出器のうちでも特別の地位を占めている。

しかしながら、Ge 検出器は検出効率が低い、エネルギースペクトル中にバックグラウンドが多く、S/N 比が悪いといった欠点もある。これらは Ge 結晶中におけるコンプトン散乱事象に起因する。コンプトン散乱により、入射エネルギーの一部が外部に逃げるために、連続的なバックグラウンドが形成される。これを低減するために、様々な工夫がなされてきた。ひとつは検出器の大型化である。コンプトン散乱した光子は、結晶サイズが充分大きければ、結晶内で再度吸収され、全吸収ピークを形成するため、結果的に検出効率、S/N 比ともに向上する。よって、出来るだけ大きい結晶が望まれ、ほぼ 80mmφ x 90 mm のサイズのものまで市販されるようになったが（これは 3 inchφ x 3 inch の NaI シンチレータに対する相対検出効率がほぼ 100%に相当する。）、これが現状での技術的限界である。しかし、最近結晶を組み合わせることで、高効率検出器を実現する技術が発達した。CANBERRA-EURYSIS 社は図 1 に示すような 50 mmφ x 80 mm の 4 結晶を密に組み合わせたクローバ型検出器や、70 mmφ x 80 mm の 7 結晶を組み合わせた大型のクラスタ検出器も開発されている。前者は前記相対検出効率で 125%、後者は 460%に相当する。

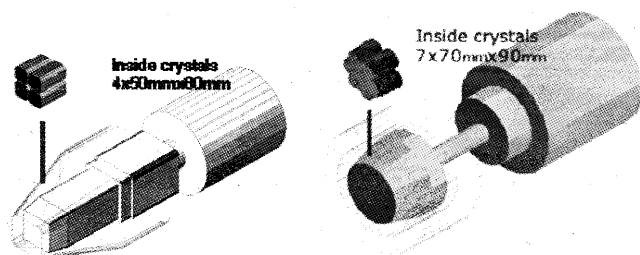


Fig. 1 Large composite detectors of EURYSIS clover and cluster detectors.

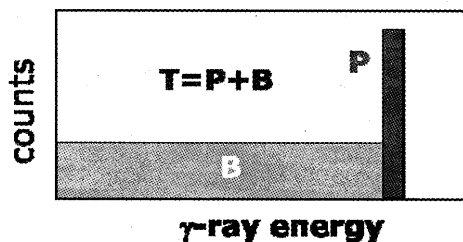


Fig. 2 Peak counts and background counts in gamma-ray spectrum

次に S/N 比について比較する。図 2 のように、ガンマ線エネルギースペクトル中のピークカウント (P) とバックグラウンドカウント (B) を取り、ピーク・トータル比 $P/T = P/(P+B)$ を定義すると、通常の 30%同軸型、125%クローバ型、460%クラスタ型検出器の P/T 比は典型的に各々 0.2, 0.3, 0.5 であり、大型化による S/N 比改善は明白である。

大型化の欠点は高価格にある。より低コストで S/N 比を向上させる方法としてコンプトンサプレッサーを用いる方法がある。図 3 にその原理を示す。Ge 検出器に入射し、散乱された光子を周りを取り囲むシンチレータ (NaI 及び BGO) で検出する。Ge 検出器とシンチレータからの信号は同時に発生するため、そのような事象を回路的に排除してやれば、コンプトン散乱事象に基づくバックグラウンドを除くことが出来る (コンプトンサプレッション)。得られる典型的なスペクトルを図 4 に示す。シングルモードとコンプトンサプレッションモードのスペクトルの比較から、1/3 - 1/10 のバックグラウンドの低減が可能である。

以上が Ge 検出器に関して一般に用いられる S/N 比改善法である。これに対して別の解析的

アプローチ、つまりガンマ線が同時に複数発生する場合に同時計数測定することによって、S/N 比とエネルギー分解能を同時に実効的に向上させる「多重ガンマ線検出法」について次項で紹介する。

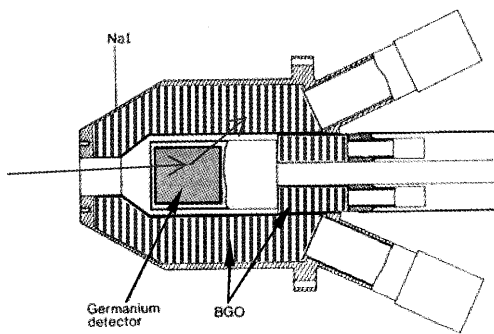


Fig. 3 Compton suppression method

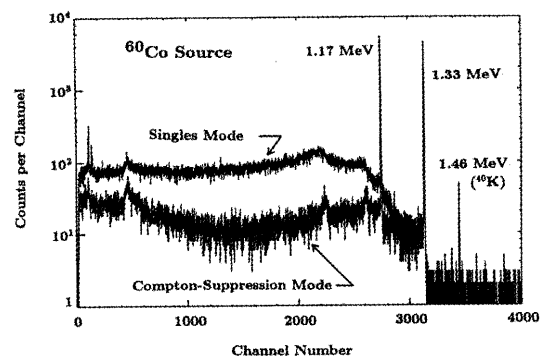


Fig. 4 Singles (upper) and Compton suppression (lower) spectrum

3. 多重ガンマ線検出の原理

以下ではまず放射性核種分析のための多重ガンマ線検出法¹⁰⁾の原理を放射性核種の例により紹介する(図5参照)。放射性核種から放出される壊変ガンマ線を、1台のガンマ線検出器により測定すると、1次元のエネルギースペクトルが得られ、その分解能は前述のように約1,000である。放射性核種は平均して10本オーダーの壊変ガンマ線を放出するので、少ない核種を含む試料では問題ないが、数十核種を含む試料ではガンマ線の本数は数百本に達し、これらをすべて分離することは不可能になる。特に、弱いガンマ線は他の強いガンマ線に邪魔されて観測することは困難である。

多くの放射性核種は崩壊すると、複数のガンマ線を連続的に放出しつつ、複数の励起状態を経て、基底状態に移行することが知られている。経由する励起状態の核寿命は、一般にガンマ線検出器の時間分解能(10-100ナノ秒)より充分小さいので、これらのガンマ線は同時に発生するように見える。この同時発生ガンマ線を我々は多重ガンマ線と呼ぶことにする。ここで我々は、複数のガンマ線検出器により多重ガンマ線を同時に測定して得られるガンマ線の相関を取り、その相関データからガンマ線エネルギーを2軸とする2次元マトリクス上に頻度分布を作り、その中の2次元ピークを解析する。

上で述べたように、1次元スペクトルの場合には分解能は約600であるが(最高830であるが、ここでは大型検出器の実効的分解能を採る。)、これは横軸を600点に分割したときに、各々が分離できることに相当する。2次元マトリクスでは、横軸・縦軸方向に各々600点あるので、 $600 \times 600 = 360,000$ 個の独立な点があることになる。よって、分解能は360,000であることが分かる。360,000という分解能では自然界にこれまで存在が確認されている2700以上の全ての核種が同時に存在し、各々が10本程度のガンマ線を放出した場合でも、ガンマ線の総数は1万本のオーダーになり、これらを分離することが十分に可能である。

多重ガンマ線検出法のもう一つの重要な特徴はバックグラウンドの低減にある。図6に見

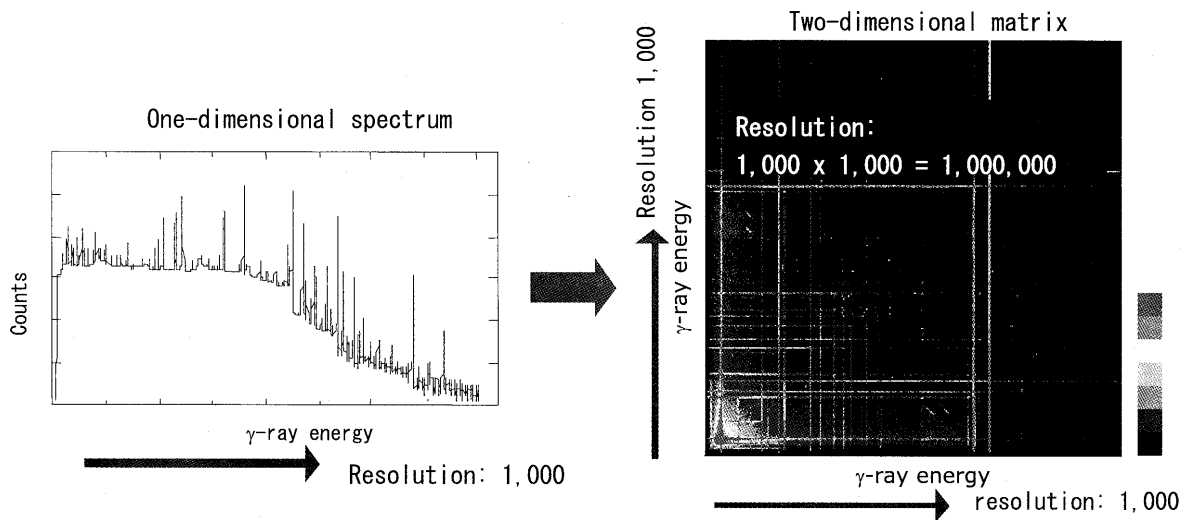


Fig. 5. Improvement of energy resolution from one-dimensional spectrum to two-dimensional matrix.

られるように、1次元スペクトル上のピークは2次元マトリクス上でも1点または数点に集まるが、バックグラウンドは2次元ピークから軸に平行な線上に分布するか、あとはマトリクス上で均等に分布する。平均的には、バックグラウンドは分解能と同じく、スペースの広さの分引き延ばされ、約1/600になる。これにより、微弱なピークの検出が可能になり、約600倍感度が改善される。

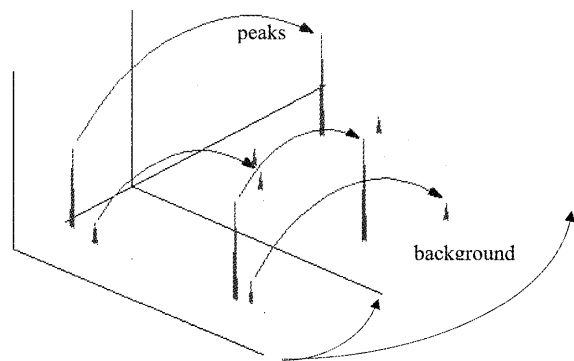


Fig. 6. Improvement of detection sensitivity from 1-D spectrum to 2-D matrix. Peaks in a 1-D spectrum change into peaks in 2-D matrix, while background in the spectrum spread over the matrix.

このことを以下に定量的に説明する。図7は3つの異なるカスケードがある典型的な例を示す。左2つはガンマ線多重度が2，右は1のカスケードである。 I_P と I_B それぞれ特定のピークとバックグラウンドピークの強度を、また β_P と β_B は下の転移の分岐比を表す。図8に示すように、一方の検出器にガンマ線が入射したという条件下での他方の検出器で得られるスペクトル (Total Projected Spectrum, TPS) においては多重度1の事象は除かれるため、その分S/N比は向上する。ここで注意すべきは、TPSにおけるピーク強度は $\omega (= \epsilon\beta)$ の分だけ減ることである。また、目的ピーク下のコンプトンバックグラウンドカウントはP/T比を用いて、次のように評価できる。つまり、分解能が600であり、十分なチャンネル数があるとすると、図2に仮定したようにバックグラウンドカウントは平均1/600に分散され、

$$\alpha = (1 - P/T) / (P/T) / 600 . \quad (1)$$

と定義すると、ピークの下バックグラウンドカウントは αI_B となる。

よって、TPSにおけるS/N比は以下になる。

$$[S/N]_{TD} = I_P / \alpha I_B \quad (2)$$

次に、図9で2次元マトリクスの場合での目的ピークカウントはTPSでのピークカウントにP/T比をかけて求められる。

$$[I_P]_{2D} = (P/T) \omega_P I_P \quad (3)$$

同様に、バックグラウンドピークに対して、P/T比をかけて、2次元マトリクス上のバック

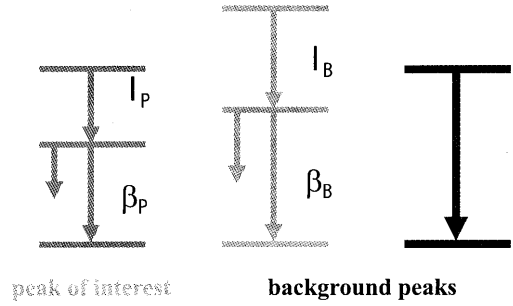


Fig. 7 Assumed cascades.

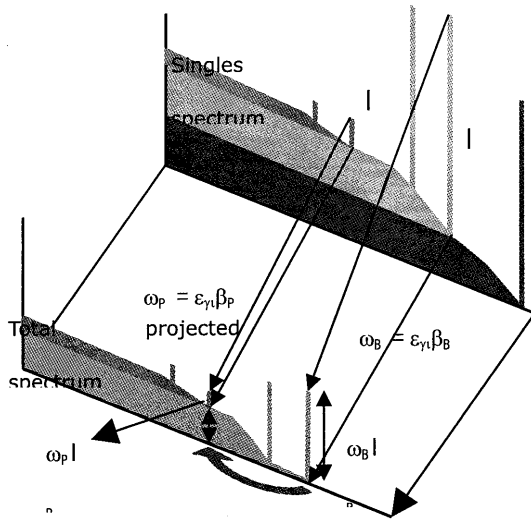


Fig. 8 Improvement of energy resolution.

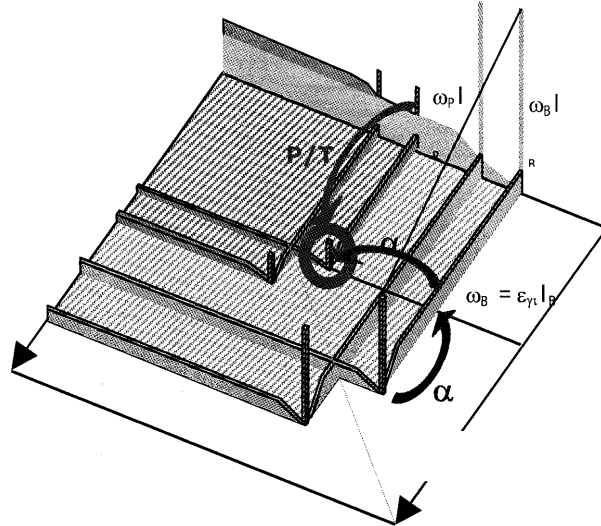


Fig. 9 Improvement of nuclide sensitivity.

の下のバックグラウンドカウントが評価できる。

$$[I_{BG}]_{2D} = (P/T) \alpha^2 \omega_B I_B \quad (4)$$

最終的に、2次元マトリクス上の目的ピーク位置でのS/N比は以下のように求められる。

$$\begin{aligned} [S/N]_{2D} &= [I_P]_{2D} / [I_{BG}]_{2D} \\ &= \omega_P I_P / \alpha^2 \omega_B I_B \\ &= 1/\alpha \omega_P / \omega_B [S/N]_{1D} \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、 ω_P/ω_B の比によりS/N比の改善度は大きく影響を受ける。仮に同時計数条件 ω_P, ω_B が等しい場合では、改善度は $1/\alpha$ となり、P/T比は通常0.2-0.5程度であるから、2次元のS/N比は1次元に比べて150-600倍改善されることが分かる。以上が2次元法におけるS/N比の改善の根拠であり、現実に多くの場合に当てはまる。

以上のS/N比改善は同時計数測定により、必然的に統計が減少する。時として、S/N比改善にも関わらず、統計誤差の悪化により、定量精度が悪くなることもあり得る。よって、次に実際の定量精度の改善度をFigure-Of-Merit (FOM)として以下に評価する。

$$\begin{aligned} \text{Figure-of-merit} &= [I_P]_{2D} / \{[I_P]_{2D} + 2 [I_{BG}]_{2D}\}^{1/2} / ([I_P]_{1D} / \{[I_P]_{1D} + 2 [I_{BG}]_{1D}\}^{1/2}) \\ &= [I_P]_{2D} / [I_P]_{1D} \{([I_P]_{1D} + 2 [I_{BG}]_{1D}) / ([I_P]_{2D} + 2 [I_{BG}]_{2D})\}^{1/2} \end{aligned} \quad (6)$$

もし1次元スペクトルにおいて、ピークカウントがバックグラウンドより大きい場合、2

次元マトリクスも当然ピークカウントは大きくなり、FOMは

$$\text{FOM} = [\text{I}_P]_{2D} / [\text{I}_P]_{1D} ([\text{I}_P]_{1D} / [\text{I}_P]_{2D})^{1/2} = \omega^{1/2} < 1 \quad (7)$$

となる。この場合、明らかに2次元の定量精度は1次元に比べ劣り、S/N比が向上したとしても2次元法のメリットはない。

反対に1次元スペクトルではピークは弱くて、バックグラウンドに隠れて視認できないが、2次元法でピークが観測された場合には、

$$\text{FOM} = \omega \{ [\text{I}_{BG}]_{1D} / (\omega [\text{I}_P]_{1D} / 600) \}^{1/2} = \{ 600 \omega [\text{I}_{BG}]_{1D} / [\text{I}_P]_{1D} \}^{1/2} \quad (8)$$

となる。よって、 ω が1/600を越す(検出効率およびガンマ線分岐比が十分大きい)場合には定量精度は優位に改善することが分かる。

多重ガンマ線検出法ではこれまで2次元マトリクスを扱ってきたが、ガンマ線の多重度が3以上の事象に対しては、さらに3次元キューブを作成することが可能である。3次元キューブでは2次元マトリクスに比して、さらに600倍のバックグラウンド低減が可能であるが、同時に検出効率の分だけ統計を損する。よって、高検出効率の装置において、その威力を発揮する。

4. 多重ガンマ線放射化分析および多重即発ガンマ線分析

4.1 多重ガンマ線放射化分析

機器中性子放射化分析(INAA)では中性子捕獲した原子核が、即発ガンマ線を放出したあとも放射性核種として残り、時間をおいて放出する壊変ガンマ線を定量する。これに多重ガンマ線検出法を組み合わせた方法を多重ガンマ線放射化分析(NAAMG)と呼ぶ。¹⁻¹⁰ 多重ガンマ線検出の場合にはゲルマニウム検出器自体の計数率の制限はあるものの、妨害元素によるバックグラウンドの影響は充分小さい。NAAMGではタンデム加速器施設に設置されている多重ガンマ線検出装置GEMINI-II(ref. 10)を使用してきた(図10参照)。GEMINI-IIは17台のBGOサプレッサー付きGe検出器と3台の低エネルギーGe検出器からなる。NAAMGの特徴を以下にまとめる。

- ・数時間オーダーの迅速
- ・最高 ppt (10^{-12}) オーダーの高感度
- ・%オーダーの高精度
- ・70元素の多元素同時定量
- ・化学処理不要で完全非破壊
- ・中性子ガンマ線の物質透過能が高くバルク分析

4.2 多重即発ガンマ線分析

中性子ビームを試料に照射すると、中性子が一定の確率で試料中の原子核に捕獲され(中性子捕獲反応)、複合核が生成される。複合核の高励起状態から放出される即発ガンマ線を測定し、その強度から元素定量する方法を即発ガンマ線分析と呼ぶ。中性子捕獲反応の場合、同時に複数のガンマ線が発生する確率が高く、多重ガンマ線検出法と組み合わせた元素定性・定量法を多重即発ガンマ線分析と呼ぶ。

JRR-3 ガイドホール c2-3-2 ビームラインに建設中の多重即発ガンマ線分析装置 STELLA を

設置した。¹⁰⁾⁻¹⁸⁾ 中性子強度は 1.4×10^7 n/cm²/sec、ビームサイズは 2 cm x 3 cm である。C2-3-2 のビームラインは上流より、ビームシャッタ、ビーム減衰器、多重ガンマ線検出装置、サンプルチェンジャ、ビームストップよりなる。

多重ガンマ線検出装置は、従来の即発ガンマ線検出装置に比べると試料との距離が小さく、試料によってはビーム強度を調整する必要がある。そのためにビームシャッタの下流位置に厚さの異なるビーム減衰用アクリル板を設置可能である。多重ガンマ線検出装置 STELLA は図 11 に示すように、クローバーアンチコンプトンガンマ線分析器 8 台と同軸型 Ge 検出器 4 台、BGO サプレッサからなる。1 本の 1MeV ガンマ線に対する絶対検出効率は 12.7% である。サンプルチェンジャは最大 180 個の試料を並べておき、データ収集と連動して、試料を交換するシステムであり、10 分程度の完全自動分析を可能にするものである。多重即発ガンマ線分析 (MPGA) の特徴を以下にまとめる。¹⁰⁾

- ・ 30 分オーダーの迅速
- ・ サブ ppm (10^{-6}) オーダーの高感度
- ・ 化学処理不要で完全非破壊
- ・ 中性子ガンマ線の物質透過能が高くバルク分析
- ・ %オーダーの高精度
- ・ 70 元素の多元素同時定量

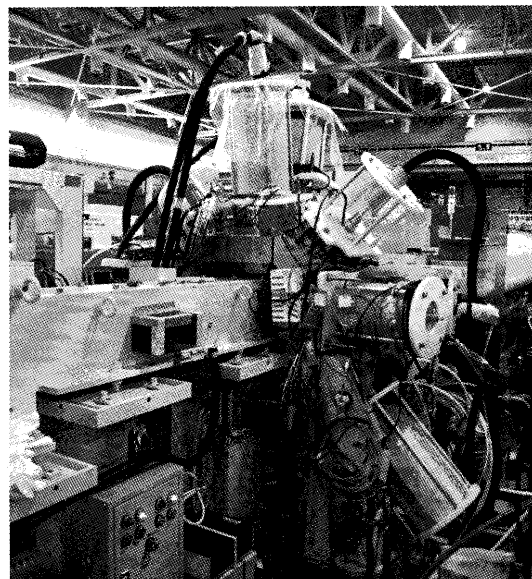
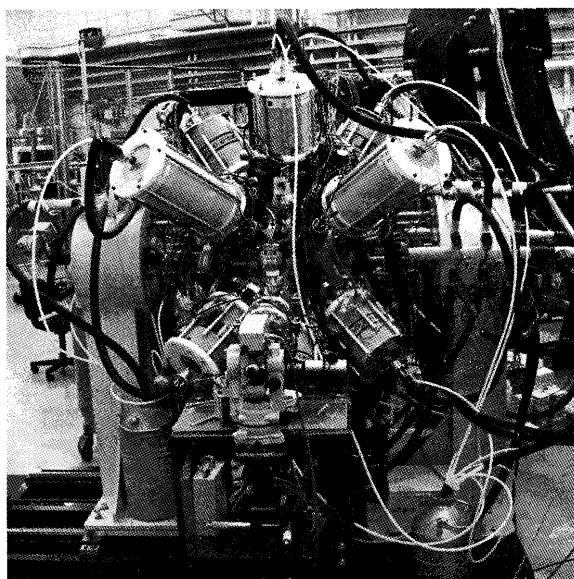


Fig.10. A gamma-ray detector array, GEMINI-II at JAEA tandem facility.

Fig.11. A gamma-ray detector array, STELLA, at JRR-3 facility.

5 利用の現状

新分析法の多分野への適用性を調べるために、東京大学原子力専攻・東レリサーチセンター・原子力機構を代表機関として、大学、国公立研究機関、企業から約 10 の機関と 30 人の研究者が参加する連携重点研究「多重 γ 線検出と即発 γ 線分析によるリアルタイム非破壊微量元素分析法の開発と実試料への応用」(代表：首都大海老原、原子力機構大島)を平成 15 年度より実施している。主な研究課題は a. 宇宙化学的および考古科学的試料分析への適用性

の検討, b. 環境試料分析への適応性の検討, c. 地球科学的試料分析への適応性の検討, d. 金属材料物質等への適用性の検討, e. 農産物等への適用性の検討, f. 多重即発 γ 線分析法の開発である。平成 21 年度より標準物質への適用性の検討課題を含めて更新される(代表: 首都大海老原、原子力機構藤)。また, MPGA 法の実用化を目指して, (独) 科学技術振興機構公募地域イノベーション創出総合支援事業育成研究「多重 γ 線による迅速・非破壊・高感度微量元素分析法の開発」(代表: 大島)を平成 19 年度より 3 年間で実施している。分析装置及びオンライン定量ソフトの開発とバリデーションが主目的である。これにより, NAAMG, MPGA 両分析法において, オンライン迅速・高精度定量を可能にする。以下にこれまでの主な適用例を紹介する。

5・1 地質試料中 Ir の高感度分析

地質年代においてこれまで 6 度の大量種絶滅が起きているが, その原因が特定されているケースは少ない。絶滅原因の一つに挙げられるのは隕石の衝突である。ほとんどの隕石は地表に比べて Ir 含有量が多いため, 隕石衝突層には Ir 濃集が期待される。しかし, 火山活動等によっても Ir 濃集が起きることが報告されており, これと区別するために多元素の分析が有効である。NAAMG 法を中国南部で採取した古生代デボン紀後期(3 億 6 千万年前)のフランヌ期—ファメンヌ期(F/F)境界試料へ適用した結果, Ir を含む 15 種類の元素の同時定量に成功した。多元素のパターンから隕石による濃集ではなく, 堆積による濃集が高いことが明らかになった。^{19)~24)} また, 38 億年前で地球上最古のグリーンランド イシューアの地層試料の分析を行い, 150 ppt の Ir の濃集を見出した。その解析の結果, 彗星落下による影響が大きく, 地球上の水の彗星起源説を支持する結論を得た。²⁵⁾

5・2 環境中放射性ヨウ素の高感度分析

原子力事故などによる放射能汚染で最も問題となる放射能は, 揮発性があり甲状腺に溜まりやすい性質を持つ放射性ヨウ素であるが, 汚染を引き起こす放射性ヨウ素はすぐに通常の物質に変わるため, もともと自然界に存在している物質と全く区別が出来なくなる。しかし, 半減期が極めて長くて放射能が弱い ^{129}I を測定することにより ^{131}I 等の放射性物質の放出量を推定できる。NAAMG では $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-13}$ 程度の ^{129}I の分析が可能であることが分かった。^{5), 26)} ^{129}I の分析は現在加速器質量分析法(AMS)が唯一の分析法であるが, 他の分析法との比較により分析精度の確認を行うことは重要であり, NAAMG はその手段を提供すると期待されている。

5・3 鉄鋼中ヒ素・アンチモンの分析

近年スクラップ鉄の利用が拡大しているが, 不純物元素の増大による鉄鋼材料の品質劣化が懸念されている。よって, 品質維持のために, 不純物除去技術とともにトラップ元素と呼ばれる極微量不純物を分析・定量する技術開発が望まれている。一般的な分析法である原子

吸光法，ICP 発光分析法，ICP 質量分析法などで比較的難しいとされるヒ素やアンチモンの微量分析に，NAAMG を適用した結果，0.01 ppm のオーダーまで精度よく定量できることが確認された。^{27)~32)}

5・4 食品中カドミウムの迅速分析

近年環境中カドミウム濃度が上昇傾向にあり，再び健康被害が懸念されている。現在日本では食品衛生法での米のカドミウム濃度許容基準は 1ppm であるが，世界保健機関 (WHO) / 食糧農業機関 (FAO) の国際基準は，最近の健康調査から 0.4ppm に引き下げられる予定である。日本の一部の米がこの新基準に近い値を持つことが報告されている一方で，水田によるカドミウム含有量の個体差が大きいため，年間数万におよぶ検体を迅速に高感度で分析する手段が求められている。プラスチックや米の標準試料の MPGA 測定を行い，カドミウムについて 0.2ppm 以下まで定量が出来ることが分かった。この値は上記基準以下であり，スクリーニング分析に用いる事が期待される。また，本方法は農産物だけでなく工業製品のカドミウム濃度の輸出基準検査などにも応用できる^{9), 11), 17)}。

6 今後の展開

多重 γ 線検出法ではこれまで2次元マトリクスを扱ってきたが， γ 線の多重度が3以上の事象に対しては，さらに3次元キューブを作成することが可能である。3次元キューブでは2次元マトリクスに比して，さらに600倍のバックグラウンド低減が可能であるが，同時に検出効率の分だけカウントが少なくなり，統計誤差が大きくなる。よって，高検出効率の装置において，その威力を発揮する。STELLA 及びそれ以上の高効率システムを開発できれば，更なる高感度を実現することが可能であろう。また，現在の装置で1, 2, 3次元法のどの方法が適しているかは，核種の崩壊パターンを反映し，核種によって異なる。よって，上記育成研究においては1, 2, 3次元法の同時解析を可能とするオンライン・オフライン定量ソフトを整備した。

本稿で紹介した NAAMG と MPGA を可能にする分析装置は現状では各々前項で紹介した GEMINI-II と STELLA 装置のみであるが，最近利用が開始された大強度陽子加速器実験施設 (J-PARC) 物質生命科学実験施設 (MLF)³³⁾ においても同分析法を発展させることが可能となりつつある。MLF のビームライン BL04 は，科学技術振興機構公募の原子力システム研究開発事業「高強度パルス中性子源による革新炉用核データ研究」(代表：北大鬼柳、原子力機構、東工大、京大等が参加、H17-21) により建設され、GEMINI-II, STELLA と同種の多重ガンマ線検出装置 NNRI が設置されている。その整備は原子力機構が中心となって整備し、データ収集システム等の付帯装置は GEMINI-II, STELLA と共通である。NNRI での熱領域中性子強度は STELLA の熱換算強度とほぼ同じであるが、STELLA の定常中性子源に対し、NNRI は 25Hz のパルス中性子源であり、核種によって異なる中性子共鳴を利用した新たな高感度分析法の開発が期待されている。JRR-3 および J-PARC 施設は各々1年のうち数ヶ月程度の施設メンテナン

ス期間があり、運転が停止するが、将来的に両施設の補完運転が行われれば、常時どちらかの施設が利用でき、ユーザーにとって大きなメリットとなる。特に、依頼分析による産業利用には重要である。

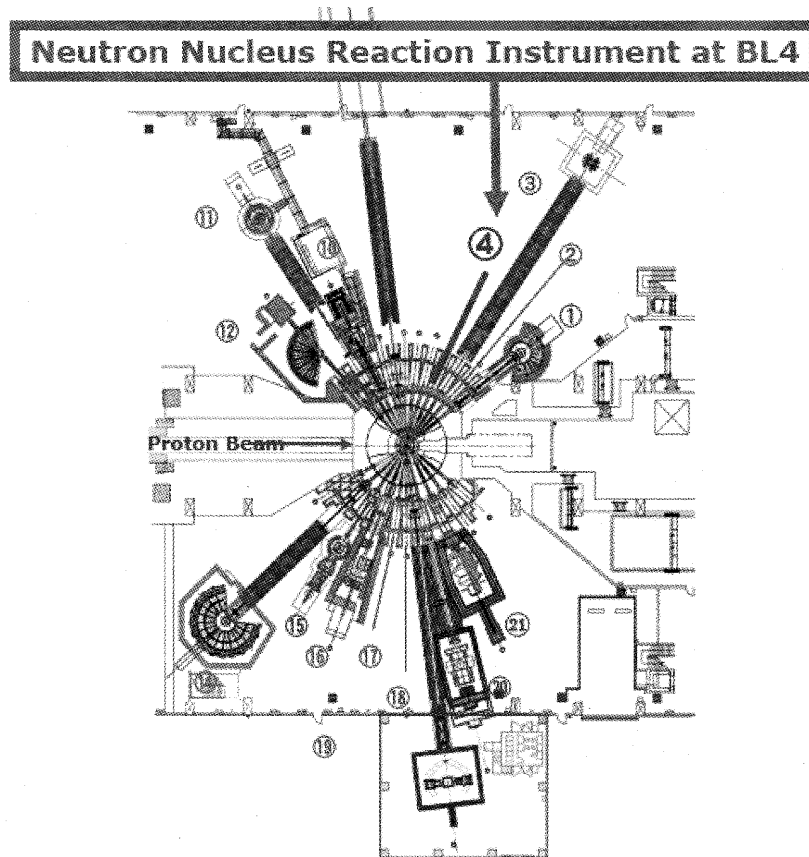


Fig.12. Layout of experimental apparatuses at Materials and Life science experimental facility (MLF) at Japan Proton Accelerator Complex (J-PARC).

本分析法、特に MPG は化学処理を必要としない非破壊分析であることを最も大きな特徴とする。前述したように MPG 装置 STELLA には自動試料交換装置が設置されている。よって、オンライン自動定量ソフトの整備により、完全自動分析が可能となる。このために、前記育成研究をベースとして、その開発を実施している。2010 年前半には実用化が期待されている。

MPG には多重 γ 線に関する基礎データ、つまり中性子捕獲原子核の高励起準位構造や反応断面積の情報が必要であるが、これらは同時に原子力基礎工学研究部門における核構造・核変換基礎研究の対象でもある。以上の施設は NAAMG、MPG 分析と同時に原子力基礎研究の拠点の役割を果たしている。

最後に、MPG ビームラインの建設にご協力いただいた連携重点研究メンバーおよび東京大学原子力総合センターの方々に、紙面を借りて感謝いたします。また、この研究の一部は JST イノベーションサテライト茨城における育成研究としておこなったものであり、ここに謝辞を呈します。

参考文献

- 1) M. Oshima, *Look Japan*, Vol. 46 (2000) 30.
- 2) 大島真澄 : *Isotope News*, June (2000) 8.
- 3) Y. Toh, M. Oshima, Y. Hatsukawa, T. Hayakawa, and N. Shinohara, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 250 (2001) 373.
- 4) Y. Hatsukawa, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. Toh, and N. Shinohara : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, (2001) 121.
- 5) Y. Toh, Y. Hatsukawa, M. Oshima, N. Shinohara, T. Hayakawa, K. Kushita and T. Ueno, *Health Phys.* 83 (2002) 110.
- 6) M. Oshima, Y. Toh, Y. Hatsukawa, T. Hayakawa, N. Shinohara, *J. Nucl. Sci. and Tech.* Vol. 39 No.4 (2002) 292.
- 7) Y. Hatsukawa, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. Toh, and N. Shinohara, *Nucl. Instrum. Meth. A* 482 (2002) 328.
- 8) M. Oshima, Y. Toh, T. Hayakawa, Y. Hatsukawa, N. Shinohara, *J. Nucl. Sci. and Tech.*, Supplement 2, No. 2 (2002) 1369.
- 9) Y. Toh, M. Oshima, Y. Hatsukawa, M. Koizumi, A. Osa, A. Kimura, J. Goto, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, Vol.4 (2003) 197.
- 10) M. Oshima, Y. Toh, Y. Hatsukawa, M. Koizumi, A. Kimura, A. Haraga, M. Ebihara and K. Sushida; *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 278 (2008) 257.
- 11) Y. Toh, M. Oshima, M. Koizumi, A. Osa, A. Kimura, Y. Hatsukawa, J. Goto, *Appl. Radiat. and Isotopes*, 64 (2006) 751.
- 12) M. Oshima, Y. Toh, A. Kimura, M. Ebihara, Y. Oura, Y. Itoh, H. Sawahata and M. Matsuo, 11th International Conference on Modern Trend in Activation Analysis (Guildford, UK, June); *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 271 (2007) 317.
- 13) 大島真澄、藤暢輔、村上幸弘 : *ぶんせき* 2009, No. 7, 362 (2009).
- 14) 大島真澄、藤暢輔、木村敦、小泉光生、金政宏 : *放射線* Vol. 34, No.4, 238 (2009).
- 15) Y. Toh, M. Koizumi, M. Oshima, A. Kimura, Y. Hatsukawa, A. Osa and J. Goto : *J. Radioanal. and Nucl. Chem.*, 272 (2007) 373.
- 16) Y. Toh, M. Oshima, M. Koizumi, A. Kimura, Y. Hatsukawa : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 276 (2008) 217.
- 17) Y. Toh, M. Oshima, K. Furutaka, A. Kimura, M. Koizumi, Y. Hatsukawa, J. Goto : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 278 (2008) 703.
- 18) Y. Toh, M. Oshima, A. Kimura, M. Koizumi, K. Furutaka, Y. Hatsukawa, J. Goto : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 278 (2008) 685.
- 19) Y. Hatsukawa, Y. Toh, M. Oshima, T. Hayakawa, N. Shinohara, K. Kushita, T. Ueno, K. Toyota : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 255 (2003) 111.
- 20) Y. Toh, M. Oshima, R. Matsumoto, M.H. Mahmudy Gharaie, Y. Hatsukawa, N. Shinohara, A. Kimura, J. Goto : *Geochim. Cosmochim. Acta*, 67, No18S (2003) A483.
- 21) M. H. Mahmudy Gharaie, R. Matsumoto, Y. Kakuwa, P.G. Milroy, Y. Toh, M. Oshima : *Geochim.*

- Cosmochim. Acta*, 67, No18S (2003) A268.
- 22) Y. Hatsukawa, M. H. Mahmudy Gharai, R. Matsumoto, Y. Toh, M. Oshima, A. Kimura, T. Noguchi, T. Goto, and Y. Kakuwa : *Geochim. Cosmochim. Acta*, 67 (2003) A138.
- 23) Y. Hatsukawa, Y. Miyamoto, Y. Toh, M. Oshima, M. Hosein Mahmudy Gharai : *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 271 (2007) 43.
- 24) Y. Hatsukawa, M. Oshima, Y. Toh, A. Kimura, M. Koizumi, K. Furutaka, M. Segawa : *Transaction*, 99 (2008) 53.
- 25) U.G. Jorgensen, P.W.U. Appel, Y. Hatsukawa, R. Frei, M. Oshima, Y. Toh, A. Kimura, *Icarus* Vol. 204 (2009) 368.
- 26) 藤暢輔, 大島真澄, 初川雄一 : *Isotope News*, 576, April (2002) 2.
- 27) 木村敦, 大島真澄 : 材料とプロセス, 16, No.3 (2003) 705.
- 28) 木村敦, 大島真澄 : 材料とプロセス, 16, No.6 (2003) 1622.
- 29) A. Kimura, Y. Toh, M. Oshima, Y. Hatsukawa, J. Goto : *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 254 (2003) 183.
- 30) 木村敦, 大島真澄 : 鉄と鋼, 90 (2003) 22.
- 31) A. Kimura, Y. Toh, M. Oshima, Y. Hatsukawa, J. Goto : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 271 (2007) 323.
- 32) A. Kimura, Y. Toh, M. Oshima and Y. Hatsukawa : *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 278 (2008) 521.
- 33) J-PARC home page: <http://j-parc.jp>

J-PARC 1MW パルス核破碎中性子源

日本原子力研究開発機構 J-PARC センター
物質・生命科学ディビジョン 中性子源セクション

前川 藤夫

maekawa.fujio@jaea.go.jp

1. はじめに

J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex, 図 1) [1] は、原子力研究開発機構 (JAEA) と高エネルギー加速器研究機構 (KEK) が共同で建設・運営している、世界最高レベルの陽子ビーム強度を有する加速器施設と実験施設群の総称である。陽子ビームをリニアックで 400 MeV まで加速、これを 3 GeV シンクロトロンで加速、さらに 50 GeV シンクロトロンで加速し、出力は最大で 1 MW となる。加速された陽子ビームを様々な標的原子核に衝突させ、その結果生成する中性子、中間子、ニュートリノ等の様々な 2 次粒子を利用し、原子核や素粒子等の基礎物理研究から、中性子や中間子を用いた物質科学や生命科学の研究、さらには産業利用研究や原子力研究まで、広範囲な研究が行われる。そのための実験施設として、中性子源とミュオン源を有する物質・生命科学実験施設、 $K \cdot \pi$ 中間子や反陽子等を用いた研究を行なう原子核素粒子実験施設、スーパーカミオカンデにニュートリノビームを打ち込むニュートリノ実験施設、そして長寿命放射性廃棄物減量のための加速器駆動核変換研究を行う核変換実験施設の 4 つがある。J-PARC 施設は平成 13 年に建設を開始、平成 20 年 5 月に初の実験施設として、物質・生命科学実験施設が運転を開始した。また、平成 21 年 1 月と 4 月には、原子核素粒子実験施設とニュートリノ実験施設がそれぞれ運転を開始し、第 1 期として建設された 3 実験施設が、当初のスケジュールどおりにすべて稼働した。なお、核変換実験施設は第 2 期施設として、今後建設予定である。

さて、本紙の読者にとって関心のある中性子源は、ミュオン源とともに物質・生命科学実験施設 (Materials and Life Science Experimental Facility, MLF) に設置されている。J-PARC は茨城県東海村の原子力機構の敷地内にあるため、原子炉中性子源 JRR-3 とあわせて性格の異なる 2 つの大強度中性子源が近接した立地関係にあり、両施設を利用した有機的な研究が期待できる。本稿では、J-PARC の 1 MW パルス核破碎中性子源の概要と中性子ビームの性能について解説し、今後、放射化分析関係者に J-PARC を利用していただくための一助としたい。



図1 大強度陽子加速器計画(J-PARC)全体図.

2. MLF とパルス核破碎中性子源の概要

2.1. MLF の概要

図2にMLFの1階平面図を示す。MLF建家は幅70m、長さ146m、高さ30mであり、中性子源とミュオン源、そしてこれらを利用する実験装置群が設置されている。3GeVシンクロトロンで加速された1MWの陽子ビームは、MLF建家に導入後、まずミュオンターゲットに入射する。ミュオンターゲットは厚さ20mmの黒鉛製で、核反応により生成した π 中間子が崩壊することによりミュオンが得られる。大部分の陽子ビームはミュオンターゲットを通過して中性子源へと向かう。中性子源中心には水銀ターゲットがあり、陽子ビーム入射により中性子を発生させ、これを中性子源周りに放射状に設置された23台の実験装置に供給する。MLF1階は陽子ビームラインを中心に東西に分かれており、東に第1実験ホール、西に第2実験ホールがあつて、ユーザーが利用する中性子およびミュオン実験装置が設置されている。水銀ターゲットよりもさらに下流には通称ホットセルと呼んでいる部屋があり、ここでは放射化した中性子・ミュオン源構成機器の交換と保守が遠隔操作で行われる。

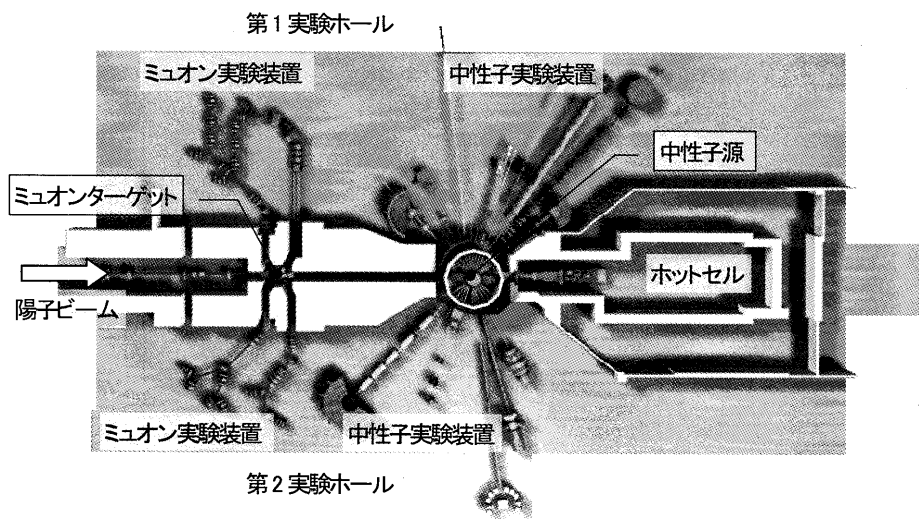


図2 物質・生命科学実験施設 1F 平面図. 実際の実験装置は遮蔽体で取り囲まれている.

2.2. 中性子源の概要

図3に中性子源の全体像を示す. 中性子源全体は, 直径10m, 高さ9mのアウターライナーと呼ばれる鉄鋼製の容器に収納されている. アウターライナーの周りは厚さ2m~2.5mの重コンクリート製生体遮蔽体で囲まれており, 全体の直径はおよそ15mである. 中性子源中心部にはヘリウムベッセルと呼ばれる格納容器が設置されており, この中に線源集合体が格納されている. 線源集合体は, 水銀ターゲット, 水素モデレータ(3台), ベリリウムおよび鉄鋼製の反射体, ステンレス鋼製の水冷遮蔽体で構成されている. アウターライナー内の空間は, ターゲットで発生する高エネルギー中性子を遮蔽するため, 鉄鋼とコンクリート製の遮蔽体で埋め尽くされている. 水銀ターゲットと水素モデレータについては, 以下の節で詳しく述べる.

水素モデレータは, 3台のうち2台が水銀ターゲットの上, 1台が下に配置されており, 23本の中性子ビームラインのうち12本が上のモデレータ, 11本が下のモデレータを見るように設置されている. つまり, 中性子ビームラインは測定障害となる高エネルギー中性子が生成する水銀ターゲットを直接見ることが無いよう, 工夫されている.

それぞれの中性子ビームラインには, 独立して駆動できる中性子ビームシャッターが備わっている. シャッターはビームライン方向に1.8mの鉄鋼と0.2mのポリエチレンでできている. ある中性子ユーザーが試料を交換する場合, そのビームラインのシャッターを閉じることにより, 試料に近づくことができる. これにより, 中性子源を駆動する陽子ビームそのものを止める必要がなく, 23台の実験装置で独立して実験が可能である.

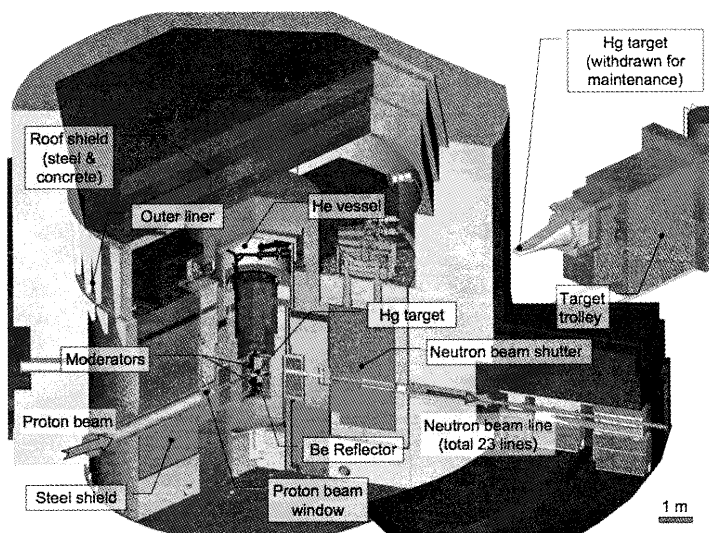


図3 中性子源全体像.

2.3. 水銀ターゲット

大きな原子番号を有する重核は, 核破碎反応による中性子生成効率が高く, 優れた核破碎ターゲット材料である. 従来の kW 級核破碎中性子源では, 水冷したタングステン等をターゲット材料として使用してきた. しかし固体ターゲットでは, MW 級ビームに伴う高密度の発熱を十分に除去できない. そこで J-PARC

では、液体である水銀をターゲット材料として選択した。図4に水銀ターゲットの詳細を示す。水銀ターゲット容器はステンレス鋼 SUS-316LN 製で、ターゲット台車の先端に取り付けられている。台車には水銀ポンプ、熱交換器、サージタンク等が搭載されている。総量 1.5m³の水銀が定格 41m³/hr.の流量でポンプによって循環され、ターゲット容器内で水銀に負荷される約0.5MWの核発熱を除去している。水銀容器は二重壁構造をもつ保護容器によってすっぽりと覆われており、水銀が漏洩しないよう配慮している。

ターゲット容器先端は MW 出力の陽子ビームが通過するため、放射線損傷により材料の劣化が引き起こされる。このため、1年に1~2回、ターゲット容器をターゲット台車から取り外し、新しい容器と交換できるようになっている。交換時には、ターゲット台車を水平に移動することにより、ターゲット容器を中性子源中心からホットセルへと引き出す。ホットセル内には専用の交換機器やマニピレータが装備されており、これらを駆使して交換作業を行なう。図3や図4ではターゲット容器が引き出された状態が示されており、運転時には中性子源中心に挿入される。

定格運転時、水銀ターゲットにはエネルギー3GeV、電流値0.3mAで、出力1MWの陽子ビームが打ち込まれる。これは、毎秒約 2×10^{15} 個の 3GeV陽子が入射することに相当する。水銀中では高エネルギー陽子が水銀の原子核を強力に叩き、多数の2次陽子や中性子を生み出す核破碎反応を起こす。核破碎反応では平均して約40MeVで1個の中性子が生成するため、3GeV陽子1個で約75個の核破碎中性子が生み出される。毎秒入射する陽子数と、陽子1個当たりの生成中性子数を乗じることにより、水銀ターゲット中では毎秒 10^{17} 個以上の中性子が生成することが分かる。J-PARCの中性子源では幅 $0.8 \mu s$ の陽子ビームが25Hzの繰り返し周波数で水銀ターゲットに入射され、その結果として中性子もパルス状に発生する。パルス中性子源であることが、常に中性子が出続ける原子炉中性子源とは異なる大きな特徴であり、実験に新たな自由度がもたらされることになる。

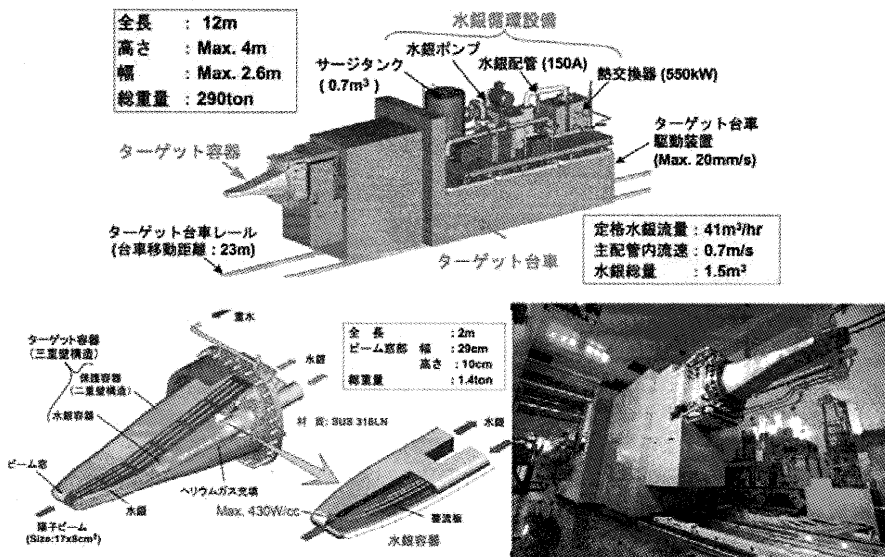
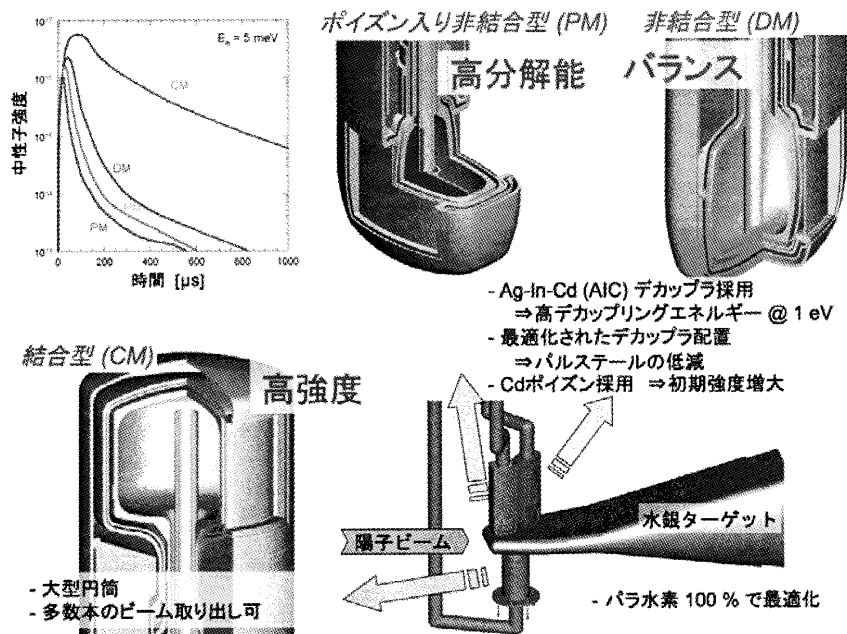


図4 水銀ターゲット.

2.4. 水素モデレータ

核破碎反応により生成したばかりの中性子のエネルギーは、数MeV付近でピークを形成し、最大エネル

ギーは 3GeV 近傍にまで達する。一方中性子散乱実験では、中性子の波長が結晶の格子間距離と同程度であることが必要で、最も多く使われる中性子のエネルギーは数 meV 周辺である。このため、中性子エネルギーを MeV から meV まで 10 桁近く落とす必要があり、この役目を担うのがモデレータ(減速材)である。J-PARC の中性子源には、図 5 に示すとおり性格の異なる 3 台のモデレータがあり、いずれも温度 20K、圧力 1.5MPa の超臨界水素を循環している。モデレータ容器はアルミ合金製で、水素容器の周りを真空断熱層、ヘリウムバリア層、そして冷却水層が取り囲む多重管構造である。それぞれのモデレータには 2 つの中性子取出し面があり、引き出された冷/熱中性子ビームが計 23 台の中性子実験装置に送り届けられる。中性子取出し面の寸法は 100×100mm であり、中性子ビームラインでも最大 100×100mm の断面を持つ中性子ビームが引き出せるよう、設計されている。



次に、3 台のモデレータの特徴を述べる。ターゲットの下には、“結合型”モデレータ (Coupled Moderator, CM) が設置されている。モデレータの周りはベリウム反射体で取り囲まれているが、熱中性子が反射体領域とモデレータ領域を自由に行き来できる、つまり結合しているため、この名が付けられている。ベリウムは中性子吸収断面積が非常に小さく、熱中性子を長時間保持でき、反射体からモデレータに長い時間にわたって中性子を供給することができ、その結果として高い中性子強度を得ることができる。図 5 左上に 5meV 中性子のパルス形状が示されているが、CM のパルス中性子強度は最も高い。一方でパルス幅(パルスの時間的広がり)は広く、CM は強度最優先の実験装置に適したモデレータである。J-PARC の第 4 ビームライン (BL04) に設置された中性子核反応実験装置は、この CM を見込む実験装置の 1 つである。

中性子実験装置によっては、飛行時間 (TOF) 法によるエネルギー分析を行う上で、狭いパルス幅が必要なものもある。そのためのモデレータが、ターゲット上部に設置された 2 台の“非結合型”モデレータである。CM のパルス幅が広い原因は周囲のベリウム反射体から長時間にわたってモデレータに熱中性子が供

給されることであるため、2 台の非結合型モデレータでは共に、モデレータの周囲を中性子吸収材(デカップラ)で覆って非結合の状態とし、反射体からモデレータへの熱中性子の流入を阻止している。さらにパルス幅を狭くする工夫として、モデレータ中心に中性子吸収材であるカドミウム板を入れる。これにより、試料位置からモデレータを見たときの水素領域の厚さが薄くなり、パルス幅がさらに狭くなる。モデレータ中心に敢えて中性子吸収材を持ち込むため、このカドミウム板のことをポイズンと呼んでいる。ポイズン無し of モデレータを非結合型モデレータ (Decoupled Moderator, DM), ポイズン有りのモデレータをポイズン入り非結合型モデレータ (Poisoned decoupled Moderator, PM) と呼んでいる。ポイズン板は PM の中心ではなく少し偏芯して挿入されているため、2 つの中性子取出し面でパルス幅が多少異なる。

図5左上のパルス形状が示すように、強度とパルス幅は相反する性能である。強度を取るか、鋭いパルスを取るか、J-PARC 中性子源では様々な中性子実験装置の多様な要求に応じられるよう、3 台の特徴あるモデレータを装備している。

3. 中性子性能

3.1. 基本仕様

図6に時間平均した中性子のエネルギースペクトルを、表1に代表的な中性子性能を示す。冷中性子の強度は CM, DM, PM の順に強く、1MW 運転時における値は表1にまとめられており、おおよそ 10^8 [n/s cm^2]程度である。なおこの値は、中性子ガイド管を使わないビームラインで、モデレータからの距離10m のものであるため、ガイド管を使えばより高い強度となり、またガイド管を使わないビームラインでは距離による減衰等を考慮する必要がある。中性子核反応実験装置ではガイド管を使用しておらず、距離による減衰および途中の空気層による減衰を考慮すると、モデレータから22.5mの試料位置において0.4eV以下の中性子束は約 5×10^7 [n/s cm^2]となる。中性子源出力と中性子ビーム強度はほぼ比例する。中性子源は2009年11月から定格出力の1/10の0.1MWで運転を行う予定であるが、このとき、中性子強度は表1に示された値の1/10となる。

水素モデレータの温度が約20Kであることから、熱中性子よりも冷中性子のエネルギー領域で強度が高い。20Kにおける熱平衡を仮定した場合の純粋なマックスウエル分布では、冷中性子エネルギーのピークは図6のようなレサジー表記において約3.5eVであるが、実際には少し高い10eV付近に強度のピークがある。これは、水素分子はスピン状態によってオルソ水素とパラ水素に分けられ、その割合が常温では75%/25%であるが、極低温ではほぼ0%/100%となり、極低温におけるパラ水素の特徴的な中性子散乱断面積の影響を受けた結果である。熱中性子よりもエネルギーの低い冷中性子であることは、 $1/v$ 断面積においてより大きな断面積が期待でき、微量分析を行う上で有利である。冷中性子強度は3台のモデレータで大きく異なる一方で、10eV以上の熱外中性子ではその差がほとんど見られなくなる。中性子エネルギーの上限は、数100MeVにまで達している。

図7は、モデレータ表面におけるパルス中性子性能をまとめたものである。図左の時間積分強度は、図6と同じデータの表現を変えただけで、同一のものである。図中央はパルスピーク強度、図右はパルス幅を半値幅で表現したもので、CM, DM, PMの順に強度は弱く、パルスは鋭くなっていく様子が分かる。

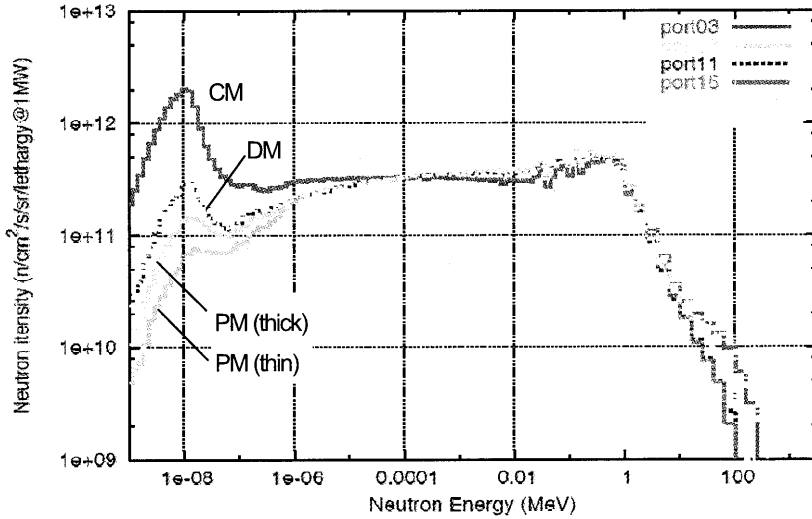


図6 モデレータ表面における時間平均した中性子のエネルギースペクトル.

表1 1MW 定格運転時における代表的な中性子性能.

モデレータ	ビームライン数	時間平均中性子束 (<0.4eV) [n/s cm²] #	ピーク中性子束@10meV [n/s cm² eV] #	パルス幅@10meV [μs]
結合型	11	4.6×10^8	6.0×10^{12}	92
非結合型	6	0.95×10^8	3.0×10^{12}	33
ポイズン型 (厚い側)	3	0.65×10^8	2.4×10^{12}	22
ポイズン型 (薄い側)	3	0.38×10^8	1.4×10^{12}	14

中性子ガイド管を使わないビームラインで、モデレータからの距離10mでの値.

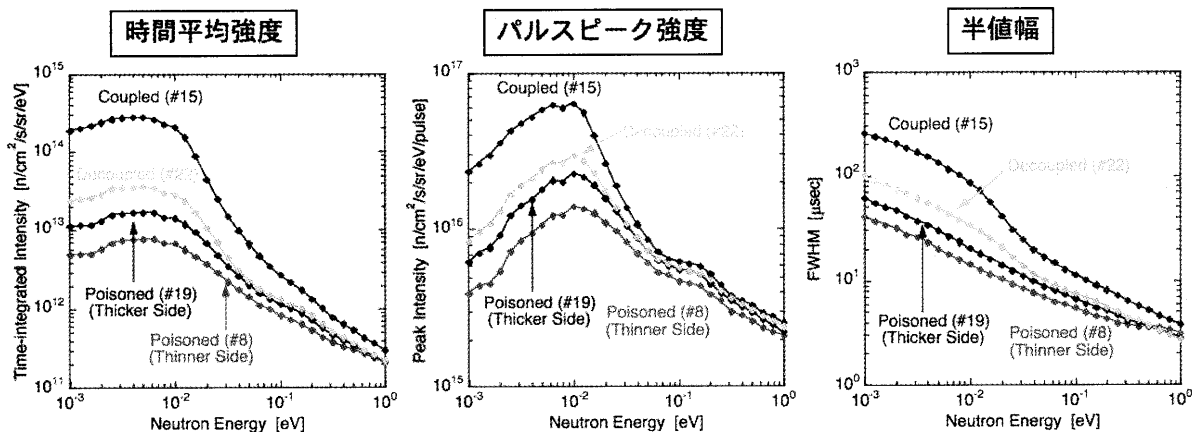


図7 モデレータ表面におけるパルス中性子性能.

水銀ターゲットに打ち込まれる陽子ビームのパルス幅は、約 $0.8 \mu s$ である。図7左の中性子パルスの半

値幅は、この陽子ビームパルス幅よりも広く、これは中性子パルス幅が陽子ビームパルス幅ではなく冷/熱中性子までの減速に要する時間で決まっていることを意味する。中性子エネルギーが 1eV よりも高くなると、次第に中性子の減速に要する時間が 0.8 μ s に近づき、中性子パルス幅はそれ以上狭くはならない。J-PARC の陽子ビームパルスを詳細に見ると、約 0.2 μ s 幅の 2 つのバンチが約 0.4 μ s 離れて 1 つのパルスを形成している。中性子エネルギーが数 10eV 以上になると、この 2 バンチ構造が見え出し、実験データの解析が難しくなる。

さて、J-PARC 中性子源の大きな特徴は、中性子がパルス状に発生することである。時刻 0 にパルス状に中性子が発生したとき、モデレータからの距離 L [m] の位置において、エネルギー E [eV] の中性子が飛来するまでの時間 (TOF) t [μ s] は以下の式で与えられる。

$$t = 72.3 \times L / E^{1/2} \quad (1)$$

これを実際に中性子核反応実験装置 (BL04) の試料位置である L=22.5m に当てはめてみると、時刻 0.051ms, 0.16ms, 0.51ms, 1.6ms, 5.1ms, 16ms 後に、それぞれ 1keV, 100eV, 10eV, 1eV, 100meV, 10meV の中性子が試料位置に到達する。39.5ms 後には 1.7meV の中性子が到達するが、パルスの繰り返しが 25Hz, つまり 40ms 毎に 1 発であるため、その直後には次の陽子ビームパルスによる高速中性子が到達する。TOF によって中性子エネルギーの区別が行えることは、パルス中性子源の大きな利点である。即発 γ 線分析では、パルス発生後のどの時刻に γ 線が発生したかを分析することにより、どの中性子エネルギーでその γ 線が発生したかを知ることができ、核種同定の大きな武器になると同時に、適切な時間ゲートの設定によりバックグラウンドの大幅な低減が期待できる。

最後に、ターゲット付近で発生する γ 線について述べる。陽子ビームがターゲットに入射した瞬間、核破砕反応に伴い非常に強い γ 線が発生し、ガンマフラッシュとして試料位置まで到達する。このため、試料周りに設置した γ 線検出器が飽和して一時的に動作しなくなるという問題を引き起こす可能性がある。その後、モデレータ内に水素が存在する間、水素による中性子の捕獲反応により γ 線が発生し続ける。しかし、こうした γ 線は陽子ビーム入射後 1~2ms 後までに限られ、その後はほとんど無くなる。つまり、試料位置におよそ 1eV よりエネルギーの低い中性子がやってくる頃には、線源から飛来する γ 線はほとんど無いということである。たとえガンマフラッシュによって検出器が一時動作しなくなっても、1~2ms 以内に回復すれば問題なく、その後は線源からの γ 線がほとんどないため、逆に常に γ 線が出続ける原子炉中性子源よりも条件が良いとさえ言うことができる。また、中性子核反応実験装置では TO チョッパーという機器が装備されている。これは、時刻 0 (TO) のときだけ中性子ビームラインを遮断するように 25Hz の陽子ビームパルスに同期させて遮蔽ブロックを回転させる装置で、この TO チョッパーの使用によりガンマフラッシュと同時に高エネルギー中性子が試料位置に到達するのを遮断することができ、バックグラウンドを低く抑えた環境で実験を行うことが可能である。

なお、本節で述べた中性子性能と γ 線に関する説明文と数値データは、J-PARC ホームページ[2]から取得可能である。

3.2. 世界最高性能の実証

MLF では 2008 年 5 月の初中性子発生以来、中性子源施設と中性子実験装置のコミッションングの一環として、様々な性能確認試験を行ってきた。そのなかで、2 つの世界一の性能が実証された。

第1の世界最高性能は、図8に示すとおり、KEKによってポイズン型モデレータを見るビームラインに設置された超高分解能粉末回折装置(SuperHRPD, BL08)という実験装置で、世界最高の分解能が達成されたことである。[3] これまでは、英国のISIS という 160kW の核破砕中性子源で達成された $\Delta d/d = 0.05\%$ (d は結晶の格子面間隔) の分解能であったが、J-PARC では 0.035% の分解能を達成した。この高分解能は、ポイズン型モデレータの性能と、SuperHRPD の 90m 以上におよぶ十分に長い飛行距離によってもたらされた。さらに検出器のチューニングを行なうことにより、分解能は 0.030% まで向上する見通しである。これにより、物質の原子レベルでの構造をこれまでよりもより詳細に知ることが可能となる。

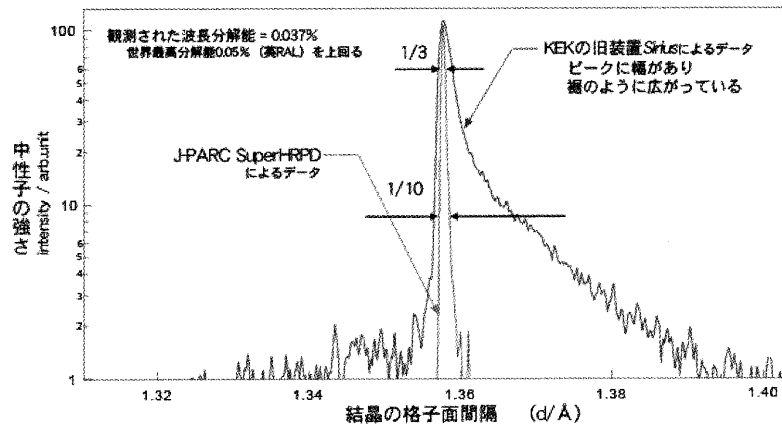


図8 シリコン試料を用いた回折実験のデータ。高エネ機構にあった世界有数の回折装置 Sirius のデータとの比較で、ピークの形がシャープなほど分解能が高いことを示す。Siriusと比較し、SuperHRPDは半値幅で1/3以下、1/10線幅では1/10以下に改善された。

第2の世界最高性能は、結合型モデレータによる高い時間平均中性子強度である。中性子源の出力は現時点ではまだ弱いですが、ガイド管を有するビームラインで金箔の放射化により実測した中性子束強度を1MW運転時に換算すると、ほぼ 1×10^9 [n/s・cm²] になる。J-PARCに約2年先駆けて運転を開始した米国オークリッジ国立研究所の核破砕中性子源SNS(1.4MW)と比較すると、J-PARC中性子源は出力で1/1.4倍劣るものの、優れた線源の設計により時間平均中性子強度では逆にSNSの約3倍となり、将来出力が1MWに近づけば、世界最強の中性子強度を誇る核破砕中性子源となる見込みである。さらに、 1×10^9 [n/s・cm²] という中性子強度は JRR-3 炉室の熱中性子強度と肩を並べる値であり、またガイドホール内の冷中性子強度の1桁上である。さらにパルスピーク強度では、JRR-3の数百倍に達する。原子炉中性子源を目標に大強度化を目指して来た加速器型中性子源が、パルスピーク強度のみならず、時間平均強度においても世界で初めて原子炉中性子源に追いつくことになる。

3.3. 粒子シミュレーション計算コードの開発とその精度検証

我々は、J-PARC中性子源開発のためにGeVオーダーの高エネルギー粒子シミュレーション計算が可能なコードNMTC/JAM[4]を開発した。そして同コードが核となってPHITSコード[5]へと発展し、現在では原子力や加速器分野だけではなく、医療や宇宙などの非常に広い分野で利用されている。同コードを用い、ユーザーに供給する中性子ビームの性能だけではなく、中性子源構成機器に与える熱負荷、材料損

傷, 誘導放射能等を計算し, 機器設計の基礎データとした. 同コードによるこれらの設計計算が妥当であるかどうかの確認を目的とし, 中性子ビーム性能の測定を行ない, 予測計算値と比較した. 図9は主な結果をまとめたものである. エネルギースペクトルとパルス形状で予測計算値は実測値と非常に良く一致し, また絶対中性子強度では計算値と実測値は約20%で一致した.

設計計算では, 水銀ターゲットに3 GeV陽子を入射するところから計算機シミュレーションを開始する. 水銀の原子核内での核子-核子散乱, 前平衡過程, そして残留核からの蒸発による中性子の生成, そしてこれらの中性子がベリリウム反射体や水銀ターゲットで数十回から数百回も散乱されながら, MeV から meV までエネルギーを落とし, ときには周辺の材料に吸収され, ときには機器の隙間から漏洩し, 最後は20 Kの超臨界水素中で干渉性/非干渉性散乱を繰り返しながら熱冷中性子となり, 中性子源中心から10 m以上離れた実験ホールの検出器まで到達する. これらすべての物理過程がシミュレートされ, 検出器に届く中性子数が計算される. 3 GeV から数 meV の約12桁に及ぶエネルギー範囲, そして水銀ターゲット中から中性子実験装置に至る約10桁に及ぶ中性子数変化をすべてシミュレーション計算で解き明かし, その結果, 約20%の精度で観測される中性子性能を言い当てたのである.

この素晴らしい予測を可能にしたのは, 原子力開発で培われた20 MeV以下の高精度な核データファイルと計算手法の整備, そして20 MeV以上の核反応を理解するための様々な高エネルギー実験と理論の発展, シミュレーション技術開発などである. 物理をエンジニアリングへと進化させ, GeV から meV までの粒子輸送を高い精度で取り扱えることを, J-PARC 中性子源が実証したと言える.

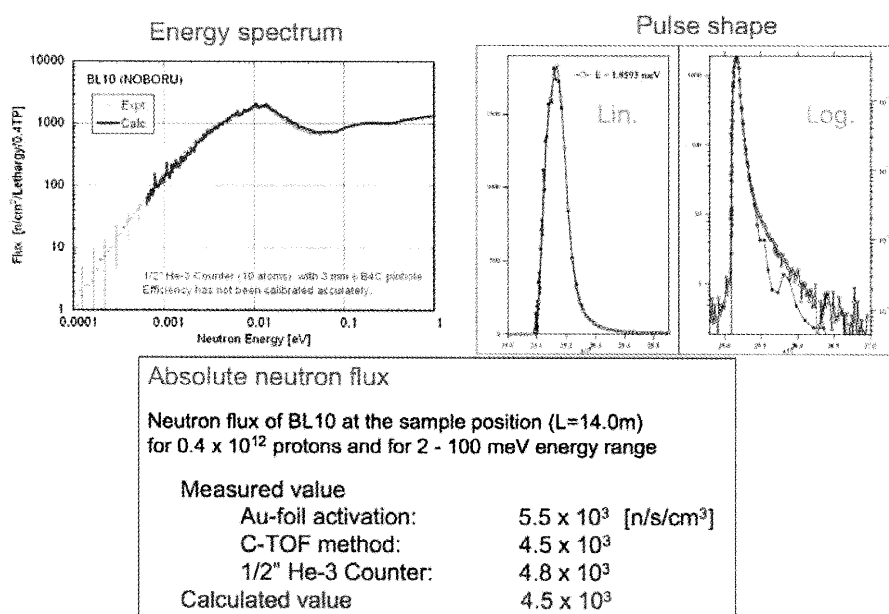


図9 中性子性能の実測値と計算値の比較.

4. J-PARCの今後と利用

J-PARCの1MWパルス核破碎中性子源は, 2008年5月に初の中性子発生, その後の試運転を経て2008年12月から中性子実験装置の一般供用を開始した. 2009年11月からは100kW運転が始まる予定である. 今後の1MW出力の達成に向けて, 加速器と中性子源共に解決しなければならない課題が残さ

れているものの、100kW でもかなり強力な線源であると実感できることであろう。

実験課題の公募は半年に一度行なわれており、2010 年度上期の課題公募は 2009 年 12 月頃に行なわれる予定である。課題審査で合格し、成果公開とすれば、無料で実験を行なうことができる。詳細は、以下のページでご確認いただきたい。

MLF の利用 <http://j-parc.jp/MatLife/ja/applying/index.html>

実験課題申請 <http://j-parc.jp/MatLife/ja/applying/koubo2009.html> (2009 年度下期, 終了)

中性子核反応実験装置(BL04)の一般供用にはもう少し時間がかかるかも知れないが、その他にも利用可能な実験装置がある。筆者は中性子源特性試験装置(BL10) [6-8]という実験装置の担当をしているが、この装置に Ge 検出器を持ち込み、TOF 法を組み合わせた即発 γ 線分析のテスト実験も開始されている。本稿をご覧になった読者の方々にも、今後、積極的に J-PARC を利用していただければ幸いである。

参考文献

- [1] J-PARC ホームページ: <http://j-parc.jp/index.html>.
- [2] 中性子源の性能: <http://j-parc.jp/MatLife/ja/source/index.html>.
- [3] プレス発表: 高エネルギー加速器研究機構発表: http://www.kek.jp/ja/news/press/2008/J-PARC_SuperHRPD.html, 日本原子力研究機構発表: <http://www.jaea.go.jp/02/press2008/p08071701/index.html>.
- [4] K. Niita, H. Takada, S. Meigo, Y. Ikeda, Nucl. Instrum. Meth. B 184, 406 (2001).
- [5] H. Iwase, K. Niita, T. Nakamura, J. Nucl. Sci. Technol., 39, 1142 (2002).
- [6] K. Oikawa, et al., Nucl. Instrum. Meth. A 589, pp. 310-317 (2008).
- [7] F. Maekawa, et al., Nucl. Instrum. Meth. A 600, pp. 335-337 (2009).
- [8] 中性子源特性試験装置: <http://j-parc.jp/MatLife/ja/instrumentation/bl10/bl10.htm>.

多重ガンマ線放射化分析法を用いた地球科学試料の分析研究

日本原子力研究開発機構

初川雄一、大島真澄、藤暢輔、木村敦、小泉光生、古高和禎

はじめに

原子核分光研究において多くの成果を挙げた多重ガンマ線分光法を中性子放射化分析と組み合わせることにより高い検出感度で非破壊元素分析法を開発した。本方法を通していくつかの元素において従来法と比較して簡便に高感度が得られる元素があることがわかった。

その中でも特にイリジウムは地球科学的に隕石飛来と関連して興味の持たれている元素でありながらも試料中の一般的な含有量は僅か 1ppb にも満たない元素ゆえその測定には高度の放射化学の技術を要する。しかし多重ガンマ線放射化分析法を適用することにより 10ppt 程度の高い検出感度で非破壊分析が可能となった。(1-4)

多重ガンマ線分析

中性子放射化分析は簡便に高感度を得ることの出来る分析手法であるが、マトリクスに含まれるナトリウムやマンガンなどから高いエネルギーの強いガンマ線が高いバックグラウンドが生じて微小なガンマ線の観測を困難にしている。多くの場合冷却時間を置いてこれら妨害元素の壊変を待つか、化学分離することによりその影響を低減し微弱なガンマ線の測定を行うのだが、化学分離操作には高い技術が必要とされ加えて多くの手間がかかる。イリジウムの検出に際してはスカンジウム-46 (半減期 84 日) やクロム-51 (半減期 28 日) からのガンマ線が妨害となる。しかし多重ガンマ線分析により、従来の 1 次元スペクトルに代わって 2 次元マトリクスを得ることにより高分解能で微弱なガンマ線ピークが得られ高感度での検出が可能になる。 図 1 にイリジウム-192 の壊変

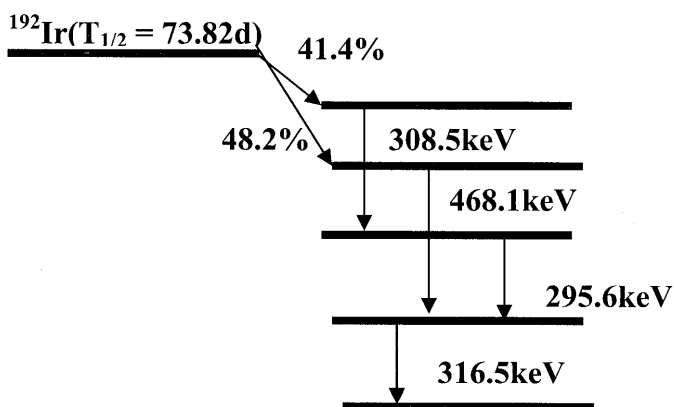
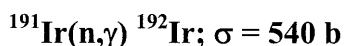
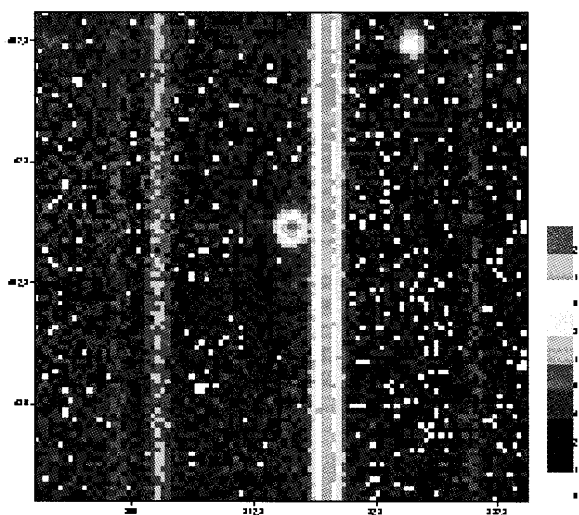


図 1 イリジウム-192 の壊変図



316-468 keV のイリジウム 192 のコインシデンスピーク

図 2 2 次元マトリクスの一部。岩石試料中に 316-468 keV のイリジウムのコインシデンスピークが見える。

図を示す。図にあるようにイリジウム-192は主に4本のガンマ線を連続的に放出し316 keV -296 keV、316 keV -468 keV、316-308 keV、295-308 keVの4組の同時計測可能なガンマ線の組み合わせがあることがわかる。このうちバックグラウンドとの兼ね合いで見やすいピークを解析に用いるが、通常316 keV -468 keVのコインシデンスピークを解析に用いている。図2に岩石試料中の2次元マトリクスの例を示す。イリジウム-192からの316 keV -468 keVのコインシデンスピークがはっきりと見える。すぐ左となりに見える上下の線状に見えるものはクロム-51の320keVのガンマ線とのアクシデンタルコインシデンス事象である。

実例

我々は2006年よりデンマーク・コペンハーゲン大学との共同研究によりグリーンランドから採取された岩石試料である、Isua中のイリジウムの詳細な分析を行った。図3にIsua岩石の一つである縞状鉄鉱石(Banded Iron Formation; BIF)を示す。Isuaは地球表面で形成された最古の岩石で38億年ほどの形成年代を有する。一方この年代は月面に海を形成させた小天体の一連の飛来(Late Heavy Bombardments; 後期重爆撃)とほぼ年代を同じくする。そのためLHBが月と共に地球表面にも衝突していればその痕跡をIsua中に見ることが出来ると予想される。

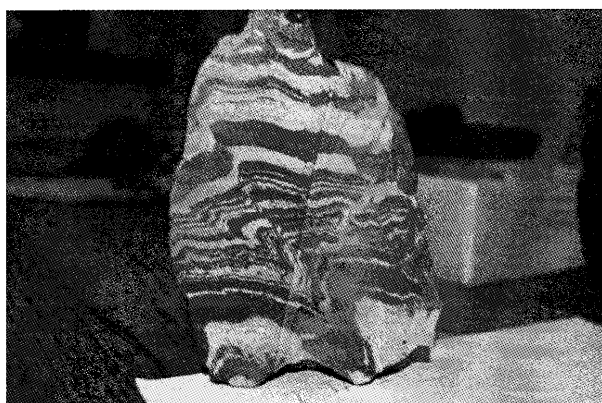


図3 Isua 岩石試料

粉末にしたIsua岩石試料は100ミリグラムほどを合成石英管中に秤量し封入する。イリジウム標準溶液より分取した適当に希釈した溶液も同様に石英ガラス管にとり風乾後に溶封し岩石試料と同じカプセルで照射し標準試料とした。これを原子力機構の研究炉JRR-3・HR照射孔において48時間照射を行いその後3から4週間冷却する。

試料カプセルから開封後石英管を洗浄し、石英管ごとポリエチレン袋に封入し多重ガンマ線分光装置GEMINI-IIにおいて一試料あたり約1日のガンマ線の同時計測を行った。図4にIsuaの測定試料中で最もイリジウム含有量の少なかった試料の2次元マトリクスを立体的に表示したものを示した。この試料のイリジウム濃度は18pptと定量された。このマトリクスより見積もられる検出限界は10ppt程度と思われる。37試料の分析を行いそのイリジウム含有量を得た。Isuaは長年の変成の影響で上下関係に関する情報は失われているためイリジウム濃度の微細構造を論ずることは出来ない。そこで得られた結果よりイリジウム含有量の平均値として150pptを得ることが出来た。この値をLHB時の地球上へ降り注いだ地球外物質について考察を行った。この150pptが地球上のLHB時のイリジウム濃度とし、またすでに知られているように月面上のイリジウム濃度は10ppt程度と極端に低くこの二つの値を再現する状況を考察した。従来考えられているようにLHBがイリジウムに富む小惑星群の衝突によって引き起こされた場合平均的な速度(12 km/s)で地球及び月面に衝突すると小惑星の残留がより多く、本研究の値を再現しない。そこで小惑星より高速で飛来する彗星群によってLHBが生じたとするモデルを提唱した。彗星はその速度が20

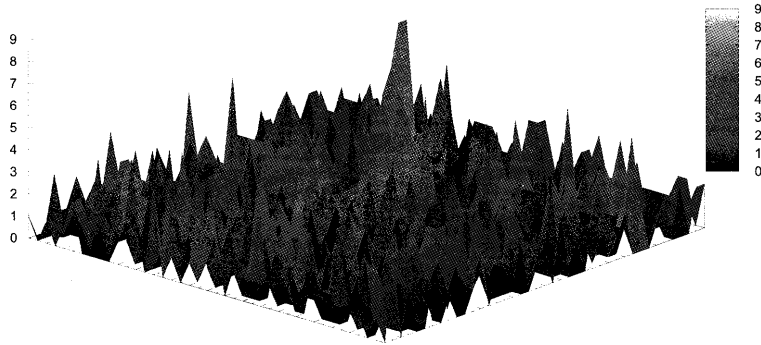


図4 Isua 試料中のイリジウムのコインシデンスピーク。この試料中のイリジウムは 18ppt との定量値を得ることが出来た。このマトリクスより検出限界を見積もると 10ppt 程度であることがわかった。

じたものであるとの結論に達した。本研究は *Icarus* 204 (2009), 368-380 において発表された。またこの結果は最近発見された月面の水の存在や、地球上にある水の起源とも関連しており興味深いものである。

謝辞

多重ガンマ線分光法の中性子放射化分析への応用の可能性を示唆していただいた東京都立大学の中原弘道名誉教授に感謝します。

参考文献

- 1) M.Oshima et al., 2002. A High-sensitivity and Non-destructive Trace Element Analysis Based on Multiple Gamma-ray Detection. *J. Nucl. Sci. and Tech.* **39(4)**, 292-294.
- 2) M. Oshima et al, 2008. Multiple gamma-ray detection method and its application to nuclear chemistry. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **278(2)**, 257-262.
- 3) Y. Hatsukawa et al., 2002. Application of multiparamete coincidence spectrometry using a Ge detector array to neutron activation analysis. *Nucl. Instr. Meth A***482**, 328-333.
- 4) Y. Toh et al. 2001. Comparison method for Neutron Activation Analysis with γ - γ Matrix. *J.Radioanalyt. Nucl. Chem.* **250**, 373-376.

km/s と小惑星より高速で飛来し、さらにその大部分が水で出来ているのでイリジウムの含有量も比較的少ない。彗星をインパクトとして LHB を模擬すると本研究の結果と良い一致を見た。これらより Isua 岩石試料中のイリジウム濃度分析を通して LHB が従来考えられていた小惑星群の衝突ではなく、彗星群の衝突により生

NAAMGによるたたら製鉄試料の分析

東京都市大学工学部

鈴木章悟

1. はじめに

たたら製鉄は、純度が高く鍛冶作業に適した鉄を得ることができる日本古来の製鉄法として知られているが、その発祥や発展については未だに解明されていない点が多い。このような未解明の問題解決のため、たたら製鉄や鉄遺物関連試料の機器中性子放射化分析法 (INAA: Instrumental Neutron Activation Analysis) 等による微量元素の分析が行われている¹⁾⁻³⁾。その結果から、たたら製鉄原料の産地は鉄塊、鉄製品、鉄滓などのたたら製鉄試料中の As と Sb の濃度比に注目することで推定できることが分かってきた。たたら製鉄試料において As と Fe の相対濃度と Sb と Fe の相対濃度の相関をとると As/Sb 比が一定の線上に乗る関係がある^{2,3)}。親銅元素⁴⁾に分類される As と Sb は鉄との親和性が強いため、製鉄過程において鉄塊や鉄製品に濃集し、鉄滓では減損する。よって、As/Sb 比をプロットした場合、砂鉄の右上に鉄塊、鉄製品、左下に鉄滓がプロットされる。鉄塊や鉄滓中の As/Sb 比を知ることで間接的に原料の As/Sb 比を把握できる。あらかじめ各地における製鉄原料の As/Sb 比を調べることにより、As/Sb 比から産地を推定することが可能であると考えられる。

しかし、たたら関連試料中に含まれる As や Sb は ppm~sub-ppm オーダーと低レベルであり、主成分元素の Fe や不純物として 1%程度含まれる Na が放射化して発生する妨害 γ 線の影響により高感度分析法である INAA でも定量分析が行えなかった場合があった⁵⁾。そこで本研究では、INAA よりも高感度な分析法である多重 γ 線放射化分析 (NAAMG: Neutron Activation Analysis combined with Multiple Gamma-ray detection)⁶⁾⁻¹¹⁾によりたたら製鉄試料である砂鉄、鉄塊、鉄滓中の As と Sb などの定量分析を行い、たたら製鉄関連試料に対する NAAMG の適応を検討したので報告する¹²⁾。

2. 実験方法

2.1 実験装置

多重 γ 線測定には、日本原子力研究開発機構タンデム加速器研究施設 H3 ビームライン上に設置された多重 γ 線分析装置 GEMINI-II¹³⁾を利用した。

GEMINI-II は、原子核準位構造研究に使用される検出装置であり¹⁴⁾⁻¹⁶⁾、Ge 検出器と BGO シンチレーション検出器を組み合わせたアンチコンプトン γ 線分析器 16 台から構成される。本研究での測定の際には、16 台の検出器のうち 8~11 台が稼働していた。

データ収集系は、NIM モジュールと測定用の PC から構成されており、同時計数の判定 (ゲート幅: 200ns)、エネルギー情報の取得、2次元マトリックスの自動作成を行う⁶⁾。

2.2 試料

分析試料は、復元たたら炉まほろん 2 号¹⁷⁾の操業で得られた鉄塊、鉄滓、および原料の砂鉄である。まほろん 2 号とは、2005 年 11 月 5~6 日に福島県文化財センター白河館で開

催された「鉄づくり」イベントで復元されたたたら製鉄炉である。福島県南相馬市原町地区にある大船迫 A 遺跡 15 号製鉄炉を原寸大(炉幅:60cm, 炉長:270cm, 炉高:120cm)で再現した長方形箱形炉である。原料に福島県白河市大信隈戸川産の砂鉄 188.5kg と木炭 655.6kg を使用し, 鉄塊 49kg が得られた⁵⁾。

今回は, まほろん 2 号の操業で得られた鉄塊試料(1, 2, 3, 4, 下げ)と鉄滓(1, 2, 4A, 4B, 鍛冶滓), 原料である砂鉄を測定試料とした。鉄塊 1~4 は, たたら操業で生成した大きい鉄塊をハンマーで粉砕して得られたものである。いずれも, 着磁性を持っているが赤茶色のさびや鉄滓が付着している部分があった。鉄滓 1, 2, 4A, 4B は操業の際にノロ出しの作業で炉から流出した鉄滓である。それぞれの数字は, 何回目のノロ出しで流出した鉄滓かを示している。また, 鉄滓 4A と 4B はともに 4 回目のノロ出しで流出した鉄滓であるが, 枝状の部分と塊状の部分で分かれていたため, 両方の部分から試料を採取し枝状の部分を 4A, 塊状の部分を 4B とした。鉄塊(下げ)と鍛冶滓は, 操業で得られた小さな鉄塊をまとめる鍛冶作業で生成した鉄塊と鉄滓である。

鉄塊試料は, 数 10g の鉄塊から健全な金属部分と思われる箇所を 100mg 切り出したものを試料とした。鉄滓, 砂鉄試料はメノウ乳鉢にて粉砕, 均質化した粉末を 100mg 程度採取し試料とした。各試料を石英管に封入し, 中性子照射用の試料とした。本研究で注目している As と Sb が放射化して生成する放射性核種の半減期は, 26 時間と 60 日であり大きく差があるために最適な実験条件が異なる。よって, 各試料を 2 セット用意し As 測定用試料と Sb 測定用試料とした。鉄塊試料の不均質性を調査するために, 鉄塊 1 に関しては隣接した箇所からもう一点試料を採取し分析を行った。最初に測定した鉄塊 1 を鉄塊 1-A とし, 試料の不均質性を調査するために採取した試料を鉄塊 1-B と記す。

本研究では, 比較標準物質を用いる比較法にて定量を行った。比較標準物質には, As 測定の際は日本鉄鋼連盟製の鉄鋼標準物質 JSS001-5, JSS169-7, National Institute of Standards and Technology (NIST) 製の鉄鋼標準物質 SRM1765, 国立環境研究所 (NIES) 製の自動車排出粒子 CRM 8 を使用した。Sb の測定の際は, 日本鉄鋼連盟製の鉄鋼標準物質 JSS172-7 と NIST 製の SRM1765 を使用した。Table1 に各測定で使用した標準物質と標準物質の As と Sb の認証値を示す。

認証値に対する不確かさは, 95%信頼限界の値を示している。標準物質も 100mg 程度を石英管に封入し, 試料と同時に中性子照射を行った。

2.3 中性子照射と γ 線測定

中性子照射は, 日本原子力研究開発機構が所有する研究用原子炉 JRR-3M の水力照射設備 (HR) にて行った。As と Sb では, 中性子照射により生成する放射性核種の半減期に大きな開きがあり, 最適な照射・冷却時間が異なる。よって, 本研究では鉄塊, 鉄滓, 砂鉄試料を 2 セット用意し, As 測定と Sb 測定とでは照射条件を変えて実験を行った。また, 照射できる試料数の制限や試料の元素組成による放射化量の相違があることから, 鉄塊, 砂鉄試料と鉄滓試料に分け, 合計 4 回中性子照射を行った。冷却時間の後, 多重 γ 線分析装置 GEMINI-II にて測定を行った。Table2 に本研究での照射・冷却時間および測定時間を示す。

As は, $^{75}\text{As}(n, \gamma)$ 反応で生成する ^{76}As (半減期 26.3 時間)が 6.2%の確率で同時放出する 657keV と 559keV の二本の γ 線に注目して測定を行った。Sb は, $^{123}\text{Sb}(n, \gamma)$ 反応で生成す

Table 1 The standard materials used in this study and certified value

Analyzed element	Sample	Standard sample	Certified value(ppm)
As	Iron lump	JSS001-5	2.1 ± 0.5
	Sand iron	JSS169-7	50 ± 4
	Slag	NIST1765	10 ± 5
		NIES 8	2.6 ± 0.2
Sb	Iron lump	JSS172-7	22 ± 7
	Sand iron	NIST1765	10 ± 5
	Slag	JSS172-7	22 ± 7
		NIST1765	10 ± 5

Table 2 Irradiation and counting condition

Analyzed element	Sample	Irradiation facility	Thermal neutron flux ($n/m^2 \cdot s^{-1}$)	Irradiation time	Cooling time	Counting time
As	Iron lump1~4 (sage)		9.8×10^{17}	1h	5d	1-6h
	Sand iron	JRR-3M				
	Slag1, 2, 4A, 4B	HR				
	Kaji slag		8.7×10^{17}	2h	4d	1-8h
	Iron lump1-B					
Sb	Iron lump1~4 (sage)		8.9×10^{17}	17h	24-36d	3-16h
	Sand iron	JRR-3M				
	Slag1, 2, 4A, 4B	HR				
	Kaji slag		9.6×10^{17}	8h	19d	2-41h

る ^{124}Sb (半減期 60.2 日)が 47.5%の確率で同時放出する 1691keV と 602keV の γ 線に注目して測定を行った。また、主成分元素である Fe の定量も行った。Fe の分析定量の際は、 $^{58}\text{Fe}(n, \gamma)$ 反応で生成する ^{59}Fe (半減期 44.5 日)が 3.1%の確率で同時放出する 192keV と 1099keV の γ 線に注目した。

鉄塊 1-B は As 測定用試料のみ用意したが、Sb も同時に定量した。定量の際は $^{121}\text{Sb}(n, \gamma)$ 反応で生成する ^{122}Sb (半減期 2.7 日)を測定対象とした。これは、 ^{124}Sb よりも ^{122}Sb の方がより大きい計数率が期待できたからである。 ^{122}Sb が 3.8%の確率で同時放出する 693keV と 564keV の γ 線に注目し測定を行った。

3. 結果および考察

3.1 定量結果

Table3 に鉄塊，砂鉄および鉄滓試料中の As, Sb, Fe の定量結果を示す。Fe の定量値は，As 測定の際に同時定量した値を示した。定量値に対する誤差は，計数誤差，不感時間，試料重量の秤量誤差から誤差伝播により求めた値である。鉄塊 1-A を例にとると，計数誤差は $1.6 \times 10^{-2} \pm 2.5 \times 10^{-3}$ cps，不感時間は $11 \pm 4.1\%$ ，試料重量は 80.6 ± 0.09 mg であった。

実験の結果から，たたら製鉄の操業において鉄塊では砂鉄の 2~10 倍 As と Sb が濃集し，鉄滓試料では 1/10 程度まで減少することが分かった。鉄滓試料中の 0.1~0.01 ppm オーダーの極めて微量な As と Sb の定量に成功したことから，NAAMG のたたら製鉄試料に対する有用性が確認できた。

Table 3 Analytical result of As and Sb in iron lump, sand iron and slag

Sample name	Concentration of Fe (%)	Concentration of As (ppm)	Concentration of Sb (ppm)
Iron lump1-A	79±3.0	8.5±1.1	4.0±0.35
Iron lump1-B	66±3.0	22±2.6	2.3±0.33
Iron lump2	94±4.0	7.1±0.95	2.8±0.35
Iron lump3	86±4.0	14±1.5	1.5±0.11
Iron lump4	86±4.0	22±2.1	2.2±0.19
Iron lump(Sage)	100±6.0	33±3.0	5.7±0.46
Sand iron	71±4.0	3.2±0.36	0.36±0.041
Slag1	39±4.2	3.5±0.35	0.086±0.0092
Slag2	46±4.9	0.68±0.12	0.052±0.0021
Slag4A	31±3.4	0.52±0.11	0.025±0.045
Slag4B	31±4.0	0.31±0.094	0.045±0.0031
Kaji slag	86±4.0	0.74±0.10	0.069±0.0063

鉄塊試料の均質性を調査するために分析を行った鉄塊 1-B の As と Sb の定量結果は，鉄塊 1-A の As, Sb 濃度と有意な差があり，試料の不均質性が確認された。また，鉄滓 1 の As 定量値はその他の鉄滓試料 As 定量値と比べ 1 桁大きい結果となった。その原因として，鉄滓 1 は最初のノロ出し作業で流出した鉄滓ということから，原料である砂鉄が混入した可能性が考えられる。しかし，Fe や Sb の定量値に異常な点が見られないため，試料作成時の汚染などの原因が考えられる。鉄滓 4 に関しては枝状の部分(4A)と塊状の部分(4B)から試料を採取して分析を行ったが，As, Sb, Fe の定量値に差は見られなかった。

Table3 において，鉄塊 1-A, 1-B の Fe の定量値は砂鉄と同程度と低い値であった。これ

は、鉄塊中に鉄滓が混入していたためと考えられる。鉄塊 1-A, 砂鉄, 鉄滓 1 の放射化した試料からは、鉄滓に濃集するとされる親石元素⁴⁾である Cs, Ba, ランタノイド元素からの γ 線ピークが多く検出された。それに比べると、鍛冶作業を経た鉄塊(下げ)から検出された親石元素の種類は 1/5 から 1/4 に減っていた。以上のことから、鉄塊試料の中で Fe 濃度が低かった試料が見られる原因は、鉄塊中に鉄滓が含まれていたためと考えられる。

3.2 定量下限値

Table4 にたたら製鉄試料に対する NAAMG の定量下限値を示す。定量下限値は、バックグランドの計数値の平方根を 3 倍 (3σ) した値から算出した。As の場合は、12 時間測定に換算した値、Sb の場合は 24 時間測定に換算した値である。鉄塊 1-B の Sb 定量下限値は、¹²²Sb の結果から算出した。INAA や NAAMG での定量下限値は元素組成に大きく影響を受けるが、今回の実験結果では試料の種類によらず定量下限値はほぼ一定であり、As で 0.1ppm オーダー、Sb で 0.01ppm オーダーであった。測定の際には主成分元素の Fe, 不純物として含まれる Na や Sc からの妨害 γ 線が強く発生していたと考えられるが、そのような条件でも NAAMG では As, Sb の高感度分析が可能であることが確かめられた。鉄塊 1-B の結果から、¹²⁴Sb と ¹²²Sb では定量下限値に差がないことが分かった。

Table 4 Lower limit of determination of As and Sb in iron lump, sand iron and slag

Sample name	LLD of As(ppm)	LLD of Sb(ppm)	Sample name	LLD of As(ppm)	LLD of Sb(ppm)
Iron lump1-A	0.3	0.04	Slag1	0.1	0.01
Iron lump1-B	0.1	0.05	Slag2	0.1	0.02
Iron lump2	0.2	0.03	Slag4A	0.1	0.009
Iron lump3	0.1	0.02	Slag4B	0.1	0.01
Iron lump4	0.1	0.02	Kaji slag	0.1	0.009
Iron lump(Sage)	0.1	0.03			
Sand iron	0.1	0.01			

3.3 As/Sb 比

Table5 に今回の測定から得られた As/Sb 比を示す。不均質性が問題となった一部の試料で例外は見られるが、多くの試料で As/Sb が約 10 であった。Fig. 1 に各試料の As/Fe と Sb/Fe の相関図を示す。

図中の点線は、As/Sb=10 を示しており点線上にプロットが概ね乗っていることが分かる。As/Fe と Sb/Fe の相関係数は、0.73 であった。また、鉄塊 1-A, 鉄塊 2, 鉄滓 1 を除いた場合では 0.94 となった。以上のことから試料の不均質性が問題となっていたとしても、鉄塊、

鉄滓試料を合計 10 種類程度測定すれば, As/Sb 比を把握することが可能であるといえる。

Table 5 As/Sb ratio for iron lump, sand iron and slag

Sample name	As/Sb	Sample name	As/Sb
Iron lump1-A	2.1	Slag1	41
Iron lump1-B	9.6	Slag2	13
Iron lump2	2.5	Slag4A	21
Iron lump3	9.3	Slag4B	6.9
Iron lump4	10	Kaji slag	11
Iron lump(Sage)	5.8		
Sand iron	8.9		

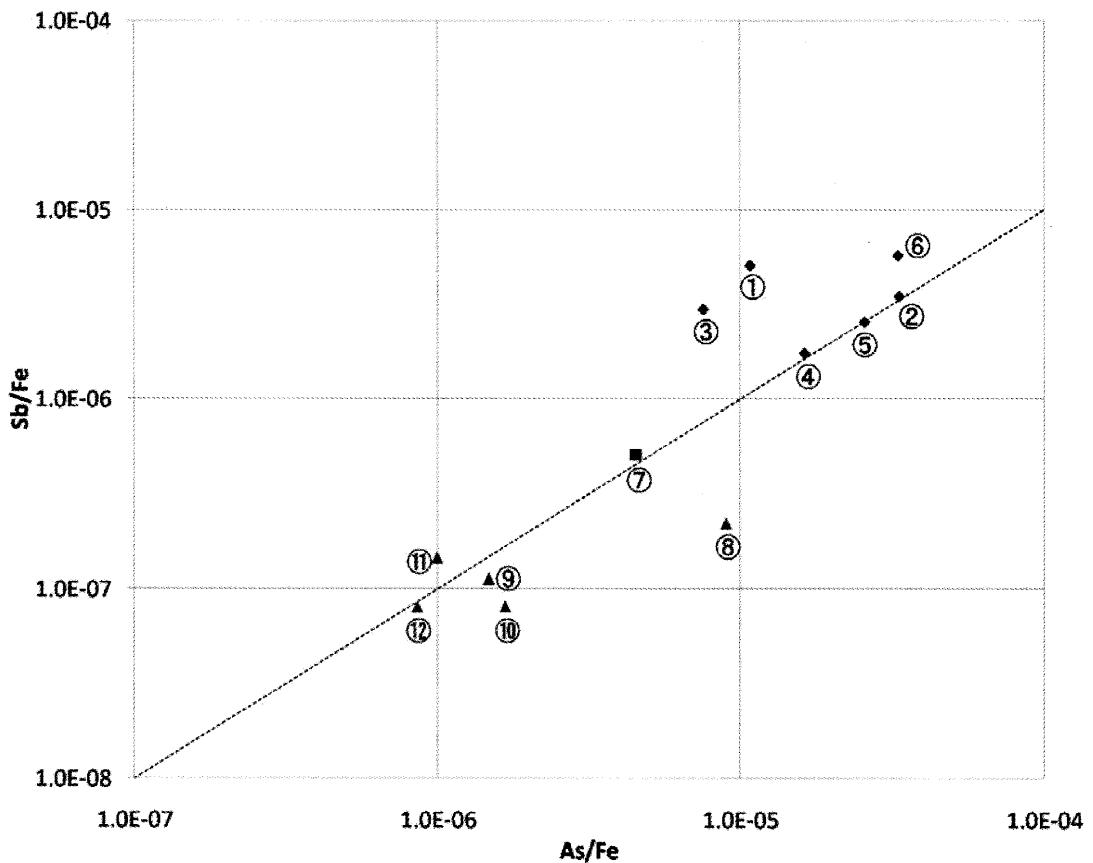


Fig.1 The correlation diagram between As/Fe and Sb/Fe for iron lump, slag, sand iron. The dotted line represents As/Sb ratio is 10. ①Iron lump1-A, ②Iron lump1-B, ③Iron lump2, ④Iron lump3, ⑤Iron lump4, ⑥Iron lump(Sage), ⑦Sand ion, ⑧Slag1, ⑨Slag2, ⑩Slag4A, ⑪Salg4B, ⑫Kaji slag.

多重 γ 線放射化分析 (NAAMG) によるたたら製鉄試料の分析を行い, ppm \sim sub-ppm と低レベルの As と Sb など定量することができた。たたら製鉄試料中の微量元素分析に対しての NAAMG の有用性が確認できた。定量下限値は As で 0.1ppm オーダー, Sb で 0.01ppm オーダーであった。たたら製鉄試料では, 鉄鋼スクラップに混入され不純物として注目されるトランプ元素である As, Sb が高感度で定量できることが分かり, 各種の鉄鋼試料の分析においても NAAMG は有効な方法といえる。

文献

- 1) S. Hirai, *Isotope new*, 491(1995), 7
- 2) 平井昭司: 福島県文化財調査報告書第 328 集, 福島県教育委員会編, (1996), 463
- 3) 平井昭司: 国立民俗博物館研究報告第 59 集, 国立歴史民族博物館編, (1994), 314
- 4) 松久幸敬, 赤城右: 地球科学概論, 培風館, 東京, (2005), 15
- 5) 平井昭司, 加藤将彦, 小椋幸司, 鈴木章悟, 岡田往子, 福島県文化センター白河館研究紀要 2006, 福島県文化振興事業団編, (2007), 63
- 6) A. Kimura, M. Oshima, *Tetsu-to-Hagane*, 90(2004), 22
- 7) Y. Hatsukawa, Y. To, M. Oshima, T. Hayakawa, N. Shinohara, K. Kushita, T. Ueno and K. Toyoda, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 255(2003), 111
- 8) M. Oshima, Y. To, Y. Hatsukawa, T. Hayakawa and N. Shinohara, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 39(2002), 292
- 9) Y. Hatsukawa, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. To and N. Shinohara, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248(2001), 121
- 10) Y. Toh, M. Oshima, Y. Hatsukawa, T. Hayakawa and N. Shinohara, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 250(2001), 373
- 11) Y. Hatsukawa, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. To and N. Shinohara, *Nucl. Inst. Meth. A*, 482A(2002), 328
- 12) 伊下信也, 鈴木章悟, 岡田往子, 加藤将彦, 平井昭司, 木村敦, 初川雄一, 藤暢輔, 小泉光生, 大島真澄: 鉄と鋼, 94(2008), 345
- 13) K. Furuno, M. Oshima, T. Komatsubara, K. Furutaka, T. Hayakawa, M. Kidera, Y. Hatsukawa, M. Matsuda, S. Mitarai, T. Shizuma, T. Saito, N. Hashimoto, H. Kusakari, M. Sugawara, and T. Morikawa, *Nucl. Inst. Meth. A*, 421A, (1999), 211
- 14) A. Osa, T. Czosnyka, Y. Utsuno, T. Mizusaki, Y. Toh, M. Oshima, M. Koizumi, Y. Hatsukawa, J. Katakura, T. Hayakawa, M. Matsuda, T. Shizuma, M. Sugawara, T. Morikawa, H. Kusakari, *Phys. Lett.*, B546(2002), 48
- 15) T. Hayakawa, Y. Toh, M. Oshima, M. Matsuda, Y. Hatsukawa, N. Shinohara, H. Iimura, T. Shizuma, Y. H. Zhang, M. Sugawara, H. Kusakari, *Phys. Lett.*, B551(2003), 79
- 16) M. Koizumi, A. Seki, Y. Toh, A. Osa, Y. Utsuno, A. Kimura, M. Oshima, T. Hayakawa, Y. Hatsukawa, J. Katakura, M. Matsuda, T. Shizuma, T. Czosnyka, M. Sugawara, T. Morikawa, H. Kusakari, *Nucl. Phys.*, A730(2004), 46
- 17) 吉田秀享: 福島県文化センター白河館研究紀要 2006, 福島県文化振興事業団編, (2007),

MPGA法の肥料及び植物分析への適用可能性の検討

独立行政法人 農業環境技術研究所

木方展治

筆者の所属する研究所では、動物由来の農産物である畜産物を除いた狭義の農業関連試料を主な取り扱い対象としている。生産品としての農産物は、糖類、油脂、タンパク質を主成分とした植物試料であり、元素で言えば、炭素、酸素、水素、窒素などから構成される。一方、生産品を作り出す資材としては、生産原料である空気中の二酸化炭素、水、肥料と培地としての土壌および補助的に生産環境を整えるフィルムマルチ資材や温室資材をあげることができる。ここでは、多量から微量までの元素成分を分析する必要がある肥料をMPGA（多重即発 γ 線分析）法の農業関連試料への適用可能性を探る糸口にし、植物試料の分析についても若干触れることにする。

一般的に化学肥料と称せられる肥料は法律上の分類では普通肥料と呼ばれている。窒素、リン、カリウムの三大肥料要素を初め、アルカリ分（カルシウムおよびマグネシウム）、ケイ素、マンガン、ホウ素の8つの主要成分が肥料効果のある成分として定められている。また有害元素として、ヒ素、カドミウム、ニッケル、クロム、チタン、水銀、鉛が公定規格に定められている。また堆肥や硫黄等は特殊肥料と呼ばれ、銅、亜鉛及び硫黄が主要成分となっているものがある。また炭素、酸素、水素、窒素、硫黄、リン、カリウム、カルシウム、マグネシウム、鉄、マンガン、亜鉛、銅、モリブデン、ホウ素、塩素の16種が植物の必須元素として知られている。

これらの成分の分析をどの程度MPGA法で行うことができるか、定性的な情報を元に、現時点での整理を試みた。多重即発 γ 線分析の計測値積算法は、まだ変更の可能性があるため、定量性の検討についてはここではほとんど触れていないことをお断りしておく。

1. 普通肥料の多量要素の分析

表1の分析条件で多重即発 γ 線分析を行った。試薬標準試料は硝酸で洗浄したろ紙を乾燥させ、0.02~0.1 mLの標準溶液をしみ込ませて作成した。

3大肥料要素として窒素、リン、カリウムがあげられるが、それぞれについてMPGA法で検出可能である。しかし窒素については、雰囲気中に存在する大気中窒素の影響が大きく、肥料中の窒

表1 MPGA 分析の条件

中性子線; JRR3号研究炉 C-2-3ビームライン
測定器; 多重即発 γ 線分析装置STELLA(クローバ型検出器8台)
γ - γ コインシデンス
測定エネルギー範囲; 12MeV
CO ₂ ガス置換; 0~6 L/分
¹³³ Ba線源(1 μ Ci)同時測定
アッテネータ; なし
BGO; on
測定時間; 2~3 時
測定試料重; 100~200 mg
試料梱包材; FEPフィルム、2 \times 3cm ² 中性子ビーム束照射

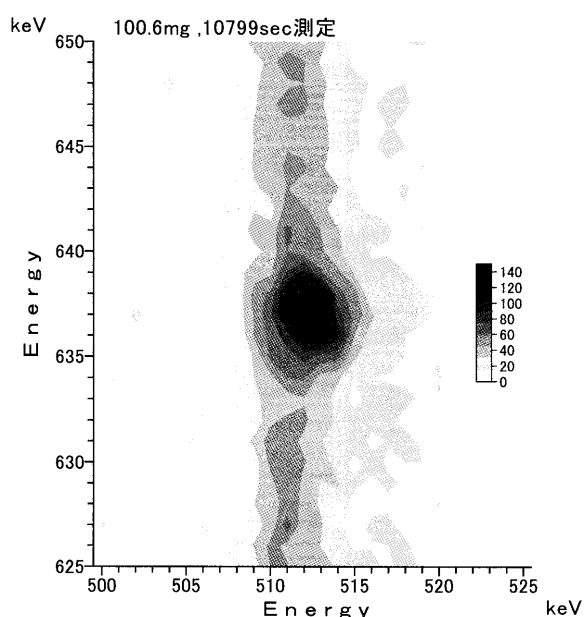


図1 過りん酸石灰肥料(保証値P₂O₅として18%)におけるリンのピーク

素の定量は現状では困難である。パージ用のガスとして二酸化炭素を3～6 L/分流して測定を行ったが、それだけでは窒素の除去は不十分である。試料の挿入が行われる部位に工夫を加え、密閉性を高めること等により、測定が可能となるかもしれない。

リンについては、図1に示すように、annihilation ピークの影響は受けるが、513keV と 637keV の即発γ線の組み合わせが利用できると考えられる。

カリウムについては、多重即発γ線を使わないでも図2に示すように単独の即発γ線の770keVのピークを利用して定量できると考えられる。ホウ素についても多重即発γ線を用いて分析を行うことはできないが、478keVの単独の即発γ線を利用してホウ素を感度良く分析できることは、以前より知られている。

カルシウムは520keV-1943keV、マグネシウムは585keV-2828keV、マンガンは84keV-105keV、ケイ素は1273keV-2093keVのそれぞれ多重即発γ線が定量に利用できる可能性があると考えられる。図3にカルシウムの多重即発γ線ピークを示した。図の左にあるのは、annihilation ピーク(511keV)と1943keVの多重即発γ線ピーク、上にあるのは塩素の517keV-1951keVの多重即発γ線ピークである。

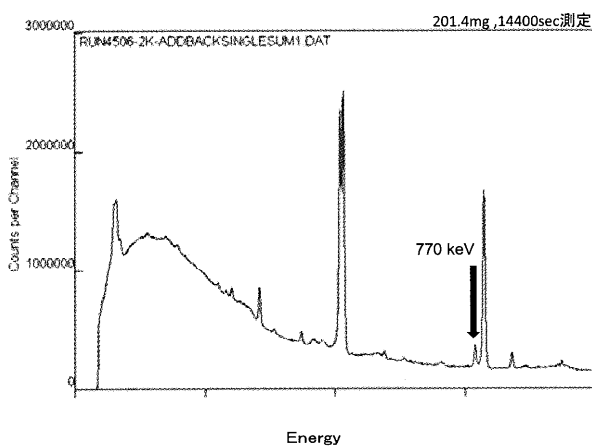


図2 化成肥料(保証値 K_2O として8%)におけるカリウムの即発γ線(シングル)ピーク

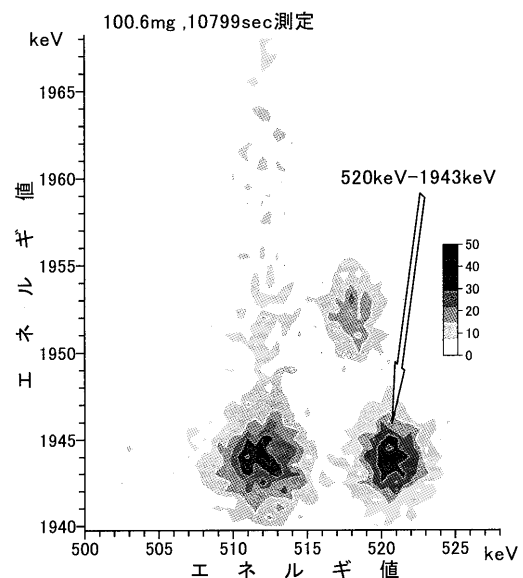


図3 過りん酸石灰肥料(保証値 P_2O_5 として18%)におけるカルシウムのピーク

2. 肥料の有害成分の分析

カドミウムの試薬標準試料から作成した検量線は図4に示すように、良好な直線性を示した。肥料のカドミウムは図5に示すように明瞭な558 keV-652 keVの多重即発γ線ピークを持ち、精度よく分析できることが期待される。チタンは土壌中の成分は検知できる。肥料中でも含有を許される最大量であるサブパーセントレベル前半であれば、検知できる可能性はあるだろう。他の成分については検討中であるが、高感度での分析が期待できないものもある。

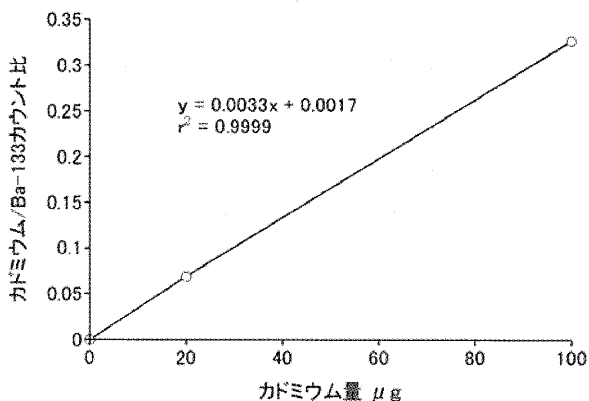


図4 カドミウムの検量線

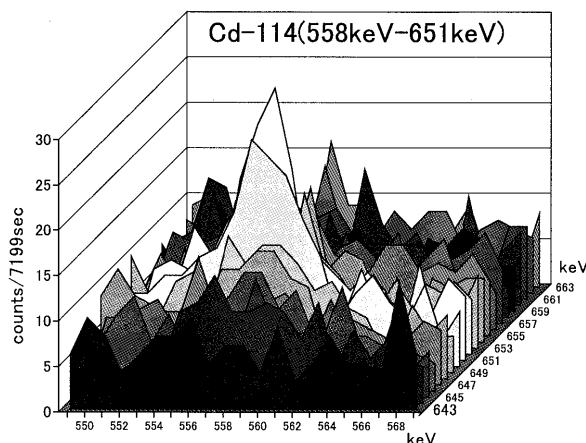


図5 過りん酸石灰肥料(保証値 P₂O₅として18%)におけるカドミウムのピーク

3. その他の成分の分析

特殊肥料にのみ認められている成分のうち、硫黄は分析可能性が高い。硫黄は硫酸根として、カリウムやアンモニウム性窒素のカウンターイオンとして普通肥料に多量に含まれる場合がある。亜鉛、銅については検討中であるが、亜鉛の方が銅より感度が高いと思われる。また植物の必須成分の鉄、モリブデンについては、検出可能であるが、植物体の分析ではもう少し感度が必要であると思われる。ただし、鉄やモリブデンは正式の肥料成分としては認められていないが、肥料に添加することは認められており、添加した肥料であれば分析の可能性があるとと思われる。塩素は植物でも十分に検出可能と考えられる。塩素は硫酸根同様、カリウムやアンモニウム性窒素のカウンターイオンとして普通肥料に多量に含まれる場合がある。

4. まとめ

肥料および植物のMPGA法による分析可能性について表2に示した。肥料の場合、多量成分の場合は実際の濃度が測定できるか、有害成分の場合は許容される有害成分量近辺の濃度が測定できるかを判定の目安とした。測定時間は数時間以内を仮定した。これはあくまでも現時点での筆者の感覚的見通しであり、今後定量分析に関する情報の追加やMPGA装置の改良によって変わりうるものである。

肥料では、全量分析だけではなく、植物への利用されやすさの観点から、抽出法による品質評価が行われている。抽出剤は水の場合もあるが、クエン酸やクエン酸アンモニウム、塩酸等が用いられ、分析法によっては、マトリクスによる妨害を受ける場合がある。MPGA法はマトリクスの影響を受けにくい分析法であると考えられ、これらの抽出法への応用が期待される。ただし、抽出法の場合は、全量よりも分析対象量が少なくなる上に、希釈を伴うのが通常である。このような分析対象の広がりにも対応できるように、検出効率の向上等、なお一層のMPGA装置の感度増加に期待したい。

表2 肥料・植物の主な分析項目に対するMPGA 適応可能性

肥料			植物	
普通肥料成分	特殊肥料のみに認められた成分	公定規格に定められた有害成分	多量必須元素	微量必須元素
N	Zn	As	N	B
P	Cu	Cd	P	Cu
K	S	Hg	K	Zn
Ca		Ni	Ca	Fe
Mg		Cr	Mg	Mn
Si		Pb	S	Mo
B			C	Cl
Mn			H	
			O	

(白抜き、検討中)

可能性高い
 可能性あり
 感度的に?
 可能性あるが、現状では困難

多重即発ガンマ線分析法を用いた底質標準試料および干潟底質試料中のカドミウムの分析

東京大学大学院総合文化研究科
松尾基之、小豆川勝見

1. はじめに

多重即発ガンマ線分析法(MPGA法)は、非破壊で高感度に多元素を同時に測定することが可能であり、高い分析効率をもつことが見込まれる。本研究では、MPGA法を実際の試料として環境試料に適し、これまで利用されてきた分析法との比較を行い、効率性・信頼性等を多方面から評価することを目的とする。我々は、これまで種々の固体環境試料および、地球化学的試料について、その中に含まれる元素の量および、その存在状態(特にメスバウアー分光法を用いた鉄の化学状態分析)により、試料が置かれていた環境や試料の起源・成因等の推定を行ってきた。その際、出来るだけ多くの元素の定量値を得ることが望ましく、そのために機器中性子放射化分析(INAA)や即発 γ 線分析(PGA)を行ってきた。本研究では、特に環境中の有害元素としてCdに着目し、従来のPGA法では検出限界以下であった、干潟底質中のCdを定量することを目指している。そのための第一歩として、これまで、Cd含有量が既知の環境標準試料等の測定を行ってきたが、最近は検出効率の向上が見られ、実際の環境試料として北十間川および谷津干潟底質中のCdの定量を試みたので報告する。

2. 実験

a. 試料 底質試料の採取地点は、環境負荷の高い都市河川として東京都の内部河川である北十間川を選び、東京湾内でも比較的自然の状態が残っている場所として千葉県谷津干潟(ラムサール条約登録地)を選んだ。また、Cd含有量が既知の環境標準試料として、地質調査所発行の琵琶湖Lake Sediment(JLk-1)および国立環境研究所発行のPond Sediment(NIES Certified Reference Material No. 2)を選んで測定に供した。以後、単に前者をJLk、後者をJPSと呼ぶことにする。試料として、約200mgを精秤し、錠剤成形器を用いて約100 kgf cm⁻²の圧力で5分程度置き、直径10mm、厚さ約1mmのペレットに成型した。標準試料中のCd濃度は、JLkが0.572 ppm、JPSが0.82 ppmなので、200mgのペレット中にはCdをそれぞれ、0.11 μ g、0.16 μ g含むと考えられる。

b. 検出器のセットアップ ガンマ線検出器としてクローバー型Ge検出器8台、そのコンプトンサブレッサーとしてBGO検出器を8台用いた。クローバー検出器は測定試料から検出器表面までの距離が約5cmとなるように設置し、BGO検出器はクローバー検出器を取り囲むように設置した。検出効率は、3インチ ϕ ×3インチのNaI検出器に対してクローバー検出器1台当たり120%(4クリスタル)で、30クリスタル合計で約900%である(絶対検出効率は、推定約4%)。なお、試料測定時の1秒間あたりのイベント数は15000程度であった。

3. 結果および考察

従来のPGA法(Thermal 9000秒)では、JLk、JPSともCdのピークはほとんど判別できない状態であった。これに対し、MPGA装置による同時計数測定では、JPS(63000秒)および北十間川(30000秒)の2次元マトリクス全体図を見ると、Cdガンマ線ペア(558.5-651.3keV)の位置に、明らかなピーク

の存在が確認された。一方、JLK(44000 秒)および谷津干潟(352000 秒)の2次元マトリクスを見ると、ピークは判別しにくい、射影スペクトルでは明らかなピークが確認された。図1に、これら4試料の射影スペクトルを示す。ここで、JPSのCd含有量が0.82ppmであることを用い、他の3試料のCd含有量の定量を行った。その結果、北十間川底質は 8.4 ± 1.6 ppm、谷津干潟底質は 0.46 ± 0.14 ppm、JLKは 0.44 ± 0.23 ppmという値が得られた。谷津干潟とJLKの定量値がほぼ同じなのに誤差が大きく異なるのは、測定時間が約8倍異なるためである。また、JLKの実際のCd含有量は0.57ppmであるから、今回の定量値は、誤差の範囲では一致しているものの、約20%過小評価されている。従って、測定時間半日程度では、信頼性の高い定量値を得るのには、必ずしも十分ではないと判断された(Cd含有量0.5ppm程度の場合)。

Cd以外の元素として、C, Ca, Cl, Fe, Mn, Si, Sm, TiのGatedスペクトルでは、いずれの元素もはっきりとしたピークが観測され、信頼性のある定量値が得られるものと思われた。現在、MPGA装置の検出効率はかなり向上したが、信頼性のある定量値を得るためには、更なる装置及びソフトウェアの改良が望まれる。今後は、更に実試料について信頼性等を多方面から評価した上で、種々の環境試料の分析に本法を適用していきたいと考えている。

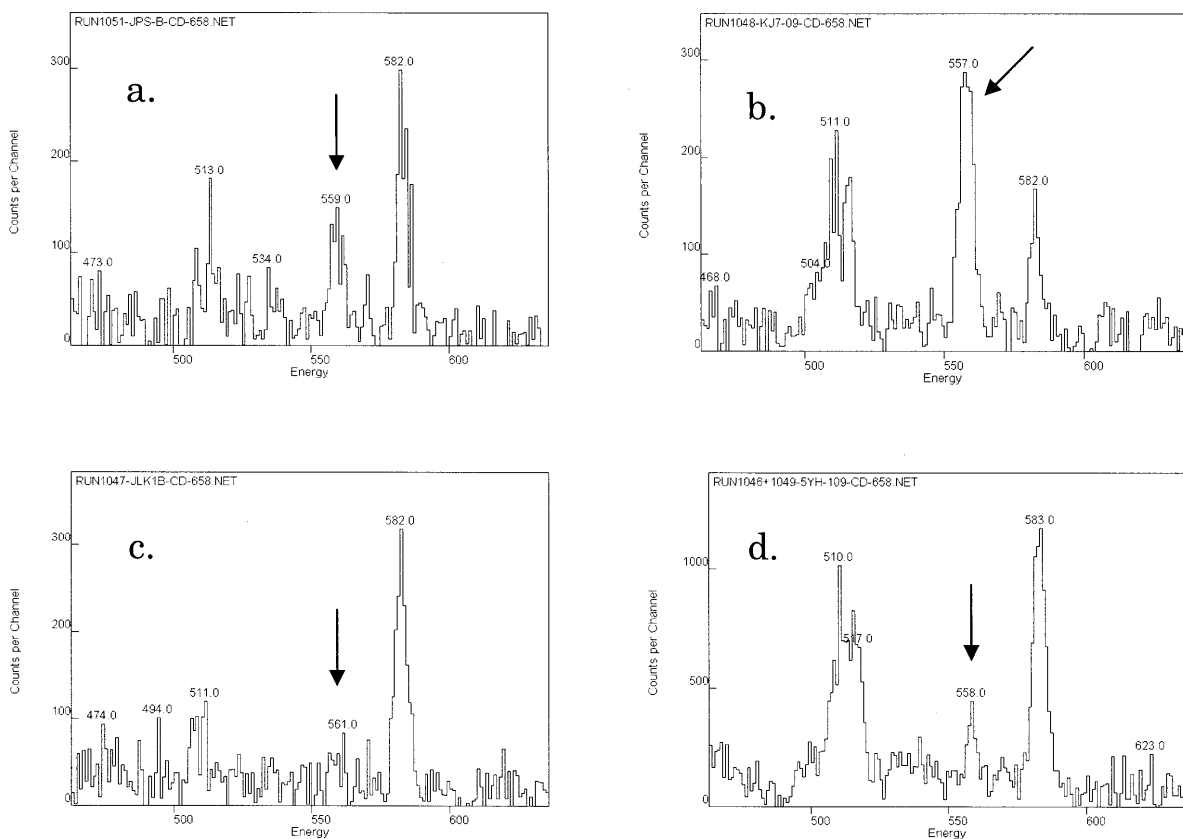


図1. 底質試料のCdガンマ線ペア(558.5-651.3keV)の射影スペクトル

a. JPS, b. 北十間川, c. JLK, d. 谷津干潟

多重即発ガンマ線分析法の宇宙地球化学的試料への適用

首都大学東京大学院理工学研究科

渡部良, 大浦泰嗣, 海老原充

1 はじめに

即発ガンマ線分析 (PGA) は, 迅速な非破壊多元素同時分析法で, 宇宙地球化学的試料では H, B, Na, Mg, Al, Si, S, Cl, K, Ca, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Sm, Gd が定量可能である. これらの元素のほとんどは, %オーダーで試料中に存在している主要元素で, 微量元素はわずかである. 多数の即発ガンマ線が一つの元素から放出されるため, 多元素が存在する試料ではガンマ線スペクトルが非常に複雑になり, 微量元素からの即発ガンマ線は, 主要元素からの即発ガンマ線に妨害され, 中性子捕獲断面積が非常に大きい微量元素以外は, ほとんど検出できないことが多い. 多重ガンマ線検出法を利用した PGA である多重即発ガンマ線分析 (MPGA) ではカスケード即発ガンマ線の同時計数により, ピークの分解能が向上し, コンプトン散乱に由来するバックグラウンド計数も減少する. よって, MPGA ではガンマ線の重畳が減少するため従来の PGA で測定困難な微量元素の定量や定量値の確度向上が期待される. 本研究では MPGA で宇宙地球化学的試料を正確に定量するために再現性, S/N 比, 試料重量などについて検討を行った.

2 実験

冷中性子照射とガンマ線測定は日本原子力研究開発機構 (JAEA) の JRR-3M 冷中性子ビームラインに設置された STELLA で行った. FEP フィルムに封入した試料を二酸化炭素雰囲気下で $2 \times 3 \text{ cm}^2$ の冷中性子ビームで照射した. STELLA の検出器は段階的に整備されたが, 本研究では, 4 つの Ge 半導体検素子から構成されるクローバー型 Ge 検出器 8 台とビスマスゲルマニウム酸化物 (BGO) シンチレータで構成された検出器システムで測定を行った. 不感時間を補正するために中性子照射では生成しない ^{133}Ba 標準線源を常に試料と同時に測定した. 測定データはイベントごとに記録され, 測定終了後, sorting と呼ばれるデータ処理を施し, 二次元スペクトルを得た.

3. 結果と考察

3.1 S/N 比

二次元スペクトルは, sorting と呼ばれる同時計数イベントデータの取捨選択と並べ替えを行って得られる. この sorting には, ノーマルモード, アドバックモード, アンチコインシデンスモード, という 3 種類の方法があり, それぞれはコンプトン散乱により生じる偽の同時計数イベントに対する処理の仕方が異なる [1].

ノーマルモードは, 同時計数イベントをすべて選び, エネルギー順に並べ替える. アドバックモードは, 4 つの Ge 素子が緊密に接しているクローバー検出器内で, 隣り合った 2 つの素子で同時検出されたイベントは, コンプトン散乱によるものとして, それぞれの素子で検出されたエネルギーの和をもつ 1 本のガンマ線が検出されたと見なす方法である. しかし, 2 本のガンマ線による真の同時

計数イベントまで、エネルギーを足し合わせてしまうおそれがある。一方、アンチコインシデンスモードでは、同様の隣り合った2つの素子で同時検出されたイベントはすべて棄却し、二次元スペクトル作成に用いない。計数率は減少するが、アドバックモードの様な偽ピークは生じない。各モードの違いを図1に模式的に示した。

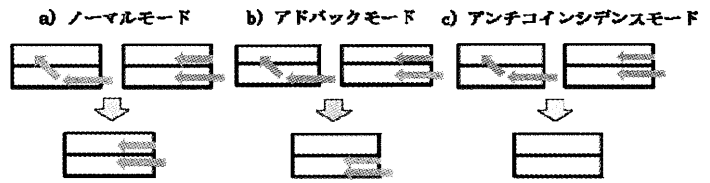


図1 異なる sorting モードによるデータ処理の概略図

岩石標準試料 JB-1 を測定し、上記3つのモードで sorting して、それぞれの二次元スペクトルを作成し、ピークの S/N 比(=ネットエリア/バックグラウンドエリア)を比較した。図2に、Fe(352 - 1260 keV) , Ti (342 - 1382 keV) , Si (3539 - 4934 keV) のピークに対して、アドバックモードとアンチコインシデンスモードでの S/N 比をノーマルモードでの S/N 比で規格化した値を示した。この3元素はピークの検出および定量が比較的容易に行えるために選んだ。各元素においてアドバックモードとアンチコインシデンスモードでの S/N 比はノーマルモードよりも約2倍高かった。ガンマ線ペアのエネルギーが低い

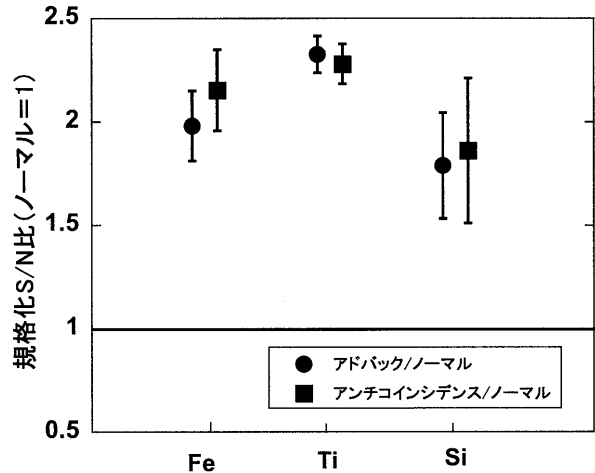


図2 JB-1 206 mg を測定したときの S/N 比. ノーマルモードでの S/N 比で規格化した。

ほど、S/N 比が改善されたが、高エネルギー領域はもともとバックグラウンド計数が少ないことによるものであろう。アドバックモードは偽ピークを生じる可能性があるため、本研究では、アンチコインシデンスモードによる sorting を行うこととした。なお、本稿では省略するが sorting モードが異なることにより濃度定量値の差異は生じないことを確認した。

表1はMPGAとPGAの両方で検出できた元素についてS/N比をMPGAでの同時計数エネルギーの一方が低い順に示した。ガンマ線エネルギーの低いGdとNaをのぞき、多重ガンマ線測定を行うことにより、S/N比が改善された。現状では、S/N比はガンマ線エネルギーが高い程改善される傾向がある。PGAでは、Naの472 keVのピークはBの幅広いピークに重なり、Mgの2828 keVのピークも重畳によりピーク形状がいびつであることが多く、低濃度の場合、ピーク面積が大変計算しにくい[2]。しかし、MPGAでは単一ピークとして観測されたので、定量確度の向上が期待できる。

表1 MPGA (JB-1 206 mg, 7199 秒測定) とPGA (JB-1 251 mg, 6929 秒測定) での S/N 比の比較. PGA では、通常、定量に用いているエネルギーを示した。

	MPGA		PGA	
	energy (keV-keV)	S/N	energy (keV)	S/N
Gd	80 - 944	0.207	182	0.817
Na	91 - 781	0.192	472	0.708
Mn	105 - 271	0.0783	314	0.0866
Co	159 - 277	0.0902	277	0.0655
Sm	334 - 439	0.437	333	0.456
Ti	342 - 1382	2.13	1382	1.53
Fe	352 - 1260	0.780	1725	0.514
Cl	517 - 1951	0.99	1164	0.12
Mg	585 - 2828	0.861	2828	0.147
K	771 - 1159	1.053	770	0.601
Ca	1943 - 2002	2.20	1942	1.27
Si	3539 - 4934	22.18	3538	1.98

3.2 不感時間

不感時間の補正は、試料と同時に ^{133}Ba 線源を測定し、これの 81 keV と 356 keV のガンマ線の同時計数率を試料間で比較することで行った。図 3 に重さの異なる岩石標準試料 JB-1 または JB-1a を測定した時の ^{133}Ba の同時計数率を、岩石標準試料なし(^{133}Ba 線源のみ)の時の計数率で規格化した値を示す。206 mg の ^{133}Ba 計数率は、試料なしのと比べ、約 40%にまで減少する。熱中性子を用いた通常の PGA では、206 mg の JB-1 測定時の不感時間は数%である。不感時間の絶対値はわからないが、MPGA は PGA に比べて不感時間が非常に高いことがわかった。

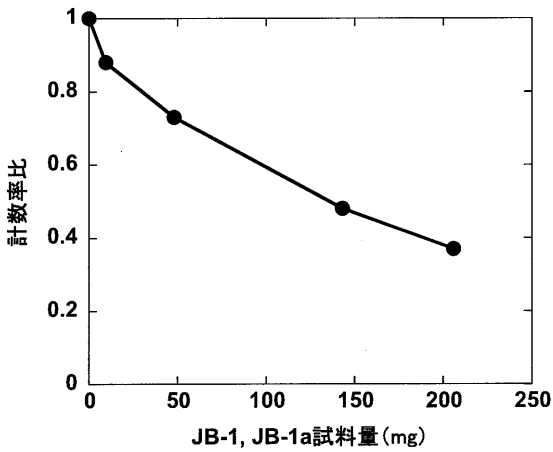


図 3 試料量に対する ^{133}Ba の同時計数率の変化。

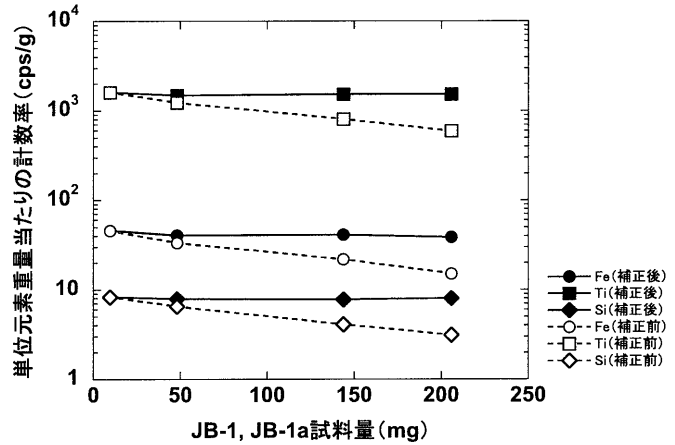


図 4 ^{133}Ba による補正前と補正後の単位元素重量当たりの計数率

重さの異なる JB-1 または JB-1a を測定した時の、Fe, Ti, ならびに Si の単位元素重量当たりの同時計数率を白で、 ^{133}Ba の計数率で不感時間を補正後の計数率を黒で、図 4 に示した。206 mg の試料は次節で述べるように複数回測定を行った。すべての試料量で、かつすべての元素で補正後の値は±3%以内で一致した。よって、 ^{133}Ba 線源の同時計数率の比較によって不感時間の補正は十分に可能であることがわかった。

3.3 再現性

JB-1 (206 mg) を 30 時間の中で 5 回それぞれ約 2 時間ずつ測定を行い、計数率の再現性を検討

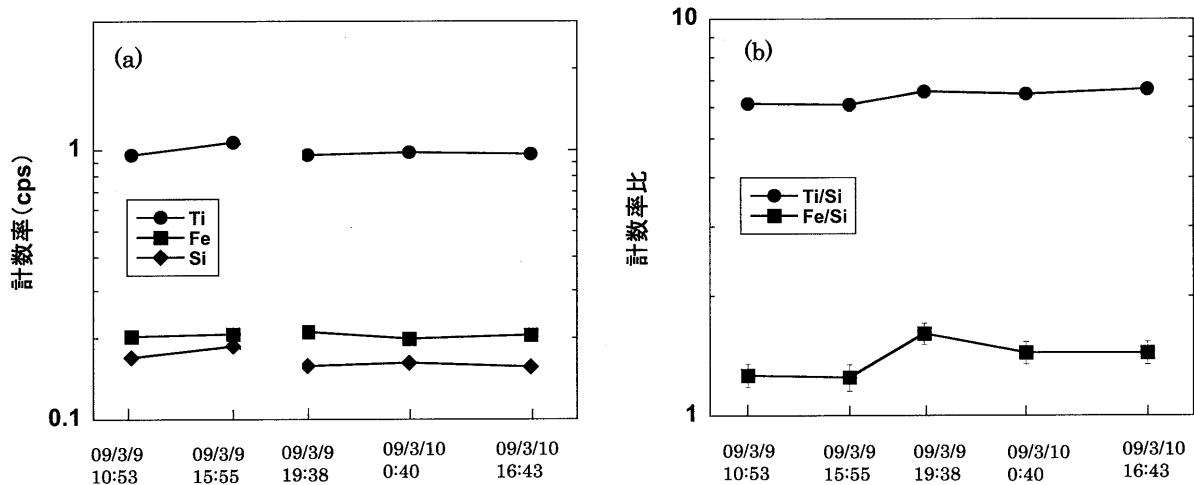


図 5 時間経過による Fe, Ti, Si の(a)計数率と(b)計数率比の変動

した。測定開始時刻に対する Fe, Ti, Si の計数率と、計数率比 Fe/Si と Ti/Si を図 5 に示した。この計数率の変動には、自動試料交換機による試料の照射/測定位置の再現性と、中性子束の変動を含む。最初の 2 回は ^{133}Ba 線源を同時に測定しなかったため、不感時間を補正していない計数率を、その後の 3 回は不感時間を補正した計数率を示した。不感時間を補正した 3 回の計数率は、3 回の平均値から Fe は $\pm 5\%$ 、Si は $\pm 1\%$ 、Ti は $\pm 1\%$ の変動を示した。鉄の変動が最も大きかったが、計数値の統計誤差は鉄で約 5%、Si と Ti で 2~3% であり、どれも誤差内で一致した。一方、不感時間に依存しない計数率比は、Fe/Si 比の変動が Ti/Si 比の変動よりも大きかったが、5 回の計数率比はそれぞれ $\pm 10\%$ 以内と $\pm 5\%$ 以内で一致した。計数率比の変動のほうが計数率の変動よりも大きかったが、はじめ 2 回とその後の 3 回で系統的に差が生じたことが原因である。 ^{133}Ba 線源を同時に測定しなかった時と比較して、 ^{133}Ba を同時に測定したときの Si 試料のスペクトルは、バックグラウンドがより高かったが、同時計数ガンマ線ピークの総計数値はほとんど同じであったため、Si の正味計数率が小さくなった。Fe や Ti ではこのような現象は観測されなかった。

3.4 試料量

岩石試料を効率良く測定するのに適切な試料量を検討した。JB-1 または JB-1a の試料量に対する Fe (352 - 1260 keV)、Ti (342 - 1382 keV)、Si (3539 - 4934 keV) のピークの S/N 比と不感時間未補正の計数率の変化を図 6 に示した。S/N 比は試料量増加と共に増加するが、50mg を越えると変化は穏やかで、150mg を越えるとほぼ一定となった。計数率も試料量の増加とともに大きくなるが、不感時間も増加するため試料量に比例しなかった。150 mg を超えると試料量増加に見合った計数率の向上はほとんど見込めない。そのため、試料量を 200 mg 以上にしても、測定条件上で利点はないと判断した。分析に供する試料量に制限がない場合、150 mg ~ 200 mg 程度の試料量が測定に適している。

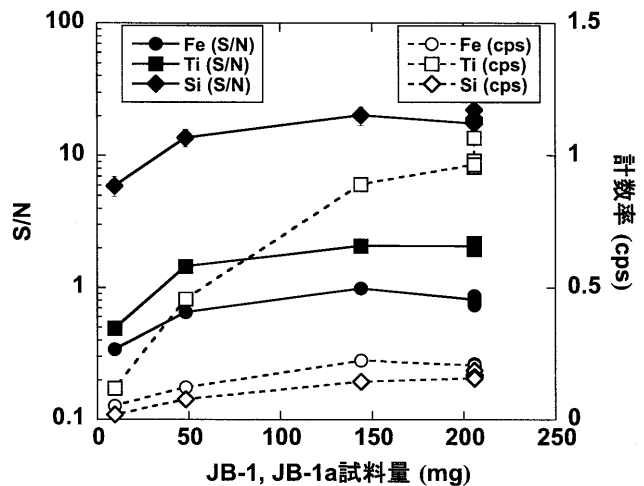


図 6 試料量に対する S/N 比と計数率の変化

3.5 宇宙地球化学的試料の定量

JS0-2 (230 mg)、Allende 隕石 (233 mg)、Gold Basin 隕石 (153 mg) を比較法と内標準法で定量した。比較標準試料には JB-1 (206 mg) を用いた。また、試料中に均一に存在し、ピークの S/N 比が最も良く、また、きれいな単一ピークである Si を内標準元素とした。

これらの試料のいずれかで現在までに検出が確認できた元素を濃度とともに表 2 に示した。主要元素の他、微量元素では中性子捕獲反応断面積が大きい Cd, Sm, Gd を検出できた。しかし、従来の PGA で検出できない元素はまだ検出できていない。今後更に、二次元スペクトルを精査していく予定である。

本研究での定量値の文献値 [2, 3, 4, 5] に対する比を図 7 に示す。JS0-2 の比較法による定量値は、

表 2 比較法による隕石・岩石試料

元素	energy (keV-keV)	Allende		JSO-2		Gold Basin		JB-1	
		233(mg)19626(sec)	[3][4]	230(mg)20084(sec)	[5]	153(mg)18706(sec)	[6]	[7]	
Na	% 781 - 91	0.361 ± 0.091	0.329	2.01 ± 0.27	0.76	0.4 ± 0.07	0.582	2.05	
Mg	% 2828 - 585	15.3 ± 0.7	14.9	1.1 ± 0.45	1	9.81 ± 0.47	13.3	4.65	
Si	% 3539 - 4934	15.93 ± 0.49	15.98	29.37 ± 1.03	19.75	17.5 ± 0.5	17.5	24.48	
Cl	ppm 517 - 1951	148 ± 5	320	375 ± 14	110	171 ± 8	140	176	
K	% 771 - 1159	0.0785 ± 0.0321	0.0295	2.094 ± 0.151	1.29	0.093 ± 0.037	0.079	1.19	
Ca	% 2002 - 1943	1.73 ± 0.16	1.86	0.732 ± 0.392	0.78	1.18 ± 0.16	1.41	6.61	
Ti	% 342 - 1382	0.091 ± 0.006	0.096	0.984 ± 0.021	0.7	0.06 ± 0.01	0.08	0.79	
Mn	% 271 - 105	0.123 ± 0.008	0.145	0.218 ± 0.02	0.136	0.219 ± 0.012	0.256	0.118	
Fe	% 1260 - 352	24 ± 0.7	23.7	10.53 ± 0.57	7.3	23 ± 1	23	6.29	
Co	ppm 159 - 277	682	682	1115 ± 69	1071	817 ± 38	697	38.2	
Cd	ppm 651 - 558	n.d.	0.43	101	101	n.d.	n.d.	0.11	
Sm	ppm 439 - 334	n.d.	0.302	8.15 ± 0.44	4.53	0.281 ± 0.089	0.788	5.13	
Gd	ppm 944 - 80	n.d.	0.39	n.d.	6.42	n.d.	n.d.	4.9	

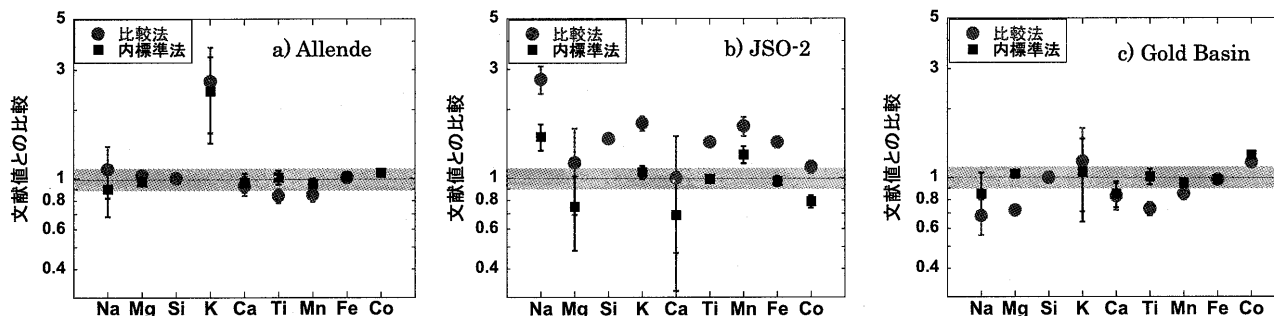


図 7 比較法と内標準法による定量値の文献値(Allende: 3, 4, JSO-2: 5, Gold Basin: 6)の比較. 文献値との比で表した.

系統的に文献値よりも高くなったが、原因はわからなかった。Allende 隕石の比較法の定量値は K を除き、±20%以内で文献値と一致した。K のずれは、低い計数率によると考えられる。そのため、誤差も大きい。内標準法は、いずれの試料でも文献値とよく一致し、元素間のばらつきも、比較法よりも小さかった。

4 まとめ

宇宙地球化学的試料を MPG 法に適用するために、現状の MPG 装置の性能や適切な測定条件を調べた。150~200 mg の試料量を用いて、アンチコインシデンスモードによる sorting で二次元スペクトルを得るのが適当であることがわかった。現状では、ほとんど主要元素の定量ができるだけだが、今後の検出器の調整等により定量可能な微量元素が増えることが期待される。

参考文献

- [1] Y. Toh et al(2007), J. Radioanal. Nucl. Chem. 272, 303-305.
- [2] Y. Karouji and M. Ebiyara (2008), Anal. Sci. 24, 659-663.
- [3] G. W. Kallemeyn et al(1981), Geochim. Cosmochim. Acta 45, 1217-1230.
- [4] E. Jarosewich et al(1987), Smithson. Contrib. Earth Sci, 27, 1-49.
- [5] S. Terashima et al(2001), Geostandard Newslett. 26, 85-94.
- [6] 浜中芳文(2009) 私信.
- [7] N. Imai et al (1995), Geostandard Newslett. 19, 135-213

研 究 会 報 告

2009年日本放射化学学会年会・第53回放射化学討論会 [2009年9月28-30日]

首都大学東京 大浦泰嗣

2009年の日本放射化学学会年会および放射化学討論会が2009年9月28日（月）～30日（水）に日本大学文理学部百周年記念館で開催されました。

今回は、日本放射化学学会設立10周年を記念したセッションが開催され、柴田徳思先生と田中知先生が、放射線の利用と原子力開発の現状とその将来について、それぞれ講演されました。ひきつづき、若手セッションがあり、現在活躍中の若手研究者7人が現在進めているホットな話題とともに、各分野の展望についての講演がありました。まだまだ、放射化学が活躍できる場はたくさんあることが再認識できましたが、放射化分析がかかわる話題がなかったのは残念ではあります。また、加速器質量分析(AMS)特別セッションも行なわれ、AMSを利用した幅広い分野からの発表が10件ありました。

講演は、上記セッション以外に、学会賞・奨励賞受賞講演3件、一般口頭発表63件、ポスター発表40件が行なわれました。恒例となった若手を対象とした優秀な口頭発表・ポスター発表者の表彰も行われ、次の4名が受賞しました。放射化分析に関する発表もめでたく表彰されました。

口頭発表部門：

粟飯原はるか(首都大学東京)：ユレライト隕石中の微量希土類元素の放射化学的中性子放射化分析による定量

荒木幹夫(金沢大学)：104番元素 Rf の化学的性質解明に向けた TIOA, TTA 逆相クロマトグラフィー

尾本隆志(大阪大学)：中間エネルギー領域の Cu, Nb 中性子核反応断面積測定(II)

ポスター部門：

川合健太(金沢大学)：広島原爆フォールアウト ^{236}U の探索

放射化分析に関連した発表は、例年より少なく、以下に示す口頭発表5件、ポスター発表3件の計8件ありました。放射化分析研究会総会が3日目の昼休みに開催されました。出席者が毎年固定されてきた感じもしますので、ぜひ皆さんをお願いいたします。

3A01 J-PARC中性子源特性試験装置における中性子共鳴吸収を用いた即発 γ 線分析

(原子力機構量子ビーム応用、原子力機構 J-PARC七、国際基督教大、国立歴史民俗博物館)

○松江秀明、春日井好己、原田正英、前川藤夫、久保謙哉、齋藤 努

3A02 PGAAによるNORM放射線源の分類

(お茶大院、東京慈恵医大、都立大、放医研) ○古田悦子、箕輪はるか、中原弘道、岩岡和輝、米原英典

3A03 雪氷中のダスト粒子に含まれる人為起源物質比の推定

(東大院総合文化、原子力機構) ○小豆川勝見、松尾基之、大島真澄、藤 暢輔、木村敦、小泉光生

3A04 多重即発ガンマ線分析法の宇宙地球化学的試料への適用

(首都大院理工、原子力機構) ○渡部良、大浦泰嗣、海老原充、大島真澄、藤 暢輔、木村 敦、小泉光生、古高和禎、村上幸弘

3A05 ユレライト隕石中の微量希土類元素の放射化学的中性子放射化分析による定量

(首都大院理工学) ○栗飯原はるか、大浦泰嗣、海老原充

1P20 有機態ハロゲン(EOX)のカワウ(*Phalacrocorax carbo*)体内における組織器官分布

(愛媛大農、(株)イーグレット・オフィス) ○河野公栄、志岐勇馬、梶 拓也、松田宗明、須藤明子、森田昌敏

1P21 亜鉛欠乏マウスのすい臓細胞中における微量元素の定量とタンパク質の変化

(静岡大院理、静岡大理放射研) ○下山弘高、村松 航、山本 督、川島美智子、菅沼英夫、矢永誠人

1P26 広島大学病院18MV医療用電子リニアック室内における中性子束の箔放射化法及びコンセントビスの放射化量による評価

(徳島大HBS放射線理工学、徳島大RIC、広島大病院診療支援部、高エネ研、清水建設原子力施設技術セ) ○阪間 稔、佐瀬卓也、大野吉美、中村 一、豊田晃弘、飯島和彦、小迫和明、大石晃嗣、榎本和義

施設便り

日本原子力研究開発機構

平成 21 年度は、JRR-3、JRR-4 の度重なる施設定期自主検査期間延長に伴う運転計画の変更により、利用者の皆様に多大なご迷惑をおかけし誠に申し訳ございません。深くお詫び申し上げます。

平成 22 年度から平成 23 年度の JRR-3 及び JRR-4 の運転・管理計画(案)をお知らせします。

■JRR-3

平成 22 年度の JRR-3 の運転・管理計画は、平成 22 年 4 月から 11 月下旬まで施設共用運転を行います。そして、平成 22 年 11 月下旬から平成 23 年 7 月上旬まで、施設定期自主検査期間となります。

■JRR-4

平成 22 年度の JRR-4 の運転・管理計画は、平成 22 年 4 月から 12 月下旬まで施設共用運転を行い、平成 22 年 12 月下旬から平成 23 年 6 月下旬まで施設定期自主検査となります。

平成 22 年度及び平成 23 年度の研究炉運転・管理計画(案)を下表に示します。

研究炉運転・管理計画(案)

年度	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月		
22 年度	JRR-3										年 末 ・ 年 始	施設定期自主検査(32週)		
	22-01	22-02	22-03	22-04	22-05	22-06	22-07	←						
	点検保守(2週) 19週 点検保守(3週) 14週													
23 年度	JRR-3										年 末 ・ 年 始	23-06 23-07 01		
	←												23週 3週	
	官庁立安検査 点検保守(1週)													
JRR-4										施設定期自主検査(24週)				
←														
←														

平成 22 年 12 月下旬から平成 23 年 6 月下旬まで JRR-3、JRR-4 共に施設定期自主検査期間となりますので、各実験設備及び照射設備の計画的なご利用をお願い致します。

利用日程のご相談、お問い合わせ等ございましたら、以下までご連絡ください。

研究炉加速器管理部 研究炉利用課 計画調整係

電話:029-282-5591 e-mail:kenkyuro-riyou@jaea.go.jp

URL <http://rrsys.tokai-sc.jaea.go.jp/rrsys/>

(研究炉加速器管理部研究炉利用課)

東京大学大学院工学系研究科原子力専攻共同利用管理本部 (大学開放研究室)

平成 22 年度原子力機構施設利用共同研究の研究課題申請は、10 月末をもって締め切られ、原子力科学研究所の施設利用が 70 件、高崎量子応用研究所の施設利用が 19 件、合計 89 件の課題申請がありました。これは前年度に比べ-1 件となります。現在、それらの課題審査が行われており、採否が決定次第、申請者へお知らせする予定です。なお、東海研利用の 70 件のうち、6 件が医療照射、中性子ビームを利用した中性子ラジオグラフィーおよび残留応力測定装置での研究課題が 22 件と、研究課題も多岐にわたり実施されています。

全国共同利用を推進していく上で、外部からの評価として「人材育成」にこの共同利用制度がどの程度、貢献しているかが重要となってきています。そのため、大学開放研としましては、利用者の皆様に卒業論文や学術論文数の情報提供のご協力をお願いしております。利用者の皆様には、引き続き、ご理解とご協力をお願い致します。

詳しくは、開放研ホームページ (<http://kaihoken.nuclear.jp/>) をご覧ください。

これらに関するご意見・ご質問は下記宛にお問い合わせ致します。

Address : kaihoken@kaihoken.nuclear.jp または sawahata@nuclear.jp

(澤幡浩之)

京都大学原子炉実験所

放射化分析研究会のメーリングリストでもお知らせ致しましたが、新燃料搬入の遅延のため KUR の運転再開の見通しが立っておりません。2009 年度の共同利用研究に申請を頂いていた皆様にはご迷惑をお掛けすることとなり申し訳ありません。韓国原子力研究所の HANARO を利用した放射化分析研究に関する共同利用実験は継続して行われており、研究成果がまとまりつつあるテーマもでてきました。まだ運転再開の見通しがついておりませんが、KUR 再開後も皆様のご支援、ご協力をお願い致します。

(高宮幸一)

東北大学原子核理学研究施設

平成 21 年 21 月 1 日より東北大学大学院理学研究科附属原子核理学研究施設は改組により、東北大学学内共同教育研究施設として東北大学電子光理学研究センターとなりました。

東京大学大学院工学系研究科原子力専攻共同利用管理本部 (大学開放研究室)

平成 22 年度原子力機構施設利用共同研究の研究課題申請は、10 月末をもって締め切られ、原子力科学研究所の施設利用が 70 件、高崎量子応用研究所の施設利用が 19 件、合計 89 件の課題申請がありました。これは前年度に比べ-1 件となります。現在、それらの課題審査が行われており、採否が決定次第、申請者へお知らせする予定です。なお、東海研利用の 70 件のうち、6 件が医療照射、中性子ビームを利用した中性子ラジオグラフィーおよび残留応力測定装置での研究課題が 22 件と、研究課題も多岐にわたり実施されています。

全国共同利用を推進していく上で、外部からの評価として「人材育成」にこの共同利用制度がどの程度、貢献しているかが重要となってきています。そのため、大学開放研としましては、利用者の皆様に卒業論文や学術論文数の情報提供のご協力をお願いしております。利用者の皆様には、引き続き、ご理解とご協力をお願い致します。

詳しくは、開放研ホームページ (<http://kaihoken.nuclear.jp/>) をご覧ください。

これらに関するご意見・ご質問は下記宛にお問い合わせ致します。

Address : kaihoken@kaihoken.nuclear.jp または sawahata@nuclear.jp

(澤幡浩之)

京都大学原子炉実験所

放射化分析研究会のメーリングリストでもお知らせ致しましたが、新燃料搬入の遅延のため KUR の運転再開の見通しが立っておりません。2009 年度の共同利用研究に申請を頂いていた皆様にはご迷惑をお掛けすることとなり申し訳ありません。韓国原子力研究所の HANARO を利用した放射化分析研究に関する共同利用実験は継続して行われており、研究成果がまとまりつつあるテーマもでてきました。まだ運転再開の見通しがついておりませんが、KUR 再開後も皆様のご支援、ご協力をお願い致します。

(高宮幸一)

東北大学原子核理学研究施設

平成 21 年 21 月 1 日より東北大学大学院理学研究科附属原子核理学研究施設は改組により、東北大学学内共同教育研究施設として東北大学電子光理学研究センターとなりました。

東京大学大学院工学系研究科原子力専攻共同利用管理本部 (大学開放研究室)

平成 22 年度原子力機構施設利用共同研究の研究課題申請は、10 月末をもって締め切られ、原子力科学研究所の施設利用が 70 件、高崎量子応用研究所の施設利用が 19 件、合計 89 件の課題申請がありました。これは前年度に比べ-1 件となります。現在、それらの課題審査が行われており、採否が決定次第、申請者へお知らせする予定です。なお、東海研利用の 70 件のうち、6 件が医療照射、中性子ビームを利用した中性子ラジオグラフィーおよび残留応力測定装置での研究課題が 22 件と、研究課題も多岐にわたり実施されています。

全国共同利用を推進していく上で、外部からの評価として「人材育成」にこの共同利用制度がどの程度、貢献しているかが重要となってきています。そのため、大学開放研としましては、利用者の皆様に卒業論文や学術論文数の情報提供のご協力をお願いしております。利用者の皆様には、引き続き、ご理解とご協力をお願い致します。

詳しくは、開放研ホームページ (<http://kaihoken.nuclear.jp/>) をご覧ください。

これらに関するご意見・ご質問は下記宛にお問い合わせ致します。

Address : kaihoken@kaihoken.nuclear.jp または sawahata@nuclear.jp

(澤幡浩之)

京都大学原子炉実験所

放射化分析研究会のメーリングリストでもお知らせ致しましたが、新燃料搬入の遅延のため KUR の運転再開の見通しが立っておりません。2009 年度の共同利用研究に申請を頂いていた皆様にはご迷惑をお掛けすることとなり申し訳ありません。韓国原子力研究所の HANARO を利用した放射化分析研究に関する共同利用実験は継続して行われており、研究成果がまとまりつつあるテーマもでてきました。まだ運転再開の見通しがついておりませんが、KUR 再開後も皆様のご支援、ご協力をお願い致します。

(高宮幸一)

東北大学原子核理学研究施設

平成 21 年 21 月 1 日より東北大学大学院理学研究科附属原子核理学研究施設は改組により、東北大学学内共同教育研究施設として東北大学電子光理学研究センターとなりました。

2009年度下半期採択課題

課題番号	代表者	所属	研究テーマ
2679	高宮 幸一	京大・炉	^{99m}Tc の壊変定数の化学形に対する依存性
2680	中西 孝	金沢大	フィッション・トラック法による ^{231}Pa の 光核分裂反応断面積の測定
2681	鹿野弘二	函館高専	放射化分析法による通信用材料中の不純物 評価
2682	鈴木達也	東工大	固体抽出剤を用いた希土類元素とアクチノイド元素の分離に関する研究
2683	大浦泰嗣	首都大	宇宙化学的試料および環境試料の光量子放射化分析
2684	佐藤修彰	東北大 多元研	韓国原子力分野学生実験プログラムー核燃料サイクルにおける加速器利用と RI 製造
2685	桐島 陽	東北大 多元研	選択硫化を用いる使用済燃料の再処理法の研究
2686	関本 俊	京大・炉	光量子放射化分析法による磁性球粒試料中の微量ニッケルの定量
2687	大槻 勤	核理研	半減期変化の系統的研究
2688	山村朝雄	東北大 金研	超臨界水利用の MOX 燃料製造と核分裂生成物分離に関する研究
2689	岩田高広	山形大	偏極陽子標的用ポリエチレン試料に対する低エネルギー電子線照射による液体窒素温度での不対電子生成の研究
2692	木野康志	東北大理	陽電子消滅 γ 線ドップラー拡がり測定装置の較正用線源(Sr-85)製造

(大槻勤)

事務局より

◇2009年度第1回放射化分析研究会拡大幹事会議事録

日時：9月28日（月）18:30-20:00

場所：日本大学文理学部百周年記念館ロビー

出席：海老原充，河野公栄，木川田喜一，初川雄一，三浦勉，宮本ユタカ，大浦泰嗣，高宮幸一，松江秀明，松尾基之，中西友子，大槻勤，関本俊（敬称略）

議題：

（1）幹事の役割

「合意事項」

- ・ 幹事は役割を分担し，積極的に会の運営に当たる。
- ・ 幹事の役割を次の7つに分類する；
編集，行事，選挙，会員，広報，監査，庶務
- ・ 行事，選挙，会員，広報は原則新旧幹事各1名とし，選挙は新幹事が，他は旧幹事が主義務を負う。ただし，本年はその限りでない。
- ・ 開放研を事務局とし，会計業務をお願いする。
- ・ 本年度の役割分担を以下の通りとする；
編集：大浦，三浦，宮本
行事：初川，福島
選挙：木川田，松尾
会員：松江，澤幡
広報：高宮，榎本
監査：河野
庶務：海老原
- ・ 監査，選挙は編集も分担する。（但し，本年度は選挙幹事はその限りでない。）

「各幹事の当座の action item」（特記されない業務は通常通り）

- ・ 行事：KURの専門研究会の日程をなるべく早く会員に紹介する。
- ・ 選挙：選挙制度の見直し案を12月中にまとめて，幹事間に紹介。KUR専門研究会中に開催予定の第2回幹事会で最終案を作成。次回の幹事選挙から実施。
- ・ 会員：会費の納入状況を明らかにし，今後の会費徴収増を図るための方策を検討する。また，未納会員に対しての取り扱いに関する案を作成する。
- ・ 広報：出来るだけ迅速に web の内容の更新を行う。会員の各種授賞もニュースとして積極的に取り上げる。
- ・ 監査：監査をどのくらい厳密にする必要があるかを調査し，今後の監査の方針案を作成する。

（2）申し合わせの整理

a. 年度の区切り

年度の区切りを以下の通りとし，これ以降を新年度とする。この申し合わせは過去に遡って呼び方を統一する。

会計：4月

幹事の任期：日本放射化学会年会会期から翌年の会期

b. 選挙制度の整備

幹事の選挙方法，代表幹事の選挙方法を再検討し，次回の選挙から実施する。上記（1）の「各幹事の action item」の選挙の項参照。

c. 編集担当幹事の位置づけ

従来通りとし，特別の取り決めをしない。

d. 会計担当幹事の位置づけ

会計幹事をおかず，事務局（開放研）に会計をお願いする。

（3）会計報告（澤幡幹事；松江幹事が代理で報告）

2008 年度の会計状況として単年度で僅かながら黒字であることが報告され，河野幹事から会計が適切であるとの監査報告があった。MTAA12 に融通してある基金をあわせると約 100 万円の財産を持つことを確認した。

（4）会の活性化，将来構想

会の活性化につながる将来構想として以下の項目があることが紹介され，特に放射化分析を優れた分析法であることをアピールするために，分析化学会での発表が継続的に行われることが望ましいことを確認した。個々の課題については時間がないうちに議論できなかった。

a. KUR ユーザー（KUR 利用者の会）との連携

b. KA3 との連携

c. 放射化分析アジア連合

FNCA 活動を基盤にできるか？APSORC でのセッション提案

d. JAEA での研究用原子炉将来構想

JRR-3, JRR-4, JRR-5

e. J-PARC での実験

f. 分析法としての認知

分析化学会での発表

（5）その他

特になし。

◇第 53 回放射化学討論会 放射化分析分科会報告

開催日時：平成 21 年 9 月 30 日（水） 12：55～14：05

開催場所：日本大学文理学部百周年記念館 会議室 1

参加者：約 25 名

世話人：東大院総合 松尾基之

この分科会は放射化分析研究会の総会を兼ねており、当研究会で運営することが放射化学会理事会で了承されている。本年の分科会は与えられた時間が 1 時間しかなかったため、昨年までのような講演は計画せず、分科会の内容は、施設関連の報告、会の運営に関する報告、今後の活動等、情

幹事の任期：日本放射化学会年会会期から翌年の会期

b. 選挙制度の整備

幹事の選挙方法，代表幹事の選挙方法を再検討し，次回の選挙から実施する。上記（1）の「各幹事の action item」の選挙の項参照。

c. 編集担当幹事の位置づけ

従来通りとし，特別の取り決めをしない。

d. 会計担当幹事の位置づけ

会計幹事をおかず，事務局（開放研）に会計をお願いする。

（3）会計報告（澤幡幹事；松江幹事が代理で報告）

2008 年度の会計状況として単年度で僅かながら黒字であることが報告され，河野幹事から会計が適切であるとの監査報告があった。MTAA12 に融通してある基金をあわせると約 100 万円の財産を持つことを確認した。

（4）会の活性化，将来構想

会の活性化につながる将来構想として以下の項目があることが紹介され，特に放射化分析を優れた分析法であることをアピールするために，分析化学会での発表が継続的に行われることが望ましいことを確認した。個々の課題については時間がないうちに議論できなかった。

a. KUR ユーザー（KUR 利用者の会）との連携

b. KA3 との連携

c. 放射化分析アジア連合

FNCA 活動を基盤にできるか？APSORC でのセッション提案

d. JAEA での研究用原子炉将来構想

JRR-3, JRR-4, JRR-5

e. J-PARC での実験

f. 分析法としての認知

分析化学会での発表

（5）その他

特になし。

◇第 53 回放射化学討論会 放射化分析分科会報告

開催日時：平成 21 年 9 月 30 日（水） 12：55～14：05

開催場所：日本大学文理学部百周年記念館 会議室 1

参加者：約 25 名

世話人：東大院総合 松尾基之

この分科会は放射化分析研究会の総会を兼ねており、当研究会で運営することが放射化学会理事会で了承されている。本年の分科会は与えられた時間が 1 時間しかなかったため、昨年までのような講演は計画せず、分科会の内容は、施設関連の報告、会の運営に関する報告、今後の活動等、情

報交換、及び意見交換の場にすることとした。

議事内容：

1. 京都大学原子炉実験所施設報告（関本 俊）

- ・KURの再開に向けての現状報告

KURの再開は、平成22年度のなるべく早い時期との説明があった。（その後、新燃料の運搬が遅延することがほぼ確実となったとの知らせが、JA3メールに配信された。）

- ・平成21年度京大炉専門研究会の開催計画

来年1月に、例年通り、放射化分析冬の学校を兼ねた研究会が計画されている旨が報告された。

後日のJA3メールによると、計画の詳細は以下の通り。

題名「京大炉(KUR)における総合的微量元素計測システムの構築と応用」

開催日：平成22年1月26日（火）9:00-17:30(予定)

場所：京都大学原子炉実験所事務棟大会議室

2. 日本原子力研究開発機構原子力科学研究所施設報告（松江秀明）

- ・JRR-3MとJRR-4の再開についての現状報告

JRR-3Mは施設定期自主検査を11月に終え、予定通りに第4サイクルの運転を開始する。JRR-4は問題のあった反射体を含む全33本の反射体を新たに作成し、平成21年11月より利用を開始する予定である旨が報告された。また、会場から、4号炉の低出力運転についての要望が出された。

- ・PGAの利用計画について

PGAは予定通り11月末から運転予定であり、10月中にマシンタイム希望調査を行う旨が報告された。

3. 原子力機構における多重ガンマ線分析研究報告（大島真澄）

- ・JRR-3MにおけるMPGA開発のこれまでの経緯
- ・J-PARC物質生命科学実験施設(MLF)における中性子実験施設の開発
- ・エネルギー較正ソフト開発の現状
- ・STELLA、GEMINI-II、NNRIの今後の利用について

なお、これらの装置の実用化に向けて、H22年度以降、ユーザーの積極的な利用が期待されていることが表明された。

4. 放射化分析研究会会計報告（松江秀明）

- ・2008年度の会計報告が行われ、出席者の拍手によって承認された。

5. 放射化分析研究会拡大幹事会報告（海老原 充）

- ・9月28日に開催された、放射化分析研究会拡大幹事会の報告があった。詳細は、本誌に掲載されている拡大幹事会議事録をご参照下さい。

なお、次回の放射化学討論会は、2010年9月27-29日に大阪大学吹田キャンパスにて開催される予定である。放射化分析分科会の世話人は、行事担当の初川幹事と福島幹事が担当することになった。

（報告者 松尾基之）

カレンダ－

2010/1/26

京都大学原子炉実験所専門研究会「京大炉(KUR)における総合的微量元素計測システムの構築と応用」

京都大学原子炉実験所

2010/3/26 - 28

日本原子力学会 2010 年春の年会

茨城大学 水戸キャンパス

http://www.aesj.or.jp/meeting/2010s/j/J10Spr_TOP.html

参加申込締切: 2010/2/16

2010/3/26 - 29

日本化学会第 90 春季年会

近畿大学 東大阪キャンパス

<http://www.chemistry.or.jp/nenkai/90haru/index.html>

参加申込締切: 2010/2/27

2010/4/18 - 23

16th Radiochemical Conference (RadChem2010)

Marianske Lazne, Czech Republic

<http://www.radchem.cz/>

2010/5/15 - 16

第 71 回分析化学討論会

島根大学松江キャンパス

<http://www.jsac.or.jp/touronkai/71touron/kouen.html>

講演申込締切: 2010/1/20

参加申込締切: 2010/4/21

2010/6/21 - 23

第 19 回環境化学討論会

中部大学春日井キャンパス

<http://wwwsoc.nii.ac.jp/jec/conference/19th/index.html>

講演申込締切: 2010/1/29

参加申込締切: 2010/5/14

2010/7/7 - 9

第 47 回アイソトープ・放射線 研究発表会

日本科学未来館

<http://www.jrias.or.jp/index.cfm/1,html>

講演申込締切: 2010/2/28

2010/9/15 - 17

日本分析化学会第 59 年会

東北大学川内北キャンパス

http://www.jsac.or.jp/~jsac_ne/59nenkai/59nenkaiindex.html

2010/9/27 - 29

2010 日本放射化学会年会・第 54 回放射化学討論会

大阪大学吹田キャンパス

<http://www.chem.sci.osaka-u.ac.jp/lab/shinohara/rc54/>

2010/11/7 - 13

Application of Radiotracers in Chemical, Environmental and Biological Sciences
(ARCEBS 10)

Bidhannagar, India

<http://www.saha.ac.in/cs/arcebs.2010/>

要旨締切: 2010/5/15

参加申込締切: 2010/9/15

2010/12/15 - 20

The 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010)

Honolulu, USA

<http://www.chemistry.or.jp/international/pacificchem2010/Top.html>

要旨締切: 2010/4/5

2011/3/13 - 18

13th International Conference on Modern Trends in Activation Analysis (MTAA-13)

Texas A&M University, USA

<http://tti.tamu.edu/conferences/mtaa13/>

編集後記

○ 今年度は、JRR-3 と JRR-4 がともにほとんど運転をせず、中性子放射化分析が実施できない状況でしたが、ようやく、JRR-3 の運転再開のニュースが飛び込んできました。JRR-4 の年度末には運転再開されるようです。

△ 京大炉は、新燃料の搬入が遅れていますが、来年度中に共同利用が再開できるよう準備が進められています。これでしばらくは、JRR-3, JRR-4, KUR のうちどれか 1 基は、運転されている状況が続くものと思われます。しかしながら、KUR の運転は 2016 年までとなっており、その後については、今のところ未定です。我々は中性子を利用するユーザーですが、大学に属する原子炉、あるいは中性子源のあり方についてどうあるべきか考え、意見を発信していかなければならないのではないかと思います。

□ MTAA-12 に参加された会員の皆様には、会議録の CD-ROM は届いておりますでしょうか。会議録の発送が終わり、これでようやく MTAA-12 の事業がほぼ終了しました。いろいろご協力ありがとうございました。次回、MTAA-13 は、2011 年 3 月にテキサス A&M 大学にて開催されます。MTAA の 50 周年記念の大会です。年度末で忙しいかもしれませんが、大学では、D 論、修論、卒論も終わり、ちょっと一息できる頃かもしれません。M2 や卒研究生の卒業旅行というのは無理ですかね。

(Y.O.)

本会誌の内容および投稿募集

放射化分析研究会の情報媒体は、定期刊行機関紙「放射化分析」、および電子メールです。会誌「放射化分析」は下記の記事で構成されます。

講座・特集・解説:

専門的な記事を毎号企画していきます。記事の内容についてのご希望や提案をお寄せください。

研究紹介:

放射化分析に関する研究、放射化分析を用いた研究を紹介していきます。

研究の当事者にまとまった内容を執筆していただくものと、秀れた論文を紹介するものがあります。

特に紹介したい研究についてご意見をお寄せください。

Q&A:

会員から質問を受けて、回答やアドバイスを掲載します。どのような質問でも結構です。

回答者は幹事会が責任をもって会員の中から選定します。

施設だより:

放射化分析を行うことができる共同利用施設の近況報告、また、採択されている研究課題などを掲載します。

談話室:

会員の気軽なおしゃべりの場です。要望、話題、新刊紹介、その他、どのような内容でも結構です。

若い声:

学生や若手研究者およびこれから放射化分析を手がけようとする方々の新鮮な声を反映させる欄です。

研究会報告・最近の動向等:

最近開催された研究会の報告です。放射化分析が取り扱われている研究は広範囲な分野に顔を出している筈です。放射化分析が関係している研究課題が1件でもあれば、この欄に取り上げたいと思います。

会員の皆さんからの情報提供をお待ちしています。

博士論文・修士論文・卒業論文抄録

事務局より

会員名簿

原稿は A4 横書き、40 字 x40 行、上下マージン 25mm、左右マージン 20mm を標準として、電子ファイルにより提出してください。編集の際にレイアウトを工夫させていただくこともあります。これ以外でもご相談に応じます。

本会誌に掲載された著作の著作権は放射化分析研究会に帰属します。

幹事会・事務局への連絡・要望等は JA3-jimu@kaihoken.nuclear.jp に発信して下さい。

メールアドレスを持っているけれど、事務局等からの電子メールを受け取ったことの無い会員は、アドレスが正しく登録されていない可能性があります。お心当たりの方は事務局宛ご連絡下さい。入力を修正します。

放射化分析研究会

事務局 319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

日本原子力研究開発機構内 東京大学共同利用管理本部

TEL 029-282-5516 FAX 029-287-2464

E-mail: JA3-jimu@kaihoken.nuclear.jp

HomePage: <http://wwwsoc.nii.ac.jp/ja3/>

幹事

海老原充、大浦泰嗣、岡田往子、河野公栄、木川田喜一、澤幡浩之、高宮幸一
初川雄一、榎本和義、松江秀明、松尾基之、三浦勉、宮本ユタカ