

放射化分析装置

An Activation Analyzer

末松 茂*
Shigeru Suematsu

菅ノ又 伸治**
Shinji Suganomata

石松 健二***
Kenji Ishimatsu

内容梗概

200 kV 加速の中性子発生装置と気送装置を組み合わせた、放射化分析装置が完成した。本報告は装置としての特長である自動運転に重点を置いて述べた。

試料は気送されて中性子照射を受け、返送されて自動的に測定される。また中性子を有効に利用し、ターゲットの寿命をのばすために、試料が照射台中にあるときのみ、中生子が発生するようになっている。

最後に放射化分析装置を利用したウラン化合物中の酸素の分析例について述べた。

1. 緒言

放射化分析とは中生子で試料を放射化し、出てくる放射線を測定して試料中に含まれる元素を分析する方法である。検出、測定には主として γ 線が使用されている。放射化に使用する中生子源としては、原子炉の中生子、放射性同位元素より出る中生子および加速器を使用する中生子などがある。前の二者は装置が大がかりで高価になるので一般の放射化分析には使用されていない。したがって現在は後者の比較的低電圧大電流の加速器が中生子源として多く使用されている。

中でも100~200 kVのコッククロフト高圧電源を加速電源としたものが圧倒的に多く⁽¹⁾、加速電流も300 μ A~1 mA程度である。この場合はD-T反応が利用され、放射化に必要な 10^{10} ~ 10^{11} n/sの中生子が十分得られている。

放射化分析は今までの化学分析とは異なり、ごく微量の分析にきわめて大きな威力を発揮する。たとえば鉄鋼中の酸素の分析とか、今までの化学分析ではきわめて困難であった希土類元素の分析が非常に簡単に行なえるのはそのよい例である。

今回完成した装置は加速電圧200 kVのNG-200-2形の中生子発生装置を主体とする放射化分析装置で、気送管は2チャンネル形である。以下装置の特長や性能について述べる。

2. 装置の説明

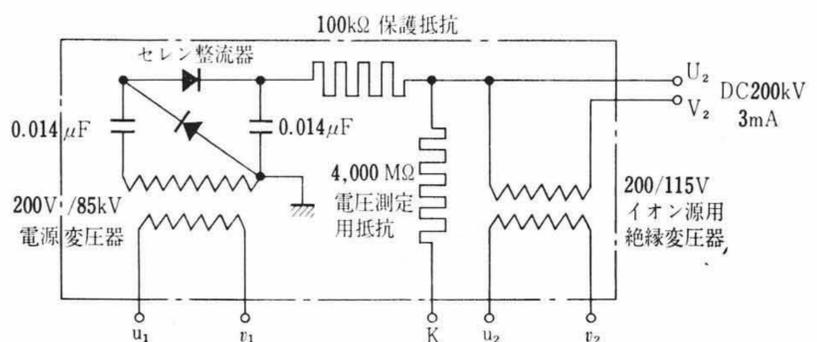
装置は大きく分けて、加速電源を主とする高圧電源と中生子を発生させる加速器と試料を照射台に送り、そして中生子照射後返送するための気送装置およびこれらを制御する装置からなっている。放射線を分析するための波高分析器は、とくに定まったものではなく、連動のためのアダプタを取り付ければ、なんでも使用できるので本報告では詳細には触れないことにする。

2.1 高圧電源

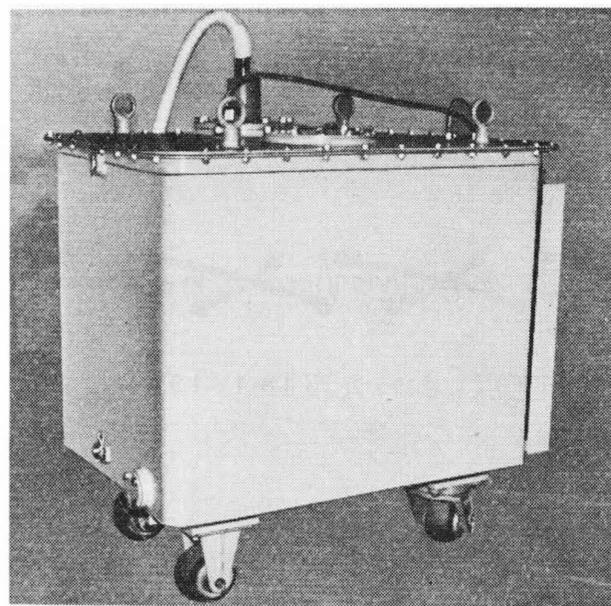
高圧電源は加速に必要な直流電源とイオン源用電源としての絶縁変圧器からなっている。前者は倍電圧整流回路(コッククロフト1段の場合とまったく同じである)で出力は200 kV, 3 mAである。後者は200 V/115 V, 700 VAの絶縁変圧器である。これらほかに保護用抵抗器と200 kVで50 μ A流れるようにした電圧測定用の抵抗器がある。第1図(a)は結線図で(b)は外観写真である。

高圧ケーブルは200 kV用にとくに開発されたもので、従来の着脱方式をやめ直結式とした。高圧電源側ヘッドにはがい子を用い、加速器取付側はブチルゴムモールドである。

高圧電源は別に電圧調整器を取り付ければ、単独の高圧電源とし



第1図(a) 高圧電源結線図



第1図(b) 高圧電源

ても十分使用できるよう設計されている。

2.2 加速器

加速器は放射化分析装置の心臓部で、これの性能の良否によって中生子生成量の多寡が決定される。これを大別するとイオンを造り出す部分であるイオン源およびその諸電源、重水素イオンを加速する加速管、トリチウムターゲットを取り付けているターゲットハウジングおよびこれらを排気するための排気装置からなっている。第2図は加速器の写真である。

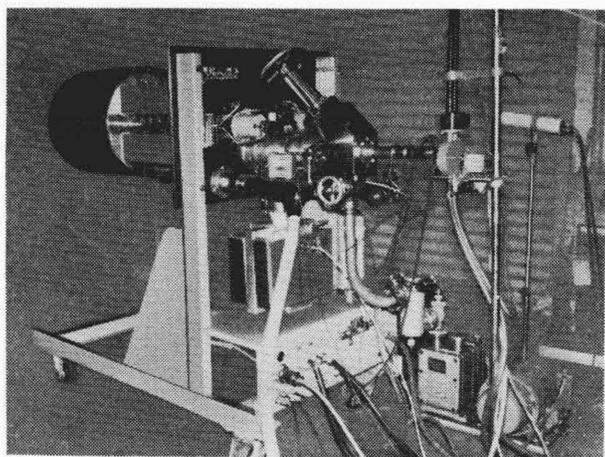
イオン源は高周波形で、エンベロープは石英製である。原子比をよくするために3,000 A·Tのコイルがエンベロープ下部におかれている。高圧電極および電装品は4本のレジンがい子棒により片持状にささえられている。このレジンがい子には加速管分圧用の抵抗器が取り付けられている。

今回製作した加速器の大きな特長はセラミック製加速管と排気装置としてのイオンポンプとガラス製ターゲットハウジングを採用していることである。また制御面では試料気送装置と連動して中生子を発生させることである。

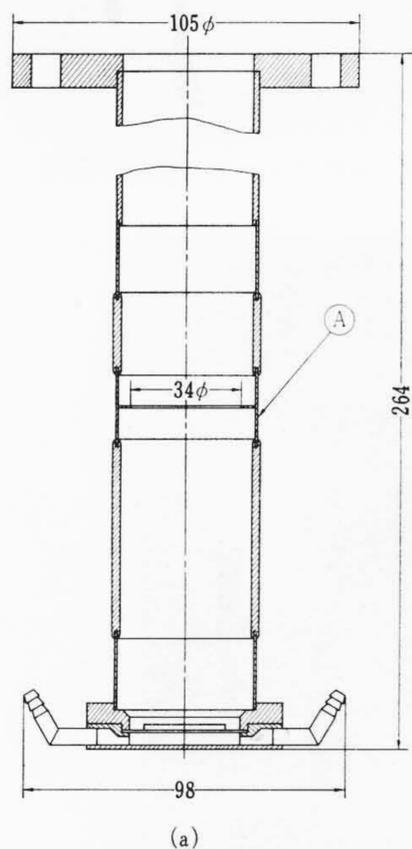
* 日立製作所国分工場

** 日立製作所日立研究所

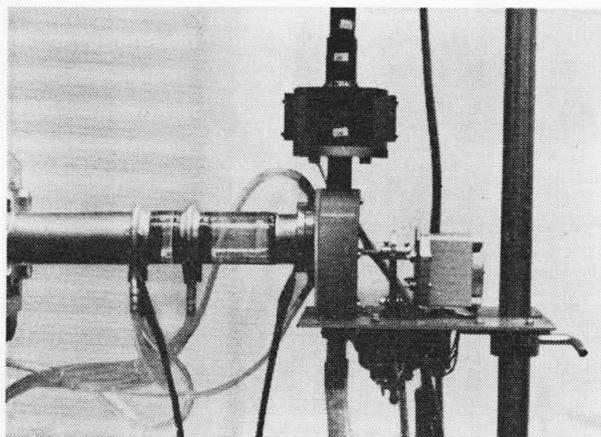
*** 日立製作所中央研究所



第2図 加 速 器

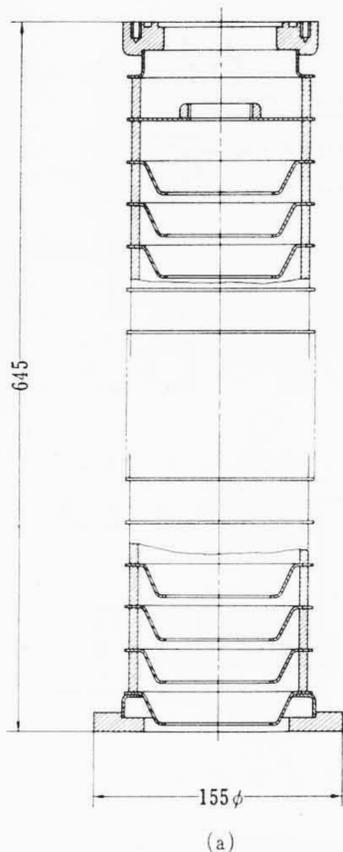


(a)

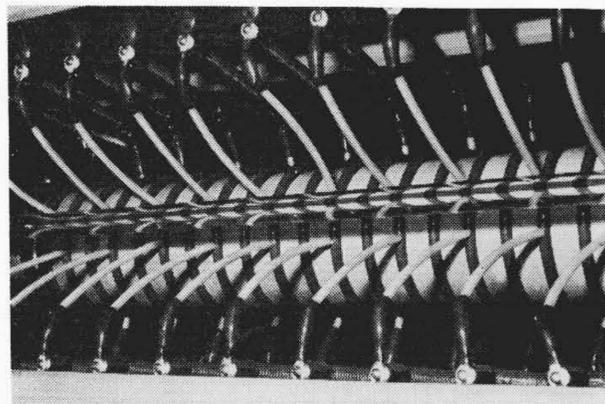


第4図(b) 回転試料台と組合わせたターゲット

第4図(a) ターゲット構造図



(a)



第3図(b) 加速管取付図

第3図(a) 加速管寸法図

2.2.1 加 速 管

加速管の形状は第3図(a), (b)に示すとおりで、とくに放射化分析装置用として折損事故、ハク離事故が絶無となるよう設計製作されたものである。絶縁リングはアルミナが子で、加速電極はコバル製である。これらの部品は特殊ろう付で強固に一体となっている。したがって先端部にイオン源用エンベロープ、ソースコイルなど相当の重量物を取り付けて横にささえても折損するようなことはない。また本品は高温で製作されるために吸蔵ガスが少なく、接着加速管に比べ約5分の1の0.001 lusec程度で、イオンポンプの使用にきわめて好都合である。

2.2.2 排 気 装 置

排気装置には125 l/sのイオンポンプと300 l/minのトラップ付油回転ポンプを使用している。油回転ポンプの到達真空度でもイオンポンプが動作するよう、特に 5×10^{-4} Torrの高真空用のものを使用している。このほかにターゲット交換時にターゲット部と加速管部を遮断するためのエアロックバルブと荒引時に使用するバイパスバルブがある。これらのバルブは今回特に開発した超高真空用のもので、弁および弁座は硬質クロームメッキしたステンレス鋼製でメタルフィットのみで 10^{-7} Torrの真空度を保つようになっている。

2.2.3 ターゲットハウジング

ターゲットハウジングはコバルとコバルガラスを融着したもので、構造を第4図(a), (b)にて示す。図中Aはフォーカスリングで、これに-90 V程度の電圧を印加してターゲットよりの

2次電子を抑制している。図(a)の構造図にも示すとおり0.2 mmの銅基板を直接冷却するようになっているので、冷却効果はよく大電流の場合でも吸着トリチウムの消耗が少ない。

またフォーカスリングには、ターゲットのトリチウム吸着面と同じ34 mmφの穴があけられているので、ターゲットよりビーム直径が大きくなると急速に、フォーカスリング電流も増加するため、集束状態の監視にも使用できる。ターゲットは最大外径38 mmφのものを使用し直接円周部をメタルフィットにてとめ、真空を保つようにし

ている。また28.5 mmφのものを使用する場合には、0.2 mm厚の銅板を38 mmφに切りその中央に180°C以下の低融点はんだにてろう付けして使用する。

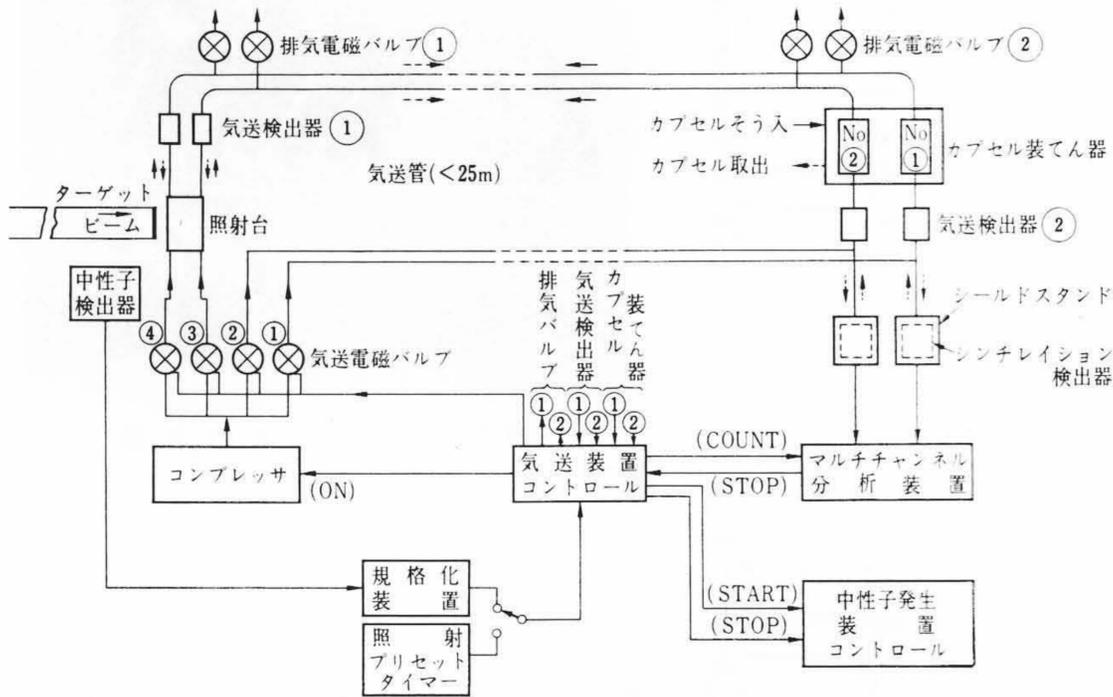
2.3 気送装置および制御装置

気送装置は試料を照射台に送り、一定照射時間を経過した後に測定器に返送する装置である。このような気送装置の使用は、中性子が出ているとき試料を持ってはいるのは危険であるという理由からばかりでなく、ターゲットが短寿命であることも多分に関係している。したがって気送装置は下記のような条件を満足しなければならない。

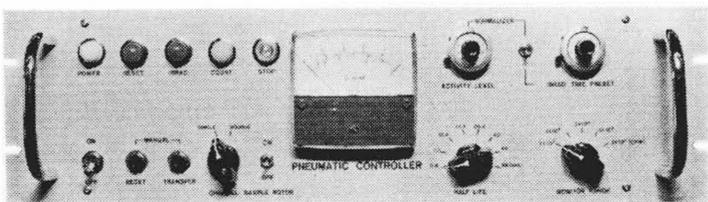
- (1) 有効に中性子を利用するためには、試料が照射台に送られ装てんされたときのみ中性子が発生するようにする。
- (2) ターゲットよりできるだけ近い距離に照射台を置き、中性子を有効に利用しなければならない。
- (3) ターゲット部分の材質、照射台および近くの気送管の材質は中性子の吸収断面積が小さくなくてはならない。
- (4) 迅速に試料を照射台に送りこみ、返送するもので、かつ安全確実に動作しなくてはならない。
- (5) できるなら、試料の気送、照射、返送、測定および廃棄が自動的に行なわれるものが望ましい。

これらの諸条件に対しては十分設計的考慮が払われているが、ターゲットの寿命が短いことからみて(1), (2)の条件がとくに重要である。

- (1) の条件は、必要時のみに中性子が発生するようにすること



第5図 気送装置ブロックダイアグラム



第6図 気送装置制御盤

である。カプセルが照射台にはいる前に光電管前を通過すると、信号がでて、これによりプルプッシュマグネットが動作し、イオン押し出し電圧が印加され、ビームが発生し最後に中性子が発生するようになっている。

つぎに所定照射時間が終了するとプルプッシュマグネットの励磁はやみ、ビームはとまり、中性子の発生もとまる。このため、中性子は、試料が照射台中にあるときにのみ発生するのでむだがない。

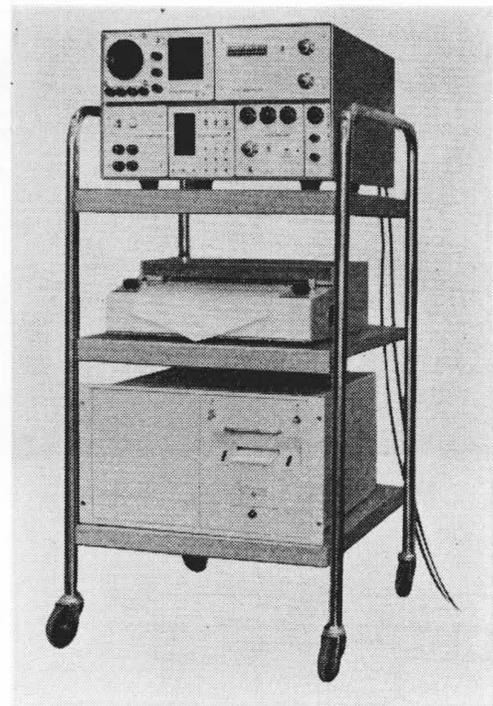
(2)の条件に対しては、できるだけターゲットの近くに試料を置き中性子密度の高い所で中性子照射を行なうことである。

第4図(a)に示すようにターゲットとして38mmφの銅基板のトリチウムターゲットを使用しており、基板そのものを直接冷却するようになっている。冷却に効果があるのは、基板に沿って流れる2~3mm厚の水であるから、従来のように水層を厚くする必要はない。本装置は水層を3mm程度とし、かつ試料はターゲットと平行に気送されてくるので、照射は中性子発生源(ターゲット)のすぐ近くで行なうことができ中性子を有効に利用することができる。

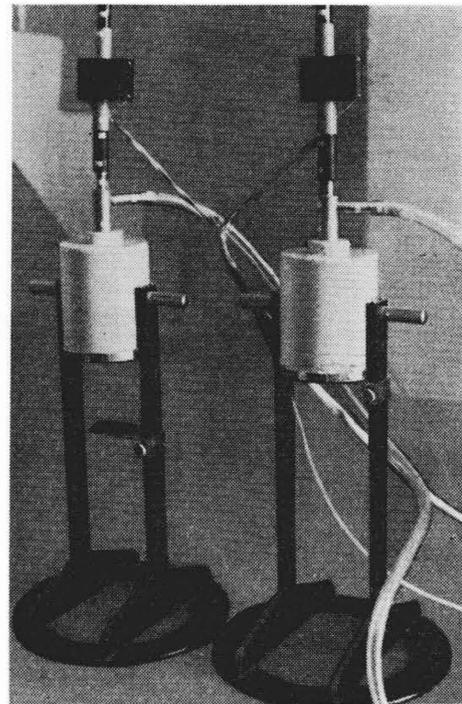
また回転試料台は、ターゲットと平行に鉛直面内で回転するようになっているので、試料の照射むらがない。

以上述べたことが本器の気送装置の基本条件である。また気送の方式は高圧気送方式で、気送管には継目なしの13mmφの硬質ポリエチレン管を使用している。

つぎに試料の送達返送を第5図のブロック線図によって説明しよう。試料を入れたカプセルを装てん器に入れ、これを半回転させ、気送管の軸と一致させると、自動的に気送電磁バルブ①、②と、排気電磁バルブ①が開く。もちろんこの場合排気電磁バルブ②は閉じている。カプセルは背圧により加速され、7~8m/sの速度で気送管中を走り、照射台の真上に達する。この時電磁バルブ①は開かれているので、カプセルの背圧は零になる。したがってここを通過すれば、自然落下にて照射台中の空気を圧縮しながら落下するので、台に与える衝撃はきわめて小さい。2チャンネルの場合には、2個のカプセルが気送検出器①を通過しないと信号が出ない。2個が通過し終



第7図 400チャンネル波高分析器



第8図 シールドスタンド

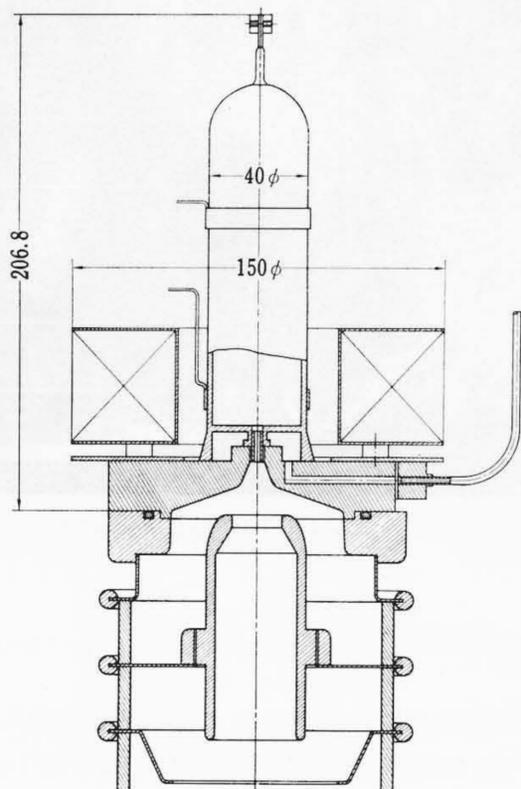
わると約1秒程度遅れて回転試料台がまわり始める。一方加速器のほうではカプセルの通過信号によりビーム発生が行なわれ、中性子が発生する。これは通過信号にて操作ロッドが動作し、イオン源のプローブ電圧が印加され重水素イオンビームが加速管中に押し出されるためである。

照射設定時間が経過し、前記の操作ロッドが動作し中性子照射がやむと、回転試料台は自動的にカプセル出口と気送管口が一致した状態になって停止し、気送電磁バルブ③、④が開きカプセルの返送が始まる。

カプセルが返送されるときは、排気電磁バルブ①は閉じ、②は開いている。したがってカプセルは、排気電磁バルブ②を通過後は慣性運動と自然落下によりシールドスタンド内の井戸形シンチレーション検出器にはいる。照射完了より測定始めまでのクーリングタイムは調整できるようになっているが、気送検出器②よりの通過信号がないかぎり測定は始まらないようになっている。

計数が終了したことを確認してカプセル装てん器を装てんとは逆方向に回転させると、自動的に気送電磁バルブ①、②が開き、カプセルは気送され装てん器より自動的に外に飛び出すようになっている。

以上は、照射時間一定の場合であったが、中性子の照射規格化装置を使用しての自動化運転も容易にできるようになっている。



第9図 イオン源

第6図は自動化運転に必要な制御盤で、第7図、第8図は試料の放射能を検出する400チャンネル波高分析器とシンチレータ内蔵のシールドスタンドである。

3. 性能

この中性子発生装置の主要仕様は

最大加速電圧	200 kV
電圧脈動率	±4 kV 以下
電圧調整範囲	80~200 kV
定格加速電流	50~500 μ A
ビーム直径	10~34 mm ϕ
中性子生成量	D-T反応で 10^{10} n/s 以上

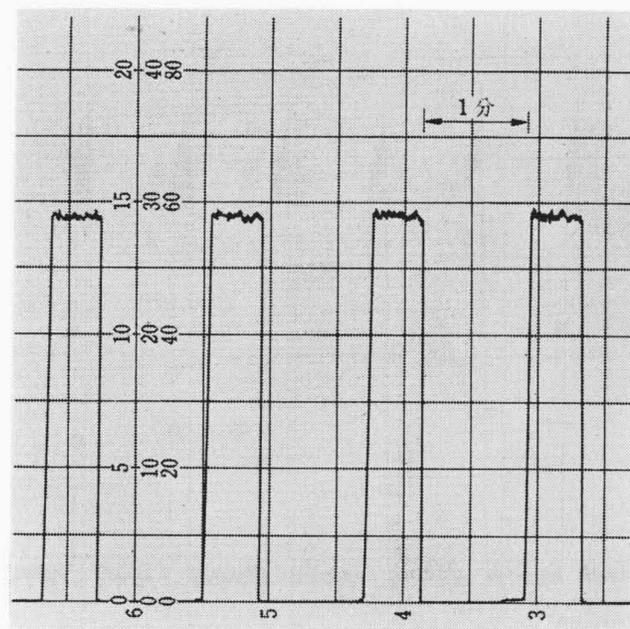
であるが、ビームは十分余裕をもって取り出すことができ、最大800 μ Aであった。この装置の性能上の大きな長は、ビームの集束がよいこと、必要時にビームを発生し得ることおよび発生ビームの再現性がよいことである。以下これについて述べる。

3.1 ビームの集束

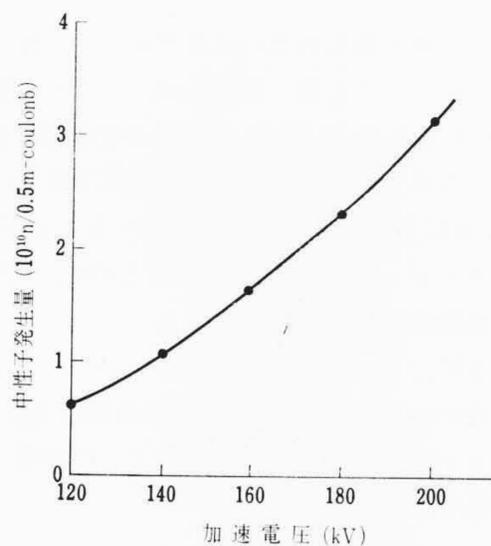
イオン源は高周波イオン源で、発振周波数は60 Mc程度で、コンデンサ結合である。重水素は、接地側に設けられたポンプより3 kg/cm²の高圧で絶縁パイプを通して高圧電極内のパラジウムリクに送られ、ここで約10 cc/hの速度でエンベロープ内に供給される。イオンはプローブ電圧によってエンベロープ内のプラズマから加速管内に押し出され、ビームとなって加速される。

集束電源としては別になく、分圧抵抗による電圧が集束電極に印加されている。第9図はイオン源、集束電極、加速電極などの幾何学的配置を示している。集束電極への電圧は加速管の他の段間電圧と同じ電圧を印加するようにしている。

この場合、加速電圧120~200 kV、ビーム200~600 μ Aの範囲内でターゲット上のビーム直径は25~30 mm ϕ となり、フォーカスリング(第4図(a)参照)への流れこみは、ほとんどが認められなかった。このことは中性子発生装置を放射化分析装置として使用する場合に大事なことであり、大電流でも小電流でも適当なビーム直径(25~30 mm ϕ)となるよう、集束の調整をする必要がないことを意味している。このため装置の取扱いがきわめて簡単となった。



第10図 ビームの再現性試験



第11図 中性子発生量と加速電圧の関係

3.2 ビームの遮断

従来の中性子発生装置は、プローブ電圧を零にしてもビームが数 μ A~数10 μ A残り、これを残留ビームと呼んでいた。このため中性子バックグラウンドが上がったり、ターゲットの寿命が短くなったりして好ましくなかった。

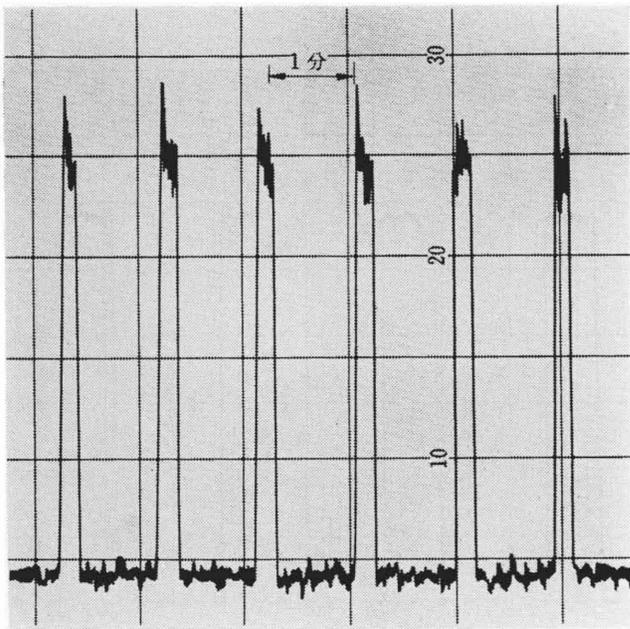
これに対して本器はきわめて合理的なプローブ電圧印加法を採用している。すなわち前にも述べたように、試料が照射台中にあるときのみ正のプローブ電圧を印加し、試料が照射台中にないときは負のプローブ電圧(発振器のB電圧よりわずかに高い負の電圧)を印加するようにしている。これにより残留ビームは皆無となった。また残留ビームによる不必要なターゲットの衝撃がないので、その分だけターゲットの寿命も長くなるものと推定される。

3.3 ビームの再現性

プローブ電圧の切り、入れでのビームの再現性は、放射化分析の場合重要な問題となるので、再現性の試験を行なった。第10図は数秒のビーム発生を多数回繰り返したときの記録で再現性はきわめてよかった。前にも述べたようにビームの切り、入れはカプセルの気送と連動して自動的に制御される。ビームの再現性のテストにおいて、この連動制御が確実にこなされることを確認した。

3.4 中性子発生量

厚いトリチウムターゲットを用いた場合、中性子発生量はビームエネルギーすなわち加速電圧を上げると増加することが知られている。しかし加速電圧を上げることはいたずらに装置の大形化をまねくのみで賢明な策ではない。同一電流でたたく場合のターゲットの寿命についてみても200 kV付近までは長くなる傾向にあるが、そ



第12図 中性子発生量の再現性試験

れ以上ではほとんど差が見られないようである。中性子発生量は使用するターゲットによっても違いがあるが、ハウエル製の薄いターゲット1Cを用いたときの14 MeV中性子の実測値は第11図に示すとおりである。これでわかるように加速電圧200 kV、ビーム電流500 μAで10¹⁰ n/s以上の中性子を十分発生することができる。本装置の試料室はターゲットのすぐ近傍にあるので、10⁸ n/cm²・s程度の速中性子を試料の放射化に利用できる。

前に述べたように、ビームの再現性がよいので、ターゲットの消耗が著しくならないかぎり、中性子発生量の再現性もよい。第12図はシンチレーション形の速中性子モニタによって中性子収量の再現性を測定した結果である。

4. 放射化分析

4.1 速中性子による放射化

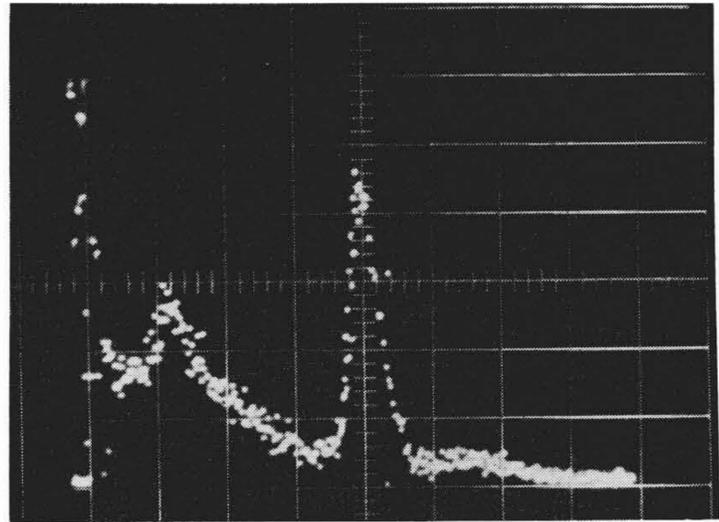
ある物質に中性子を照射すると、中性子は物質を構成する原子核と衝突して核反応を起こし、その物質を放射化する。熱中性子では(n, γ)反応すなわち中性子捕獲反応がおもなるものであるけれども速中性子では(n, p), (n, α), (n, 2n)などいろいろの反応が起こる。たとえばフッ素(¹⁹F)に中性子をあてると¹⁹F(n, p)¹⁹Oの反応によって、中性子が吸収されて陽子が放出され酸素(¹⁹O)ができる。この酸素¹⁹Oは放射性でありβ⁻線とγ線を放出して再びフッ素¹⁹Fにもどる。このような放射化により、放出される放射線を測定して、材料中の特定元素を検出しようというのが放射化分析である。この方法の特長は非破壊的にかつ迅速に分析を行なうことができる点にある。

いま、ある核種(たとえば上記¹⁹F)を時刻t=0からt=t₁まで中性子で照射すると、生成放射能Yはつぎのように表わされる。

$$Y = \frac{6.02 \times 10^{-4} \phi \sigma M f}{A} [1 - e^{-\lambda t_1}] \dots \dots \dots (1)$$

- ここに、 Y: 生成放射能 (d. p. s)
- φ: 中性子密度 (n/s・cm²)
- σ: 着目する核反応の断面積 (mb)
- M: 物質の質量 (g)
- f: 着目する核種の存在比
- A: 着目する核種の原子量
- T: 生成核種の半減期
- λ=0.693/T: 生成核種の崩壊定数

時刻t₁で照射が終了すると、その後の放射能Yは(1)式の値から減衰をはじめ、時刻t(t>t₁)での放射能はつぎのようになる。



第13図 プラセオジウム放射化分析の一例

$$Y(t) = \frac{6.02 \times 10^{-4} \phi \sigma M f}{A} [1 - e^{-\lambda t_1}] e^{-\lambda(t-t_1)} \dots (2)$$

さらにそののち時刻t₂(t₂>t₁)からt₃の間に測定を行なうとすれば、この時間(t₃-t₂)の間の生成放射能崩壊数Y_Dは(2)式により求められ(3)式のようにになる。

$$Y_D = \frac{6.02 \times 10^{-4} \phi \sigma M f}{A} [1 - e^{-\lambda t_1}] [e^{-\lambda(t_2-t_1)} - e^{-\lambda(t_3-t_1)}] \dots \dots \dots (3)$$

(3)式を用いてY_Dを求め、かつ測定器の効率や生成核の崩壊形式(Branching Ratioなど)を考慮することにより、任意の物質の検出の可能性が検討できる。また逆に(あるいはむしろこれが目的であることが多いが)実験によってY_Dを求め(3)式によって物質質量Mを知ることができる。

第1表に代表的な核種の速中性子反応の種類、断面積、半減期などをまとめた。そのほかのものについては、たとえば Gillespie & Hill⁽²⁾の表などにある。いまプラセオジウム¹⁴¹Prの10 μgをφ=5×10⁸ n/s・cm²の中性子で照射し、¹⁴¹Pr(n, 2n)¹⁴⁰Pr反応で生じた放射能核種¹⁴⁰Prについて考える。照射時間10分、照射後1分から測定を始め測定時間1分として、表の各数値を用いて(3)式からY_Dを求めると、Y_D=347となり十分測定可能な値である。第13図はこのようにして測定した¹⁴⁰Prの400チャンネル波高分析器での測定例である。

4.2 放射化分析の応用⁽³⁾

放射化分析が酸素の分析に非常に有効であることはよく知られている。測定方法や照射装置の進歩発達にとともに、さらに広い応用が各分野で行なわれている。

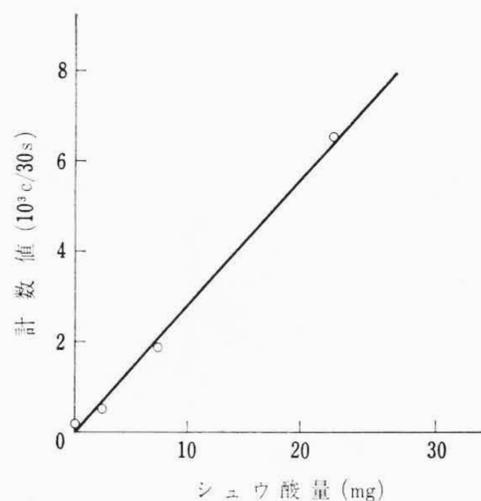
医学あるいは衛生学の分野では人体組織や骨髄中のバナジウムの分析や血液中のセレン、バナジウム、ストロンチウム、ヒ素などの分析、あるいは清浄剤に含まれるヒ素の検出などが行なわれている。またアメリカではミルク中のセレンの検出をつねに放射化分析を用いて行なっている例もあり、さらにスウェーデンではコレステロールとの関連をしらべるために飲料水中のバナジウムの分析を行なった例もある。

鉱業や資源科学の分野においては、石炭中の灰分分析で酸素、シリコン、アルミニウム、鉄などの検出が行なわれている。岩石や触媒中のシリコンとアルミニウムの含有量を測定している例もあるし、隕石中のタンタル、タングステン、イリジウムを放射化分析でしらべることも行なわれている。

放射化分析は高感度であることつまり試料中の微量成分を検出できるということのほか、試料が少量しかないという場合にも有効である。このためいろいろな方面に利用されはじめているけれども、なかでも興味のある応用は犯罪科学の分野におけるものである。

第1表 14 MeV 中性子による反応

核種	存在比 %	核反応	断面積 mb	生成核	半減期	β 線エネルギー MeV	γ 線エネルギー MeV	γ 線収量 %
^{11}B	81	(n, p)		^{11}Be	13.75 s	11.5		
		(n, α)	25	^8Li	0.87 s	13		
		$(n, 2n)$		^{10}B	安定			
^{12}C	98.9	(n, p)		^{12}B	0.022 s	13.4	4.43	
		(n, α)	80	^9Be	安定			
		$(n, 2n)$	6	^{11}C	20.5 m	$\beta+0.98$	0.51	200
^{16}O	99.8	(n, p)	35	^{16}N	7.36 s	10.3 4.3 3.8	6.13 7.10	~80
		(n, α)		^{13}C	安定			
		$(n, 2n)$		^{15}O	2.1 m	$\beta+1.74$	0.51	200
^{19}F	100	(n, p)	135	^{19}O	29.4 s	4.5 2.9	1.61	
		(n, α)	140	^{16}N	7.36 s	10.3 4.3 3.8	6.13 7.10	~80
		$(n, 2n)$	61	^{18}F	1.87 h	$\beta+0.65$	0.51	200
^{23}Na	100	(n, p)	34	^{23}Ne	40.2 s	4.21 1.18	3.0	7
		(n, α)		^{20}F	10.7 s	5.41	1.63	100
		$(n, 2n)$	14	^{22}Na	2.6 y	$\beta+0.542$	0.51	200
^{24}Mg	78.6	(n, p)	180	^{24}Na	15 h	1.39	1.368 2.754	~100 ~100
		(n, α)		^{21}Ne	安定			
		$(n, 2n)$		^{23}Mg	11 s	$\beta+2.95$	0.51	200
^{27}Al	100	(n, p)	79	^{27}Mg	9.45 m	1.80 0.9	1.10 0.84	20 20
		(n, α)	116	^{24}Na	15 h	1.39	1.368 2.754	~100 ~100
		$(n, 2n)$		^{25}Mg	安定			
^{28}Si	92.3	(n, p)	250	^{28}Al	2.3 m	2.87	1.78	100
		(n, α)		^{25}Mg	安定			
		$(n, 2n)$		^{27}Si	4.9 s	$\beta+3.8$	0.51	200
^{31}P	100	(n, p)	91	^{31}Si	2.65 h	1.47	0.17 0.52	
		(n, α)	146	^{28}Al	2.3 m	2.87	1.78	100
		$(n, 2n)$	14	^{30}P	2.55 m	$\beta+3.31$	0.51	200
^{32}S	95	(n, p)	248	^{32}P	14.3 d	1.70	なし	
		(n, α)		^{29}Si	安定			
		$(n, 2n)$		^{31}S	2.6 s	$\beta+4.42$	0.51	200
^{35}Cl	75	(n, p)		^{35}S	87.1 d	0.167	なし	
		(n, α)	191	^{32}P	14.3 d	1.70	なし	
		$(n, 2n)$	3.5	^{34}Cl	32.4 m	4.5 $\beta+2.6$ 1.3	3.22 2.10 1.16	
^{51}V	100	(n, p)	27	^{51}Ti	5.79 m	2.2 1.9	0.32	~70
		(n, α)	29	^{48}Sc	1.83 d	0.64	1.33 0.98	100 100
		$(n, 2n)$	660	^{50}V	安定		~1.0	100
^{63}Cu	70	(n, p)	120	^{63}Ni	80 y	0.067	なし	
		(n, α)		^{60m}Co	10.5 m	1.56	0.059	
		$(n, 2n)$	482	^{62}Cu	9.8 m	$\beta+2.92$	0.56 0.51	200
^{69}Ga	60	(n, p)	24	^{69m}Zn	14 h	0.897	0.438	100
		(n, α)	39	^{66}Cu	5.1 m	2.63	1.04	100
		$(n, 2n)$	550	^{68}Ga	68 m	$\beta+1.88$ 0.77	1.07 0.81 1.24	
^{75}As	100	(n, p)	12	^{75}Ge	82 m	1.14 0.614	0.682 0.264	
		(n, α)	12	^{72}Ga	14.2 h	0.64 0.91 1.51	0.199 0.84 2.1	100 33
		$(n, 2n)$		^{100}Tc	15.7 s	3.38 2.88	0.54 0.60	
^{127}I	100	(n, p)	230	^{127}Te	9.3 h	0.70	0.418 0.360	
		(n, α)	18	^{124m}Sb	20 m		0.0185	
		$(n, 2n)$	2,100	^{140}Pr	3.4 m	$\beta+2.23$ (54%)	0.51	200
^{181}Ta	99.988	$(n, 2n)$	900	^{180m}Ta	8.15 h	0.71 0.61	0.093 0.102	
		(n, p)	21	^{197}Pt	18 h	0.329 そのほか	0.67 ほか	
		(n, α)	0.5	^{194}Ir	19 h	2.24 1.91 ほか	0.426 0.354 0.33	
^{197}Au	100	(n, p)	21	^{197}Pt	18 h	0.329 そのほか	0.67 ほか	
		(n, α)	0.5	^{194}Ir	19 h	2.24 1.91 ほか	0.426 0.354 0.33	
		$(n, 2n)$	2,600	^{196}Au	5.5 d	0.34		



第14図 グラファイト-シュウ酸混合体の酸素検出

試みなども行なわれている。

このように放射化学分析はいろいろの分野で広く利用されはじめており、応用の開発も進められているので、今後さらに発展するものと思われる。

4.3 実測例

4.3.1 グラファイト中の酸素の測定

酸素の分析は通常の化学的方法では一般にむずかしく、放射化学分析が有力な手段となっている。酸素検出の予備実験として、グラファイト中にシュウ酸 $[(\text{COOH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}]$ をいろいろの割合で混入させた場合について実験を行なった。

酸素を中性子で照射すると、 $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$ 反応によって ^{16}N が生ずる。この ^{16}N が ^{16}O に β 崩壊したときに放出される γ 線は 6~7 MeV のエネルギーをもっている。したがって酸素だけを目的とした放射化学分析には、マルチチャンネル波高分析器を用いてスペクトルを測定しなくても、3~4 MeV にディスクリレベルを設定して積分バイアス法で簡単に測定できる。通常ディスクリレベルを 3~4 MeV にとれば、他の元素からの妨害は無視できる。

グラファイトに混入されたシュウ酸中の酸素を検出する前に、あらかじめカプセルならびにカプセル内の空気の酸素の影響を測定し、実験データの補正を行なった。同一混合比の試料について数回の測定を行なったところ再現性は標準偏差で 2% 以内であり良好であった。シュウ酸混入量と ^{16}N 放射線の計数値との関係を第14図に示す。図からわかるようにシュウ酸の量 x と計数値 y は直線関係にあり、放射化学分析が有効に行なえることを示している。

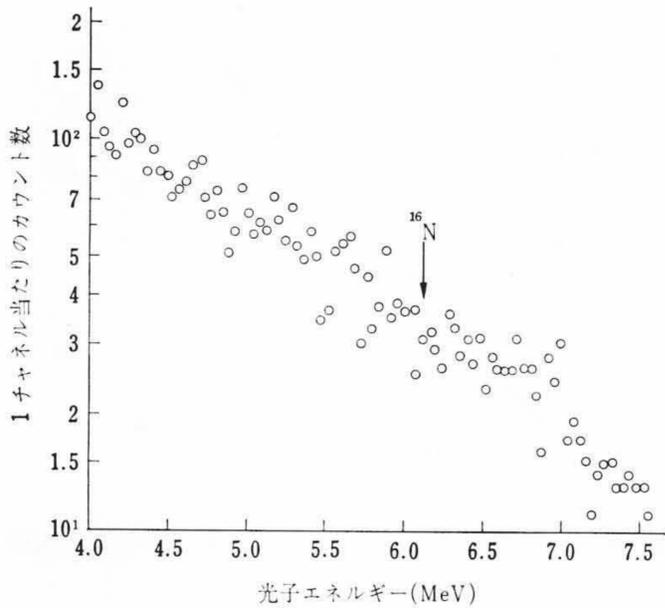
4.3.2 ウラン化合物中の酸素の測定

ウランカーバイド UC には実際上わずかな酸素がはいっていることが知られている。この酸素検出の予備実験として酸化ウラン UO_2 を混入した試料について酸素分析の実験を行なった。

ウラン化合物を中性子で照射するとウランが核分裂を起こし、このとき生ずる核分裂生成物より高エネルギー γ 線が放出され、これが ^{16}N 測定の妨害をすることになる。第15図は γ 線のエネルギースペクトルの一例である。したがって積分バイアス法では ^{16}N の測定はむりであり、マルチチャンネルを用いても核分裂生成物の γ 線にマスクされて ^{16}N のフォトピークを弁別しがたくなる。このため放射能の減衰曲線から酸素を見いだす方法⁽⁴⁾で実験してみた。

いま、酸素を含む試料 A と含まない試料 B とを考える。これらの試料について照射後の放射能を、照射直後と照射後ある時間を経過してから測定する。このそれぞれの計数値を n_1, n_2 とする。計数値 n_2 は照射後時間がたっているので (^{16}N の $T=7.4$)、A, B 両試料とも ^{16}N からの寄与はないと考えてよい。したがってそれぞれの試料について n_1, n_2 の比をとればその差 k は

たとえば毛髪中の各元素の濃度に個人差があることから、毛髪を放射化学分析して測定しフォトピークの比をしらべることにより犯人割り出しに利用しようという試みがある。また容疑者中のだれがピストルを発射したのかをしらべるために、ピストルを発射した者の手に雷管からついたバリウムやアンチモンを放射化学分析で検出するという



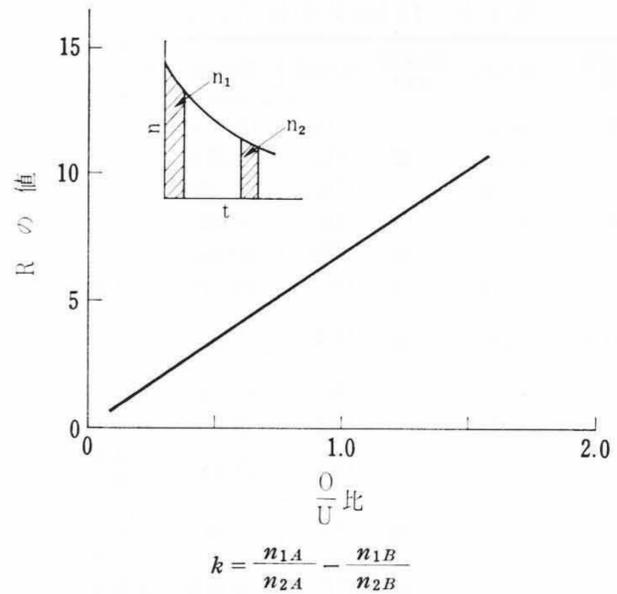
第15図 ウランカーバイドのエネルギースペクトル

$$k = \frac{n_{1A}}{n_{2A}} - \frac{n_{1B}}{n_{2B}} \dots\dots\dots (4)$$

酸素による寄与だけとなり、この(4)式のkがA試料中の酸素量に比例した量を表わす。ここでは標準試料ともいべきB試料には酸素を含まない場合を考えたが、これは酸素を含んでもよい。そのときは標準試料に含まれる酸素量で検査試料の酸素量を比較測定することになる。このような比較測定のほうが実際的にしばしば必要となると思われる。第16図は実験結果の一例である。酸素含有率(O/U比)とkとの関係は直線的であり、この方法が有効なものであることを示している。

5. 結 言

本報では NG-200-2 形中性子発生装置を主体とした、放射化分析



第16図 酸素量とkの値

装置と放射化分析の諸例について述べた。本装置は放射化分析に必要な諸機能を十分に備えており中性子発生量、ビームの再現性、試料気送系、気送系と加速器系、測定系との連動などの性能は満足すべきものである。

本装置はすでに九州大学温泉治療学研究所に納入され、温泉中の希土類元素の分析に活躍しているが、今後種々の測定に利用しこれらの経験を通してさらに装置の改良を進める予定である。

参 考 文 献

- (1) E. A. Burrill et al: Nucleonics 18, No. 12, 64 (1966)
- (2) Gillespie & Hill: Nucleonics 19, No. 11, 170 (1961)
- (3) R. E. Wainerdi: Nucleonics 22, No. 2, 57 (1964)
V. P. Guinn: Nucleonics 22, No. 3, 70 (1964)
J. M. A. Lenihan: Nucleonics 23, No. 2, 65 (1965)
- (4) 石松ほか: 第12回応用物理学関係連合講演会 (1965)

第27巻 目 次 第10号

- ・東京—大阪3時間!
- ・業務開始を待つ——東京大学大形計算機センター——
- ・暖かい冬をプランする <奥さまへの手紙>
- ・空気は汚れている——空気清浄器で新鮮な空気を!
- ・掘って掘って15年——ショベルにもニューモード
- ・穀倉千葉の大動脈・両総用水完成

- ・新しい照明「車両用照明」
- ・電線百話「ちっともじっとしていない電線」
- ・ハイライト「石油ストーブ」
- ・明日への道標「南米ベネゼラ・グリ発電所納フランス水車工場完成」
- ・読者の声「紙袋のいらない掃除機」

発行所 日立評論社
取次店 株式会社 オーム社書店

東京都千代田区丸の内1丁目4番地
振替口座東京71824番
東京都千代田区神田錦町3丁目1番地
振替口座東京20018番