



Title	45MeV電子線直線加速器による放射化分析
Author(s)	諸住, 高; 成田, 英夫; 大橋, 弘士
Citation	北海道大學工学部研究報告, 78, 119-129
Issue Date	1976-02-16
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41328
Type	departmental bulletin paper
File Information	78_119-130.pdf



45 MeV 電子線直線加速器による放射化分析

諸 住 高* 成 田 英 夫* 大 橋 弘 士*

(昭和 50 年 6 月 30 日受理)

Activation Analysis with a 45 MeV Electron Linear Accelerator

Takashi MOROZUMI Hideo NARITA Hiroshi OHASHI

(Received June 30, 1975)

Abstract

Activation analysis of several materials was performed with the Hokkaido University 45 MeV Electron Linear Accelerator. The combination of a lead target and a paraffine moderator was utilized to produce the thermal neutron for the radio-activation. Sixteen samples of metallic and inorganic materials were irradiated, and the γ -ray spectra were measured with a well-type NaI (Tl) scintillation counter. In all cases, the build-up curves of each activated nuclides were given fairly well by the modified exponential formula. Since the neutron flux produced by the linear accelerator is very low in comparison with that of a nuclear reactor, remarkable activation was obtained for a limited number of nuclides which had high activation cross section and/or short half lives. However, rather high sensitivity and accuracy were obtained in the quantitative analysis of some elements in practical materials such as hafnium in zirconium metals, manganese in iron, steels and iron compounds, and molybdenum and other elements in austenitic stainless steels.

1. 緒 言

放射化分析はもっとも感度の高い化学分析手段として知られており、通常は原子炉を中性子線源として行なわれることが多い。しかし、原子炉の設置にはいろいろと制約があり、また経済的にも保守は簡単でなく、どこでも誰でも気軽に利用するということは出来ない。最近、当北海道大学に大型の電子線直線加速器が完成し、常時予定の性能で運転出来るようになった。この加速器は電子線のみならず、相当強力な中性子の発生が可能であり、まだ研究用の原子炉がない当地域としてももっとも貴重な中性子源となった。もちろん、原子炉にくらべると中性子束ははるかに及ばないとは言え、とくに放射化断面積の大きな核種及び短半減期の核種については極めて微量でも放射化することが出来るし、また原子炉にない利点もいくつあるので、今後とも放射化分析に利用される機会が相当多いと期待している。

著者らは、当直線加速器を利用する放射化分析装置の整備を行ないつつあるが、併せてこれまでにいくつかの予備的な測定実験を実施して来ている。それらの結果を報告して、参考に供する次第である。

* 工学部原子炉材料科学講座

2. 実験方法

2.1 中性子線源

北大の大型電子線直線加速器を利用して中性子を発生し、これを放射化の線源とした。同加速器はピーク電流 50 mA のとき電子の最大加速エネルギーが 46 MeV、という高性能のもので、最大ピーク電流 210 mA 以上で 31.5 MeV のパルス状電子ビームを発生することが出来る。パルス幅は、0.01, 0.1, 0.5, および $3\ \mu\text{sec}$ の 4 段に切り換えられ、パルスの最大くり返し数は、200 pps である。

この電子ビームを鉛ターゲットに照射すると制動放射による X 線発生が起こり、さらに光核反応によって約 2 MeV にピークを有する中性子を発生する。鉛ターゲットを冷却するため、水を循環しそのなかにターゲットを浸漬してある。さらに、速中性子を減速して放射化に有効な熱中性子に変えるために、ターゲットの側面に接して 30 cm 立方のパラフィン減速体系を配置した。ターゲット及び減速体系の構造は Fig. 1 に示すようなものである。この減速体系における試料照射位置での熱中性子束とエプサーマル中性子束の強度比の目安となる、いわゆるカドミウム比を求めるために Au 箔標準試料を Cd につつんだ場合と未包装の場合との放射化の比較を試みた。数回の測定の結果では、その値は 10.1 となった。この値は原子炉の 5~20¹⁾ と差異はない。

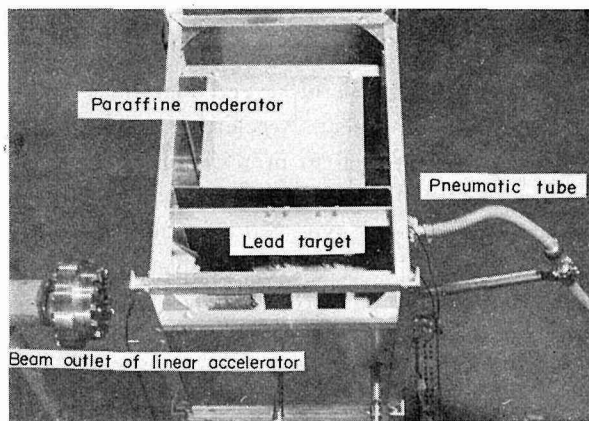


Fig. 1. Photograph of lead target and paraffine moderator.

2.2 気送系と放射化の操作

直線加速器の運転中は加速器室への立ち入りが出来ないので、放射化する試料は 15 mm ϕ × 20 mm の円筒状ポリエチレンラビットに入れ気送装置により、約 50 m はなれた放射能測定室から送った。気送装置は東芝製 AT-5 特で、速中性子による放射化分析用のものを改良したものである。ラビットの中には化学天秤によって精秤した試料を収容するとともに、必要によって線源の強度を測定毎に校正するため、内部標準として精秤した 300 μg ないし 5 mg の金箔又は金の細線を入れた。照射時間は上記のターゲット部付近に設けた試料の発着信号スイッチから送られる信号によって測った。

2.3 放射能測定

放射化した試料の放射能測定には、神戸工業製 NaI (TI) ウェル型シンチレーションカウンタ (結晶, SG-78 WF; 光電増倍管, PS-400) を使用し、東芝製 512 チャンネル波高分析器 (USC-1 model 5) によって γ 線スペクトルを求めた。放射化後できるだけ早い時間に 1 回と、さらに適当な冷却時間をおいて数度測定し、各ピークのエネルギーとピーク面積を求め、半減期を計算して各ピークに相当する核種の同定を行なった。

放射能測定に際して、ポリエチレンラビットの成分である炭素の光核反応によって生じた ^{14}C からの消滅放射線である 0.511 MeV のピークと、そのサムピークである 1.022 MeV に相当する γ 線ピークが顕著に出て、同程度の半減期を有する核種の測定に支障となった。半減期は約

20 分であって、長寿命の放射能測定には適当な冷却時間をとれば消滅し、影響はない。とりあえず、妨害の予想される測定にあたっては、試料輸送に使ったラビットから試料を他の放射化しないラビットに移し替えて測定を行なうことにした。

シンチレーションカウンターのピーク計数効率は γ 線のエネルギーによって異なり、又放射化断面積の中性子エネルギー依存性も核種により異なるので、TAP (Total Absorption Peak) 面積から直接絶対放射能を求めることは出来ない。そこで後述するように、既知量の多種類の物質を内部標準の Au とともに照射して、放射化断面積等から予想される注目核種の放射能対金の放射能の比と、実測のそれを比較し、各ピークのエネルギーとの相関関係を調べてみた。

3. 実験結果と考察

3.1 パルス状中性子照射にたいする放射能ビルトアップについて

直線加速器による中性子照射と通常の原子炉照射との違いは、前者の中性子線が“パルス化”されている点にある。後者では連続的な照射であるのに対して、前者では瞬間的に原子炉並みの高密度中性子パルスに繰り返し曝されるが、また曝されていない時間も長いので、時間平均としては中性子束は原子炉より著しく小さくなる。

いま、試料中に含まれる被放射化核種の数 N 、その放射化断面積を σ (cm²)、照射開始より時間 t (sec) 経過後の生成した注目放射性核種の数 $N^*(t)$ 、その崩壊定数を λ (sec⁻¹)、中性子パルス幅を τ_1 (sec)、パルス間の休止期間の幅を τ_2 (sec)、パルス時の瞬間中性子束を ϕ (n/cm²·sec) とすれば、注目放射性核種による放射能 $\lambda N^*(t)$ は、

$$\lambda N^*(t) = N\sigma\phi \left[\frac{1 - \exp(-\lambda\tau_1)}{1 - \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}} \right] \cdot \{1 - \exp(-\lambda t)\} \quad (1)$$

で表わすことが出来る（補遺を参照のこと）。半減期がパルス間隔 τ_2 に近い短寿命核種が生成する場合には、各パルス毎に放射性核種がビルトアップと崩壊を繰り返すことになるが、 $1/\lambda$ が τ_2 あるいは τ_1 にくらべて著しく長くなると、通常的时间均一フラックスの場合のように、 $\{1 - \exp(-\lambda t)\}$ 項にしたがうビルトアップ特性となってくる。

Fig. 2 と Fig. 3 はバナジウムと金を照射した場合について、照射時間とそれぞれ 0.412 MeV,

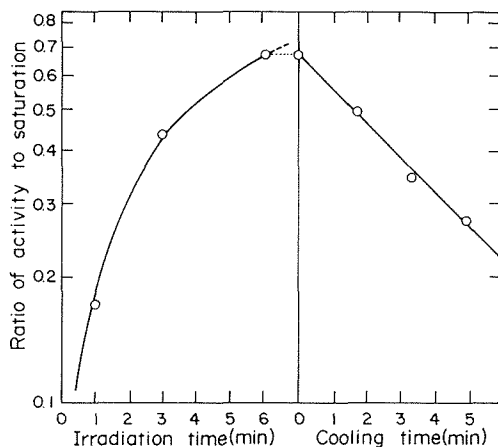


Fig. 2. Build-up and decay of radioactivity of vanadium.

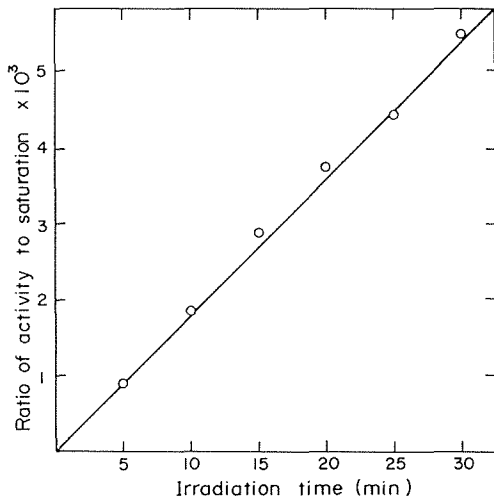


Fig. 3. Build-up of radioactivity of gold.

と 1.433 MeV に相当する放射能の関係を示したものである。バナジウムの場合は照射停止後の崩壊曲線を併せて示してあるが、ビルトアップ曲線の時定数ともよく一致している。このことから上式の関係の成立が結論づけられる。

3.2 各元素の定量の下限について

放射化分析の精度は各元素の特徴的な γ 線ピークが明確に識別出来るか否かにかかってくる。また、その感度は一般に、元素の単位重量あたり生成した注目核種から観測される γ 線ピークの面積の大小に依存する。したがって、式(1)の最初の項として示した $N\sigma\phi$ の大きさによって決まってくる。 $N\sigma = N_0 W\theta\sigma/M$ (N_0 : Avogadro 数, W : 分析元素の重量, θ : 存在比, M : 分析元素の原子量)と表わされるので、大ざっぱに言えば、一定の ϕ については $\theta\sigma/M$ の大きなものほど感度の高い元素になる。さらに定量性を問題にすれば、各元素の特徴ピークはそれぞれエネルギーが異なるから、測定装置の計数効率のエネルギー依存性も関与してくることになる。

当面の放射化分析装置による各元素の定量限界、とくに下限をしらべる目的で、下記の各元素を()内に示した化合物あるいは単体の形で精秤した既知量について、内部標準として同封した金箔又は金線とともに照射して放射化してみた。

Na (Na_2CO_3), Al (Al_2O_3), K (KNO_3), Ni, (元素), V (元素), Co (CoO), Cu (元素),
Mn (MnSO_4), As (As_2O_3), Sr (SrSO_4), I (NH_4I), Au (元素), Ti (元素), Cr (CrO_3),
Sm (Sm_2O_3), Mo (元素)

測定結果は Table 1 に示すとおりである。各元素のうち、注目した生成核種はそれぞれ表の第 2 列目に示すとおりであり、既存の半減期と放射化断面積のデータにもとづいて、そのもっとも代表的な γ 線ピークと内部標準として加えた金の γ 線ピークの予想強度比は第 5 列目のとおり

Table 1. Yields of radioactive nuclides by irradiation with 45 MeV Linear Accelerator.
(Yield of each isotope is normalized to that of ^{198}Au).

Element	Isotope	Half life	Gamma ray energy (MeV)	Calculated yield (A)	Observed yield (B)	Ratio (B/A)	Limit of detection (μg)	Lukens data (μg)
Na	Na-24	15.1 hr	1.37	5.38×10^{-2}	1.84×10^{-2}	0.183	23.6	1.5×10^{-3}
Al	Al-28	2.3 min	1.78	2.98	3.50×10^{-1}	0.117	38.4	2.5×10^{-3}
K	K-42	12.4 hr	1.52	1.13×10^{-3}	2.87×10^{-4}	0.255	1359.0	1.1×10^{-1}
Ti	Ti-51	5.79min	0.323	1.44×10^{-1}	1.46×10^{-1}	1.015	273.4	3.6×10^{-2}
V	V-52	3.73min	1.433	5.50×10	1.25×10	0.223	3.7	2.3×10^{-4}
Cr	Cr-51	27.8 day	0.325	1.70×10^{-4}	2.19×10^{-4}	1.287	4571.0	4.2×10^{-1}
Mn	Mn-56	2.58hr	0.847	8.14	3.52	0.432	0.284	1.9×10^{-5}
Co	Co-60m	10.47min	1.33	1.97×10^{-1}	5.23×10^{-2}	0.265	408.0	
Ni	Ni-65	2.56hr	1.48	4.83×10^{-3}	4.85×10^{-4}	0.100	7590.0	1.2×10^{-1}
Cu	Cu-66	5.15min	1.04	4.44×10^{-1}	2.18×10^{-1}	0.491	59.0	1.4×10^{-2}
As	As-76	26.4 hr	0.56	5.93×10^{-2}	4.53×10^{-2}	0.764	7.74	1.7×10^{-3}
Sr	Sr-87m	2.9 hr	0.388	2.11×10^{-2}	1.90×10^{-2}	0.901	24.9	1.5×10^{-3}
Mo	Mo-101	14.6 min	0.191	5.24×10^{-2}	7.51×10^{-4}	1.43	280.5	2.5×10^{-2}
I	I-128	24.99min	0.443	1.19	1.20	1.012	12.0	1.1×10^{-3}
Sm	Sm-155	22.4 min	0.25	2.60	4.65	1.792	2.55	6.3×10^{-4}
Au	Au-198	2.7 day	0.412	1.00	1.00	1.00	0.921	1.2×10^{-4}

になる。これに対し、実測の値は第6列目のようになり、その比を求めると、Fig. 4 のように γ 線のエネルギーの高いものほどピーク計数効率が低下しており、相当の補正を必要とすることがわかった。

当然のことではあるが、放射化直後の試料から多数の γ 線ピークが観測され複雑になり、全体的に計数率が高く、ある特定のピークを識別するには1 TAP (Total Absorption Peak) あたりの計数率を大きめにとらなければならない。冷却時間を長くすると計数率が少なくなるけれども、短寿命核種が消滅して長寿命核種のピークが明瞭に識別出来るようになる。いま、半減期1 hr 以上の核種について1 TAP あたり 10 cpm, 1 min~1 hr の核種については 100 cpm, また 1 min 以下について 1000 cpm を検出の最下限として、各元素毎の検出感度を求め、同表8列目に示した。さらに、H. R. Lukens Jr. による原子炉で $3.5 \times 10^{12} n/cm^2 \cdot sec$ の中性子束で照射した場合のデータ²⁾と比較してみると、各元素ともおよそ 10^4 分の1程度の感度となっている。このことは中性子束の圧倒的な相違によるもので、やむをえないところであるが、それでも核種によっては相当微量でも充分検出されることが確認された。

3.3 実 測 例

3.3.1 ジルコニウム中のハフニウムの検出と定量

ジルコニウムとその合金は中性子吸収断面積が小さく、かつ、高温水に対する耐食性がすぐれているので、核燃料被覆材あるいはその他原子炉心部の構造材料として多く使用されている。しかし、ジルコニウムとハフニウムは化学的性質がよく似ているので、分離が難しく、通常の工業級のジルコニウムは約2.5%のハフニウムが含まれている。ハフニウムは熱中性子吸収断面積が大きく、原子炉材料としてジルコニウムを用いる場合は、溶媒抽出法でハフニウムの含量を100 ppm 以下のレベルに下げたものを使用しなければならない。この低ハフニウムのものを原子炉級ジルコニウムと称している。ハフニウムの同位体のなかには熱中性子による放射化断面積の大きなものがあることが知られており、放射化分析のよい対象の一つである。そこで原子炉級と工業級のジルコニウムを同一条件で照射して、 γ 線スペクトルの差異を比較してみた

中性子照射を40分間行ない、およそ1時間程度冷却した試料について γ 線スペクトルを測定し、Fig. 5(a), (b) の結果を得た。

原子炉級の場合は半減期17 hr の ^{97}Zr による0.665 MeV と0.747 MeV のピークが明瞭に見られ、その他に ^{95}Zr , ^{97}Zr の後方散乱にもとづく0.189 MeV 付近のピークと、0.511 MeV の陽電子消滅ピークと0.910 MeV のピークが見られた。これらのうち、0.665 MeV は $^{97}Zr \xrightarrow{\beta^-} ^{97}Nb \xrightarrow{\beta^-} ^{97}Mo$ という一連の β 崩壊の後段の ^{97}Nb の β^- 崩壊によるものである。0.747 MeV は ^{97m}Nb の核異性体転移にともなう γ 線である。また、0.511 MeV の消滅放射線は制動放射線によ

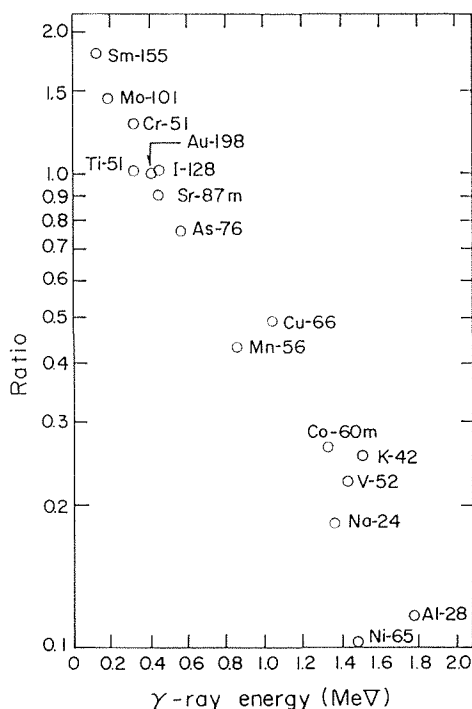
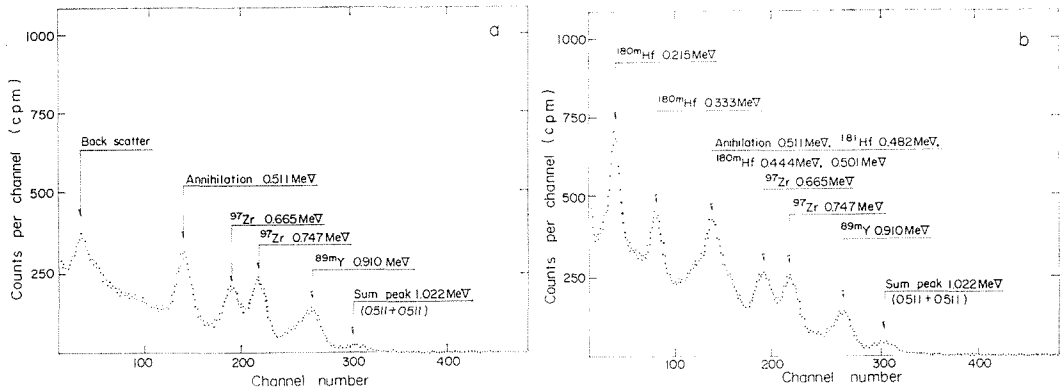


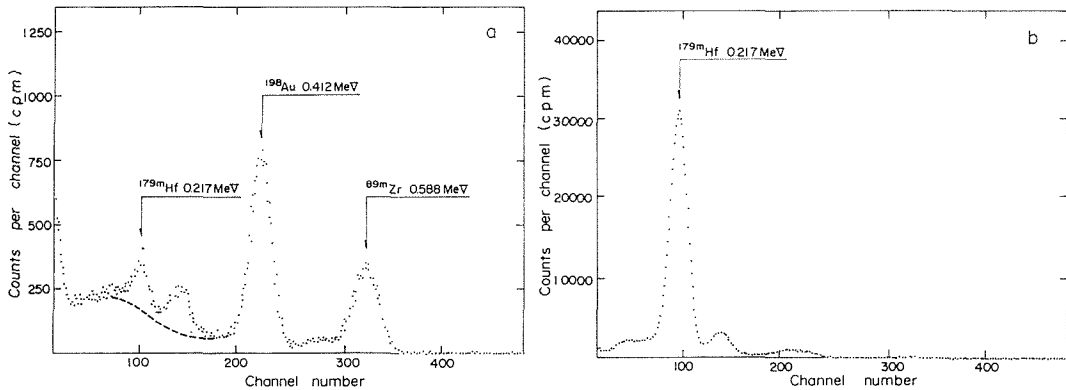
Fig. 4. Ratio of TAP (total absorption peak) areas of radioactive nuclides versus ^{198}Au .

Fig. 5. γ -spectra of zirconium metals.

Irradiation time, 40 minutes.

(a) reactor grade after 1.67 hours decay.

(b) industrial grade after 75 minutes decay.

Fig. 6. γ -spectra of zirconium metals.

Irradiation time, 1 minute.

(a) reactor grade after 30 seconds decay with a curve after 9 minutes decay (----).

(b) industrial grade after 30 seconds decay,

り光核反応で生じた ^{89m}Zr (半減期, 4.18 min) 及び ^{89}Zr の β^+ 崩壊によるものである。0.910 MeV のピークは ^{89}Zr の娘核種 ^{89m}Y によるものである。

これに対し、ハフニウム含量の高い工業級の場合には、以上のほかに ^{180m}Hf にもとづく 0.215 MeV, 0.333 MeV, ^{181}Hf にもとづく 0.482 MeV のピーク等が見られた。また、原子炉級にも見られる 0.511 MeV 付近のピークは、工業級の場合は相当大きく、幅も広がっている。その原因は ^{180m}Hf による 0.444 MeV と 0.501 MeV, ^{181}Hf による 0.482 MeV のピークが重なっているためである。例えば、2 日間冷却後の γ 線スペクトルについて、工業級のピークから、原子炉級のピークを差し引くスペクトルストリッピング法により、0.482 MeV に相当するピークを求めることが出来た。

要するに放射化した工業級と原子炉級のジルコニウムの γ 線スペクトルを比較するとハフニウムに相当するピークに大きな相異が見られ、その差からハフニウムの定量分析が可能であるこ

とが予想された。たとえば ^{180m}Hf に相当する 0.333 MeV ピークと, ^{97}Zr に相当する 0.747 MeV とピークを比較し, γ 線エネルギーの相異によるピーク計数効率の値を考慮して, Hf と Zr の重量比を求めると 1.66% となった。しかし, この値の精度は悪く信頼性が低い。

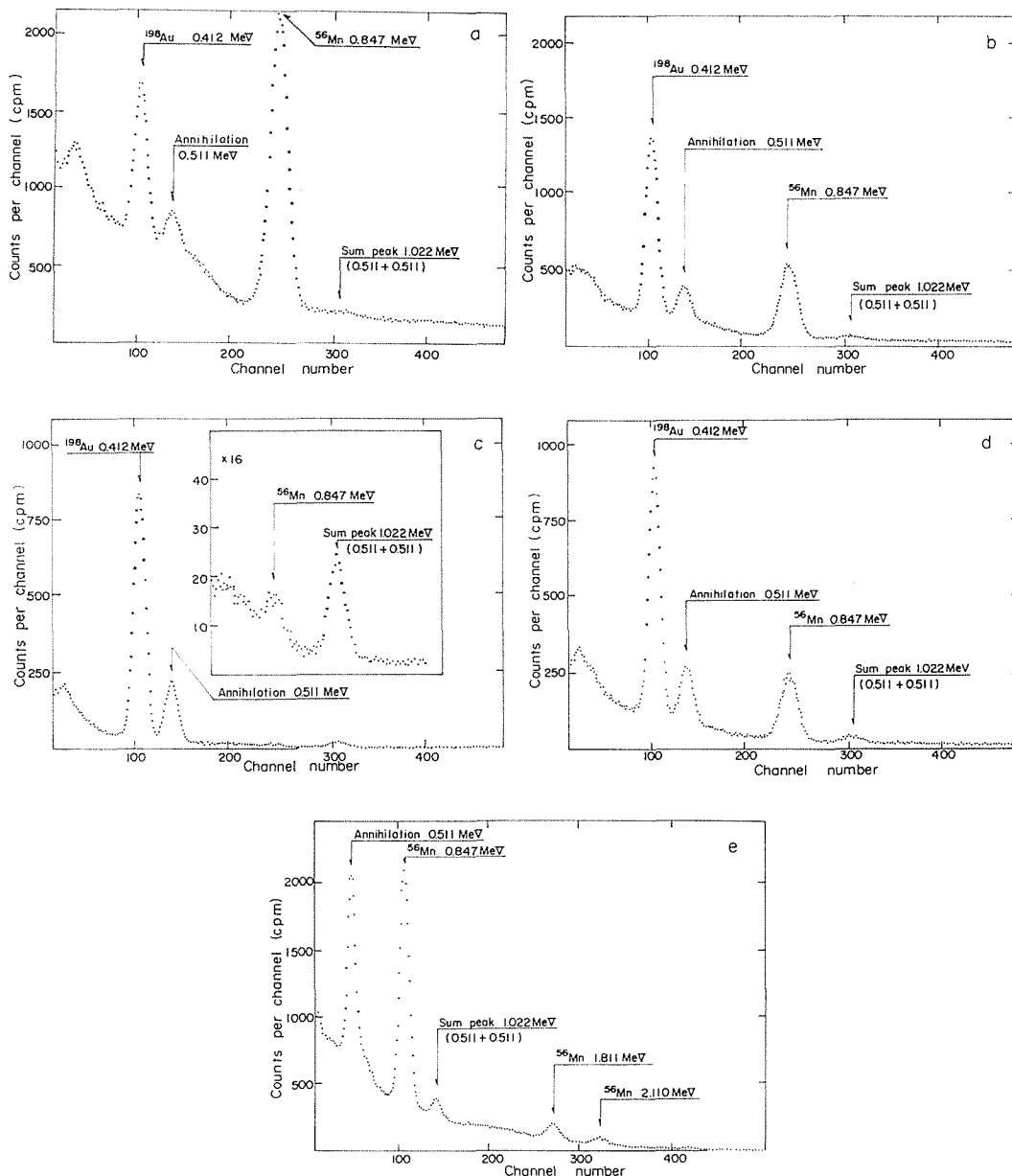


Fig. 7. γ -spectra of iron metal and iron compounds.

Irradiation time, 30 minutes; decay time, 40 minutes for all specimens except sample (e). Irradiation time, 10 minutes; decay time, 90 seconds for sample (e).

- (a) Iron-A (b) Iron-B (c) Iron-C
(d) $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (GR) (e) Fe_3O_4 (EP)

ジルコニウム中のハフニウムの放射化分析の例としては、中井ら³⁾による原子炉照射による実験がある。彼らは 100 ppm 程度のハフニウムの分析が可能であることを報告している。著者らも 1 分間照射、照射後 30 sec から 0.217 MeV の γ 線ピークを測定し、Hf 含量として原子炉級ジルコニウムにおいては 80.7 ± 11.6 ppm、工業級ジルコニウムにおいては 2.16 ± 0.007 wt% という妥当な値を得た (Fig. 6 (a), (b))。前述の $^{180\text{m}}\text{Hf}$ による場合に比べると、崩壊速度が著しく早く測定に細心の注意を要する欠点はあるが、原子炉級ジルコニウム中の微量ハフニウムの定量も一応可能であることがわかった。なお、Fig. 6 の a および b において、0.28 ないし 0.29 MeV の短半減期の γ 線ピークが観測されたが、これについては現在検討中である。

3.3.2 鉄鋼ならびに二、三の鉄化合物中の Mn の定量

前述のように加速器中性子による放射化分析にたいし、検出感度の良くもっとも適当な元素の一つにマンガンがある。マンガンは通常鉄鉱石に含まれているので、鉄の精製過程で完全に除去することが困難な元素の一つである。純鉄として市販されている 3 試料、特級試薬の $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ と一級試薬の Fe_3O_4 の 5 種類について放射化分析を行ない、Mn の定量を行なってみた。純鉄の試料はいずれも厚さ約 10~50 μm の箔状のものを使用し、約 0.2~1.5 g を 2~4 mg の金箔と同封したものを照射した。硫酸鉄と四三酸化鉄はそれぞれ粉末の試料を使用した。それぞれの試料の γ 線スペクトルの測定結果の例は Fig. 7 (a), (b), (c), (d) 及び (e) のようである。純鉄の 1 試料を除いてはピークエネルギー 0.847 MeV、半減期 2.58 hr の ^{56}Mn の γ 線ピークが顕著に見られた。 MnSO_4 の 5 水塩を 100°C 4 時間乾燥してえた $\text{MnSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を金箔と同封して照射、放射化して、単位量の Au と Mn の TAP 面積の比を求め、これを基準として、それぞれの試料の Mn 含有量を求め Table 2 の結果をえた。各試料について Mn 含有量に相当の差異が認められるが、以上の放射化分析によって 0.01 wt% 程度の相当微量の Mn の検出と定量が可能であることがわかった。

Table 2. Estimated contents of manganese in irons and iron compounds.

Material	Mn (wt%)
Iron-A	0.309 $\pm$ 0.033
Iron-B	0.0556 $\pm$ 0.006
Iron-C	0.0017 $\pm$ 0.0013
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (GR)	0.0297 $\pm$ 0.0032
Fe_3O_4 (EP)	0.327 $\pm$ 0.0104

3.3.3 オーステナイト不銹鋼の放射化分析

不銹鋼には耐食性向上のため各種元素が多種類配合されている。これらの元素の同定あるいは定量が、直線加速器からの中性子によってどの程度可能であるかを検討してみた。国内某社製の 304 S と 316 S の 2 種類のオーステナイト不銹鋼と、その主要構成元素について放射化分析を行なってみた。Fig. 8 (a), 及び (b) にそれぞれについての γ 線スペクトルの測定結果を例示してある。比較的多量に存在する Fe と Ni についての γ 線ピークはほとんど無視できる程度に過ぎなかった。もっとも顕著に放射化した元素は Mn, Cr, Mo などであった。これらのうち、Mn に相当するピークはとくに強く、照射直後では初期の目的とした ^{101}Mo (半減期 14.6 分) の娘核種として生ずる ^{101}Tc (半減期 14.0 分) の γ 線の検出は不可能に近く、 ^{98}Mo から (n, γ) 反応によって生ずる ^{99}Mo とその娘核種 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の、0.141 と 0.142 MeV (2 本はほとんど重なって検出される) の重複ピークによって、Mo の定量を行なわざるをえなかった。このピークは娘核種である $^{99\text{m}}\text{Tc}$ のビルトアップによって放射能は照射終了後 1 日で最大となり、一方 Mn のピークはこの時点には約 3 桁減衰しているので、その妨害はほとんどなく、1 日冷却の γ ピークで定量を試みてみた。

検出された各元素について、 γ 線ピーク定量を行なってみた結果は Table 3 のようである。Mn, Mo については成分表に示されている値に近く、ほぼ妥当な結果を示している。Cr につい

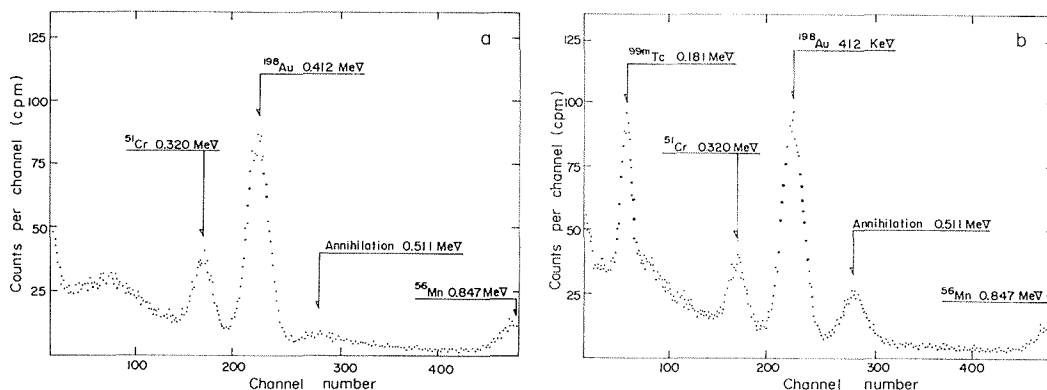


Fig. 8. γ -spectra of austenitic stainless steels.

Irradiation time, 20 minutes.

(a) 304 S after 26.6 hours decay.

(b) 316 S after 25.3 hours decay.

Table 3. Estimated contents of molybdenum, chromium and manganese in austenitic stainless steels.

Material	Mo (wt%)	Cr (wt%)	Mn (wt%)
304 S	0	15.9 ± 3.70	1.07 ± 0.13
316 S	2.39 ± 0.24	8.80 ± 2.30	0.96 ± 0.11

ては放射化分析による結果がかなり低めであり、定量性に若干疑問を残した。標準試料のつくり方などについて再検討を進めている。

以上のように不銹鋼の成分元素のごく一部であるが、一応の感度で検出定量が出来ることがわかった。

4. 結 論

以上、北海道大学に最近完成をみた 45 MeV 電子線加速器による放射化分析装置を整備し、これによる実験を試みた結果について述べた。現在までのところ、10 数種類の元素について放射化を行ない γ 線スペクトルを測定し、その結果、分析の行なえる程度の放射化が充分可能であることが実証された。放射化断面積の大きな核種、及び短半減期の核種については、相当高い感度で検出定量が出来ることがわかった。さらにジルコニウム中のハフニウム、鉄鋼や鉄化合物中の Mn、ステンレス鋼中の Mn, Mo, その他若干の成分元素についての検出定量が可能であることを実例によって示した。加速器による中性子束は原子炉にくらべると、著しく低いため、検出感度が低くなるのは避けられない。しかし、放射化断面積の大きな元素の場合はむしろ加速器の方が試料調製、照射操作などが容易であるという利点がみられた。原子炉の場合は多数元素が同時に放射化するので、放射能測定には半導体検出器のようなピークの解像力のよいものを用いなければならないし、データ処理を行なわなければ測定結果を完全に生かし切れないことになる。この点加速器の方が装置操作が簡便であるので、原子炉照射に入る前の予備的検討の手段としても有益であることが本実験によって印象づけられた。なお、本研究にとりあげた元素以外にも、逐次、照射を行なう予定であり、その結果については続けて報告する予定である。

文 献

- 1) 日下 譲: 放射化分析 (1973), p. 24, 共立出版.
- 2) 同上, p. 199-208.
- 3) 中井敏夫, 矢島聖使, 藤井 勲, 岡田 実: 日本化学雑誌, 第 80 巻, 第 1 号 (1959), p. 49-52.

補 遺

Fig. 9 に示すようなパルス状の中性子束で試料を照射すると, 中性子が照射されている間に放射性核種の生成が行なわれ, 全期間を通じて生成放射性核種の崩壊が起こることになる。この経過をつぶさに各パルス毎に追ってみると次のようである。

まず第 1 番目のパルス ($n=1$) 終了時における放射性核種の生成は,

$$N_{11}^* = N\sigma\phi/\lambda \cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\}$$

となり, 更にその後のパルス休止間 τ_2 に

$$N_{12}^* = N\sigma\phi/\lambda \cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} \cdot \exp(-\lambda\tau_2)$$

となる。

次に, 第二番目のパルス終了時には

$$\begin{aligned} N_{22}^* &= N_{12}^* \cdot \exp(-\lambda\tau_1) + N\sigma\phi/\lambda \cdot \\ &\cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} = N\sigma\phi/\lambda \cdot \\ &\cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} \cdot [1 + \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}] \end{aligned}$$

となる。また, パルス休止時の最後においては,

$$\begin{aligned} N_{23}^* &= N_{22}^* \cdot \exp(-\lambda\tau_2) \\ &= N\sigma\phi/\lambda \cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} \cdot \\ &\cdot [1 + \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}] \cdot \exp(-\lambda\tau_2) \end{aligned}$$

となる。

第三番目のパルス終了時には

$$\begin{aligned} N_{33}^* &= N_{23}^* \exp(-\lambda\tau_1) + N\sigma\phi/\lambda \cdot \\ &\cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} = N\sigma\phi/\lambda \cdot \\ &\cdot \{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} \cdot [1 + \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\} \\ &+ \exp\{-2\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}] \end{aligned}$$

同様な計算操作を n 回繰り返せば

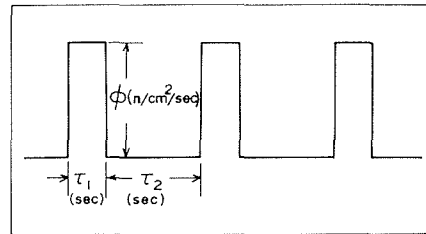


Fig. 9. Schematic diagram of pulsed neutron flux.

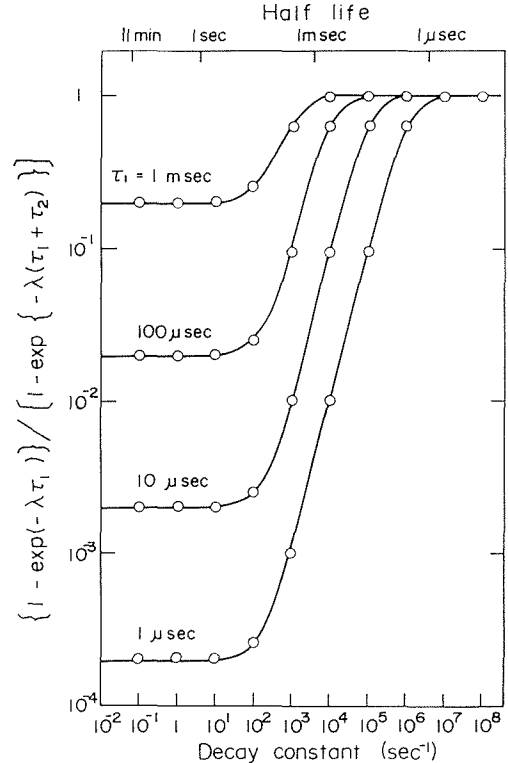


Fig. 10. Correction factor for exponential formula as a function of λ and τ_1 .

$$\begin{aligned}
 N_{nn}^* &= N\sigma\phi/\lambda \cdot \left\{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\right\} \cdot \sum_{k=0}^{n-1} \exp\left\{-\lambda k(\tau_1 + \tau_2)\right\} \\
 &= N\sigma\phi/\lambda \cdot \frac{\{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} \cdot [1 - \exp\{-n\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}]}{1 - \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}}
 \end{aligned}$$

となる。

ここで、 $n(\tau_1 + \tau_2) = t$ とおけば

$$N^*(t) = N\sigma\phi/\lambda \cdot \frac{\{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\}}{[1 - \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}]} \cdot \{1 - \exp(-\lambda t)\}$$

となる。したがって $\lambda N^*(t)$ は本文の (1) 式となる。また、たとえば $1/(\tau_1 + \tau_2) = 200$ pps として、 $\{1 - \exp(-\lambda\tau_1)\} / [1 - \exp\{-\lambda(\tau_1 + \tau_2)\}]$ の値を、 τ_1 をパラメータとして示すと Fig. 10 のようになる。この図からパルス状中性子による放射化分析は半減期の短い核種ほど有利であることがわかる。