

[2023104301]

## 内標準比を用いた中性子放射化分析法の開発 Development of Neutron Activation Analysis using internal standard ratio

三浦 勉<sup>A)</sup>,  
Tsutomu Miura<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> Advances Industrial Science and Technology, National Metrology Institute of Japan

### Abstract

The rapid instrumental neutron activation analysis using JRR3 PN3 was applied for total fluorine analysis in PTFE resin and NMIJ CRM 8001-a Fine silicon carbide powder for fine ceramics ( $\alpha$ -phase).

**Keyword:** JRR3, neutron activation analysis, fluorine

### 1. はじめに

固体試料中のふっ素をイオン電極法やイオンクロマトグラフィで測定するためには、固体試料の溶液化が必須である。この溶液化法には、アルカリ融解法による分解、または酸素フラスコ燃焼法、熱加水分解法によって気化させ、溶液に捕集する操作が実施されている。溶液化に必要なこれらのアルカリ融解法、燃焼・熱加水分解法では定量的にふっ素が回収できる条件の詳細な設定、溶液化操作に使用する試薬・装置からのふっ素の汚染の評価が欠かせない。一方、ふっ素は熱中性子照射( $n, \gamma$ )反応で生成する $^{20}\text{F}(T_{1/2}: 11.163 \text{ s})$ の 1633 keV の壊変  $\gamma$  線を測定する中性子放射化分析法<sup>1,2)</sup>によって、高い信頼性で測定できる可能性がある。 $^{20}\text{F}$  のような秒単位の半減期の放射性核種を対象とする放射化分析は JRR3 に整備された放射化分析設備 PN3 で実施できる<sup>2)</sup>。本研究では、PN3 を利用したふっ素の非破壊迅速放射化分析を試みたのでその結果を報告する。

### 2. 実験

#### 2.1 試薬

重量分析法で純度を決定したふっ化ナトリウム<sup>3)</sup> から調製したふっ化物イオン標準液( $\text{F}: 11.2 \text{ mg/g}$ )を、ろ紙 (Advantec 製 No.5C) に滴下し、ポリエチレン袋 (アソー製ハイクリーンポリ袋) に熱溶封した。内標準として Sc 標準液( $\text{Sc}: 0.5 \text{ mg/g}$ )を既知量添加した。

#### 2.2 試料

放射化分析法の有効性を明らかにするために、難分解性試料である四ふっ化エチレン樹脂 (PTFE: poly(1,1,2,2-tetrafluoroethylene)) 及び炭化けい素セラミックスを分析試料として選択した。NMIJ CRM 8001-a ファインセラミックス用炭化けい素微粉末 ( $\alpha$  形) は 130 mg を、PTFE 樹脂は 0.6 mg をポリエチレン袋に分取し、熱溶封した。

#### 2.3 中性子照射と $\gamma$ 線測定

中性子照射には高純度ポリエチレンキャプセルを使用した。JRR3 PN3 で 5 秒間中性子照射した後、

Ge 半導体検出器が設置されたフードまで搬送させ、10 秒後に 10 秒間  $\gamma$  線を測定した。その後、7 分間生成した放射能を減衰させた後、5 秒間照射するサイクルを 5 回繰り返した。照射試料から放出される  $\gamma$  線は PN3 フード内に設置されたミリオンテクノロジー・キャンベラ製 Ge 半導体検出器 GC1518 及びミリオンテクノロジー・キャンベラ製マルチチャンネルアナライザー LINX II で測定した。照射試料と Ge 検出器間の距離は 12 cm であった。測定して得た  $\gamma$  線スペクトルから  $^{20}\text{F}$ 、 $^{46m}\text{Sc}(T_{1/2}: 18.7 \text{ s})$  の計数値を照射終了時に減衰補正し、単位時間当たりの計数率 (cps) を算出した。ふっ素の定量値は、測定した 1 試料あたり 5 回の  $\gamma$  線スペクトルから得た計数率から算出する逐次法と 5 つの計数率の積算値から算出する積算法の 2 法で求めた。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 ふっ素検量線の直線性

各試料に既知量添加した Sc から生成する単位質量あたりの  $^{46m}\text{Sc}$  計数率を内標準として用いることで、逐次法、積算法とも良好な直線性が得られた。

#### 3.2 分析結果とその評価

PTFE 樹脂のふっ素の組成値は 75.98 % である。この組成値に対して、本法における逐次法で (78.9  $\pm$  9.6) %、積算法で (75.6  $\pm$  3.1) % が得られ、不確かさの範囲内で組成値と定量値は一致した。

また、NMIJ CRM 8001-a ファインセラミックス用炭化けい素微粉末 ( $\alpha$  形) のふっ素の参考値は、(700  $\pm$  160) mg/kg である。本法における逐次法で (699  $\pm$  296) mg/kg、積算法で (685  $\pm$  72) mg/kg が得られ、PTFE 樹脂と同様に不確かさの範囲内で参考値と定量値は一致した。

逐次法と積算法を比較すると計数率を積算する積算法がより不確かさの小さい定量値が得られている。

以上のように JRR3 PN3 で実施した  $^{20}\text{F}(T_{1/2}: 11.163 \text{ s})$  を測定する中性子放射化分析により、固体試料を溶液化することなく、信頼性の高いふっ素の定量値を得ることに成功した。JRR3 PN3 を用いた中性子放射化分析法は、ふっ素以外の秒単位の短寿命核種、

[2023104301]

例えば Se ( $^{77m}\text{Se}$ ,  $T_{1/2}$ : 17.5 s)、Hf ( $^{178m1}\text{Hf}$ ,  $T_{1/2}$ : 18.7 s) 、  
Rh ( $^{104}\text{Rh}$ ,  $T_{1/2}$ : 42.3 s)への応用も期待できる。

### 参考文献

- [1] X. Hou, “Cyclic Activation Analysis”, Encyclopaedia of Analytical Chemistry, R. A. Meyers (Ed.), John Wiley & Sons Ltd., 2008
- [2] C. Yonezawa et al, JAERI-Tech 98-046,  
<https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAERI-Tech-98-046.pdf>
- [3] 日置昭治、久保田正明, 分析化学, 43, 355-360, 1994