

大強度パルス中性子ビームを用いた 新しい非破壊元素分析法の開発



藤 暢輔

Toh Yosuke

(日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター)



海老原 充

Ebihara Mitsuru

(首都大学東京 大学院理工学研究科)



黄 明輝

Huang Minghui

(日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター)



木村 敦

Kimura Atsushi

(日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター)



中村 詔司

Nakamura Shoji



原田 秀郎

Harada Hideo

1 はじめに

大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (MLF) は、世界最高強度のパルス中性子ビームによる最先端研究の推進を目的とした施設であり、23本のビームラインがある。Beamline04 (BL04) は最も強度の高い中性子ビームが得られる結合型モデレーターに接続されており、幅広いエネルギー領域にわたって高強度のパルス中性子ビームを用いることができる。中性子核反応測定装置 (Accurate Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument : ANNRI) は、BL04 に設置された即発 γ 線測定実験のための装置 (図1 参照) であり、主に核データ測定、天体核物理及び元素分析の

研究開発が行われている¹⁻⁴⁾。それらのうち、本稿では ANNRI において初めて可能となった新しい元素分析法の研究開発について述べる。

中性子ビームを用いた元素分析法には2つの代表的な手法がある。1つは即発 γ 線分析 (Prompt Gamma-ray Analysis : PGA)^{5,6)}、もう1つは中性子共鳴捕獲分析^{7,8)}と呼ばれる。2つの手法の共通点は、中性子が試料中の原子核に捕獲され、励起状態になった原子核が脱励起する際に放出する γ 線を測定することである。 γ 線のエネルギーは元素 (核種) によって異なるため、PGA では γ 線のエネルギーから元素の同定を行い、そのカウント数から定量を行う。一方、中性子と原子核の捕獲反応における多く

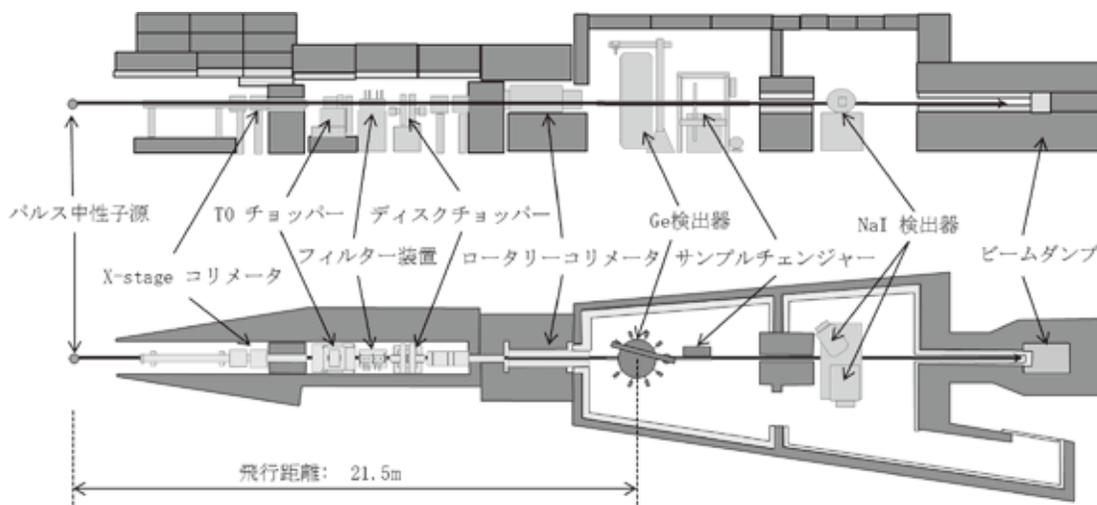


図1 核反応測定装置 ANNRI の全体図

本装置はパルス中性子源から21.5 mの位置に設置されているGe半導体検出器や、その上流に設置されているパルス中性子ビームの成形を行うコリメータやチョッパー類から構成されている

の断面積は、ある特定の中性子エネルギーで急激に増減する共鳴が存在し、この共鳴を利用した分析が中性子共鳴捕獲分析である。共鳴のエネルギーも元素（核種）によって異なるため、その同定に用いることができる。共鳴エネルギーの測定には飛行時間法（time-of-flight：TOF）が用いられており、中性子源と測定位置の距離と中性子が飛行に要する時間から速度を求め、それをエネルギーに換算している。どちらの分析手法も同位体を区別できるので核種分析とも呼ばれており、バルク試料を非破壊で多元素同時定量することができる。そのため、どちらも隕石、土器などの貴重な資料や環境試料分析、材料開発分野などで用いられているが、これらの試料は多くの元素を含んでいることが珍しくなく、 γ 線のピークや共鳴のピークが重なることも多い。それらの重なり合ったピークはフィッティングプログラム等によって解析できる場合があるが、解析したい元素のピークの大きさに比べて妨害元素のピークが非常に大きい場合や、ピークが複雑に重なり合っている場合など、解析が困難となることも少なくない。また、多くの試料は妨害元素の濃度も測定されて

いないため、妨害の影響を見落としてしまい、誤った定量結果を導いてしまうこともある。そのような解析ミスは、学術研究、産業利用を問わず、できる限り低減することが望ましい。

2 即発 γ 線分析と中性子共鳴捕獲分析の限界

PGAと中性子共鳴捕獲分析はともに優れた手法ではあるが、共存する元素によってはどちらの手法でも定量が困難となる場合があることを以下の測定例で示す。パルス中性子を用いた核データ測定などにおける標準やバックグラウンド測定において用いられる元素など（Au, Ag, Co, Cd, Ta）からなる混合標準試料を製作し、ANNRIで測定を行った⁴⁾。これらの元素は、単元素試料の場合にはPGAでも中性子共鳴捕獲分析でも容易に測定することができる。しかし、1つの元素（核種）に対して多数の即発 γ 線が放出され、共鳴の数も多いため、これらの混合試料を測定すると、それらが重なり合ってどちらの分析法でも解析が困難となる。図2に混合試料の測定で得られた γ 線スペクトルとTOFのスペクトルを示す。ここで

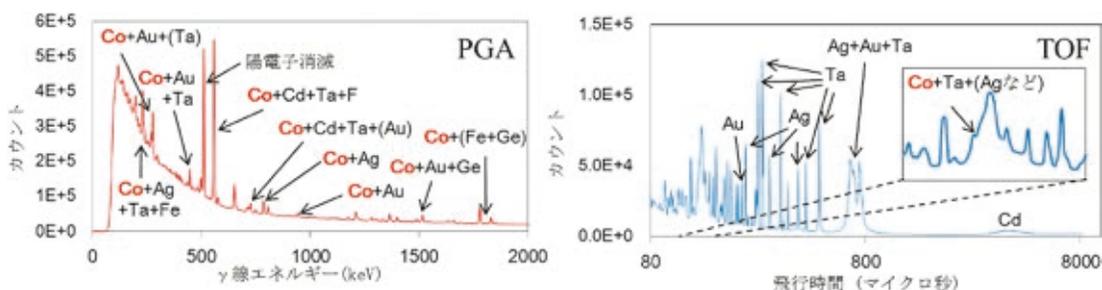


図2 混合試料測定で得られた即発γ線 (PGA) スペクトルと飛行時間 (TOF) スペクトル
 混合試料中のCoに着目した場合、PGAスペクトルにおいて観測される多くのCoのピークは、
 ほかの元素やバックグラウンドからのγ線の影響を受けており、TOFスペクトルも主にTaから
 の影響を受けている。そのため、PGAでもTOFでもCoを正確に定量することは困難である

Coに着目すると、γ線スペクトル上では多くのピークが見られCoからの即発γ線も含まれるが、それらはほかの元素からのγ線やバックグラウンドγ線 (FeやGeからのγ線) からの影響を受けている。また、TOFスペクトル上のCoピーク近傍では、幅広いCoと狭いTaなどの共鳴ピークが重なり合って非常に複雑な形状をしている。今回の試料は含まれている元素の数が少なく、量も既知であるが、それでもこのスペクトルを解析して正確なCoの分析値を得ることは難しい。実際の分析試料では、ほとんどの場合において含まれている元素の数も量も不明であることが多いため、解析が更に困難となることもある。

3 ANNRIにおける新しい元素分析法

前述のとおりPGAも中性子共鳴捕獲分析もγ線を測定する手法ではあるが、PGAではγ線のエネルギー分解能に優れるGe半導体検出器が用いられ、中性子共鳴捕獲分析では時間分解能に優れたC₆D₆などのシンチレーターが用いられてきた。そのため、PGAと中性子共鳴捕獲分析は同時に行うことができなかつた。共鳴捕獲反応を起こすような高いエネルギーの中性子は曲げることが困難であるため収束することができず、中性子源から離れると距離の2乗に反比例して中性子強度が減少してしまう。ANNRIでは7個のGe結晶から構成されるク

ラスタ Ge半導体検出器2台と通常のGe半導体検出器8台からなる高効率のγ線測定装置が設置されている。大強度のパルス中性子ビームと高効率のγ線検出器を用いれば、中性子源からある程度の飛行距離を取ることができ、それによって時間分解能が劣るGe半導体検出器でも飛行時間法によって中性子のエネルギーを求めることができる。これによって、PGAと中性子共鳴捕獲分析を一度に行うことができ、両方の分析法の結果が得られる。PGAと中性子共鳴捕獲分析は、それぞれの元素 (核種) に対して異なる感度を持つため、一度に結果が得られることのメリットは大きい。さらに、ANNRIにおける測定では、2つの手法を同時に行うことによって得られる相乗効果があり、PGAと中性子共鳴捕獲分析のどちらの手法を使っても測定が困難である元素でも定量できることがある。

Ge半導体検出器で即発γ線のエネルギーを測定しつつ、飛行時間法によってイベントごとに中性子エネルギーを決定しているため、TOFとPGAの3次元スペクトルが得られる⁴⁾。混合標準試料測定において得られた3次元スペクトル (TOF-PGAスペクトル) を図3に示す。3次元スペクトルはX軸にTOF、Y軸にPGAが対応し、それぞれの軸の射影スペクトルは従来のTOF、PGAスペクトルと同一である。この3次元スペクトルの解析によって、特定の元素に

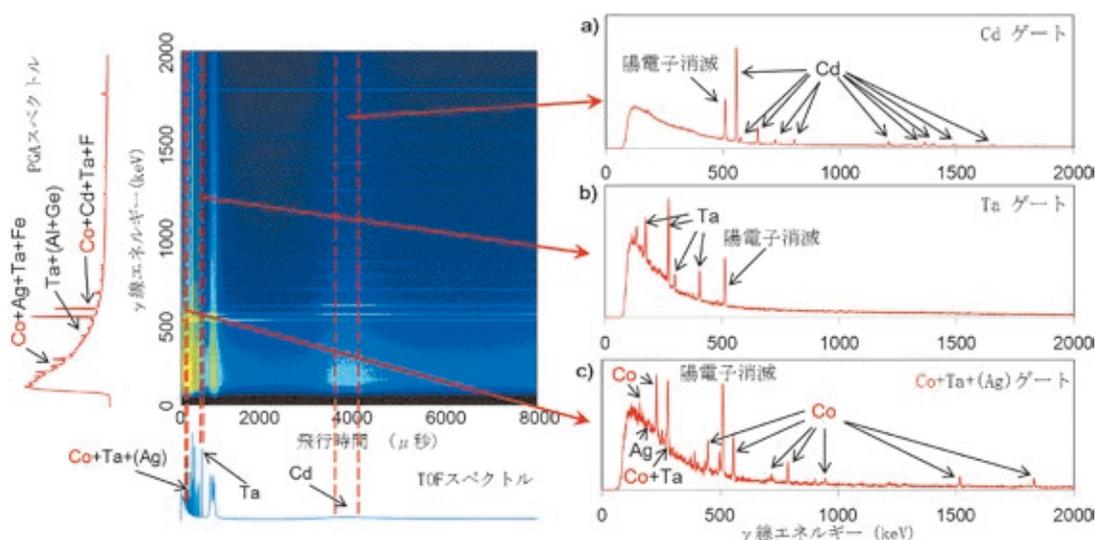


図3 混合試料測定で得られた TOF-PGA スペクトルとそのゲートスペクトル
 a), b), c) は、それぞれ Cd, Ta, Co の共鳴ピークを用いたゲートスペクトルを示しており、ゲートをかけた元素にほぼ純化されたスペクトルが得られている。これらのゲートスペクトルにおけるピークを解析することによって確度の高い定量結果を得ることができる⁴⁾

ほぼ純化されたスペクトルを作成することができる。図3 a)~c) に TOF スペクトル上の特定のピークにゲートをかけた PGA スペクトルを示す。例えば、TOF スペクトル上にある Co の共鳴ピークにゲートをかけた PGA スペクトルでは、ほぼ純粋な Co の γ 線ピークが観測され、このスペクトルを解析することによって、共存する元素の影響を受けない確度の高い分析結果が得られる。ほかの元素の共鳴ピークも同様であり、Ta や Cd の共鳴ピークからは、それぞれほぼ純粋な Ta, Cd の γ 線スペクトルが得られる。この逆に、特定の γ 線ピークにゲートをかけた TOF スペクトルを作成することもでき、このスペクトル上でも同様に選択した元素に応じたほぼ純粋な共鳴ピークとなる⁴⁾。 γ 線と共鳴のどちらにゲートして解析するかは、分析したい試料に含まれる元素の種類や量によって定量の容易な方、つまり確度や精度の高い結果が得られる方など実験の目的に応じて、測定データを取得した後で自由に選択することができる。また、ANNRI は複数台の Ge 半導体検出器

によって測定を行っているため、JRR-3 などにおいて利用できる同時計数法による即発 γ 線分析 (MPGA)⁹⁻¹¹⁾ も行うことができる。この MPGA にも飛行時間法を適用することができるため、ANNRI では、前述の PGA, TOF, TOF-PGA に加えて MPGA, TOF-MPGA の 5 種類のスペクトルが一度に得られる⁴⁾。これらから最適なスペクトルを選択して解析できるほか、それらのスペクトルからの分析結果を比較することによっても解析ミスを低減できると期待される。

4 まとめと今後の展望

大強度パルス中性子と大立体角の Ge 半導体検出器を用いることによって PGA と中性子共鳴捕獲分析を融合した新しい元素分析法を開発し、混合標準試料実験によってその有効性を示した。この元素分析法はまだ実用例が少ないが、今後は様々な分野の研究において用いられると期待している。特に複雑な元素構成を持つ試料を分析する場合でも、非破壊で確度の高い

分析結果が得られるため、考古学や宇宙化学などの分野における貴重な試料の分析に有効だと考えられるほか、被ばくりスク低減などの観点から非破壊分析が望まれる放射性核種を含む試料への適用なども検討されている。また、MLFは2015年の現在において500 kWで運転されているが、近い将来に1 MWに到達する予定であり、それに伴うパルス中性子ビームの増強によって、より迅速で高精度な測定が可能となるであろう。

本研究は科研費 JSPS (22750077) の助成を受けた成果を含む。

参考文献

- 1) Igashira, M., *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A600**, 332–334 (2009)
- 2) Harada, H., *et al.*, *J. Korean Phys. Soc.*, **59**, 1547–1552 (2011)
- 3) Kino, K., *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A626**, 58–66 (2011)
- 4) Toh, Y., *et al.*, *Anal. Chem.*, **86**, 12030–12036 (2014)
- 5) Failey, M., *et al.*, *Anal. Chem.*, **51**, 2209–2221 (1979)
- 6) Rossbach, M., *et al.*, *Anal. Chem.*, **63**, 2156–2162 (1991)
- 7) Postma, H., *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **248**, 115–120 (2001)
- 8) Postma, H., *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **271**, 95–99 (2007)
- 9) Ember, P., *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.*, **56**, 535–541 (2002)
- 10) Islam, M., *et al.*, *Anal. Chem.*, **83**, 7486–7491 (2011)
- 11) Toh, Y., *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.*, **70**, 984–987 (2012)