

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 21 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22750077

研究課題名（和文） 多重度フィルターと共鳴による非破壊元素分析法の開発

研究課題名（英文） Development of non-destructive elemental analysis using a gamma ray multiplicity filter and a neutron resonance

研究代表者

藤 暢輔（TOH YOSUKE）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究主幹

研究者番号：60354734

研究成果の概要（和文）：即発ガンマ線分析(PGA)は迅速・非破壊で多元素を同時に定性・定量分析する分析手法である。PGAにおいてガンマ線の多重度を測定することにより、妨害元素からのガンマ線を低減した。また、中性子捕獲断面積は多くの原子核において中性子のエネルギーに依存した構造（共鳴）を持つ。シグナル・ノイズ比の改善のために、共鳴を利用したPGAを開発した。

研究成果の概要（英文）：Prompt gamma-ray analysis (PGA) is a rapid, non-destructive and a analytical technique which can perform both qualitative and quantitative multi-element analysis. Gamma-ray multiplicities have been measured and used to reduce interference of gamma-ray background in PGA. The neutron capture cross sections of most nuclides exhibit strong variations (resonance) with the kinetic energy of neutron. For further improvements of the signal-to-noise ratio and sensitivity, prompt gamma-ray analysis by using resonance has been developed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
22年度	500,000	150,000	650,000
23年度	1,800,000	540,000	2,340,000
24年度	300,000	90,000	390,000
総計	2,600,000	780,000	3,380,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：複合化学・分析化学

キーワード：核利用分析、放射化分析、パルス中性子

## 1. 研究開始当初の背景

微量元素の定量法には ICP、XPS、AAS、加速器質量分析法など、それぞれ優れた特徴を持つ分析法が存在する。しかし、試料の物理的状态(非破壊)、目的元素、必要な測定精度・測定時間等によっては、現存するいかなる測定法を用いても分析が出来ない場合もある。個々の検出法の改良によってある程度は検出限界・測定精度等が改善されてきているが、農産物・考古学試料・隕石・高付加価値金属等の貴重試料、リサイクル製品中のトランプ元素等など、全く新しい分析法の開

発によるブレイクスルーが必要とされている。

多重ガンマ線検出法は主に原子核構造実験等において用いられてきた手法であるが、申請者はこれを放射化分析及び即発ガンマ線分析に応用し化学分離不要・多元素同時・高感度・高精度等の特徴を持つ分析法を開発してきた。開発してきた手法の検出効率は、これまでの即発ガンマ線分析の感度（ゲルマニウム検出器の検出効率）の2乗に比例するため、統計精度によって検出限界が抑えられている場合が多い。しかし、検出効率向上のた

めに現在の台数を 2 倍に増やそうとすると、ゲルマニウム検出器は非常に高価であるため 1 億円以上の資金が必要となる。その上、検出器を真空中で液体窒素温度に冷却する必要があるため試料に近接しての設置には限界があり、その結果、検出器から試料までの距離が離れてしまい、検出器が覆う立体角を大きく増加させることができない（検出効率が大きく増えない）。そのため、検出効率の向上に依らない新しい発想による改善法が求められていた。

## 2. 研究の目的

即発ガンマ線分析において、検出限界は妨害元素からのバックグラウンドガンマ線の強度に依存し、多くの場合において水素からの即発ガンマ線がバックグラウンドの大部分を占める。このバックグラウンドガンマ線の多重度（一度に放出されるガンマ線の数）は水素の場合に 1（つまり同時に 1 本しか放出しない）であるが、他の元素の多重度は 3～5 程度である。提案者はここに着目し、多重度を決定するための安価な省スペース・高立体角を持つ検出器を開発し、バックグラウンドとなるガンマ線を選択的に取り除く。検出感度は、さらに中性子反応断面積の大きさにも依存する。低エネルギー中性子の領域の反応断面積はエネルギーと共にだだらかに変化するが、高エネルギー領域では反応断面積に共鳴（ある特定の狭い中性子エネルギー領域における 2～6 桁もの正の巨大値が存在する。この共鳴を峻別し、目的元素のシグナルをエンハンスさせる事によっても、シグナル・ノイズ比を改善する。

## 3. 研究の方法

中性子捕獲反応が起こった際に放出される即発ガンマ線の多重度を精度良く決定するため、8 個に分割された構造を持つ多重度フィルター用ガンマ線検出器を開発する。エネルギー決定用のガンマ線検出器（ゲルマニウム検出器）は同時計数効率を上げるために出来る限り試料に近接して設置してあり、中性子及びガンマ線遮蔽材もビームラインを取り囲むように設置されている。そのため、多重度フィルター用検出器を設置するためのスペースは限られている。そのスペースに収めようとする、プラスチックシンチレータと光学ガイドという構成では、形状が複雑になってしまうため、汎用性に欠け、費用も高額になってしまう。そこで、シンチレータとしては柔軟性に優れたプラスチックシンチレーションファイバーを採用した。これを用いて多重度フィルター用検出器を 8 台製作した。

J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)内にある中性子核反応測定装置(ANNRI)には飛

行距離 21.5m の位置に Ge スペクトロメータがあり、27.9m の位置に NaI 検出器がある。MLF では 3GeV シンクロトロンから 25Hz でパルス陽子ビーム（パルス幅は約  $0.6 \mu \text{sec}$ ）を受け入れ、核破砕反応により生成される大強度のパルス中性子ビームを用いる事が出来る。実験時の MLF の出力は約 200keW から 300kW 程度であった。本研究では製作した多重度フィルター用検出器を Ge スペクトロメータに設置してパルス中性子ビームを用いた実験を行った。Ge スペクトロメータは 7 個の Ge 結晶を持つクラスター Ge 検出器 2 台から構成され、コンプトンサプレッサーとして用いる BGO 検出器がそのまわりを取り囲んでいる。クラスター Ge 検出器はビームラインの上下に設置されており、製作した多重度フィルター用検出器はビームラインの左右方向にそれぞれ 4 台設置した。多重度フィルター用検出器は出来る限り大きな立体角を得るためにビームラインに密着させた。

実験データは Ge 結晶の ID 番号、ガンマ線のエネルギー情報及び時間情報を含むリストデータとしてイベント毎にハードディスクに記録される。このリストデータから多重度、時間情報、合計エネルギーなどの条件にあうイベントを抽出し、2次元・3次元スペクトル等を作成するためのソーティングソフトを開発した。さらに得られたスペクトルを解析するためのソフトも開発した。

## 4. 研究成果

主なバックグラウンドとなるガンマ線は試料中に含まれる水素やビームラインに含まれるアルミとマンガンなどからきている。多重度フィルターによる上述のバックグラウンドガンマ線の低減効果を検証する為にプラスチック試料を J-PARC MLF の ANNRI 装置により測定した。得られた実験データを開

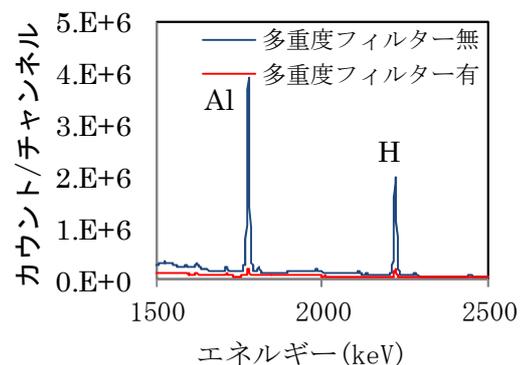


図 1 多重度フィルターによるガンマ線スペクトルの変化

多重度フィルター有ではアルミニウムと水素からのバックグラウンドガンマ線が大幅に減少している。

発したソフトによってソーティングし、多重度別のスペクトルを得た。多重度フィルターによる即発ガンマ線の変化を比較するため、図1に得られたスペクトルの一部を拡大して示す。青い線で示されたものが、多重度フィルター無しであり、赤い線が多重度フィルターを適用したものである。多重度としては2から3までのものを抽出している。多重度フィルター無しのスペクトルでは試料中の水素とビームラインに含まれるアルミからの強いバックグラウンドガンマ線(それぞれ2223keVと1779keVのエネルギーを持つ)が観測されている。水素からのガンマ線は中性子捕獲反応によるものであるが、アルミからのガンマ線は Al-27 が中性子捕獲反応により Al-28 となり、その後ベータ崩壊し Si-28 となる際に放出される(図2参照)。ガンマ線が放出される過程は異なるものの、多重度は共に1であるため、多重度フィルターを適用したスペクトルでは、どちらも大幅に減少している。この例では多重度フィルターにより水素からの即発ガンマ線を取り除いたが、水素を測定したい場合には多重度1のスペクトルを用いれば良い。ホウ素は即発ガンマ線分析の感度が高く需要が多い元素の一つであるが、水素と同じく放出するガンマ線の多重度が1である。ホウ素の即発ガンマ線はドップラー広がりを持ち、Na-23等の即発ガンマ線と重なるが、多重度1のスペクトルを用いる事により、Na等の影響が低減されると考えられる。

本研究において開発した手法では、通常の即発ガンマ線スペクトル(ガンマ線のエネルギースペクトル)の他に、飛行時間法(TOF)による TOF スペクトルが得られる。TOF スペクトル上には元素(原子核)に固有の共鳴ピークが現れる。図3にカドミウムおよび金の試料を ANNRI 装置によって測定して得られた TOF スペクトルを示す。飛行時間軸は共鳴ピークを見やすくするため、対数表示としてあ

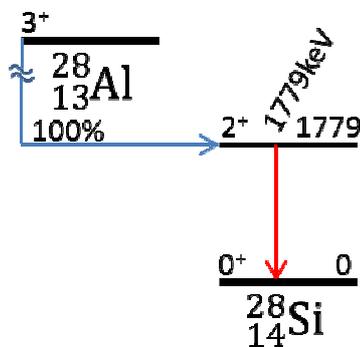


図4 Al-28のベータ崩壊図

Al-28はベータ崩壊する時にガンマ線を一本しか放出しない。

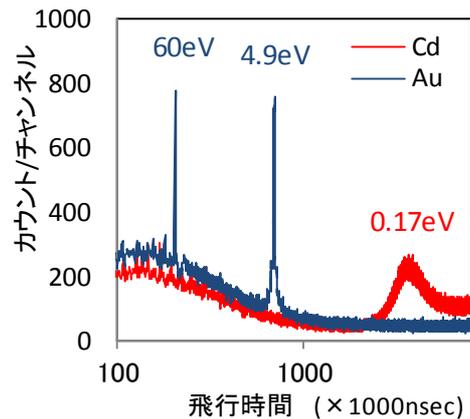


図2 飛行時間スペクトル

カドミウムは0.17eV、金は4.9eVと60eVにある共鳴が観測された。

る。Cd-113は中性子エネルギー0.17eVに第1共鳴をもち、Au-197は4.9eVに第1共鳴を持つ。飛行距離が21.5mであるので、0.17eVと4.9eVのエネルギーを持つ中性子はそれぞれ3700マイクロ秒、700マイクロ秒程度でGeスペクトロメータに設置された試料に到達する。TOFスペクトル上にはそれぞれの共鳴に対応するピークが観測され、Au-197においては60eVの共鳴も観測された。このように、元素(原子核)により共鳴のエネルギーが異なるため、共鳴ピークのエネルギーによって定性分析が行え、共鳴ピークの面積によって定量分析を行う事が出来る。本測定における時間情報は飛行時間の情報だけでなく、同時計数測定のための時間情報としても用いる事が出来る。そのため、時間情報をもとにガ



図3 ガンマ-ガンマ 3次元スペクトル

カドミウムは中性子捕獲反応の際に558keVと651keVのガンマ線を同時に放出する。プラスチック試料の測定において、そのピークが観測された。

ンマ-ガンマの3次元スペクトルも得られる。図4にプラスチック試料の測定で得られたスペクトルの一部を示す。このスペクトル上にはプラスチックに含まれるカドミウムのピークが観測されている。カドミウムは558keVと651keVのガンマ線がカスケード関係にあり、ピークを形成する。同様にガンマ-TOFの3次元スペクトルも得る事が出来る。プラスチック試料のガンマ-TOFスペクトルにおいて、カドミウムの共鳴にゲートをかけて得られるガンマ線スペクトルを解析したところ、ガンマ線シングルススペクトル(通常の2次元スペクトル)に比べてシグナル・ノイズ比が5倍程度改善していることが分かった。

以上の結果から、本研究において新たに開発した元素分析法は従来法に比べてバックグラウンドを低減でき、シグナル・ノイズ比を改善できる事を実証した。本手法は、農産物、考古学試料、隕石試料など、幅広い分野において有用であると期待される。今後の展開としては、ガンマ-ガンマ-TOFスペクトル(4次元スペクトル)を解析することにより更なるシグナル・ノイズ比の改善を行なうことや共鳴ピーク毎のガンマ線スペクトルの取得およびそのデータベース化などを計画している。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計7件)

- ① Y. Toh, Y. Murakami, K. Furutaka, A. Kimura, M. Koizumi, K. Hara, T. Kin, S. Nakamura, H. Harada, Feasibility study for the quantification of total protein content by multiple prompt gamma-ray analysis, *Appl. Radiat. Isot.* 70, 984-987 (2012), 査読有
- ② M. A. Islam, M. Ebihara, Y. Toh, Y. Murakami, H. Harada, Characterization of multiple prompt gamma-ray analysis (MPGA) system at JAEA for elemental analysis of geological and cosmochemical samples, *Appl. Radiat. Isot.* 70, 1531-1535 (2012), 査読有
- ③ Y. Hatsukawa, T. Osawa, M. Oshima, Y. Toh, A. Kimura, M. Koizumi, K. Furutaka, Measurements of Ir concentration in geological standard samples using neutron activation analysis with multiple gamma-ray coincidence method, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 291 (2012) 143-145, 査読有
- ④ Y. Oura, R. Watanabe, M. Ebihara, Y. Murakami, Y. Toh, A. Kimura, M.

Koizumi, K. Furutaka, M. Oshima, K. Hara, T. Kin, S. Nakamura, H. Harada, Application of multiple prompt gamma-ray analysis (MPGA) to geochemical and cosmochemical samples, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 291 (2012) 335-339, 査読有

- ⑤ K. Shozugawa, M. Matsuo, Y. Sano, Y. Toh, Y. Murakami, K. Furutaka, M. Koizumi, A. Kimura, K. Hara, T. Kin, M. Oshima, S. Nakamura, H. Harada, Chemical composition of sediments from marine shallow-water hydrothermal mounds in Wakamiko submarine crater revealed by multiple prompt gamma-ray analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 291 (2012) 341-346, 査読有
- ⑥ M. A. Islam, M. Ebihara, Y. Toh, H. Harada, Comparison of Multiple Prompt  $\gamma$ -Ray Analysis and Prompt  $\gamma$ -Ray Analysis for the Elemental Analysis of Geological and Cosmochemical Samples, *Anal. Chem.* 83 (2011) 7486-7491, 査読有
- ⑦ Neutron Flux Correction for Standard Rice Sample Measurement in MPGA, Y. Toh, Y. Murakami, M. Oshima, M. Koizumi, *JAEA-Review 2010 Prog. Rep. on Neut. Sci.*, 35 (2011), 査読無

[学会発表] (計6件)

- ① Y. Toh, M. Ebihara, K. Hara, A. Kimura, H. Harada, S. Nakamura, M. Koizumi, K. Furutaka, F. Kitatani, Current status and future perspective on time-of-flight prompt gamma-ray analysis combined with gamma-ray coincidence technique development, 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry, Kanazawa, 2013年9月22日~9月27日(発表予定)
- ② 藤 暢輔、中性子核反応測定装置(ANNRI)の元素分析分野への展開、非破壊検査・可視化・分析技術研究会平成24年度第1回研究会、新宿、2012年11月9日
- ③ 藤 暢輔、原 かつお、北谷文人、木村敦、原田秀郎、中村詔司、古高和禎、小泉光生、海老原 充、J-PARC/ANNRIにおけるパルス中性子を用いた多重即発ガンマ線分析法の開発、2012年日本放射科学学会年会・第56回放射化学討論会、東工大、2012年10月03日~10月05日
- ④ Y. Toh, H. Harada, A. Kimura, S. Nakamura, K. Furutaka, F. Kitatani, K. Hara, M. Koizumi, M. Ebihara,

International Conference on Nuclear  
and Radiochemistry (NRC-8), Como  
Italy, 2012年9月17日～9月21日

- ⑤ 藤 暢輔、パルス中性子を用いた多重即  
発ガンマ線分析の現状と課題、第1回  
ANNRI 研究会、東工大、2012年8月20  
日
- ⑥ 藤 暢輔、古高和禎、原かおる、原田  
秀郎、廣瀬健太郎、木村 敦、金 政浩、  
北谷文人、小泉光生、中村詔司、パルス  
中性子を用いた多重即発ガンマ線分析  
法の開発、MLF シンポジウム いらき  
量子ビーム研究センター 2012年1月  
19日

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

藤 暢輔 (TOH YOSUKE)

独立行政法人 日本原子力研究開発機  
構・原子力基礎工学研究部門・研究主幹  
研究者番号：60354734

### (2) 研究分担者

### (3) 連携研究者