

論	文
---	---

## 14MeV 中性子による標準岩石試料の放射化分析 における実験設定条件に関する二、三の検討

近 藤 嘉 秀

### Some Discussions as to Setting of Experimental Conditions on the Activation Analysis of Standard Rock Samples with 14MeV Neutrons

Yoshihide KONDO

(Received June 30, 1986)

So many short-lived nuclides are produced by 14MeV neutron activation. Some elements in analytical materials are easily determined by the activation. Cyclic activation method with 14-MeV neutrons is useful to determine nondestructively major elements contained in standard rock samples. The method has the advantage of sensitivity improvement in activation analysis. Optimization is necessary for setting of experimental conditions in this method. We intend to discuss theoretically as to the setting conditions on the activation analysis of standard rock samples with 14MeV neutrons.

#### KEYWORDS

rock sample, activation analysis, fast neutron, cyclic activation, short-lived nuclide, gamma-ray spectrum.

#### 1. 緒 言

一般に、低出力の加速器を始め、低線束の RI 線源などを放射化実験に利用する際には、生成放射能の収量不足が実験遂行上の大きな制約となる。14MeV 中性子を用いて放射化分析を行う場合、利用できる中性子束は一般に小さく、また放射化断面積も劣るため、あまり大きな RI 生成収量は期待できない。このため、検出感度は熱中性子を利用する場合よりも劣る事例が多く、この点が 14MeV 中性子を放射化線源として利用する際の最大の障壁となる。

しかし、14MeV 中性子による放射化では熱中性子を利用する場合よりも短寿命核種が多く生成する。Fig. 1 に 14MeV 中性子と熱中性子の放射化により

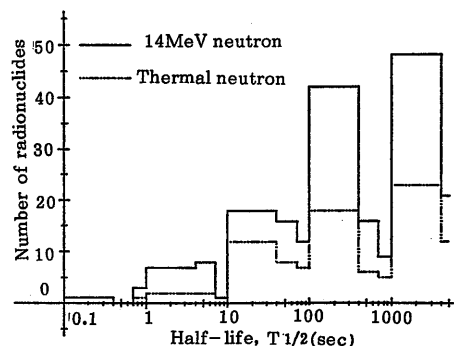


Fig. 1 Number of radionuclides with respect to half-lives of products within 0.1 and 4000 seconds.

生成が可能な放射性核種の数とその半減期の関係を示す。これは Neutron Activation Tables<sup>1)</sup> のデータ

Table 1 Major elements contained in the GSJ standard rocks<sup>2)</sup>

Major Element (%)	JG-1	JB-1	JB-2	JB-3	JA-1	JGb-1	JR-1	JR-2
Na <sub>2</sub> O (Na)	3.39 (2.51)	2.79 (2.07)	2.03 (1.51)	2.82 (2.09)	3.86 (2.86)	1.23 (0.91)	4.10 (3.04)	4.03 (2.99)
MgO (Mg)	0.74 (0.45)	7.73 (4.66)	4.66 (2.81)	5.20 (3.14)	1.61 (0.97)	7.83 (4.72)	0.09 (0.05)	0.05 (0.03)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (Al)	14.20 (7.52)	14.53 (7.69)	14.67 (7.76)	16.89 (8.94)	14.98 (7.93)	17.66 (9.35)	12.89 (6.82)	12.82 (6.78)
SiO <sub>2</sub> (Si)	72.30 (33.80)	52.17 (24.39)	53.20 (24.87)	51.04 (23.86)	64.06 (29.94)	43.44 (20.31)	75.41 (35.25)	75.65 (35.36)
K <sub>2</sub> O (K)	3.95 (3.28)	1.42 (1.18)	0.43 (0.36)	0.80 (0.66)	0.82 (0.68)	0.26 (0.22)	4.44 (3.69)	4.48 (3.72)
CaO (Ca)	2.18 (1.56)	9.29 (6.64)	9.89 (7.07)	9.86 (7.05)	5.68 (4.06)	11.98 (8.56)	0.63 (0.45)	0.45 (0.32)
TiO <sub>2</sub> (Ti)	0.26 (0.16)	1.34 (0.80)	1.19 (0.71)	1.45 (0.87)	0.87 (0.52)	1.62 (0.97)	0.10 (0.06)	0.09 (0.05)
FeO (Fe)	1.63 (1.27)	6.00 (4.66)	10.09 (7.84)	7.90 (6.14)	4.08 (3.17)	9.24 (7.18)	0.50 (0.39)	0.43 (0.33)
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (Fe)	0.39 (0.27)	2.28 (1.59)	3.13 (2.19)	3.10 (2.17)	2.42 (1.69)	4.89 (3.42)	0.40 (0.28)	0.38 (0.27)
Sum (Sum)	99.04 (50.82)	97.55 (56.68)	99.29 (55.12)	99.06 (54.92)	98.38 (51.82)	98.15 (55.64)	98.56 (50.03)	98.38 (49.85)

を分類整理したものである。生成核種数は半減期が0.1秒以上100秒未満では14MeV中性子によるものが66、熱中性子によるものが34である。100秒以上1,000秒未満の半減期に対しては14MeV中性子が67、熱中性子が29、半減期1,000秒以上4,000秒未満では14MeV中性子が48、熱中性子が23となる。このように14MeV中性子による放射化では熱中性子の場合の約2倍の短寿命放射性核種の生成が期待できる。

標準岩石試料を照射試料として用いる場合について検討する。Table 1 に日本地質調査所 (GSJ) より発行されている標準岩石試料とその中に含まれた主要成分 (%) を示す。これらの岩石試料は JG-1 (花こうせん緑岩), JB-1~3 (玄武岩), JA-1 (安山岩), JGb-1 (斑れい岩), JR-1~2 (流紋岩) の8種類である。岩石試料中には表記した主要成分以外に約60種類の微量成分を含んでいるが、主要成分だけで全体の98~99%を占める。記載した含有成分及び含有率は安藤らの発表データ<sup>2)</sup>より引用したものである。また、主要成分

より換算した元素含有率 (%) を ( ) 書で併記した。いずれの標準岩石試料中にも Si, Al は多量に、Na は相当量含まれている。しかし、他の元素に関しては岩石の種類によって含有率がかなり異なる。JB-1~3, JGb-1 は Ca, Fe を多量に、Mg を相当量含むが、K は余り含まない。JG-1, JR-1~2 では K を相当量含むが、Mg, Ca, Ti は余り含まない。

Table 2 は岩石試料に含まれた主要元素の熱中性子及び14MeV中性子放射化により生成が期待できる代表的な放射性核種とその生成量を示す。但し、原著<sup>1)</sup>では第6欄に示した Activation product の照射中性子束が熱中性子と14MeV中性子の場合で異なっているが、この表では両者共に  $10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>/sec に統一した。熱中性子放射化により得られる放射性核種は (n,  $\gamma$ ) 反応によるもののみであるが、14MeV中性子では (n,  $\alpha$ ), (n, p), (n, 2n) 反応などにより多くの放射性核種が生成する。Table 2 に示すように、14MeV中性子による放射化では熱中性子と比べて放射化断面

**Table 2** Main radioactive products<sup>1)</sup> obtainable from the GSJ standard rocks with thermal and 14-MeV neutron activations

Element	Abundance [%]	Reaction	Hal flife of product	Cross-section	Activation product <sup>*)</sup>	Main $\gamma$ -line [keV(intensity)]
O	0.205	$^{18}\text{O}(n, \gamma)^{19}\text{O}$	27.1 s	160. $\mu\text{b}$	0.000109	197(97)
	99.756	$^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$	7.13 s	39. mb	14.6	6128(69)
Na	100.	$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	15.02 h	530. mb	0.108	1369(100)
	100.	$^{23}\text{Na}(n, p)^{23}\text{Ne}$ $(n, \alpha)^{20}\text{F}$	37.6 s 11.0 s	43. mb 150. mb	7.54 38.4	439(100) 1633(100)
Mg	11.01	$^{26}\text{Mg}(n, \gamma)^{27}\text{Mg}$	9.45 m	38.2 mb	0.0747	844(72), 1014(28)
	78.99	$^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$	15.02 h	190. mb	0.0286	1370(100)
	10.00	$^{25}\text{Mg}(n, p)^{25}\text{Na}$	60. s	44. mb	0.545	391(13), 586(13)
	11.01	$^{26}\text{Mg}(n, p)^{26}\text{Na}$ $(n, \alpha)^{23}\text{Ne}$	1.00 s 37.6 s	27. mb 77. mb	0.737 1.41	1809(100) 439(33)
Al	100.	$^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$	2.246m	232. mb	14.1	1779(100)
	100.	$^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$	9.45 m	75. mb	1.18	844(72), 1014(28)
		$(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ $(n, 2n)^{26\text{m}}\text{Al}$	15.02 h 6.35 s	116. mb < 0.17mb	0.0199 0.0379	1370(100) 511(164), 1809(100)
Si	3.1	$^{30}\text{Si}(n, \gamma)^{31}\text{Si}$	2.62 h	107. mb	0.00352	1266(0.07)
	92.2	$^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$	2.246m	230. mb	12.1	1779(100)
	4.7	$^{29}\text{Si}(n, p)^{29}\text{Al}$	6.52 m	120. mb	0.122	1273(91), 2426(5.5)
	3.1	$^{30}\text{Si}(n, \alpha)^{27}\text{Mg}$	9.45 m	70. mb	0.0329	844(72), 1014(28)
K	6.7	$^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$	12.36 h	1.46 b	0.0144	1525(18)
	93.3	$^{39}\text{K}(n, 2n)^{38\text{m}}\text{K}$ $^{38}\text{K}$	929. m s 7.63 m	800. $\mu\text{b}$ 3.5 mb	0.115 0.0437	511(200) 511(200), 2167(100)
Ca	0.19	$^{48}\text{Ca}(n, \gamma)^{49}\text{Ca}$	8.72 m	1.1 b	0.0244	3084(92)
	96.94	$^{40}\text{Ca}(n, 2n)^{39}\text{Ca}$	870. ms	8. mb	1.17	511(200)
	2.08	$^{44}\text{Ca}(n, p)^{44}\text{K}$	22. m	35.5 mb	0.00344	1157(85), 2150(29)
Ti	5.3	$^{50}\text{Ti}(n, \gamma)^{51}\text{Ti}$	5.76 m	179. mb	0.202	320(95), 929(5)
	5.3	$^{50}\text{Ti}(n, p)^{50}\text{Sc}$	1.71 m	17. mb	0.0378	524(88), 1121(100)
Fe	0.31	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$	44.6 d	1.15 b	0.0000427	1099(56), 1292(44)
	91.7	$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	2.582 h	103. mb	0.0455	847(99), 1811(30)
	2.19	$^{57}\text{Fe}(n, p)^{57}\text{Mn}$	1.59 m	75. mb	0.0626	122(9.5), 692(2.7)

\*) Decays/sec/ $1\mu\text{g}$  element irradiated at  $10^{10}\text{n/cm}^2/\text{sec}$  for 1 min.

積は劣るが、比較的短寿命の核種が多く生成する。同一中性子束の短時間照射に限定すれば、生成放射能はAlの場合を除いて、むしろ14MeV中性子が優勢となる。また、加速器において長時間一定の照射中性子束を維持する困難さ、 $^3\text{H}$ ターゲットの寿命などを勘

案すると14MeV中性子を利用する際には、短寿命の生成核種に着目する方が得策である。

このような場合には繰り返し放射化法が有効と考えられる。繰り返し放射化法によれば、測定系に蓄積される計数値は実験時間の経過に連れて増加する。適切

に利用すれば、非常に有効な方法となる。このため、元素によっては繰り返し放射化法の適用により検出感度の改善が可能となる。繰り返し放射化法では一定の繰り返し周期  $T$  (放射化—輸送—測定—輸送),  $n$  回の連続的な繰り返し放射化により測定系に蓄積される計数値  $D_n$  は次式で示される<sup>3),4)</sup>。

$$D_n = \frac{Nf\sigma\epsilon}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_a})^2 \cdot (e^{-\lambda t_t}) \cdot \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda T}} - \frac{e^{-\lambda T}(1 - e^{-n\lambda T})}{(1 - e^{-\lambda T})^2} \right] \quad (1)$$

ここに、 $N$ : 標的核の原子数,  $f$ : 中性子束,  $\sigma$ : 放射化断面積,  $\epsilon$ : 検出効率,  $\lambda$ : 生成核種の崩壊定数である。但し、(1)式は放射化時間  $t_a$  を測定時間に等しく置いた場合に得られる式である。この場合、試料の輸送時間を  $t_t$  とすると繰り返し周期  $T$  は  $2(t_a + t_t)$  で示される。また、[ ] 内は繰り返し放射化による蓄積効果を表し、 $n \geq 2$  においては1より大きい値となる。しかし、 $n=1$  においては1となり、通常の放射化法により得られる蓄積計数値 ( $D_1$ ) を表す。繰り返し放射化法により得られる蓄積計数値 ( $D_n$ ) は  $t_a$ ,  $t_t$ ,  $n$  の設定値の組み合わせと  $\lambda$  の値により変化する。

14MeV 中性子による放射化では比較的、多くの短寿命核種が生成する。また、長寿命の妨害核種による生成放射能の影響が少ない。このため、試料を照射しながら、または照射直後からの測定が可能となる。これらの特徴を活用すれば特定の元素に関しては簡易的な放射化分析が期待できる。14MeV 中性子放射化分析により標準岩石試料中の成分元素を非破壊定量するには繰り返し放射化法が活用できる。この方法の利用に際して留意すべき実験上の設定条件に関して二、三の検討を行った。

## 2. 設定条件の解析

繰り返し放射化法により得られる蓄積計数値  $D_n$  は放射化時間  $t_a$ , 試料輸送時間  $t_t$ , 繰り返し数  $n$  の設定値の組み合わせと生成核種の半減期  $T_{1/2}$  の値により変化する。この場合、実験時間  $nT$  は長く、 $t_t$  は短くとるほど大きな  $D_n$  値が得られるが、これらの値を一定と考えると  $T_{1/2}$  の値により最適繰り返し数  $n_{opt}$  が変化する。 $n_{opt}$  はある特定の  $T_{1/2}$  に対して  $D_n$  が最大となる  $n$  の設定値である。いま、 $nT=1,200$  秒,  $t_t=0.3$  秒の一定値について考える。この場合の最適繰り返し数  $n_{opt}$  と生成核種の半減期  $T_{1/2}$  の関係

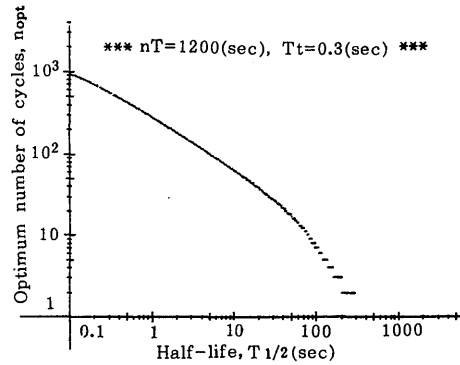


Fig. 2 Optimum number of cycles vs. half-life of product

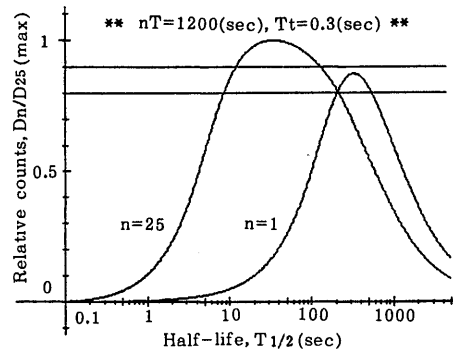


Fig. 3 Relative accumulated counts vs. half-life of product

を Fig. 2 に示す。 $n_{opt}$  は 0.1 秒の  $T_{1/2}$  に対して 900 回, 1 秒に対して 300 回, 10 秒に対して 60 回, 100 秒に対して 7 回, 300 秒以上に対しては 1 回と  $T_{1/2}$  の値により急激に変化する。 $T_{1/2}$  に応じて  $n$  を使い分けるのが効率的な測定には望ましい。しかし、このために設定条件が多岐に渡り、むしろ複雑となるため設定条件の簡略化を考える。

Fig. 3 に  $nT=1,200$  秒,  $t_t=0.3$  秒の一定値で繰り返し数  $n$  のみを 1 回と 25 回の 2 条件で変化した場合の蓄積計数値と生成核種の半減期  $T_{1/2}$  の関係を示す。蓄積計数値はこの条件における  $D_n$  の最大値  $D_{25}(\max)$  で規格化した。 $n=25$  における  $D_n$  の極大値は  $T_{1/2}=34.3$  秒で得られ、この極大値は  $nT=1,200$  秒,  $t_t=0.3$  秒において設定可能な総ての  $n$  に対する  $D_n$  の最大値でもある。 $n=1$  と  $n=25$  が交差する  $T_{1/2}$  値は 211 秒である。 $n$  を 1 回 (放射化時間  $t_a$ =測定時間  $t_c=599.7$  秒) と 25 回 ( $t_a=t_c=23.7$  秒) の 2 条件に簡略化しても、8.6~545 秒の  $T_{1/2}$  に

対しては  $D_{25}(\max)$  の80%以上の蓄積計数値が得られ、ある程度効率のよい測定が期待できる。この場合には、8.6~211秒の  $T_{1/2}$  に対しては  $n$  を25回、211~545秒の  $T_{1/2}$  には  $n$  を1回に設定する。一般に  $n$  値が一定の場合、 $nT$  を長く設定することにより  $D_n$  が極大となる  $T_{1/2}$  の値は長半減期側に移動する。また  $nT$  値が一定の場合、大きな  $n$  値の設定により  $D_n$  が極大となる  $T_{1/2}$  の値は短半減期側に移動する。この場合、 $n$  のある値において  $D_n$  の最大値が得られる。従って、 $n$ ,  $nT$  の設定値の変更により測定対象とすべき  $T_{1/2}$  の範囲をある程度調整できる。

### 3. 検 討

#### 1) 標準岩石試料

14MeV 中性子により標準岩石試料の放射化分析を行う場合、短時間照射において得られる主要成分元素を代表する核反応には次のものが挙げられる。参考のため、核反応に続いて生成核種の半減期、主要  $\gamma$  線エネルギー値を併記した。

i) $^{16}\text{O} (n, p)^{16}\text{N}$	7.13s	6,128keV
ii) $^{23}\text{Na} (n, \alpha)^{20}\text{F}$	11.0s	1,633keV
iii) $^{26}\text{Mg} (n, \alpha)^{23}\text{Ne}$	37.6s	439keV
iv) $^{27}\text{Al} (n, p)^{27}\text{Mg}$	9.45m	844keV
v) $^{28}\text{Si} (n, p)^{28}\text{Al}$	2.25m	1,779keV
vi) $^{39}\text{K} (n, 2n)^{38}\text{K}$	0.93s	511keV
vii) $^{40}\text{Ca} (n, 2n)^{39}\text{Ca}$	0.87s	511keV
viii) $^{50}\text{Ti} (n, p)^{50}\text{Sc}$	1.71m	524keV
ix) $^{57}\text{Fe} (n, p)^{57}\text{Mn}$	1.59m	122keV

いずれの元素についても短半減期核種が生成するので、繰り返し放射化法が活用できるものと思われる。但し、Mg, Al の定量に際しては  $^{23}\text{Na}(n, p)^{23}\text{Ne}$ ,  $^{30}\text{Si}(n, \alpha)^{27}\text{Mg}$  などの核反応の寄与について考慮する必要がある。Si, P が共存する場合は  $^{31}\text{P}(n, \alpha)^{28}\text{Al}$  について留意が必要である。K, Ca では 511keV が主な  $\gamma$  線であるので定量には適さない。

#### 2) 中性子束モニター

放射化分析では高中性子束を得るため、 $^3\text{H}$  ターゲット面の近接位置で試料を照射する。このため比較的、中性子束勾配の大きいところに照射試料を配置することになるので照射中性子束を正確に把握しておく必要がある。このために、標準岩石試料内に照射中性

子束のモニター試料を10%程度混入させ、共に照射する。モニター試料としては Y, Ba, Ce などの元素が挙げられる。標準岩石試料中には Y が 25~31ppm, Ba が 40~490ppm, Ce が 6.6~67ppm 含まれており検出感度は比較的高いが、この程度の量では放射化への寄与は無視して差し支えない。これらの元素より得られる生成核種の  $\gamma$  線スペクトルは比較的単調で、岩石中の成分元素に起因する  $\gamma$  線スペクトルを大きく乱さないので中性子束のモニター試料に適している。これらの元素の核反応により生成した核種の放射能強度を用いて照射中性子束をモニターする。モニター元素の主要核反応、生成核種の半減期、 $\gamma$  線エネルギー値は以下に示す通りである。

i) $^{89}\text{Y} (n, n')^{89\text{m}}\text{Y}$	15.7s	909keV
ii) $^{138}\text{Ba}(n, 2n)^{137\text{m}}\text{Ba}$	2.55m	662keV
iii) $^{140}\text{Ce}(n, 2n)^{139\text{m}}\text{Ce}$	56.s	754keV

#### 3) 試料気送装置<sup>9)</sup>

気送装置には2ループの気送管を配備した。2ループの配管は実験の効率化には有効である。この方式は定性目的には適している。しかし、定量目的には少々困難さを伴う。その理由は照射中性子束の対称性<sup>9)</sup>及び2個1組で用いる試料間の封入量の差が誤差要因に成り得るためである。

以上の結果は14MeV 中性子により標準岩石試料の放射化分析をする際の基本的に重要な事項である。現在、 $\gamma$  線スペクトル測定には専ら Ge(Int) 検出器を汎用しているが、O, Si など特定の元素に限定した分析では、むしろ NaI(Tl) 検出器の方が適する場合もあるので、適宜併用する予定である。

### 文 献

- 1) G. Erdtmann: Neutron Activation Tables, Verlag Chemie, New York (1976).
- 2) 安藤 厚, 大森貞子, 寺島 滋: 日本地球化学会年会要旨集, 2C10, (1983).
- 3) W. W. Givens, W. R. Mills and R. L. Caldwell: Nucl. Inst. Methods, **80**, 95 (1970).
- 4) Y. Kondo: Radioisotopes, **27**, 373 (1978).
- 5) Y. Kondo: Ann. Rep. Kinki Univ. Atom. Ener. Res. Inst., **20**, 27 (1983).
- 6) Y. Kondo: ibid., **13**, 7 (1976).
- 7) Y. Kondo: ibid., **14**, 1 (1977).