大強度パルス中性子と連続中性子を用いた高確度元素分析法開発 Developments of accurate elemental analysis with intense pulsed and continuous neutron beam

海老原 充#.A), 藤 暢輔 ^{B)}, 松尾基之 ^{C)}, 三浦 勉 ^{D)}, 大浦泰嗣 ^{A)}, 小豆川勝見 ^{C)}, 黄 明輝 ^{B)} Mitsuru Ebihara ^{A)}, Yosuke Toh ^{B)}, Motoyuki Matsuo ^{C)}, Tsutomu Miura ^{D)}, Yasuji Oura ^{A)}, Katsumi Shozugawa ^{C)}, Minghui Huang ^{B)}

^{A)} Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Metropolitan University

^{B)} Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency

^{C)} Graduate School of Arts and Sciences, The University of Tokyo

^{D)} National Metrology Institute of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

Abstract

We developed a novel analytical technique that combines prompt gamma-ray analysis (PGA) and time-of-flight elemental analysis (TOF) by using an intense pulsed neutron beam at the Japan Proton Accelerator Research Complex. It allows us to obtain the results from both methods at the same time. Moreover, it can be used to quantify elemental concentrations in the sample, to which neither of these methods can be applied independently, when a new analytical spectrum (TOF-PGA) is used. A simple and accurate correction method was developed for the data processing in PGA, TOF-PGA and TOF analysis. It includes the determination of neutron attenuation, gamma-ray attenuation, live-time fraction and signal pile-up correction factor. The generalized correction method was validated by analyzing of several materials.

Keyword: Prompt gamma ray analysis, neutron resonance capture analysis, TOF-PGA, J-PARC MLF ANNRI

1. はじめに

1.1 研究目的

科学的に重要な試料、希少価値の高い試料の元素 分析は、学術的価値の高い成果をもたらすと期待さ れるが、破壊分析による測定は許されないことが多 い。そのため、非破壊元素分析はそれらの試料の測 定に必須であるが、これまでの方法では複雑な成分 を持つ試料の場合に対応出来ない事も多く、非破壊 分析法のブレークスルーが切望されている。我々の グループは、中性子放射化分析法のガンマ線計測に ①「J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)で得られ るパルス中性子を用いた飛行時間法」及び②「複数 のガンマ線計測用ゲルマニウム検出器を利用した同 時計測法」の2つの測定手法を駆使してシグナル対 ノイズ比を改善し、かつ峻別性能を飛躍的に向上さ せた効率的な先進的非破壊元素分析手法(TOF-PGA 法)の開発を行っている。この全く新しい元素分析 法によるブレークスルーは様々な研究に貢献できる ものと期待されるが、測定や解析における補正が複 雑であると共に試料や目的元素によってはそれが分 析精度に大きく影響することもあるため、一般化に 向けた解析法の構築と検証が不可欠である。本研究 では、各種補正 (デッドタイム、中性子ビーム強度、 ガンマ線減衰)、ピーク解析法、測定条件等につい て、宇宙化学的試料、環境試料、標準物質試料を用 いて検証を行い、高確度な分析法として確立させる ことを目的とする。本研究では TOF-PGA 法の一般 化に資する①中性子放射化分析法の高確度化と、そ

の TOF-PGA を用いた実試料分析と評価である②実 試料を用いた分析法評価を実施する。

1.2 中性子放射化分析法の高確度化

TOF-PGA 法は、理想的な試料において従来法に比 べて極めて良い分析結果を示す[1]。しかしながら、 原子力分野における試料、宇宙化学的試料、環境試 料などの複雑な試料の測定や目的元素によっては、 期待される分析精度が得られないこともあるため、 測定条件、各種補正(デッドタイム、中性子ビーム 強度、ガンマ線減衰)、ピーク解析法等について検 討し、解析法の構築と検証を行って一般化する必要 がある。そのため、デッドタイム補正を含む各種補 正等をパラメータ化し、実験とシミュレーションに より得たデータベースを使って容易に求められる解 析モデルを構築する。

デッドタイム以外の補正として最も重要なものは 中性子自己遮蔽とガンマ線自己遮蔽効果の補正であ る。これらのうち、ガンマ線自己遮蔽効果は、連続 中性子による分析でも同じであるため、より効率的 に研究開発を推進するために、JRR-3の中性子ビー ムホールに設置された多重即発ガンマ線装置 (MPGA)、タンデム加速器棟に設置された多重ガ ンマ線検出装置(GEMINI-II)も用いて行う予定であ る。もし、JRR-3の再起動が遅れて利用出来なけれ ば、J-PARC 中性子核反応測定装置(ANNRI)[2]にお いて実施する。

1.3 実試料を用いた分析法評価

中性子放射化分析法の高確度化において構築され



Figure 1. Schematic drawing of the ANNRI facility. The Ge detector array, which is located at 21.5 m from the neutron moderator, consists of two cluster-Ge detectors, eight large coaxial-Ge detectors, and BGO anti-Compton shields surrounding the Ge detectors.

る手法の検証として、TOF-PGA 法を実試料による 実験を実施する。例えば鉄の標準試料を、縦と横の サイズは変えずに試料重量を変化させて測定した単 位重量当たりのカウントを調べた場合、試料の厚さ に依存する見かけの試料重量は、試料重量の増加と ともに減ることが分かっている。これは、試料が厚 くなると中性子が試料によって散乱(もしくは吸収) される割合が増えるために起こる現象、つまり中性 子自己遮蔽効果である。軽元素を含む場合にはさら に複雑な変化を示すため、多様な試料による多角的 な実験による検証が必要となる。

複合的な影響を出来るだけシンプルに考察できる ように必要に応じてデッドタイム、中性子ビーム強 度、ガンマ線減衰の一つだけが顕著に表れるような 試料を作成して測定する。また、試料(学術分野)によ って元素データの学術的価値も異なるため、補正法 の評価においてはその重要性も考慮して実施する。 標準物質試料はこれらの評価のベースとなるもので あり、総合的な分析法評価を実施するためには欠か せない測定である。本評価においても前述の中性子 放射化分析法の高確度化と同じように JRR-3 MPGA 装置、タンデム加速器棟 GEMINI-II 装置及び J-PARC ANNRI 装置を用いて実施する。また、確立 する分析法は、宇宙化学的試料、環境試料、標準試 料等に積極的に適用し、同手法を用いた学術的・工 学的研究も展開する。

2. 実験

2.1 J-PARC MLF ANNRI

J-PARC MLF に設置された ANNRI の概略図を Fig.1 に示す。中性子源から 21.5m 位置に 7 個の Ge 結晶から構成されるクラスターGe検出器が2台と同 軸型 Ge 検出器 8 台、及びコンプトンサプレッサーと して用いている BGO 検出器から構成されるガンマ 線測定装置が設置されている。図中には示していな いが、27m 位置には NaI 検出器と LaBr 検出器が設置 されており、核データ測定などに用いられている。 また、ビームラインの上流には主にビーム強度調整 に用いる X ステージコリメータ、主にフレームオー バーラップによるバックグラウンドを低減するため の装置であるダブルディスクチョッパー、ビーム径 の調整を行うロータリーコリメータが設置されてお り、実験に合わせて中性子ビームを調整することが 出来る。21.5m 位置での中性子強度は 1MW 時で 4.3×10^7 n/cm2/s (1.5 meV < En < 25 meV), 1.0×10^6 n/cm2/s (0.9 keV < En < 1.1 keV)となっている。

2.2 JRR-3 MPGA とタンデム加速器棟 GEMINI-II

JRR-3 ビームホールの MPGA 装置は冷中性子ビー ムライン C2-3-2 に設置されており、8 台のクローバ ー型 Ge 検出器と4 台の同軸型 Ge 検出器、及びそれ らの周りに配置されている BGO 検出器から構成さ れている。GEMINI-II 装置はタンデム加速器棟のブ ースターターゲットルームに設置されており、15 台 の同軸型 Ge 検出器と4 台の LOAX 検出器及び BGO 検出器から構成されている。どちらも Ge 検出器から 構成されているためガンマ線エネルギー分解能はど ちらも高く、GEMINI-II 装置はシグナル・ノイズ比 に優れ、MPGA 装置は絶対検出効率が大きいという 特長がある[3]。当初の計画では JRR-3 が再起動した 場合には、大強度連続中性子ビームを用いる事がで きる MPGA 装置とタンデム加速器棟 GEMINI-II 装置 も用いる予定であったが、本研究には再起動に至ら



Figure 2. a) The detector setup in PHITS calculation, b) Gamma-ray yield distribution of compound nuclei in a iron sample(6mm).



Figure 3. The intensity distribution of 352 keV gamma-ray and the results of calculation (T-Deposit).

なかったため使用する事は無かった。そのため、実施予定であった実験は ANNRI において行った。

2.3 中性子ビームの自己遮蔽効果とガンマ線の自 己遮蔽効果

中性子ビームの自己遮蔽効果(NA)とガンマ線の自 己遮蔽効果(GA)を検討するため、PHITS[4]によるシ ミュレーションを実施した。自己遮蔽効果とは試料 内部での吸収や散乱による遮蔽効果である。Fig.2a にシミュレーションで用いた検出器体系を示す。図 中の水色が BGO 検出器を表し、その内側にクラスタ ーGe 検出器がある。クラスターGe 検出器の前には 中性子遮蔽材として用いている同位体濃縮 ⁶LiH と ⁶LiF が設置されている。また、水平面上に同軸型 Ge

検出器が8台設置されているが、それらによる影響は小さいと考えられるため、今回のシミュレーシ

ョンには入れていない。NA は PHITS によるシミュ レーションで試料中に中性子捕獲反応を起こす原子 核の数を、中性子捕獲断面積と試料中の原子核数を かけたもので割る事によって得られ、GA は PHITS からダイレクトに得られる。Fig.3 に GA の計算で用 いるガンマ線スペクトルー例を示す。この図は 0.1mm と 6mm 厚の Fe 試料から放出される 352keV のガンマ線のスペクトルであり、このピークカウン トの変化から GA が求まる。ガンマ線ソースの分布 は中性子ビームの自己遮蔽効果も考慮されているた め、厚い試料(6mm)ではビーム入射側に偏りがある ことが分かる (Fig.2b)。NA と GA を中性子エネル ギー、ガンマ線エネルギー、試料の構成元素を変え て計算し、後述するカウント補正に用いた。



Figure 4. Schematic drawing of the amplifier pulse shape. Pile-up signals are shown by red solid lines. Blue dashed and green dotted lines represent the normal shapes of gamma-ray signals. The unshifted pile-up signal in (a) is accepted by the DAQ while that in (b) which is shifted by pile-up is rejected.



Figure 5. (a) TOF-PGA spectrum of the Fe sample. (b) Variation of live-time fraction with TOF. Percentages represent the average values of live-time fraction. (c)(d)(e) Gamma-ray spectra by being gated on different TOF regions. The arrow through spectra (c-e) indicates the change of the gamma-ray intensity ratio of 352 keV to 7631 keV. Note that all the ratios in the gated spectra (c-e) have been normalized to the ratio in spectrum (c).



Figure 6. Calibration of pile-up correction factor with the data of Fe6. (a) Logarithmic relation between $\delta_{Y\tau}$ and τ_n . For each gamma-ray energy, the denominator $\delta_{\gamma\tau_0}$ is a constant which is used for normalization. It is approximately equal to $1/b_Y$. (b) Exponential relation between a_Y/b_Y and E_Y .

2.4 データ収集系の補正

大強度中性子ビームと多数の Ge 検出器によって もたらされる高イベントレートに対応するため、 ANNRI において用いられているデータ収集系は VME ベースの ADC と DSP(Digital Signal Processor) を搭載したエネルギーボードとタイミングボード、 FPGA(Field-Programmable Gate Array)を掲載したコ インシデンスボードによって構成されており、Ge 検 出器-Ge 検出器との同時計数測定、BGO 検出器-Ge 検出器との反同時計数測定、および中性子飛行時間 測定を一度に行える[5,6]。これらのボードは高速化 のためにバッファーを多段階に配置しており、さら にエネルギーボードはアナログでのパルス成形とデ ジタル処理が混在していることもあって、データ収 集におけるデッドタイム、パイルアップ補正係数を 求める事は容易ではない(Fig.4)。デッドタイムはラ ンダムパルサーによって得られるシグナルをガンマ 線によるシグナルと同じように、測定中にデータ収 集系に入力することによって、その数え落としから 得る事ができる。これは、データ収集系は複雑な処 理を行うが試料からのガンマ線によるシグナルもラ ンダムパルサーによるシグナルも同じ処理を行うた めである。パイルアップは、データ収集系のトリガ ーシステムやパルスのアンダーシュートなどの影響 によって、ガンマ線のエネルギーが小さく、デッド タイムが高いほど影響を受けやすい。Fig. 5a に Fe 試料で得られた TOF-PGA スペクトルと 5b に TOF スペクトル上の異なる飛行時間での live-time を示す。 また、5c,d,eには live-time がそれぞれ 49%,23%,3.1% の時のガンマ線スペクトルを示す。図中の青い矢印 は、352keV と 7631keV の強度比を表す。7631keV は

エネルギーが非常に大きく、live-time によるエネル ギー依存の補正効果を殆ど受けないため基準として 用いる事ができる。Fig.6a にパイルアップ効果の実 験値とそれから得られた経験式による値(破線)を 示す。これから Fig.6b に示す任意のエネルギーのガ ンマ線に対する補正係数が得られ、デッドタイム 95%程度まではパイルアップによる効果が正確に補 正できることを確認した。

2.5 総合補正

2.3 に示した中性子ビームの自己遮蔽効果(NA)とガ ンマ線の自己遮蔽効果(GA)、および 2.4 に示したデ ータ収集系のデッドタイムおよびパイルアップの補 正を用い、ANNRI におけるパルス中性子を用いた即 発ガンマ線実験データに対する総合的な補正を行っ た。Fig.6 は鉄試料 0.1mm 厚から 6mm 厚までの試料 を測定した際に得られるデータ(黒)と補正値(青、 緑、ピンク)および計算による期待値(赤の破線) である。ここでτはデッドタイム補正、δはパイル アップ補正、R_{NA}は中性子自己遮蔽の補正、R_{GA}はガ ンマ線自己遮蔽の補正である。補正されたデータの 乖離は最大で 2.3%であり、高い精度での補正が達成 されていることが分かる。また、そのデータのエラ ーが2.6%であることを考慮すると、補正法自体の精 度はそれ以上に良いと考えられる。また、鉄試料他、 Ag 試料においても同様の検証を行った。こちらも乖 離が 3.4%以下に収まっており、高い精度での補正が 達成されている。

2.6 放射性核種の測定

廃棄物処分の大幅な負担軽減を目指し、高レベル

[H27-2]

放射性廃棄物をいくつかのグループに分離し、長寿 命のものを核変換して短寿命化する技術を分離変換 技術という。群分離されたグループのうち Tc・白金 族元素は、管理すべき Tc-99、Pd-107 の長寿命の放 射性核種を含む一方で、有用な金属資源として再利 用することも検討されている。再利用のためには白 金族の定量だけでなく、これらの放射性核種の定量 も重要であるが、Pd-107 は純 β 核種であり、Tc-99 も殆ど崩壊 γ 線を放出しないため、破壊法によって も定量することが困難である。そこで、群分離後の Tc・白金族元素の非破壊分析を確立する事を目的と して、ANNRI を用いた TOF-PGA 法による放射性核 種分析の実現可能性実験を行った。

群分離後の Tc・白金族元素試料を模擬した試料 による実験は ANNRI の 21.5m 位置に設置されてい るクラスターGe 検出器 2 台とコアキシャル Ge 検出 器 7 台を用いて実施した。試料は高レベル放射性廃 液を模擬するため、それに近い元素比となるように 調整した。Tc-99 と Pd-107 は Al キャプセルに密封さ れた密封線源を試料として用い、その他の元素は粉 末として混合した。また、破壊分析において妨害元 素となる Ag を加えた試料も作成し、Ag が TOF-PGA 測定に与える影響も調べた。測定時のビーム強度は 約 500kW であり、単元素試料については 30 分から 1 時間程度、模擬試料等については 6 時間程度の測 定を行った。

従来法の PGA でも TOF でも単元素試料の測定で は、明瞭なピークを確認できた。しかしながら、高 レベル放射性廃液を模擬した試料では、試料に含ま れる複数の元素(核種)からのガンマ線と共鳴のピー クがどちらも重なりあうため、多くの元素は PGA で も TOF でも解析が困難であった。一方、TOF-PGA では TOF と PGA の相関を用いる事ができ、TOF に ゲートをかけた PGA スペクトル(及び PGA にゲー トをかけた TOF スペクトル) の解析を行う事がかの うである。ゲートスペクトルの解析を行ったところ、 多くの元素が含まれる模擬試料であっても特定の元 素(核種)からのガンマ線 (及び共鳴) だけを解析する 事ができた。さらに、模擬試料に Ag を加えた混合 試料においてもTOF-PGAではAgの影響を受けない ことが確認できた。また、本研究に置いて開発した 総合補正手法を適用して定量的な解析を行ったとこ ろ、PGAとTOFでは他の共存元素からの影響を受け て大きく外れた値となったが、TOF-PGA では期待値 と誤差の範囲内で一致する正確な分析値が得られた。 従来の方法では、極めて困難な試料であっても、 TOF-PGA を用いると正しい値が得られたことは、開 発した補正法が適切に機能している事を示している だけでなく、TOF-PGA が確度の高い分析法であるこ とを示している。

2.7 **隕石試料の測定**

太陽系初期の形成や変遷の環境を知るための研究 対象として、隕石は欠かせない試料である。隕石は、 今から 45~46 億年前に他の太陽系物質と同時に作

られ、その後の変成作用をほとんど、あるいは全く 経験していない。隕石には含有物の比率(鉄とケイ 酸塩)によって、3 種類に分類され、鉄隕石、石鉄 隕石、石質隕石と呼ばれる。これらのうち、鉄隕石 と隕石の標準試料である Allende 隕石試料の測定を 行った。特に鉄隕石中に含まれる Co の解析を行い、 従来法である PGA に比べ、TOF-PGA では非常にク リアなピークが得られることが分かり、このピーク を解析することによって、確度の高い分析結果が得 られる。また、標準岩石試料である JB-1、JZn-1、JP-1、 JSO-2 等の測定を行い、Cd、W、Co、Mo などのピー クが確認でき、これらのピークの解析を行って元素 同定が可能である事を示した。Fig.7 に鉄隕石の一つ である Gibeon 隕石を測定した際に得られた PGA ス ペクトルと TOF-PGA スペクトルを示す。比較のた め、TOF-PGA スペクトルは TOF 上でゲートをかけ て得られるガンマ線スペクトルを示してある。ここ で、Coに着目すると、PGA スペクトルでは他の元素 のピークやそのコンプトン成分の影響を受けており、 S/N が良くないが、TOF-PGA では明らかに S/N が改 善していることが分かる。



Figure 7. PGA and TOF-PGA spectra of Gibeon meteorite which is classified as an Iron meteorite.

2.8 Ni 基超合金の測定

Ni 基超合金は高い耐熱性を持つ事から、高温ガス炉 や発電用ガスタービンなどの材料としての開発がお こなわれている。Ni 基超合金は、その特性を改善す るために様々な金属元素が添加された合金が開発さ れている。一般的に金属元素は PGA スペクトルでも TOF スペクトルでも多くのピークが形成される。そ のため、Ni 基超合金を従来法である PGA や NRCA で測定しようとした場合、Ni 基超合金に含まれる 様々な金属元素によるピークがお互いに干渉して正 常な値が得られないことが予想される。



Figure. 8. (a) and (b) are the TOF peaks as well as the backgrounds at 20.29 and 44.75 eV, respectively. (c) and (d) are the TOF counts of different samples at 20.29 and 44.75 eV, respectively. (e) Net counts of 271 keV gamma rays produced by 4.28 eV neutrons. (f) Net counts of 778 keV gamma rays produced by 44.75 eV neutrons. Note that, in order to compare the results of TOF and TOF-PGA, the nominal contents of Ta and Mo in samples IN1-3 and TMS1-3 were used in Figures c-f.

Ni 基超合金である IN738 と TMS238 を模擬した試 料を作製し、ANNRI にて測定を行った。IN738 と TMS238はどちらもNi, Cr, Co, Al, Taをベースとした 超合金である。IN738は、それらの元素の他に B, Ti および Nb を含み、TMS238 は Re, Ru および Hf を含 tr。IN738 と TMS238 の模擬試料の測定では、全て の元素のピークを確認することが出来た。まず、従 来法での解析を行ったところ、TMS238 模擬試料中 の Mo では正常な値が得られない事が分かった。こ れは前述したように他の元素からの妨害によるもの で、RuやWによる影響が大きいものと考えられる。 つづいて、TOF-PGA で解析したところ、Mo を含む すべてのデータで正しい値を得る事ができた(Fig.8)。 つまり、TOF-PGA では、Moのピークから RuやW の影響をほぼ完全に排除することに成功しているこ とを意味し、非常に複雑な構成元素を持つ試料であ っても信頼性の高い測定結果が得られることが分か った。Fig.8にはTaの結果も示してあるが、Taの場 合はは NRCA も TOF-PGA も正しい結果が得られて いる。

2.9 環境試料(考古学試料)の測定

ANNRI において測定した試料は、東大寺(奈良県) の大湯屋の鉄湯船(重要文化財)とその周辺で発見さ れた鉄断片である。鉄湯船は鎌倉時代に作成された ことが文献で明らかになっていることから、非常に 高い考古学的価値を有する試料である。鉄湯船の周 辺で発見された鉄断片がもし、鉄湯船と同時期、同 じ製法で作成されているとするならば、文化財とし ての価値が発生する可能性がある。これらの試料は その考古学的な価値から試料を失う破壊分析ではな く、試料を再利用できる非破壊分析によって測定す ることが強く望まれる。考古学試料の異同分析は、 破壊分析である多重検出型の ICP-MS を用いて Pb の 同位体比から求めることが主流であるが、本試料中 の Pb の含有量は少ないと考えられるため、その差を 見いだすのは厳しいと推定される。つまり、破壊分 析を行っても、有意な結果が得られない可能性が高 く、ANNRI での非破壊分析を検討した。その結果、 主成分元素である Fe(⁵⁶Fe/⁵⁴Fe, ⁵⁷Fe/⁵⁴Fe など), Cu な どの同位体比の測定により、異同分析を行える可能 性があることが分かった。

上記の考古学試料中に含まれる元素の同位体比分 析の可能性について予察的実験および、元素濃度の クロスチェック(ICP 発光分析法との比較)を目的と して、Fe, Mn, As, Cuについて測定を行った。測定は、 すべて PGA スペクトルの解析を行った。その結果、 定性的に各元素の存在を確認したものの、残念なが ら主成分の Fe であっても同位体比を測定すること には困難があった。同位体比の測定は極めて高い精 度が要求されるため、その精度を達成するにあたり 試料形状や測定方法などを改めて検討した。また、 検量線試料(鉄湯船試料を模した自作の標準試料)を 追加し、改めて定量を試みた。⁵⁴Fe, ⁵⁶Fe, ¹H, ³⁵Clを 鉄湯船試料から定性し、Fe と Cl の定量を行った。⁵⁶Fe, ⁵⁴Fe からの Fe の定量結果は ICP 発光分析法と不確か さの範囲で一致した。また、¹H, ³⁵Cl が鉄湯船・断片 試料の両方から定性分析され、¹H の存在は、鉄湯船・ 断片試料中の FeOOH の存在を示していると推定さ れ、⁵⁷Fe Mössbauer 分光法および XRD による測定結 果と一致した。さらに、Cl の存在は、SEM-EDS に よる測定と一致し、XRD による鉱物同定結果 (Akaganeite, Cl を含む)とも一致する結果を得た。

2.10 金属に含まれる水素の測定

多くの場合、主成分以外の元素濃度を定量し、定 量結果の総和を 100%から差し引いて求める差数法 が高純度金属の純度を決定するために用いられる。 高純度亜鉛の純度を差数法で評価する場合は、主成 分である亜鉛以外の水素、炭素、酸素、窒素等の軽 元素ガス成分、鉄、銅などの不純物金属を測定する ことになる。金属中の水素、炭素、酸素、窒素等の 標準的な測定法として不活性ガス溶融法があるが、 低融点金属であるガリウム、マグネシウム、亜鉛で はガス成分を抽出するために必要な温度まで安定し て加熱することが難しく、信頼性の高い測定値が得 られないという問題がある。

一方、金属中の軽元素量は、材料特性に強く依存 する。例えば、腐食、溶接、メッキなどにより鋼材 中に水素が吸収され、鋼材の硬度が低下する水素脆 化が起きることがある。亜鉛メッキは極めて優れた 防錆法であるとともに、装飾としての評価も高い。 しかしながら、亜鉛は水素の拡散が遅いため、亜鉛 メッキを施した鋼材内部の水素が離脱できずに滞留 してしまうことがある。その結果、水素脆化による 遅れ破壊が発生する危険性があるため、高強度が必 要とされる鋼材に用いるには問題がある。そこで金 属亜鉛や亜鉛メッキされた鋼材の水素量をそのまま 非破壊分析することができれば、高純度金属の純度 評価の信頼性の向上を図れること、水素脆化に対す る評価を行うことが可能となる。

ANNRI は TOF-PGA だけでなく、従来法である PGA の測定も可能であるため、PGA による金属中水 素の測定を行った。水素は中性子捕獲反応における 共鳴がない数少ない元素のうちの一つであるため、 TOF 測定は意味が無いため、水素の測定においては PGA 測定のみを用いることとなる。試料は標準試料 である NIST SRM 2453a Hydrogen in Titanium Alloy を用いた。NIST SRM 2453a の認証値はチタン合金中 の水素の質量分率として 126.8 mg/kg ± 2.5 mg/kg である。ANNRI における PGA 測定で水素のピーク を確認でき、検量線が得られた。しかしながら、計 数統計に基づくばらつきが20%を超えていた。この 原因は、高速中性子の遮蔽として用いている同位体 濃縮 ⁶LiH からのバックグラウンドガンマ線である ことが判明した。そのため、水素の高精度測定を行 う場合には、その定量限界を改善するために中性子 遮蔽(⁶LiH)を置き換える必要があることが分かっ た。

3. まとめ

目標であった補正法開発、測定環境整備等におい て着実な成果が得られ、本研究での主な目的であっ た TOF-PGA 手法を確立し、所期の目的を達した。 また、確立した手法を放射性核種試料や隕石試料な どをはじめとした様々な試料に適用し、その有効性 と有用性を示すことができた。もし、JRR-3 が再起 動できていれば、より効果的に研究を進められたも のと考える。本研究は今年度をもって終了するが、 確立した手法を用いた研究は今後も実施される。そ れらの研究の中で JRR-3 が果たす役割は大きいもの と考えられ、一刻も早い再起動が望まれる。

参考文献

- [1] Y. Toh et al., Anal. Chem. 86, 12030 (2014)
- [2] M. Igashira *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A 2009, 600, 332–334.
- [3] Y. Toh et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 278, 703 (2008)
- [4] T. Sato *et al.*, Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52, J. Nucl. Sci. Technol. 50:9, 913-923 (2013)
- [5] A. Kimura et al., AIP Conf. Proceedings, 769, 784 (2005)
- [6] A. Kimura *et al.*, Conf. Record of IEEE NSS/MIC/RTDS 2008, Article Number:N30-68 (2008)