

放射化分析と組み合わせた土壌試料の PIXE 分析

沖 雄一、長田直之¹、房本卓也²、柴田誠一、世良耕一郎³

京都大学原子炉実験所
590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目 1010

¹ 京都大学大学院工学研究科
615-8530 京都市西京区京都大学桂

² 京都大学工学部
606-8501 京都市左京区吉田本町

³ 岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

1 緒言

PIXE 法は、同じく有効な非破壊分析法である中性子放射化分析法と対比されることが多い。放射化分析法は非破壊とは言っても一般に長半減期核種も生成するので、放射化しない PIXE 法には大きなメリットがある。また PIXE 法は中性子放射化分析法と比較すると分析感度が低い元素があるものの、軽元素を除いては元素の全分析が可能である。一方、中性子放射化分析法は試料内部まで均一な照射が可能であるが、PIXE 法は照射する陽子の試料中の飛程が短いため、試料調製に制約が多い。一般に固体試料の PIXE 分析では試料は薄膜や微粉末とする必要があり、微粉末の場合、照射に供される試料は微量で、秤量できないことが多い。このため PIXE 法では Pd などの既知量の内部標準元素を添加する内部標準法が用いられる。

高エネルギー陽子加速器施設では、発生する高速中性子の遮蔽が問題となることが多く、遮蔽コンクリート壁外側の土壌の放射化も評価しなければならないことがある。より正確な放射化評価のためには、土質により土壌の成分元素の定量が必要である。我々の研究室では、この目的で土壌の PIXE 分析を実施している。通常の放射化分析法では土壌主成分の Si の定量が困難であるため、PIXE 分析の重要性は高い。しかしながら、PIXE 試料の調製においては内部標準(Pd-C を用いた)の土壌試料への均一な混合が容易ではないことがある。粘土質の土壌は容易に粉碎され微粉末とすることができて、Pd-C の混合は問題ないが、砂質土壌等の場合は粒子の粉碎が容易でなく、内部標準の均一な混合が困難と思われる場合がある。

このような背景から、本研究では内部標準を用いない、PIXE 分析と、短時間照射の放射化分析を組み合わせた方法を提案し、実際の土壌分析を試みているのでその予備的検討について報告する。

2 方法

本法は、非破壊の土壌の元素分析を想定して、PIXE 分析で含有元素の相対比を求めた上で、PIXE 照射試料をそのまま再度、原子炉により短時間照射し中性子放射化分析により、主要元素のうち一つを正確に定量して、この値を基準に相対比を用いて全元素定量を行うものである。具体的には放射化分析にて Al の定量を行い、Al の量を基準に定量を行った。

3 実験

土壌試料は、京都大学原子炉実験所内のイノベーションリサーチラボラトリ(陽子加速器施設)の建設前に建設場所付近からコア抜き試料として地層別に採取したものをを用いた。試料は乾燥後、メノウ乳鉢で粉碎した。できるだけ微粉末とした試料を PIXE 分析の照射ホルダー中央に貼られたバックリングフィルム中央に、コロジオンを用いて固定した。この試料を PIXE 分析に供した。

PIXE 分析後、京都大学原子炉実験所の研究炉(KUR)において PIXE 分析の照射ホルダーごと中性子照射を行った。中性子照射の照射キャプセルにはいるように、ホルダーの中央部を切り離し、バックリングフィルム上に固定された土壌試料が周囲と接触しないようにスペーサーで固定した。この試料と、Al の標準試料(原子吸光分析用 1000ppm 標準液を濾紙に滴下して乾燥したもの)を照射キャプセルに入れ、KUR の圧気輸送管により中性子照射を行った。照射条件は、照射孔: 圧気輸送管 Pn-3、熱中性子束: 4.6×10^{12} n/cm²/s、照射時間 6 分とした。

照射後、照射ホルダーのバックリングフィルムの上からブックテープ(3M 製)を貼付して土壌試料を固定した後、照射ホルダーからフィルム部分を切り離して、ポリエチレン袋に密封し、 γ 線測定用の測定試料とした。 γ 線測定は、Ge 半導体検出器を用いて、中性子照射により生成した ²⁸Al (半減期 2.24 min) の γ 線(1779 keV)を測定した。同一条件で照射した Al 標準試料との比較により、土壌試料中の Al 含量を定量した。

また、約 30mg の粉末土壌試料を原子炉照射し、同様に、土壌重量あたりの Al 含量を定量した。

4 結果と問題点

原子炉で照射した土壌試料の γ スペクトルの例を図 1 に示す。これは、PIXE 試料(土壌重量約 20 μ g)を照射後、約 5 分後のスペクトル(測定時間 300sec)である。この照射時間では観測された光電ピークは、ほとんど Al 成分に由来する ²⁸Al によるピークのみであり、その他にはわずかにそれぞれ Fe、Na の放射化で生成する ⁵⁹Fe および ²⁴Na のピークが認められた、この ²⁸Al ピークから Al は十分な確度・精度で定量可能であることが示された。また、ブランク試料(バックリングフィルムのみ)を照射した場合にも ²⁸Al のピークが認められたがピーク面積は土壌試料の約 0.1% 以下であり、定量の妨害にはならないことがわかった。

問題点としては、PIXE の陽子線照射により、バックリングフィルムが損傷を受けていると、原子炉の圧気輸送管で照射カプセルを輸送する際に、しばしばバックリングフィルムが破れ、土壌試料が照射ホルダからの脱落が起こることがあった。このため原子炉照射時の土壌試料の固定方法、および PIXE 分析時にバックリングフィルムを損

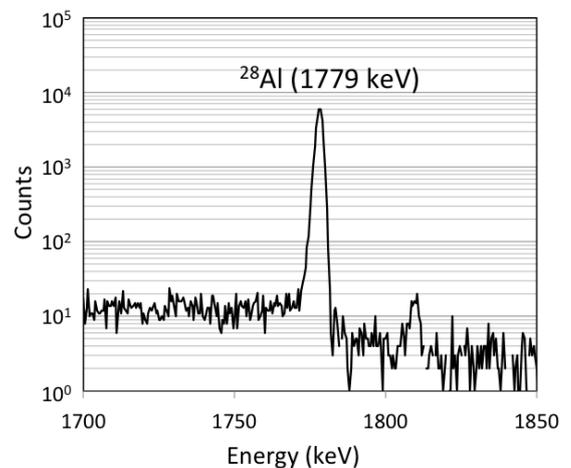


図 1 原子炉照射した PIXE 土壌試料の γ スペクトルの例

傷しない照射方法を再検討する必要がある。

今後、実試料への適用を進めるとともに、通常の Pd-C を用いる内部標準法との比較等も実施する予定である。

Elementary analysis of soil samples using a combination method of PIXE and activation analysis

Y. Oki, N. Osada¹, T. Fusamoto², S. Shibata and K. Sera³

Research Reactor Institute, Kyoto University
Kumatori, Osaka 590-0494, Japan

¹Graduate School of Engineering, Kyoto University
Kyoto daigaku-Katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8530, Japan

²Faculty of Engineering, Kyoto University
Yoshida-Honmachi, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501, Japan

³Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

Abstract

PIXE analysis for soil samples was performed using a combination technique with neutron activation analysis. In PIXE analysis for soil the internal standard method is effectively employed; however, it is sometimes difficult to prepare homogenous fine soil mixture with the internal standard in the case of coarse sand. In this report, after the PIXE measurement the soil samples were irradiated for a short time in a nuclear reactor to determine aluminum content. The elementary analysis was carried out using relative content of the elements obtained by the PIXE analysis and the aluminum content precisely determined in the activation analysis instead of the internal standard method.