

**JAERI-M**  
**4900**

単一元素の標準体を使って多種類の元素を  
同時定量する非破壊中性子放射化分析法

1972年8月

岡田 實・田村 則

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

単一元素の標準体を使って多種類の元素を同時定量する  
非破壊中性子放射化分析法

日本原子力研究所東海研究所化学部

岡田 實 ・ 田村 則

(1972年7月27日受理)

$\gamma$ 線スペクトロメトリーと中性子放射化計算によって同定と定量を行なう方法を詳しくのべる。表2, 図14, 文献12件。

元素1種から成る標準体とともに分析試料を原子炉内で照射する。つぎに $\gamma$ 線スペクトロメーターを使って両者を比較する。検出器としては, 照射期間の短い場合NaI(Tl)を使い, そうでないときはGe(Li)を使い。標準体の中に生じた放射能から熱中性子束の値を求め。分析試料中の各元素の量は光電ピークの面積から計算する。その計算には $2200\text{m/sec}$ 中性子の反応断面積を使い, 熱外中性子の影響は無視する。

上記の簡易分析法で多種類の微量成分を同時定量するには, 分析試料の主成分が放射能妨害を起こさないことが必要である。この観点から主成分として適格な天然元素を核データ(Fig.1)に基づいて探すと24種が得られ, その中には炭素が含まれている。そこで, 黒鉛への適用例を示す。その例では2ppbから10ppmまでの範囲の13元素が定量されている。

本報の執筆に当り, これの大部分が分析法指針としても役立つよう詳細に書いた。

Nondestructive Neutron Activation Analysis  
for the Determination of Many Elements in a Sample  
with a Mono-element Standard

Minoru OKADA and Nori TAMURA

Chemistry Division, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received July 27, 1972)

The procedure of identification and quantitative determination by gamma-ray spectrometry and induced-activity calculation is described with a few examples.

A sample is irradiated in a nuclear reactor together with the standard composed of one element. The two gamma activities induced are then compared, with a gamma-ray spectrometer. NaI(Tl) is used as the scintillator if the irradiation is short, and if not, Ge(Li) is used. The thermal-neutron flux is estimated from the activity induced in the standard. The amounts of a number of elements in the sample are calculated from the respective photopeak areas; the cross sections for 2200-m/sec neutrons are utilized, influence by the epithermal neutrons being neglected.

In this analysis, it is necessary that there be no interference by induced activity of the major component. As such are 24 elements based on the nuclear data. With carbon among them, the analysis of graphite is given as an example; 13 elements of 2 p.p.b. ~10 p.p.m. are thus determined.

The report is intended primarily as the manual.

## 目 次

1. 序 論	1
2. NaI(Tl) 検出器使用の場合	3
3. Ge(Li) 検出器使用の場合	16
4. 考 察	28
参考文献	28

## Contents

1. Introduction	1
2. Case when NaI(Tl) is used	3
3. Case when Ge(Li) is used	16
4. Discussion	28

# 1. 序 論

微量成分の非破壊中性子放射化分析を適用できる分析試料の範囲は「中性子の照射によって主成分から生ずる放射能が微量成分から生ずる放射能に比べてじゅうぶん小さいような試料」に限られる。そのような主成分となり得る適格な元素を探すには、現実的な照射時間が数秒から数週間までの間であることと照射に使える中性子のエネルギー分布が多くの場合低いほう ( $< 0.5 \text{ eV}$ ) に片寄っていることを前提とした上で、Fig. 1<sup>1)</sup> を使えば比較的簡単である。すなわち、図の左部分の短半減期の領域と、図の右下部分を探し、その2つの部分にしか存在しないような元素記号(図中の核種記号から数字を除いたものを想像)を見いだせば、それが適格な元素である。

こうして、下に元素記号で列記する24元素が適格であることがわかる。ただ、自己遮蔽効果の大きい元素には試料形状に制限があるので、そのような元素には〔 〕をつけて示す。また、試料としては室温で固体のものを想定する。(たとえば水素の場合、炭化水素中の水素原子を考える)

(1) 照射時間や冷却時間と無関係に適格なもの

H, He, [Li], Be, [B], C, N, O, Tl, これら相互間の化合物。

(2) 冷却時間を比較的長くすれば適格なもの

F, Ne, Mg, Al, Ti, V, Nb, [Rh], I, これら相互間の化合物, これらと前記(1)に挙げたものとの間の化合物。

(3) 照射も冷却も短時間にすれば適格なもの

S, Zr, Cs, Ce, Pb, Bi, これら相互間の化合物, これらと前記(2)に挙げたものとの間の化合物。

多種類の微量成分を同時に検出する場合には検出される元素が不特定多数であるから、それぞれの元素の標準体を用意することは容易でない。そこで、単一元素から成る標準体1個だけを中性子モニターとして使い、あとは主として計算によって光電ピークの大きさから各元素の量の概略値を求めるといふ方式を検討した。この方式によれば、ふつう行なわれるように定性目的の照射と定量目的の照射の2段階を踏む必要はなく1段で済ませることができる。

試料中のバナジウム, ヨウ素, ロジウム等の定量には照射も冷却も比較的短くすることが必要であり,  $\gamma$ 線検出器には, エネルギー分解能の高いことよりも検出効率の大きいことのほうが強く要求される。試料中の鉄, コバルト, 水銀等の定量には照射も冷却も長くすることが必要であり,  $\gamma$ 線検出器には, 検出効率よりもエネルギー分解能のほうのはるかに重要である。そこで, 短時間照射と NaI(Tl) 検出器を組み合わせ, 長期間照射には Ge(Li) 検出器を組み合わせ, この2組についてそれぞれ具体的にのべたあと, 考察を加えることとする。

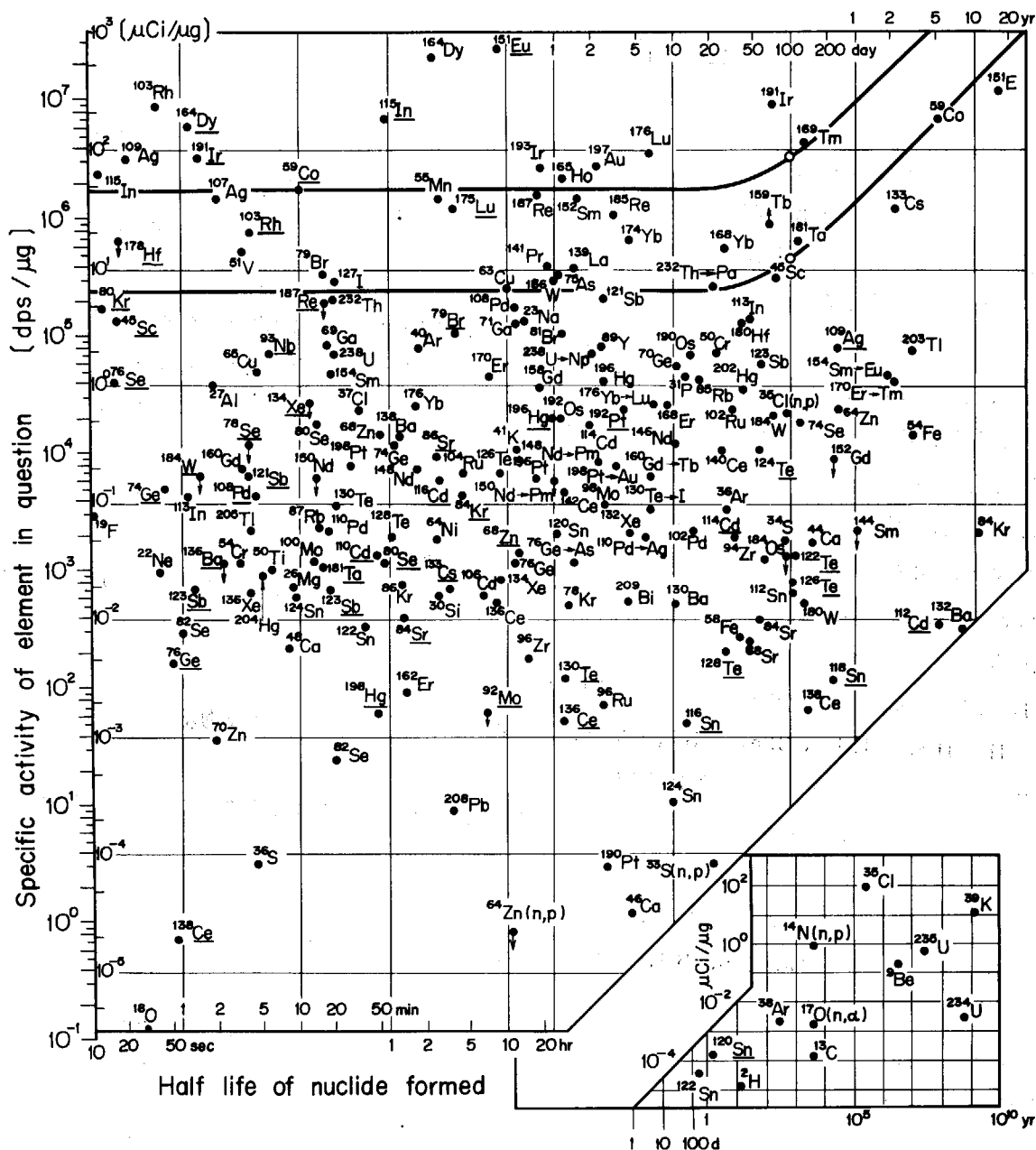


Fig.1. Specific-activity estimation chart for the activation of naturally-occurring element with 2200-m/sec neutrons. The scale on the specific-activity axis is for the exposure to a neutron flux of  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ . Names of nuclides are those of naturally-occurring ones. Type of reaction during irradiation is (n, $\gamma$ ) unless otherwise indicated. Underline means the formation of a metastable-state nuclide. Nuclides lying on the outside of the chart are:  $^{11}\text{B}$  (0.02 sec,  $2 \times 10^3$  d.p.s./ $\mu\text{g}$ ),  $^7\text{Li}$  (1 sec,  $3 \times 10^4$  d.p.s./ $\mu\text{g}$ ),  $^{37}\text{Cl}$  (1 sec,  $2 \times 10^2$  d.p.s./ $\mu\text{g}$ ) and  $^{15}\text{N}$  (7 sec,  $4 \times 10^{-2}$  d.p.s./ $\mu\text{g}$ ).

The curves show sample estimation; material is cobalt, and irradiation period is 100 days. The upper curve shows that the specific activity of cobalt due to reaction  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60\text{m}}\text{Co}$  is  $1.7 \times 10^6$  d.p.s./ $\mu\text{g}$ . The lower curve shows that the specific activity of cobalt due to reaction  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$  is  $2.4 \times 10^5$  d.p.s./ $\mu\text{g}$ .

## 2. NaI(Tl)検出器使用の場合

### 2.1 条件

照射と測定を次のように設定する。

- (1) 試料の放射化に使う中性子は、熱中性子束が約  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  でカドミウム比が約 50。
- (2) 照射時間は 10~20 分。
- (3)  $\gamma$  線検出器は 3 inch  $\times$  3 inch の円柱状 NaI(Tl)。

### 2.2 手順

#### 2.2.1 試料調製

##### (1) 分析試料

表面を除去したのち約 1 g と約 0.01 g の 2 段階に採取する。照射後に放射能が測定可能範囲にはいるほう（または測定しやすいほう）を選ぶ自由度を残しておくためである。この 2 者を別々のポリエチレン製棒ビンに入れて密封する。

##### (2) 標準体

金 (Au) を約 0.02  $\mu\text{g}$  含む水溶液約 0.1 ml をポリエチレン製棒ビンに密封する。金の含有量はなるべく正確に抑えておく。

#### 2.2.2 放射化

試料と標準体を同じ照射容器（外径 2.8 cm 全長 7.0 cm のポリエチレン製規格品）に入れ、それをさらに 2 inch 気送管用ラビットに入れ、気送管を使い  $10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  の中性子で 10~20 分間照射する。

#### 2.2.3 放射能測定

##### (1) 試料の選択と標準体溶液の体積調節

大小 2 とおりに採取してある試料の放射能を調べ、測定器を飽和させない範囲で放射能のなるべく大きいほうを選ぶ。そのさい検出器から試料までの距離を調節し、確定する。

標準体の水溶液に水を追加して、測定時の幾何学的因子が分析試料の幾何学的因子とほぼ等しくなるようにし、密封する。

##### (2) 測定装置

NaI(Tl) 検出器と multichannel 波高分析器を組み合わせた  $\gamma$  線スペクトロメータを用意する。

##### (3) 試料測定時期

照射終了時を基準にした測定時期を次のように選ぶ。（単位は時間）0.5, 0.75, 1.1, 1.6……（対数的にほぼ等間隔に 200 時間くらいまで）

測定場所が原子炉に近い場合には上記時間の前に 4 分, 7 分, 10 分, 14 分, 20 分を追加する。



## (4) その他

標準体測定時期は照射終了後約20時間から約200時間までの間に3~4点選ぶ。

$\gamma$ 線エネルギーの測定範囲は0.01~3.0 MeVの程度にする。

## 2.2.4 放射性核種の同定

## (1) ピーク位置の測定

試料の $\gamma$ 線スペクトルの各ピークの位置に対応する channel 番号を読み取る。複合ピークについては、その成分のピークの半値幅を近くのピークの半値幅から推定し、それを使って成分ピークの形と大きさを試行錯誤によって作図的に求め、その結果得られた成分ピークについて、その位置を読み取る。ピーク位置が試料測定時期によって変わる場合には変動幅も書き添える。例えば  $64.2 \pm 1.1$  channel というように書く。

## (2) エネルギー較正

$\gamma$ 線エネルギー ( $E_\gamma$ ) 較正のために5~10種の $\gamma$ 線標準線源を使って $\gamma$ 線スペクトルを取り、光電ピークの上部をプロットし、その図上で各点の間を縫って滑らかな曲線を引き、その曲線の上でピークの頂点を求め、頂点に対応する channel 番号を0.1 channel の桁まで読む。

各点をプロットして較正曲線を引くさいには、点の場所を正確に通るように、しかも滑らかに引く。(1)で得られたピーク位置から、この曲線を使って $E_\gamma$ を求める。

## (3) 半減期測定

$\gamma$ 線スペクトルの各ピークの高さに相当する計数値を求める。複合ピークに対しては、ピーク位置測定の際に得られた成分ピークについて高さを測定する。その例をFig.2に示す。

このようにして求めた計数値を片対数紙上にプロットし、常法によって半減期を求め、半減期測定値の誤差程度を次のようにして求める。

「その片対数紙上の点の分布を代表させる直線として傾きがこれ以上に大きい(または小さい)直線を引く人はいないだろう」と思われるような傾きにしながら点群の中心部を通すようにして直線を引く。Fig.3にその例を示す。直線を引くとき次のことも考慮する。

左端近くの点が直線から下へ外れるのは計数装置の中で数え落しが多いためと考えられるから、その付近の各点は左上のほうほど多くの補正をして上へ移すべきものである。

半減期測定の誤差の程度はFig.3の例のようにして求める。

(4)  $\gamma$ 線と放射性核種の同定

前記の(2)で求めた $E_\gamma$ と、(3)で求めた半減期を、それぞれ文献値<sup>2)~5)</sup>と照らし合わせて同定する。

## 2.2.5 もとの元素の同定と定量

## (1) 照射終了時に対応するピーク面積を求めること

## (a) 半値幅の測定

エネルギー較正(2.2.4(2))の時に使った数個のピークを裾までプロットし、その図の上で半値幅を測定し、半値幅を $E_\gamma$ の関数としてプロットする。

分析試料のスペクトルの各ピークごとに $E_\gamma$ 値は2.2.4(2)で求めてあるから、それに対応する半値幅をこの図から読み取る。その図の一例をFig.4に示す。

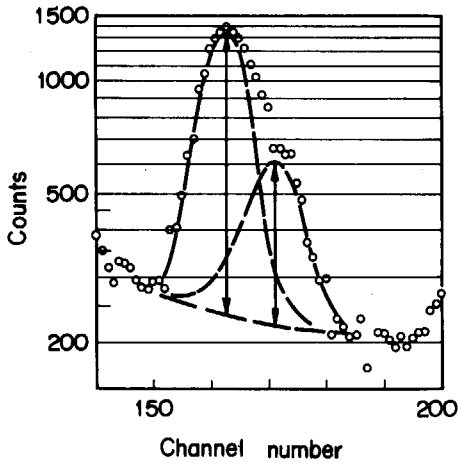


Fig. 2. Example of the graphical estimation of peak height

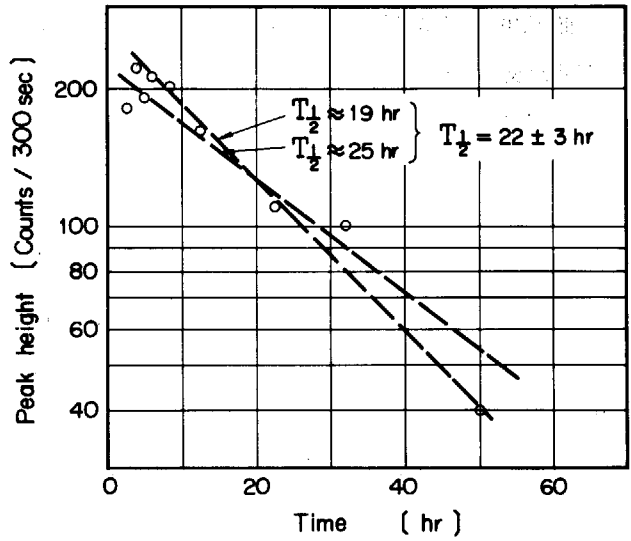


Fig. 3. Typical graphical estimation of the degree of error in half-life determination. Observed energy of gamma ray in question,  $2.22 \pm 0.04$  MeV; detector,  $3'' \times 3''$  NaI(Tl) crystal; sample, 0.665-g graphite irradiated with thermal neutrons.

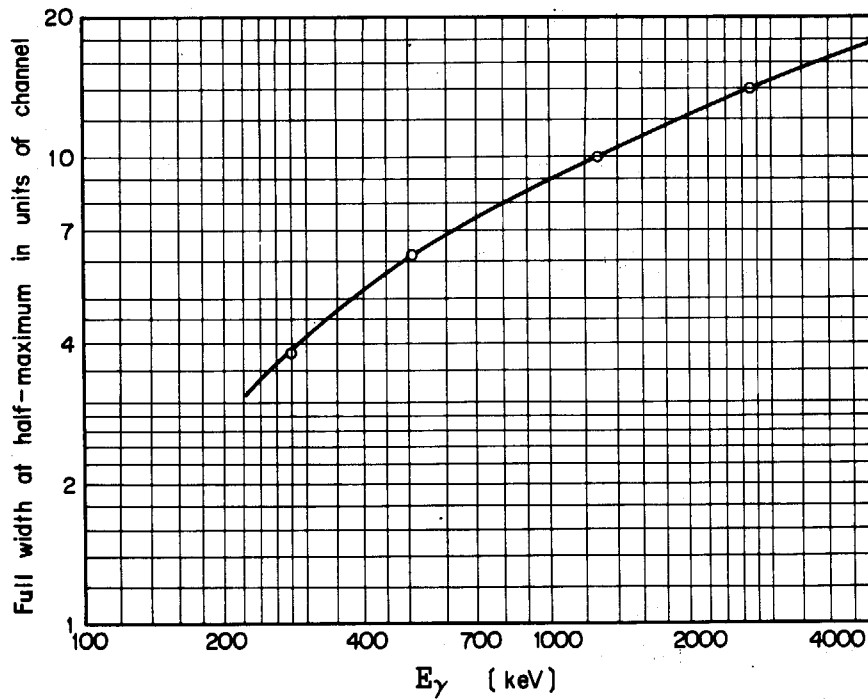


Fig. 4. Plot of full width at half-maximum in units of channel vs. gamma-ray energy. Detector,  $3'' \times 3''$  right cylindrical NaI(Tl) crystal. Photomultiplier, RCA-8054. Gamma-ray energy vs. channel number; (279.2 keV, 34.6 channel), (511.0, 64.1), (661.6, 82.5), (898.0, 112.1), (1275, 158.6), (1836, 228.3) and (2734, 345.2).

(b) ピーク面積の計算

前記(3)の半減期測定の際にピークごとに作った「Fig.3の様式の図」の中の点だけと「半減期の文献値」に基づいて、照射終了時のピーク高さを外挿によって推定し、それを cps 単位に直す。これと、上記(a)の結果の半値幅から、次の式で照射終了時のピーク面積を計算する。

$$S = 1.07 \ h b \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここでSはピーク面積に相当する計数值、1.07は誤差の正規分布の表から導き出した数値<sup>6</sup>、hはピークの高さに相当する計数值、bは channel 数で表わした半値幅である。

(2) 全エネルギー吸収ピーク検出効率の計算

全エネルギー吸収ピーク検出効率を  $\epsilon_{SF}$  で表わすと

$$\epsilon_{SF} = \Omega \epsilon(E) R(E) \quad \dots\dots\dots(2)$$

$\Omega$  は幾何学的因子、 $\epsilon(E)$  は検出器に入射した  $\gamma$  線のうちどれだけの部分がシンチレーションを発するかを示す値、 $R(E)$  は全エネルギー吸収ピークの面積と「エネルギーがEであるような単色  $\gamma$  線の全スペクトル面積」との比である。 $\Omega$  と  $\epsilon(E)$  の積が検出効率であって、点状線源に対する検出効率の計算値<sup>4</sup>)をプロットすると Fig.5 が得られる。この図を使うとき、試料・検出器間の距離としては試料の重心から検出器の上面(または前面)までの距離を取る。

$R(E)$  の測定値<sup>3</sup>)をプロットすると Fig.6 が得られる。図からわかるように試料・検出器間の距離(d)の影響は小さい。そこで、距離が 5 cm 以下の場合には図中の  $d = 3.0$  cm の線を使う。

Fig.5 から得られる  $\Omega \epsilon(E)$  と、Fig.6 から得られる  $R(E)$  との積が求める  $\epsilon_{SF}$  である。

(3)  $\gamma$  線放射率の計算

ピーク面積を  $\epsilon_{SF}$  で割って  $\gamma$  線放射率を求める。

(4) 放射能の計算

$\gamma$  線放射率を  $\gamma$  線存在度 ( $\gamma(E)$ ) で割って放射能を求める。

(5) 各元素の比放射能標準値の計算 および もとの元素の同定

前記の 2.2.4(4)で同定した放射性核種について、ある標準的条件で照射した場合に得られるはずの元素別比放射能を計算する。計算に Fig.1 1)を使うことによって、計算と同時にもとの元素を同定する。標準的照射条件は次のようにする。

- a. 試料を照射する中性子は 2200 m/sec の中性子。
- b. 中性子束は  $1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 。
- c. 照射時間は、実際の照射時間に等しく取る。

(6) 中性子束の計算

照射した標準体(金)から得られた  $\gamma$  線スペクトルについても 2.2.4(1)から 2.2.5(5)までを適用する。それによって 2.2.5(4)で得られた放射能を標準体の重量で割って比放射能を求め、次式で実際の中性子束を推定する。

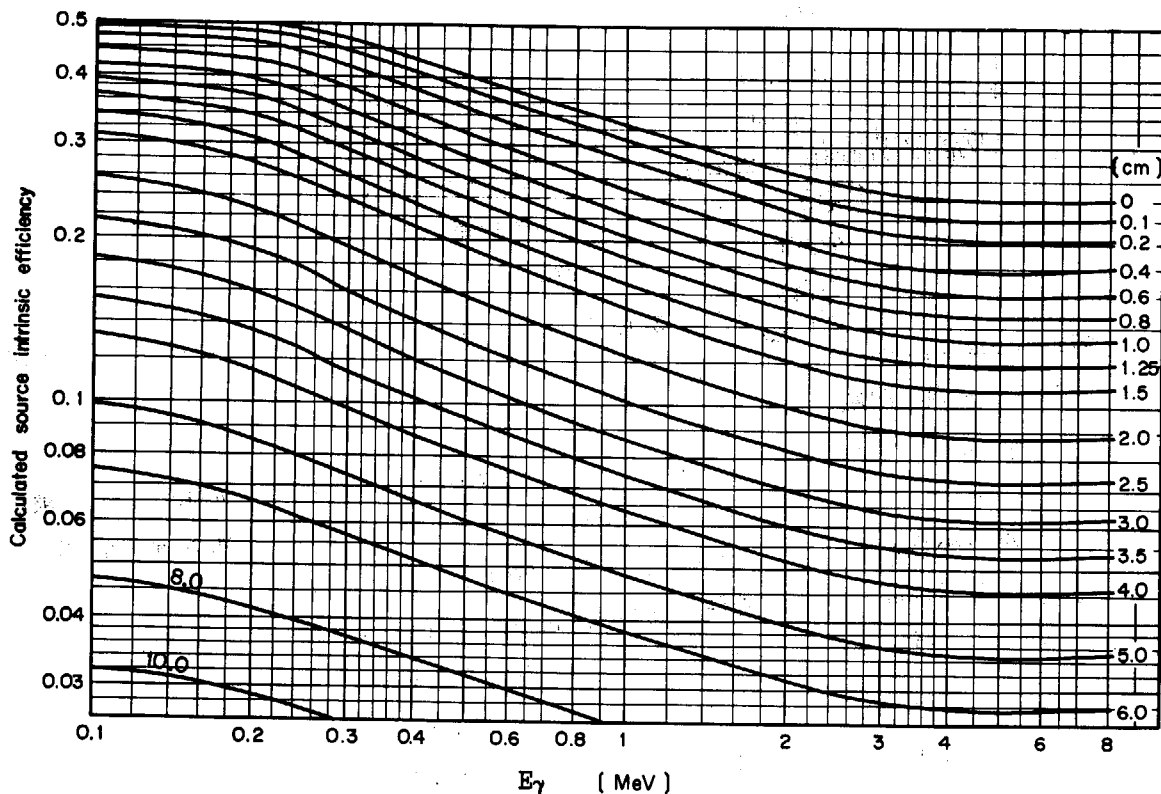


Fig.5. Calculated source intrinsic efficiency for gamma-rays from a point source vs. gamma-ray energy. Parameter, distance of source from the front surface of detector; detector, 3"×3" right cylindrical NaI(Tl) crystal.

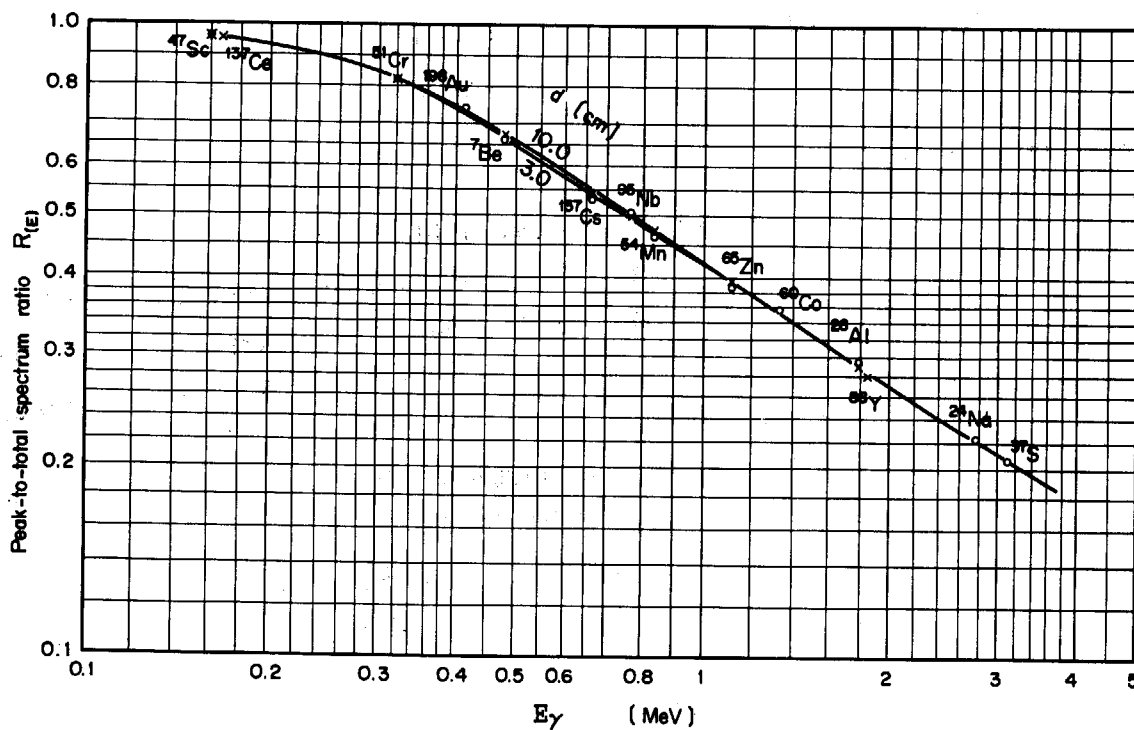


Fig.6. Experimental peak-to-total spectrum ratio vs. gamma-ray energy. Parameter, distance of source from the front surface of detector; detector, 3"×3" right cylindrical NaI(Tl) crystal; origin of the data, table on p. 671 of ref. 3).

$$\text{中性子束} = (1.0 \times 10^{13}) \times \frac{\text{標準体の比放射能}}{\text{標準体の「比放射能標準値」}}$$

この式の最後の標準値は 2.2.5 (5)によって得られたものを意味する。

この推定は、熱外中性子や速中性子の影響を無視した近似計算である。

#### (7) 分析試料中の元素別比放射能の計算

上記の(6)で得られた中性子束と、(5) bで設定した中性子束との比を元素別比放射能標準値に掛けて実際の比放射能を計算する。

#### (8) 各元素の濃度の計算

前記の(4)で得られた放射能を、(7)で得られた比放射能で割って各元素の重量を求める。元素一つに対して光電ピークが二つ以上ある場合には、各ピークごとに元素量を出してから、半減期の誤差の小さいほうに重みを多くつけて重み付き平均を求める。

元素量を試料量で割り、試料中の濃度を ppm 単位で表わし、誤差を考慮しながら次のように濃度の表現を調整する。左が調整前で、右が調整後である。

0.039 ~ 0.14	0.1
0.15 ~ 0.24	~0.2
0.25 ~ 0.39	~0.3
0.4 ~ 1.4	1
1.5 ~ 2.4	~2
2.5 ~ 3.9	~3
4 ~ 14	$1 \times 10^1$
15 ~ 24	$\sim 2 \times 10^1$

### 2.3 適用例および考察

本法を黒鉛試料に適用した結果を Fig.7, Fig.8, Table 1 に示す。

この例では放射能測定段階で金の溶液の体積と形を、分析試料の体積と形に近づけたため検出効率の誤差はほとんど相殺されたと考えられる。体積の大きい試料を検出器の近くに置いて分析感度を上げることができたのも、点状線源として取扱うことによって計算を簡易化できたのも、相殺ということがあるからである。

計数時間としてライブタイムを使わずに時計の時間を使ったのは、計数時間中の放射能減衰が無視できない場合を考えたためであるが、結果的にはそのような心配は不要であった。

半減期測定のため減衰曲線を描くとき、各点に対して数え落しの補正をしておくことが望ましい。そのためには数え落しの率を表示する計器を使うことが望ましい。(筆者らもその後この種の計器を取り付けた)

半減期測定値に対して推定した変動範囲は、極端な場合を想定することによって求めた大きい値になっているはずである。それにもかかわらず文献値を包含できなかった場合が多い。したがって、Fig.3 の例の変動幅よりも大きい幅を想定するほうがよいと思われる。

この例で分析した試料と同じ種類の試料を発光分光分析法で分析した結果があるので、本例

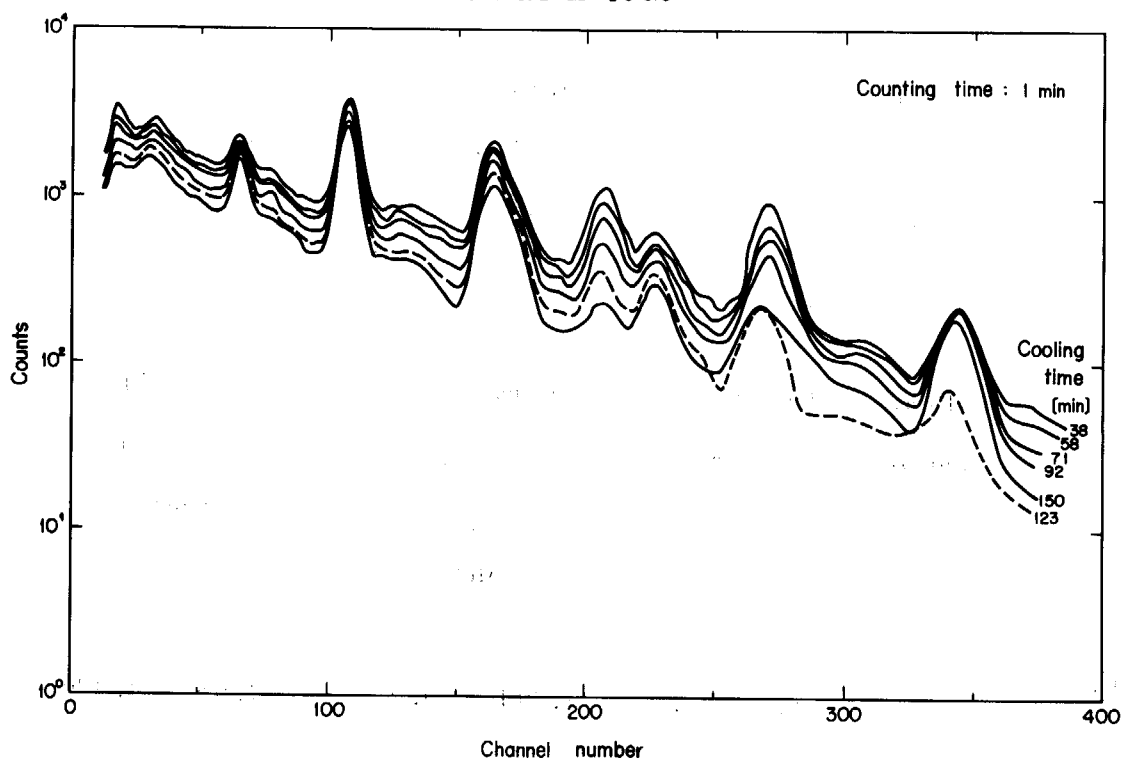


Fig. 7. Six gamma-ray spectra obtained from one sample at different cooling times ranging from 38 min to 123 min. Detector, 3'x3' right cylindrical NaI(Tl) crystal; distance of sample from the front surface of the detector, 0.1 cm to the nearest end and 2 cm to the farthest; sample, 0.665-g graphite irradiated at a thermal-neutron flux of  $10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  for 20 min.

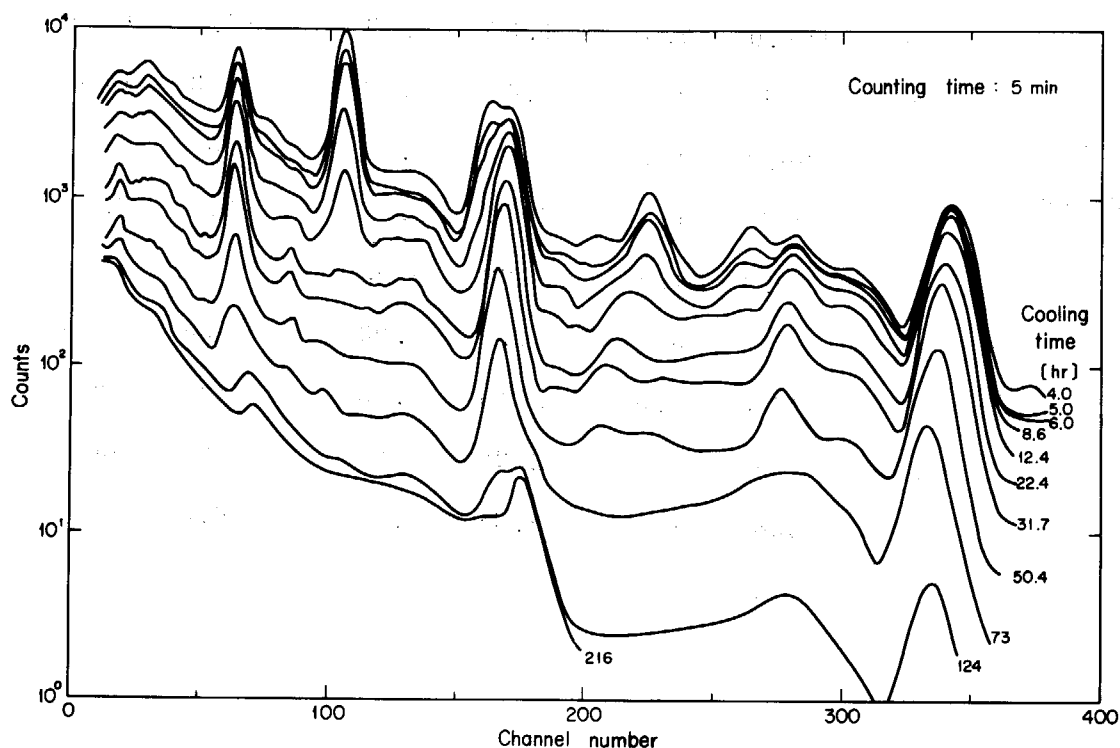


Fig. 8. Eleven gamma-ray spectra obtained from one sample at different cooling times ranging from 4.0 hr to 124 hr. Legend for Fig. 7 is applicable.

Table 1 Analysis of gamma-ray spectra  
obtained with an NaI(Tl) detector

1	2	4	4
Peak number	Channel number	Gamma-ray energy $E_\gamma$ (MeV)	Half life of nuclide formed $T_{\frac{1}{2}}$
$\approx 0.015\text{-}\mu\text{g}$ gold	$51.4 \pm 0.4$	$0.411 \pm 0.005$	$2.68 \pm 0.03\text{d}$
	1	$64.2 \pm 1.1$	$0.51 \pm 0.01$
	2	$72 \pm 2$	$0.57 \pm 0.02$
	3	$106.6 \pm 1.0$	$0.86 \pm 0.01$
	4	$163.0 \pm 0.4$	$1.31 \pm 0.01$
	5	$167.0 \pm 2.5$	$1.33 \pm 0.03$
	6	$176 \pm 2$	$1.41 \pm 0.03$
	7	$206.3 \pm 1.1$	$1.65 \pm 0.02$
0.665-g graphite	8	$213 \pm 1$	$1.71 \pm 0.02$
	9	$226.0 \pm 1.5$	$1.82 \pm 0.02$
	10	$264 \pm 3$	$2.10 \pm 0.03$
	11	$267.5 \pm 3.0$	$2.13 \pm 0.03$
	12	$278 \pm 4$	$2.22 \pm 0.04$
	13	$338 \pm 6$	$2.68 \pm 0.06$

Table 1 Analysis of gamma-ray spectra  
obtained with an NaI(Tl) detector (cont.)

1	5				6
	Gamma-ray identified				
Peak number	Half life	Nuclide	$E_{\gamma}$ (MeV)	Fractional abundance <sup>a)</sup> of unconverted photons $\gamma(E)$	Peak height at the end of irradiation $A$ (c.p.s.)
	2.70d	<sup>198</sup> Au	0.412	0.95	$3.64 \times 10^3 / 1000 = 3.64$
1	12.8h	<sup>64</sup> Cu	0.511	0.38	$5.4 \times 10^3 / 300 = 18$
2	2.80d	<sup>122</sup> Sb	0.564	0.66	$1.4 \times 10^3 / 300 = 4.7$
3	2.58h	<sup>56</sup> Mn	0.847	0.99	$3.6 \times 10^3 / 60 = 60$
4	1.83h	<sup>41</sup> Ar	1.293	0.99	$2.3 \times 10^3 / 60 = 38$
5	15.0h	<sup>24</sup> Na	1.369	1.00	$2.3 \times 10^3 / 300 = 7.7$
6	?				
7	37.3m	<sup>38</sup> Cl	1.60	0.38	$2.1 \times 10^3 / 60 = 35$
8	15.0h	<sup>24</sup> Na	1.732	— b)	
9	2.58h	<sup>56</sup> Mn	1.811	0.29	$3.8 \times 10^2 / 60 = 6.3$
10	?(2.58h	<sup>56</sup> Mn	2.11)	(0.15)	$1.1 \times 10^3 / 300 = 3.7$
11	37.3m	<sup>38</sup> Cl	2.170	0.20	$1.1 \times 10^3 / 60 = 18$
12	15.0h	<sup>24</sup> Na	2.243	— c)	
13	15.0h	<sup>24</sup> Na	2.754	1.00	$9.5 \times 10^2 / 300 = 3.2$

a) (percentage of the total decay events)  $\times 100$

b), c) Since peak 8 and peak 12 are escape peaks, they will not be used in the following columns.



Table 1 Analysis of gamma-ray spectra obtained  
with an NaI(Tl) detector (cont.)

1	7	8	9	10
Peak number	Full width at half- maximum in units of channel $b$	Peak area $S$ ( $=1.07 kb$ ) (c.p.s.)	Source intrinsic efficiency $\Omega \varepsilon(E)$	Peak-to- total ratio $R(E)$
	5.3 <sub>2</sub>	$2.07 \times 10^1$	0.255	0.72
1	6.1	$1.17 \times 10^2$	0.234	0.62 <sub>7</sub>
2	6.5	$3.27 \times 10^1$	0.214	0.58 <sub>7</sub>
3	8.1	$5.2 \times 10^2$	0.197	0.45 <sub>7</sub>
4	10.1	$4.1 \times 10^2$	0.172	0.35 <sub>4</sub>
5	10.3	$8.5 \times 10^1$	0.168	0.34 <sub>1</sub>
6				
7	11.1	$4.2 \times 10^2$	0.160	0.31 <sub>5</sub>
8				
9	11.8	$8.0 \times 10^1$	0.155	0.28 <sub>7</sub>
10	12.6	$5.0 \times 10^1$	0.147	0.26 <sub>1</sub>
11	12.8	$2.5 \times 10^2$	0.146	0.25 <sub>5</sub>
12				
13	14.1	$4.8 \times 10^1$	0.139	0.22 <sub>3</sub>

Table 1 Analysis of gamma-ray spectra obtained  
with an NaI(Tl) detector (cont.)

1	11	12	13
Peak number	Source full energy peak efficiency $\epsilon_{SF}$ ( $=\Omega\epsilon(E)R(E)$ )	Emission rate of gamma ray $S/\epsilon_{SF}$ ( $=AR(E)$ ) [sec <sup>-1</sup> ]	Activity $A$ ( $=AR(E)/\gamma(E)$ ) [d.p.s.]
	0.1835	$1.13 \times 10^2$	$1.19 \times 10^2$
1	0.1465	$8.0 \times 10^2$	$2.10 \times 10^3$
2	0.1256	$2.60 \times 10^2$	$3.94 \times 10^2$
3	0.0907	$5.73 \times 10^3$	$5.8 \times 10^3$
4	0.0609	$6.73 \times 10^3$	$6.8 \times 10^3$
5	0.0573	$1.48 \times 10^3$	$1.48 \times 10^3$
6			
7	0.0496	$8.5 \times 10^3$	$2.23 \times 10^4$
8			
9	0.0445	$1.80 \times 10^3$	$6.21 \times 10^3$
10	0.0384	$1.30 \times 10^3$	$(8.7 \times 10^3)$
11	0.0372	$6.73 \times 10^3$	$3.37 \times 10^4$
12			
13	0.0310	$1.55 \times 10^3$	$1.55 \times 10^3$

Table 1 Analysis of gamma-ray spectra obtained  
with an NaI(Tl) detector (cont.)

1	14	15	16	17
Peak number	Calculated specific activity for a neutron flux of $1 \times 10^{13}$ $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ [d. p. s./ $\mu\text{g}$ ]	Element found	Calculated specific activity for a neutron flux of $0.72 \times 10^{13}$ $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ [d. p. s./ $\mu\text{g}$ ]	Amount <sup>d)</sup> of element $W$ [ $\mu\text{g}$ ]
	$1.1 \times 10^4$	Au		
1	$5.9 \times 10^3$	Cu	$4.2 \times 10^3$	0.50
2	$7.5 \times 10^2$	Sb	$5.4 \times 10^2$	0.73
3	$1.27 \times 10^5$	Mn	$9.1 \times 10^4$	0.064
4	$9.6 \times 10^3$	Ar	$6.9 \times 10^3$	0.99
5	$2.1 \times 10^3$	Na	$1.5 \times 10^3$	0.98
6				
7	$8.0 \times 10^3$	Cl	$5.8 \times 10^3$	3.8
8				
9	$1.27 \times 10^5$	Mn	$9.1 \times 10^4$	0.067
10	$1.27 \times 10^5$	?(Mn)	$9.1 \times 10^4$	0.096
11	$8.0 \times 10^3$	Cl	$5.8 \times 10^3$	5.8
12				
13	$2.1 \times 10^3$	Na	$1.5 \times 10^3$	1.0

d)  $W = A/(\text{specific activity in column 16})$

Table 1 Analysis of gamma-ray spectra obtained  
with an NaI(Tl) detector (cont.)

18	19	20	21
Element found	Weighted mean of the amount of element [ $\mu\text{g}$ ]	Content [p. p. m.]	Content in round numbers [p. p. m.]
Cu	0.5 <sub>0</sub>	0.7 <sub>5</sub>	1
Sb	0.7 <sub>3</sub>	1.1	1
Mn	0.06 <sub>6</sub>	0.10	0.1
Ar	0.9 <sub>9</sub>	1.5	$\approx 2$
Na	1.0	1.5	$\approx 2$
Cl	4.1	6.1	$1 \times 10^1$

と共通な元素について概略濃度を ppm 単位で書いておく。Cu (<1), Sb (<10), Mn (<1), Na (<100)。

定量誤差のおもな原因は Ge(Li) 検出器使用の場合と共通な事柄なので、あとでのべる。

### 3. Ge(Li) 検出器使用の場合

#### 3.1 条 件

照射と測定を次のように設定する。

- (1) 試料の放射化に使う中性子は、熱中性子束が約  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  でカドミウム比が 30 以上。
- (2) 照射期間は約 2 週間。
- (3)  $\gamma$  線検出器は約 40 cc の Ge(Li)。

#### 3.2 手 順

##### 3.2.1 試料調製

###### (1) 分析試料

表面を除去したのち約 10 g と約 0.1 g の 2 段階に採取する。これは、照射後に試料の大きさを選ぶ上での便宜のためである。両者を別々にアルミニウム箔で包み、いっしょに外径 2.8 cm 全長 7.0 cm のアルミニウム製照射容器に納める。

###### (2) 標準体

コバルト線を約 0.5 mg 取って重さを量り、それを外径 2 mm のアルミニウム管に封入したのち、分析試料を納めた照射容器の中に入れる。

##### 3.2.2 放射化

$10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  の遅い中性子で約 2 週間照射する。カドミウム比が  $10^2$  以上であることが望ましく、そのためには中性子束が 1 桁低くなくてもよい。

##### 3.2.3 放射能測定

###### (1) 装 置

$\gamma$  線検出器は約 40 cc の Ge(Li) で、検出器から 5 cm 以上離して厚さ 10 cm 程度の鉛の遮蔽体をめぐらす。

波高分析器は channel 数が約  $2 \times 10^3$  のものを使う。

###### (2) 試料、標準体および標準線源

###### (a) 分析試料

大小 2 個の試料のうち放射能の測定しやすいほうを選び、検出器からの距離を調節し、確定する。

###### (b) 標準体

照射したコバルト線を 6 N 塩酸 5 ml に加熱溶解し、水を加えて 100 ml にし、その 0.10 ml を内径が分析試料の直径にほぼ等しいような容器に分けて取る。水を加えて体

積を分析試料の体積にほぼ等しくする。容器を密封する。

c. 標準線源

10  $\mu\text{Ci}$  程度の<sup>60</sup>Co 標準線源を用意する。(できれば体積を標準体溶液の密封後の体積に等しくする)

(3) 測定時期および計数時間

a. 分析試料

照射終了時を基準にした測定時期を次のように選ぶ。(単位は日) 3, 5, 7, 10, 15  
計数時間は毎回約  $2 \times 10^3$  秒にする。

b. 標準体

照射終了後3日から15日までの間に3~4点選ぶ。  
計数時間は毎回約  $2 \times 10^2$  秒にする。

c. 標準線源

標準体の第1回測定のところと最終回測定のところ測定する。  
計数時間は毎回約  $2 \times 10^2$  秒にする。

(4)  $\gamma$  線エネルギーの測定範囲

0.03 MeV から 3.5 MeV がはいるように調節し、毎回標準線源を使ってピーク出現位置の変わっていないことを確かめる。

3.2.4 放射性核種の同定

(1) ピーク位置の測定

試料の $\gamma$ 線スペクトルの各ピークの位置に対応する channel 番号を読み取る。この作業には電子計算機プログラム<sup>7)</sup>を使うほうが实际的である。

(2) エネルギー較正

1~3 MeV の $\gamma$ 線を出すような標準線源1個を使ってパルス発振器の出力を規格化する。この発振器で次の $\gamma$ 線エネルギーに相当するパルスを出し波高分析器に入れ計数値を記録する(単位は keV)。

50, 100, 200, 400, 800, 1500, 2000, 3000

channel 番号に対してエネルギー値をプロットして較正曲線を作る。この線を使って試料の $\gamma$ 線スペクトルのピーク位置に対応するエネルギーを求める。

(3) ピーク面積に対応する計数値を求めること

$\gamma$ 線スペクトル図の上で、各ピークの下限を表わす base line を引き、その線から上のピーク面積に対応する計数値をピークごとに求める。この作業にも電子計算機プログラム<sup>7)</sup>を利用できる。

(4) 半減期測定

ピーク面積に対応する計数値を照射終了からの経過時間に対して片対数紙上にプロットする(計数値を対数目もり上取る)。その例を Fig.9 に示す。この図では測定値を  $P_1 \sim P_4$  で表わしている。 $P_4$  と  $P_3$  を使って長寿命成分の減衰曲線 A を引く。

$P_1$  の計数値から A の計数値を引いたものを書き入れると Fig.10 の  $B_1$  が得られる。図中の  $B_2 \sim B_4$  も同様にして得られる。 $B_1 \sim B_4$  の分布を代表するような直線 C を引く。A と C

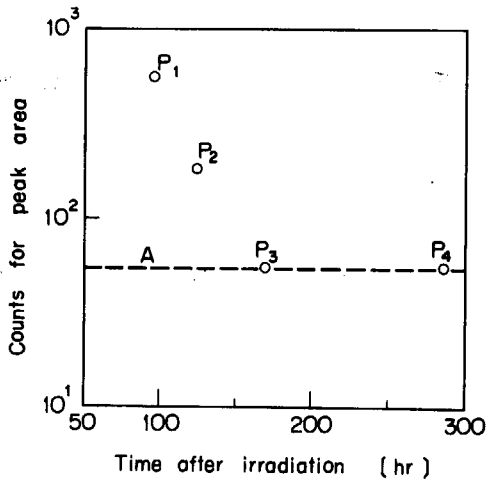


Fig. 9. Example of the first step of decay-curve analysis. Observed energy of gamma ray in question,  $0.510 \pm 0.002$  MeV; detector, 30-cm<sup>3</sup> coaxial Ge(Li); sample, 6.3-g graphite irradiated with thermal neutrons.

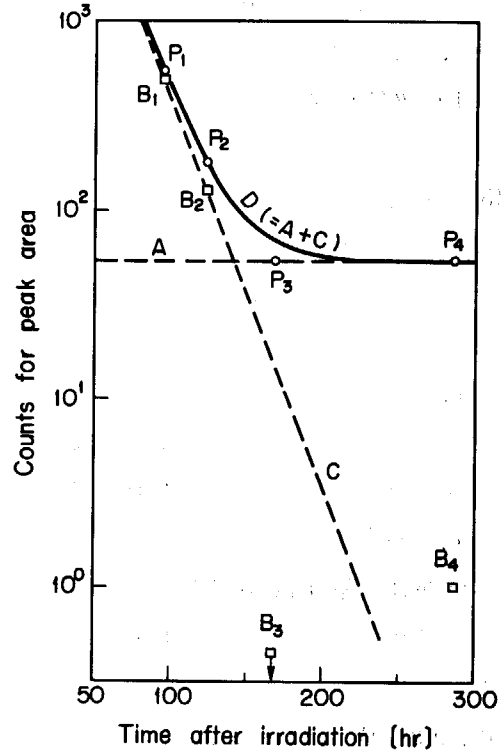


Fig. 10. Second step of decay-curve analysis for the case in Fig. 9. The order of drawing is  $B_i$  ( $i=1, 2, 3$  and 4), C and D.

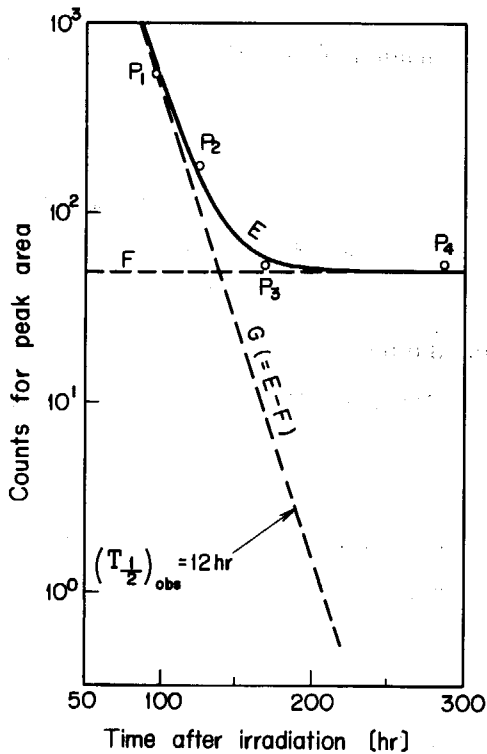


Fig. 11. Third step of decay-curve analysis for the case in Fig. 9. The order of drawing is E, F and G.

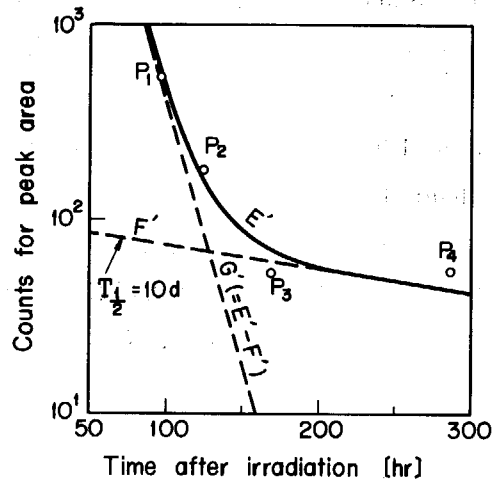


Fig. 12. Example of drawing to get the lower limit of the half life of longer lived component. The order of drawing is  $E'$ ,  $F'$  and  $G'$ .

の各計数値の和を作図して曲線Dが得られる。

Dは $P_2$ と $P_4$ のごく近くを通っているけれども $P_3$ からは遠い。そこでDを少し修正して曲線Eを引く(Fig.11)。Eの右端付近の直線を左へ延ばして直線Fとする。EとFの各計数値の差として得られる直線Gが短寿命成分の減衰曲線で、Gの傾きから半減期が得られる。

長寿命成分の半減期の下限を求めるために、 $P_1 \sim P_4$ の4点から想像できる範囲の中で極端な場合を書いてみる。Fig.12のE'はその例である。E'の右下の直線部分を左へ延ばしてF'とし、F'の傾きに相当する半減期を求める。それが10 dであれば、Fig.11の長寿命成分に対して「 $T_{\frac{1}{2}} > 10 \text{ d}$ 」という表現で半減期を与える。

短寿命成分に対しては前記のFig.3の例のようにして誤差の幅を求める。

#### (5) $\gamma$ 線と放射性核種の同定

前記の(2)で求めた $E_\gamma$ と、(4)で求めた半減期をそれぞれ文献値<sup>2)~5)</sup>と照らし合わせて同定する。

### 3.2.5 もとの元素の同定と定量

#### (1) 全エネルギー吸収ピーク検出効率の測定

$^{60}\text{Co}$ 標準線源を検出器の前に置く。そのさい幾何学的因子が分析試料測定の場合の幾何学的因子にできるだけ近くなるように置く。測定装置を働かせ、得られた二つのピークのそれぞれについて、ピーク面積に相当する計数値を計数時間で割って計数率を求める。標準線源の放射率の検定値と半減期から、現在の放射率を計算し、その放射率で上記の計数率を割って全エネルギー吸収ピーク検出効率( $\epsilon_{\text{SF}}$ )を出す。(添字SFはsource full energy peak efficiencyの略)

一方、 $E_\gamma$ の関数としての $\epsilon_{\text{SF}}$ が線源距離5 cmの場合について測定されている<sup>8)</sup>。それはFig.13の実線のとおりである。

前記の $\epsilon_{\text{SF}}$ も同じ図に書き込む。その例がFig.13中央部の二つの点である。試料距離すなわち線源距離が5 cmでない場合に対して、5 cmの場合のエネルギー依存性を流用することにし、実線を上へ平行移動させ、二つの点のなるべく近くへ持って来る。その例が図中の破線である。

分析試料の $\gamma$ 線スペクトルの各ピークごとに、上記の例の破線に当たる曲線を使って $\epsilon_{\text{SF}}$ を読み取る。

#### (2) 照射終了時に対応する $\gamma$ 線放射率の計算

前記3.2.4(4)の半減期測定のとくにFig.11に相当する図を各ピークについて作ったが、その図の上で各成分を表わす直線を照射終了時点まで延ばす。延ばすとき半減期の文献値に基づいて直線の傾き(延長方向)を決める。図から照射終了時のピーク面積を読み取り、それを $\epsilon_{\text{SF}}$ で割って $\gamma$ 線放射率を求める。

#### (3) 照射終了時の放射能の計算

上記(2)で求めた $\gamma$ 線放射率を $\gamma$ 線存在度で割って放射能を求める。 $\gamma$ 線存在度は文献(9)に百分率で記載されている。

#### (4) 各元素の比放射能の標準値の計算 および もとの元素の同定

ある標準的条件で照射した場合に得られるはずの元素別比放射能を、Fig.1による図式計算



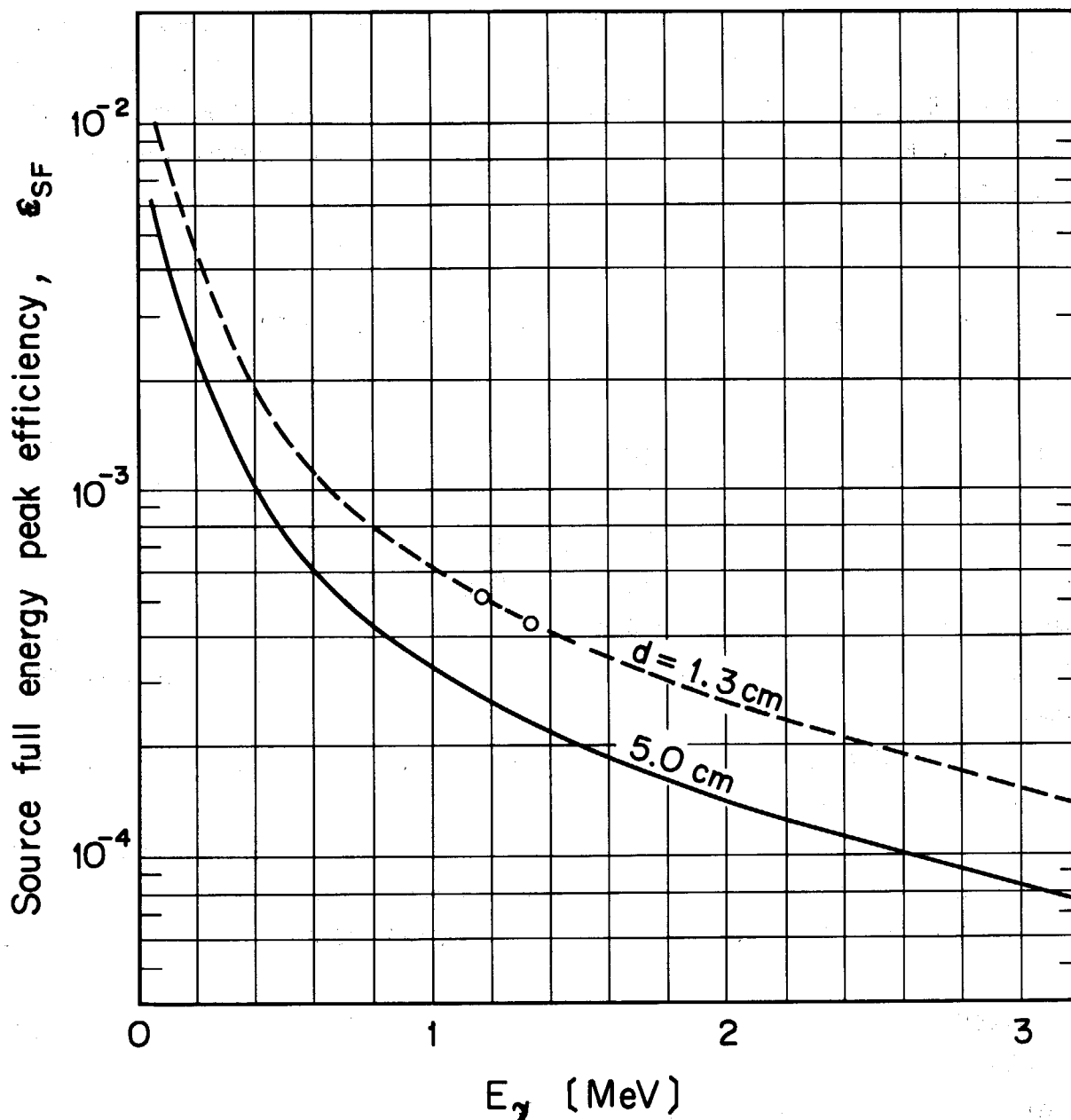


Fig.13. Source full energy peak efficiency vs. gamma-ray energy. Parameter, distance of source from the aluminum window of detector; solid line, experimental data appeared in ref. 8); small open circle, efficiency observed by use of a 30-cm<sup>3</sup> coaxial Ge(Li) and a standard source (<sup>60</sup>Co); broken line, estimated efficiency.

法 1) で求める。この図を使うときに、計算と同時に核反応の型がわかり、したがってもとの元素が同定できる。

標準的照射条件は次のように選ぶ。

- a. 試料を照射する中性子は 2200 m/sec の中性子。
- b. 中性子束は  $1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  。
- c. 照射時間は実際の照射時間。

(5) 照射した標準体を使って中性子束を求めること

照射したコバルトの  $\gamma$  線スペクトルの二つのピークについて、それぞれの面積に相当する計数値を、(1) で求めた  $\epsilon_{SF}$  で割り、さらに重量で割って「照射したコバルト」の比放射能をピークごとに求めたのち両者の平均値  $a$  を出す ( $a \approx 10^4 \text{ dps}/\mu\text{g}$ )。

この結果を使って次に中性子束を計算する。

前記の標準的条件のもとでコバルトを照射した場合に得られるはずの比放射能  $b$  を図式計算で求める ( $b \approx 10^4 \text{ dps}/\mu\text{g}$ )。これには短寿命の生成物  $^{60}\text{Co}$  の直接の寄与は含まれていない。

上記の  $a$  と  $b$  と、標準的条件に採用した中性子束とから、実際の中性子束を次のとおり推定する。

$$(1.0 \times 10^{13}) \times (a/b) \quad \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$$

この推定は、熱外中性子や速中性子の影響を無視した近似計算である。

(6) 分析試料中の元素別比放射能の推定

前記(4)で求めた元素別比放射能標準値に  $a/b$  を掛けて実際の比放射能の推定値を求める。

(7) 各元素の濃度の推定

前記の(3)で得られた放射能を、(6)で得られた比放射能で割って各元素の重量を求める。

元素一つに対してピークが二つ以上ある場合には、各ピークごとに元素量を出してから、ピークの大きいほうかまたは妨害の少ないほうに重みを多くつけて重み付き平均を出す。

ppm単位の濃度を出し、誤差を考慮して表現を調整する。その方法は 2.2.5 (8)の後半でのべた。

### 3.3 適用例および考察

本法を黒鉛試料に適用した結果を Fig.14 と Table 2 に示す。この例では ppm から ppb の濃度範囲の 10 元素が定量してある。この例で取り上げた試料と同種の試料を発光分光分析法で分析した結果があるので、両者に共通な元素についてその概略濃度を ppm 単位でここに示す。

Cu (<1), Zn (<100), Sb (<10), Co (<10), Fe (5), Na (<100)。

Table 2 に示した結果との間に矛盾はない。

標準体としてはコバルト線の代わりにチタンとコバルトの合金を使ってもよい。その場合、照射後の溶解にはフッ化水素酸がよい。

定量誤差の原因のおもなものは NaI (Tl) 検出器使用の場合と共通なのであとにのべる。

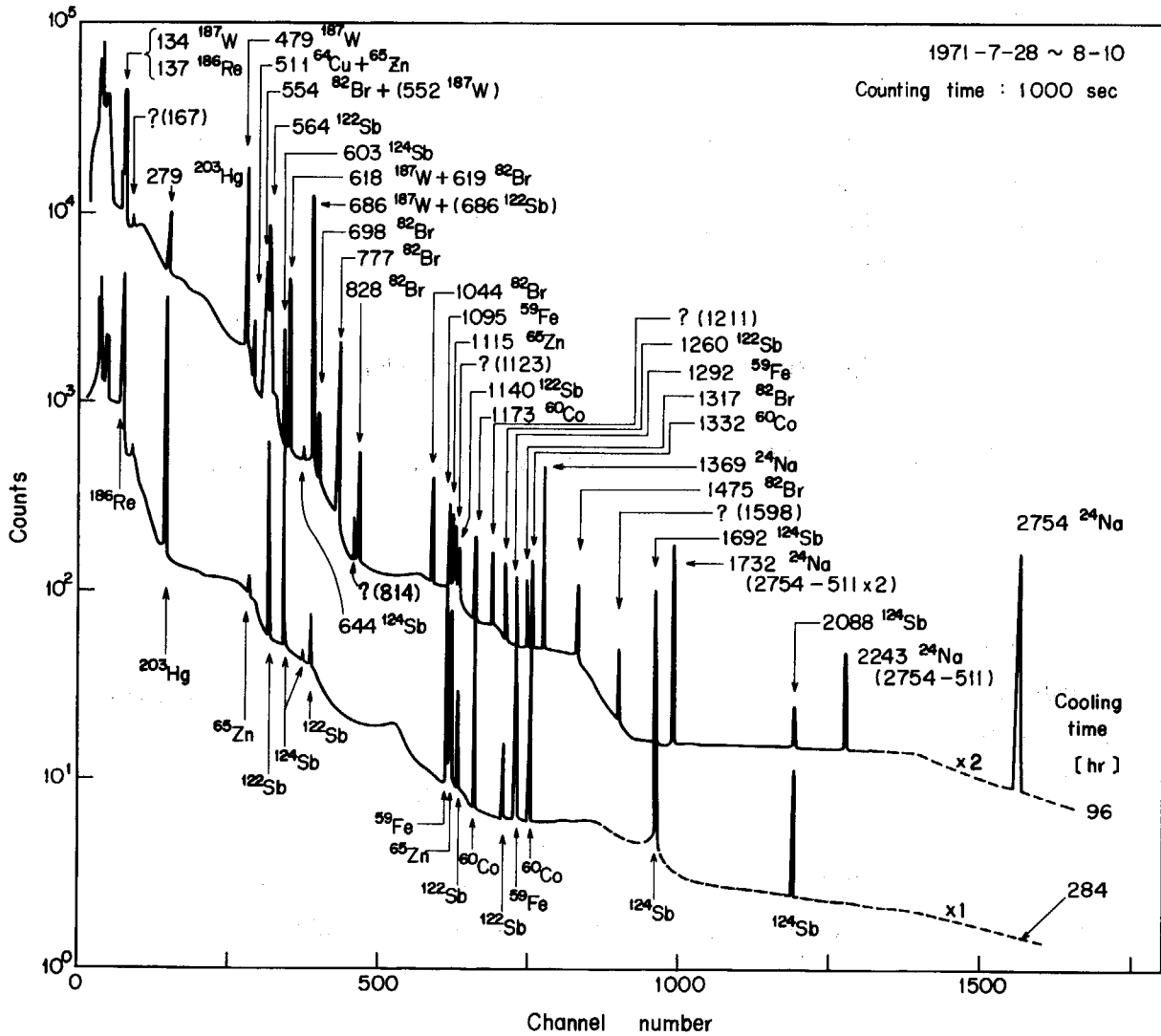


Fig.14. Typical gamma-ray spectra obtained from one sample at different cooling times. Detector, 30-cm<sup>3</sup> coaxial Ge(Li); distance of sample from the aluminum window of the detector, 0.1 cm to the nearest end and 2.5 cm to the farthest; sample, 6.3-g graphite irradiated at a thermal-neutron flux of 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup>·sec<sup>-1</sup> for 290 hr.

Table 2 Analysis of gamma-ray spectra obtained with a Ge(Li) detector

Peak number	Channel number	Gamma-ray energy $E_\gamma$ (MeV)	Half life of nuclide formed $T_{1/2}$	Gamma ray identified		Peak area at the end of irradiation $S$ (c.p.s.)
				Half Nuclide life $T_{1/2}$ (MeV)	Fractional abundance of unconverted photons $\gamma(E)$	
					5	6
A1	663	1.168	$\gg 10d$	5.26y $^{60}Co$	1.173 1.00	$1.90 \times 10^2$
A2	755	1.330	$\gg 10d$	5.26y $^{60}Co$	1.332 1.00	$1.58 \times 10^2$
B1	663	1.168	$\gg 10d$	5.26y $^{60}Co$	1.173 1.00	$7.5 \times 10^0$
B2	755	1.330	$\gg 10d$	5.26y $^{60}Co$	1.332 1.00	$5.1 \times 10^0$
1	74 ~ 76	$0.132 \pm 0.003$	$< 2d$	23.9h $^{187}W$	0.134 0.09	*
2	78 ~ 79	$0.138 \pm 0.002$	$4.0 \pm 0.2d$	88.9h $^{186}Re$	0.137 0.09	$1.6 \times 10^1$
3	89 ~ 90	$0.167 \pm 0.002$	$\sim 10d$	?		
4	158 ~ 159	$0.279 \pm 0.002$	$> 10d$	46.9d $^{203}Hg$	0.279 0.77	$4.2 \times 10^0$
5	271 ~ 273	$0.478 \pm 0.003$	$24 \pm 1h$	23.9h $^{187}W$	0.479 0.23	$2.5 \times 10^1$
6	289 ~ 290	$0.510 \pm 0.002$	$12 \pm 2h$	12.8h $^{64}Cu$	0.511 0.38	$2.2 \times 10^2$
			$> 10d$	245d $^{65}Zn$	0.511 0.034	$6 \times 10^{-2}$

Table 2 Analysis of gamma-ray spectra obtained with a Ge(Li) detector (cont.)

1	2	3	4	5		6	
Peak number	Channel number	Gamma-ray energy $E_\gamma$ (MeV)	Half life of nuclide formed $T_{1/2}$	Gamma ray identified		Peak area at the end of irradiation S (c.p.s.)	
				Half life $T_{1/2}$ of Nuclide	Fractional abundance of $\gamma$ photons $I(E)$		
0.63-g irradiated graphite	7	315 ~ 316	< 2d	35.3h <sup>82</sup> Br	0.554	0.66	*
	8	319 ~ 320	2.5 ± 0.2d	23.9h <sup>187</sup> W	0.552	0.05	*
	9	340 ~ 341	>10d	2.80d <sup>122</sup> Sb	0.564	0.66	3.2 × 10 <sup>1</sup>
	10	350 ~ 351	30 ± 5h	60.4d <sup>124</sup> Sb	0.603	0.97	2.7 × 10 <sup>0</sup>
	11	370 ~ 371	>10d	23.9h <sup>187</sup> W	0.618	0.06	*
	12	388 ~ 389	25 ± 3h	35.3h <sup>82</sup> Br	0.619	0.41	*
	13	393 ~ 394	0.693 ± 0.002	60.4d <sup>124</sup> Sb	0.644	0.07	*
	14	437 ~ 438	0.684 ± 0.002	23.9h <sup>187</sup> W	0.686	0.27	*
	15	458 ~ 459	0.814 ± 0.002	2.80d <sup>122</sup> Sb	0.686	0.034	*
				35.3h <sup>82</sup> Br	0.698	0.27	*
				35.3h <sup>82</sup> Br	0.777	0.83	2.3 × 10 <sup>1</sup>
				<10d	?		

16	468 ~ 469	0.827 ± 0.002	33 ± 2h	35.3h	<sup>82</sup> Br	0.828	0.25	*
17	590 ~ 591	1.039 ± 0.002	35 ± 5h	35.3h	<sup>82</sup> Br	1.044	0.29	*
18	620 ~ 621	1.092 ± 0.002	> 10d	45.6d	<sup>59</sup> Fe	1.095	0.56	*
19	631 ~ 634	1.111 ± 0.004	> 10d	245d	<sup>65</sup> Zn	1.115	0.49	3 × 10 <sup>-1</sup>
20	638 ~ 639	1.123 ± 0.002	< 2d	?	?			
21	641 ~ 642	1.140 ± 0.002	< 10d	2.80d	<sup>122</sup> Sb	1.140	0.007	*
22	663 ~ 664	1.168 ± 0.002	> 10d	5.26y	<sup>60</sup> Co	1.173	1.00	1.7 × 10 <sup>-1</sup>
23	688 ~ 689	1.211 ± 0.002	> 10d	?	?			
24	714 ~ 715	1.257 ± 0.002	< 10d	2.80d	<sup>122</sup> Sb	1.26	0.007	*
25	731 ~ 732	1.287 ± 0.002	> 10d	45.6d	<sup>59</sup> Fe	1.292	0.44	8 × 10 <sup>-2</sup>
26	747 ~ 748	1.315 ± 0.002	< 2d	35.3h	<sup>82</sup> Br	1.317	0.26	*
27	755 ~ 756	1.330 ± 0.002	> 10d	5.26y	<sup>60</sup> Co	1.332	1.00	1.2 × 10 <sup>-1</sup>
28	775 ~ 776	1.365 ± 0.003	15 ± 5h	15.0h	<sup>24</sup> Na	1.369	1.00	*
29	836 ~ 837	1.472 ± 0.003	< 2d	35.3h	<sup>82</sup> Br	1.475	0.17	*
30	906 ~ 907	1.595 ± 0.003	< 2d	?	?			
31	961 ~ 962	1.692 ± 0.003	> 10d	60.4d	<sup>124</sup> Sb	1.692	0.50	*
32	984 ~ 985	1.733 ± 0.003	< 20h	15.0h	<sup>24</sup> Na	1.732		*
33	1187 ~ 1188	2.090 ± 0.003	> 10d	60.4d	<sup>124</sup> Sb	2.088	0.07	*
34	1276 ~ 1277	2.247 ± 0.003	< 20h	15.0h	<sup>24</sup> Na	2.243		*
35	1568 ~ 1569	2.760 ± 0.003	< 20h	15.0h	<sup>24</sup> Na	2.754	1.00	1.0 × 10 <sup>1</sup>

\* not suitable for quantitative determination

Table 2 Analysis of gamma-ray spectra obtained with a Ge(Li) detector (cont.)

1	7	8	9	10	11	12	13		
Peak number	Source full energy peak efficiency $\epsilon_{SF}$	Emission rate of gamma ray $S/\epsilon_{SF}$ (sec <sup>-1</sup> )	Activity ( $= \frac{\text{emission rate}}{\gamma(E)}$ ) (d.p.s.)	Calculated specific activity for a neutron flux of $1 \times 10^{13}$ cm <sup>-2</sup> ·sec <sup>-1</sup> (d.p.s./ $\mu$ g)	Element found	Estimated specific activity for the neutron flux used (d.p.s./ $\mu$ g)	Amount of element ( $\mu$ g)		
0.56- $\mu$ g irradiated cobalt	B1	$5.0 \times 10^{-4}$	$1.50 \times 10^4$	$3.3 \times 10^4$	Co	/	/		
	B2	$4.3 \times 10^{-4}$	$1.19 \times 10^4$	$3.3 \times 10^4$	Co				
	2	$7 \times 10^{-3}$	$2.3 \times 10^3$	$2.6 \times 10^4$	Re			$7.3 \times 10^5$	$3.6 \times 10^{-2}$
	4	$3.5 \times 10^{-3}$	$1.2 \times 10^3$	$1.6 \times 10^3$	Hg			$5.2 \times 10^3$	$3.1 \times 10^{-1}$
	5	$1.7 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^4$	$6.5 \times 10^4$	W			$2.2 \times 10^5$	$3.0 \times 10^{-1}$
	6	$1.5 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^5$	$3.9 \times 10^5$	Cu			$1.8 \times 10^5$	$2.2 \times 10^0$
0.63-g irradiated graphite	8	$1.2 \times 10^{-3}$	$4.0 \times 10^1$	$1.2 \times 10^3$	Zn	$6 \times 10^2$	$2.0 \times 10^0$		
	9	$1.1 \times 10^{-3}$	$2.7 \times 10^4$	$4.1 \times 10^4$	Sb	$1.5 \times 10^5$	$2.7 \times 10^{-1}$		
	14	$8 \times 10^{-4}$	$2.5 \times 10^3$	$2.6 \times 10^3$	Sb	$6 \times 10^3$	$4.3 \times 10^{-1}$		
	18	$5.4 \times 10^{-4}$	$2.9 \times 10^4$	$3.5 \times 10^4$	Br	$7.3 \times 10^4$	$4.8 \times 10^{-1}$		
	21	$5.0 \times 10^{-4}$	$6 \times 10^2$	$1.2 \times 10^3$	Zn	$6 \times 10^2$	$2.0 \times 10^0$		
	24	$4.5 \times 10^{-4}$	$5.4 \times 10^2$	$3.4 \times 10^2$	Co	$2.4 \times 10^4$	$1.4 \times 10^{-2}$		
	26	$4.3 \times 10^{-4}$	$1.8 \times 10^2$	$4.1 \times 10^2$	Fe	$4.3 \times 10^1$	$9.5 \times 10^0$		
	34	$1.2 \times 10^{-4}$	$2.8 \times 10^2$	$2.8 \times 10^2$	Co	$2.4 \times 10^4$	$1.2 \times 10^{-2}$		
			$8 \times 10^4$	$8 \times 10^4$	Na	$9.5 \times 10^4$	$8 \times 10^{-1}$		

Table 2 Analysis of gamma-ray spectra obtained with a Ge(Li) detector (cont.)

1	11	14	15	16
Peak number	Element found	Weighted mean of the amount of element ( $\mu\text{g}$ )	Ratio of the amount of element and that of sample	Content in round numbers (p.p.m.)
2	Re	$3.6 \times 10^{-2}$	$5.7 \times 10^{-9}$	0.01
4	Hg	$3.1 \times 10^{-1}$	$4.9 \times 10^{-8}$	0.1
5	W	$3.0 \times 10^{-1}$	$5 \times 10^{-8}$	0.1
6	Cu	$2.2 \times 10^0$	$3.5 \times 10^{-7}$	$\approx 0.3$
6, 18	Zn	$2.0 \times 10^0$	$3.2 \times 10^{-7}$	$\approx 0.3$
8, 9	Sb	$3.7 \times 10^{-1}$	$6 \times 10^{-8}$	0.1
14	Br	$4.8 \times 10^{-1}$	$8 \times 10^{-8}$	0.1
21, 26	Co	$1.3 \times 10^{-2}$	$2.1 \times 10^{-9}$	$\approx 0.002$
24	Fe	$9.5 \times 10^0$	$1.5 \times 10^{-6}$	$\approx 2$
34	Na	$8 \times 10^{-1}$	$1.3 \times 10^{-7}$	0.1



## 4. 考 察

### 4.1 速中性子無視の影響

比放射能の標準値を計算するのに使う Fig.1 は 2200 m/sec の中性子すなわち約 0.025 eV の中性子に対する断面積に基づいて作ってある。他方、実際に使った中性子には広いエネルギー分布がある。2200 m/sec 中性子以外の中性子の影響を考慮しないことが定量誤差の原因として第一に考えられる。これについて定量的な推察を試みるならば、カドミウム比が 30~50 であるような中性子を試料の照射に使うと誤差は定量値の 30~60% と思われる。これを小さくするため、試料の照射場所をカドミウム比の大きい所を選ぶことが望ましい。その場合、分析感度が落ちるのはやむをえない。

### 4.2 中性子断面積値の誤差による定量誤差

Fig.1 の使用によって間接的に使用した中性子断面積の値<sup>10) 11)</sup>には近年の測定値が含まれていない。新しい測定値を使って作り直した同種の図<sup>12)</sup>は現在印刷中である。それを使えば中性子断面積値の誤差に起因する定量誤差は、多くの場合 40% 以下になる。

### 4.3 その他

定量の対象が微量成分である場合、定量値の有効数字は 1 桁でもよいといふことが多い。この許容条件を活用して操作や計算を簡易化した点に本法の特徴がある。本法による定量値の誤差は係数 2 の程度(「1/2 倍ないし 2 倍」の程度)と思われる。

Ge(Li) 検出器を含む放射能測定装置の使用を許され、測定に御援助を頂いた原子炉研究所の東條隆夫氏と近藤真氏、分光分析結果を提供して下さった化学部の中島篤之助博士と高島教一郎氏に感謝いたします。

### 参 考 文 献

- (1) 岡田 實: *Radioisotopes*, 20, 68-71 (1971)
- (2) Westermarck T., Sjöstrand B.: *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, 9, 63-77 (1960)
- (3) Crouthamel C.E.: "Applied Gamma-Ray Spectrometry" 2nd ed. completely revised and enlarged by F. Adams and R. Dams, Pergamon Press, 752 p. (1973)
- (4) クルートヘイムル C.E. 著, 岡田 實, 亀本雄一郎共訳: 応用ガンマ線スペクトロメトリ, 産業図書, 東京, 439 p. (1967)
- (5) 岡田 實: *Radioisotopes*, 12, 243-252, 358-362 (1963)
- (6) Connally R.E., Leboeuf M.B.: *Anal. Chem.*, 25, 1095-1100 (1953)

- (7) 馬場澄子, 馬場 宏, 岡下 宏: JAERI 1216, 日本原子力研究所, 15 p.  
(1971)
- (8) 東峰隆夫, 近藤 眞, 白石忠男, 瀬崎勝二, 東海林功, 織田 勇, 橋本一志, 伊東一義:  
JAERI-M 4560, 日本原子力研究所, 34 p. (1971)
- (9) Lederer C.M., Hollander J.M., Perlman I.: "Table of Isotopes" 6th ed.,  
John Wiley & Sons, Inc., 594 p. (1968)
- (10) Hughes D.J., Schwartz R.B.: "Neutron Cross Sections", BNL-325 2nd ed.,  
373 p. (1958)
- (11) Hughes D.J., Magurno B.A., Brussel M.K.: "Neutron Cross Sections", BNL-  
325 2nd ed., Suppl. No 1 (1960)
- (12) Okada M.: J. Radioanal. Chem., in press