

J A E R I - M  
91-087

原子炉中性子による即発ガンマ線分析  
—解説及びJRR-3(改造炉)中性子ガイドビームを  
使用した実験計画—

1991年5月

米沢仲四郎・星 三千男

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

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division,  
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura,  
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 株原子力資料サービス

原子炉中性子による即発ガンマ線分析  
— 解説及び JRR-3 (改造炉) 中性子ガイドビームを使用した実験計画 —

日本原子力研究所東海研究所化学部  
米沢仲四郎・星 三千男

(1991年4月25日受理)

原子炉の中性子を利用した即発ガンマ線分析 (PGA) に関する文献を調査し, PGA の原理及び特徴を通常の中性子放射化分析 (NAA) と比較しながら解説した。装置を炉内型, ビーム型及びガイドビーム型に分類し, 分析化学的に使用例の多い代表的な装置を紹介するとともに, 各装置の感度及び検出限界の比較を行い, その特長を利用した多方面の応用例を説明した。更に, 現在計画中の JRR-3 (改造炉) の冷及び熱中性子ガイドビームを利用した PGA について, 設置予定の実験装置の紹介及びその研究計画を示した。

Reactor Neutron-induced Prompt Gamma-ray Analysis  
- Review and Research Program at the Neutron  
Guide Beam of JRR-3 (Upgraded) -

Chushiro YONEZAWA and Michio HOSHI

Department of Chemistry  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 25, 1991)

Reactor neutron-induced prompt gamma-ray analysis is reviewed and compared with conventional neutron activation analysis. The facilities mainly used for analytical chemistry are classified into three categories: internal, beam and guide beam types. The analytical sensitivity and detection limits of each type are compared and then several kinds of applications are presented. Finally, an apparatus installed in the cold and thermal neutron guide beam lines of JRR-3 (upgraded) is described together with research program using it.

Keywords: Reactor Neutron-induced Prompt Gamma-ray Analysis,  
JRR-3 (Upgraded), Cold and Thermal Neutron Guide Beam

## 目 次

1.はじめに .....	1
2.原理及び特徴 .....	1
3.分析装置 .....	3
3.1 分析装置の分類及び特徴 .....	3
3.2 炉内型 .....	4
3.3 ビーム型 .....	4
3.4 ガイドビーム型 .....	6
3.5 感度及び検出限界の比較 .....	7
4.即発ガンマ線分析の応用 .....	8
4.1 B の分析 .....	8
4.2 標準試料の分析 .....	9
4.3 その他の分析例 .....	9
5.即発ガンマ線データ .....	10
6. JRR-3 (改造炉) のガイドビームを利用した即発ガンマ線分析 .....	10
6.1 JRR-3 (改造炉) の冷及び熱中性子ガイドビームの特性 .....	10
6.2 分析装置の仕様 .....	11
6.3 研究計画 .....	14
7.おわりに .....	16
謝 辞 .....	17
文 献 .....	17

## Contents

1. Preface .....	1
2. Principle and characteristics .....	1
3. Facility .....	3
3.1 Classification and characteristics of facility .....	3
3.2 Internal type facility .....	4
3.3 Beam type facility .....	4
3.4 Guide beam type facility .....	6
3.5 Comparison of analytical sensitivity and detection limit .....	7
4. Application of reactor neutron-induced prompt gamma-ray analysis .....	8
4.1 Application to B analysis .....	8
4.2 Analysis of reference materials .....	9
4.3 Other applications .....	9
5. Neutron-induced prompt gamma-ray data .....	10
6. Prompt gamma-ray analysis by using JRR-3 (upgraded) neutron guide beam .....	10
6.1 Characteristics of thermal and cold neutron guide beam of JRR-3 (upgraded) .....	10
6.2 Specification of apparatus .....	11
6.3 Research program .....	14
7. Concluding remarks .....	16
Acknowledgement .....	17
References .....	17

## 1. はじめに

原子炉の中性子を利用した即発ガンマ線分析 (PGA) は、通常の中性子放射化分析 (NAA) に比べ感度の劣る元素が多いが、NAA では分析困難な元素及びその他の元素を非破壊で迅速に分析できるという特長を持ち、NAA の補足的な分析法として各種試料の分析に用いられてきた。近年になり、中性子源として冷中性子等の低速中性子ガイドビームを用いることにより、欠点とされていた感度及び検出限界が著しく改善されることが明らかになり、分析法としての位置づけに変化が現れてきた。

これまでの PGA の研究は主に米国及びヨーロッパで行われたもので、我国では適当な中性子源が得られなかつたこと等から、その研究例は少ない。しかし、近年になり国内の NAA の研究者等から PGA の研究が望まれるようになり、利用できる中性子束の大きさ等から日本原子力研究所（原研）の研究炉への分析装置の設置が望まれた。同時期原研では、冷及び熱中性子ガイドビーム実験設備を備えた JRR-3 の改造を行っており、このガイドビームが PGA の中性子源として最適であることが分り、その研究を開始することになった。改造炉は昨年 3 月 22 日に臨界になり、また即発ガンマ線分析装置の予算が平成 2 年度に認められ、平成 3 年 10 月から実験が開始できる見込みとなっている。

実験を開始するに当り、原子炉中性子を利用した PGA に関する文献を調査し、原理、特徴、及び応用例などについて解説するとともに、JRR-3（改造炉）冷及び熱中性子ガイドビームを利用した PGA の研究計画等についても紹介する。これまでに PGA に関する総説及び解説<sup>1)~7)</sup> は多数報告されているが、中性子等の低速中性子ガイドビームを利用した PGA についての解説<sup>8)</sup> は少ない。

## 2. 原理及び特徴

熱中性子と原子核の反応の模式図と、これを用いた分析法の名称を Fig. 1 に示す。熱中性子を利用した分析法としては、反応後  $10^{-14}$  sec 以下の時間で放出される即発放射線を測定する方法と、反応により生成した放射性核種の壊変放射線を測定する中性子放射化分析 (NAA, Neutron Activation Analysis) がある。NAA は中性子照射後の化学分離操作の有無により、それぞれ放射化学的中性子放射分析 (RNAA, Radiochemical Neutron Activation Analysis), 及び機器中性子放射化分析 (INAA, Instrumental Neutron Activation Analysis) に分類され、微量分析法として広く使われている。一方即発放射線を測定する方法としては、 $\gamma$  線を測定する中性子誘起即発ガンマ線分析 (PGA, Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Analysis), 及び  $\alpha$  またはプロトン (p) 粒子等を測定し物質中の元素の分布を分析する熱中性子デプスプロファイリング (NDP, Thermal Neutron Depth Profiling) がある。NDP は半導体材料中

## 1. はじめに

原子炉の中性子を利用した即発ガンマ線分析 (PGA) は、通常の中性子放射化分析 (NAA) に比べ感度の劣る元素が多いが、NAA では分析困難な元素及びその他の元素を非破壊で迅速に分析できるという特長を持ち、NAA の補足的な分析法として各種試料の分析に用いられてきた。近年になり、中性子源として冷中性子等の低速中性子ガイドビームを用いることにより、欠点とされていた感度及び検出限界が著しく改善されることが明らかになり、分析法としての位置づけに変化が現ってきた。

これまでの PGA の研究は主に米国及びヨーロッパで行われたもので、我国では適当な中性子源が得られなかつたこと等から、その研究例は少ない。しかし、近年になり国内の NAA の研究者等から PGA の研究が望まれるようになり、利用できる中性子束の大きさ等から日本原子力研究所（原研）の研究炉への分析装置の設置が望まれた。同時期原研では、冷及び熱中性子ガイドビーム実験設備を備えた JRR-3 の改造を行っており、このガイドビームが PGA の中性子源として最適であることが分り、その研究を開始することになった。改造炉は昨年 3 月 22 日に臨界になり、また即発ガンマ線分析装置の予算が平成 2 年度に認められ、平成 3 年 10 月から実験が開始できる見込みとなっている。

実験を開始するに当り、原子炉中性子を利用した PGA に関する文献を調査し、原理、特徴、及び応用例などについて解説するとともに、JRR-3（改造炉）冷及び熱中性子ガイドビームを利用した PGA の研究計画等についても紹介する。これまでに PGA に関する総説及び解説<sup>1)~7)</sup> は多数報告されているが、中性子等の低速中性子ガイドビームを利用した PGA についての解説<sup>8)</sup> は少ない。

## 2. 原理及び特徴

熱中性子と原子核の反応の模式図と、これを利用した分析法の名称を Fig. 1 に示す。熱中性子を利用した分析法としては、反応後  $10^{-14}$  sec 以下の時間で放出される即発放射線を測定する方法と、反応により生成した放射性核種の壊変放射線を測定する中性子放射化分析 (NAA, Neutron Activation Analysis) がある。NAA は中性子照射後の化学分離操作の有無により、それぞれ放射化学的中性子放射分析 (RNAA, Radiochemical Neutron Activation Analysis), 及び機器中性子放射化分析 (INAA, Instrumental Neutron Activation Analysis) に分類され、微量分析法として広く使われている。一方即発放射線を測定する方法としては、 $\gamma$  線を測定する中性子誘起即発ガンマ線分析 (PGA, Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Analysis), 及び  $\alpha$  またはプロトン (p) 粒子等を測定し物質中の元素の分布を分析する熱中性子デプスプロファイリング (NDP, Thermal Neutron Depth Profiling) がある。NDP は半導体材料中

の B, Li 等の分布分析法として有効であるが、ここでは割愛する。この様に PGA は、原子核と熱中性子との中性子捕獲反応等により、 $10^{-14}$  sec 以内に放出される即発  $\gamma$  線を測定し、試料中の同位体及び元素を分析する方法であり、PGA の中性子源として、 $^{252}\text{Cf}$  等の RI 線源を用いる方法もあるが、ここでは原子炉の中性子を利用した PGA についてのみ言及する。

PGA は分析法として未だ一般的でないことから、以下に示す様な種々の名称で呼ばれている。

PGA	Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Analysis
PGAA	Prompt Gamma-Ray Activation Analysis
PGNAA	Prompt Gamma-Ray Neutron Activation Analysis
NCGA	Neutron Capture Gamma-Ray Analysis
NCGS	Neutron Capture Gamma-Ray Spectrometry
PNCAA	Prompt Neutron Capture Activation Analysis
PNAA	Prompt Neutron Activation Analysis
RNC	Radiative Neutron Capture
TCGS	Thermal Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy
TNCGS	Thermal Neutron Prompt Gamma-Ray Spectrometry

この中で即発ガンマ線放射化分析 (PGAA, Prompt Gamma-Ray Activation Analysis) と即発ガンマ線中性子放射化分析 (PGNAA, Prompt Gamma-Ray Neutron Activation Analysis) が最も多く用いられている。これに対して Chrien は、即発 (Prompt) と放射化 (Activation) の語句を同時に使用する事に矛盾があるとし、PGA を提唱している<sup>4)</sup>。本解説でもこの PGA を用いる事にした。

PGA と NAA は原理的に類似点が多いが、Isenhour 等<sup>9)</sup> はこれらの方の分析感度を (1) 式により計算した感度因子、S (Sensitivity Factor) で比較している。

$$S = \frac{AR}{\theta L \sigma (1 - e^{-\lambda t}) I} \quad (1)$$

ここで、A : 原子量

R : 計数率 (cps)

$\theta$  : 同位体存在比

L : アボガドロ数

$\sigma$  : 反応断面積 ( $\text{cm}^2$ )

$\lambda$  : 壊変定数

t : 照射時間

I :  $\gamma$  線放出率

この式では中性子束と  $\gamma$  線の計数効率は両法で等しい（計数効率 100 %, 単位中性子束）として計算しているため省略され、また PGA では飽和係数 ( $1 - e^{-\lambda t}$ ) が省略される。照射時間を 1 hr とし、計数率 (R) を NAA の場合半減期が 1 min 以下の核種では 1000 cpm, 1 min ~ 1 hr の核種では 100 cpm, 1 hr 以上の核種では 10 cpm, 及び PGA の場合は 10 cpm, として S を計算している。NAA と PGA の感度因子  $S_D$ ,  $S_P$  及びその比の対数値を Table 1 に示す。log

$(S_D/S_p)$  値がプラス側の元素は PGA の方が NAA より高感度である事を示し、照射及び測定条件が同一の場合は PGA の方が高感度の元素が多い事がわかる。しかし実際には PGA の照射及び測定条件を NAA と同等にする事は困難である。例えば中性子ビームを利用する PGA では、ビーム中の中性子束は炉心中のものの  $10^{-5} \sim 10^{-6}$  であり、 $\gamma$  線測定では試料と検出器間距離が NAA の場合より大きい。これに対して NAA では中性子照射を炉心中の高い中性子束場で行い、試料の  $\gamma$  線測定も検出器と接近して行われる。したがって、実際の分析では NAA の方が高感度の元素が多いが、照射及び測定条件を改良する事により NAA のものに近づける事ができる。

PGA による元素の相対感度<sup>4)</sup> を Table 2 に示す。ここで感度、 $S_1$  (Sensitivity Index) は(2)式により計算したもので、先程の感度因子とは異なる。

$$S_1 = I\sigma/A \quad (2)$$

表中の検出限界 (Detection Limit) は米国の Maryland 大学 - NBS の装置による玄武岩中の値である。表より、Gd, B, Cd, Sm, Eu は高感度であり、この様な元素に対して PGA は微量分析法として、また  $S_1$  が 0.1 程度までの元素に対しては組成分析法として有効である事がわかる。また  $S_1$  が 0.1 以下の元素に対しては感度が低過ぎ、分析に適していない。

PGA は次の様な特徴をもつ。

- 長所 1) 非破壊
- 2) 迅速
- 3) 多元素同時分析
- 4) NAA で分析困難な元素 (H, B, N, Si, P, S, Cd, Gd 等) の分析が可能
- 5) 試料の形状に自由度がある
- 6) 誘導放射能が無視できる
- 短所 1) 中性子源 (原子炉, RI 線源) が必要
- 2) 実際的には NAA に比べて低感度の元素が多い
- 3) 比較的多量の試料を必要とする
- 4)  $\gamma$  線スペクトルが複雑

PGA の短所 1) と 2) の問題から日本における研究例は少ないが、米国及びヨーロッパ等ではその長所を生かし NAA の補足的な方法として多方面の試料の分析に使用されてきた。しかし最近になり中性子源として冷中性子等の低速中性子ガイドビームの使用により、欠点とされていた感度が上昇する事が明らかになり、NAA の補足的な分析法、という位置づけに変化が現われて来た。

### 3. 分析装置

#### 3.1 分析装置の分類及び特徴

分析化学的に使用例の多い PGA の装置の一例を Table 3 に示す。装置は大きく分けて、試料

$(S_p/S_n)$  値がプラス側の元素は PGA の方が NAA より高感度である事を示し、照射及び測定条件が同一の場合は PGA の方が高感度の元素が多い事がわかる。しかし実際には PGA の照射及び測定条件を NAA と同等にする事は困難である。例えば中性子ビームを利用する PGA では、ビーム中の中性子束は炉心中のものの  $10^{-5} \sim 10^{-6}$  であり、 $\gamma$  線測定では試料と検出器間距離が NAA の場合より大きい。これに対して NAA では中性子照射を炉心中の高い中性子束場で行い、試料の  $\gamma$  線測定も検出器と接近して行われる。したがって、実際の分析では NAA の方が高感度の元素が多いが、照射及び測定条件を改良する事により NAA のものに近づける事ができる。

PGA による元素の相対感度<sup>4)</sup> を Table 2 に示す。ここで感度、 $S_1$  (Sensitivity Index) は(2)式により計算したもので、先程の感度因子とは異なる。

$$S_1 = I\sigma/A \quad (2)$$

表中の検出限界 (Detection Limit) は米国の Maryland 大学 - NBS の装置による玄武岩中の値である。表より、Gd, B, Cd, Sm, Eu は高感度であり、この様な元素に対して PGA は微量分析法として、また  $S_1$  が 0.1 程度までの元素に対しては組成分析法として有効である事がわかる。また  $S_1$  が 0.1 以下の元素に対しては感度が低過ぎ、分析に適していない。

PGA は次の様な特徴をもつ。

- 長所
  - 1) 非破壊
  - 2) 迅速
  - 3) 多元素同時分析
  - 4) NAA で分析困難な元素 (H, B, N, Si, P, S, Cd, Gd 等) の分析が可能
  - 5) 試料の形状に自由度がある
  - 6) 誘導放射能が無視できる
- 短所
  - 1) 中性子源 (原子炉, RI 線源) が必要
  - 2) 実際的には NAA に比べて低感度の元素が多い
  - 3) 比較的多量の試料を必要とする
  - 4)  $\gamma$  線スペクトルが複雑

PGA の短所 1) と 2) の問題から日本における研究例は少ないが、米国及びヨーロッパ等ではその長所を生かし NAA の補足的な方法として多方面の試料の分析に使用されてきた。しかし最近になり中性子源として冷中性子等の低速中性子ガイドビームの使用により、欠点とされていた感度が上昇する事が明らかになり、NAA の補足的な分析法、という位置づけに変化が現われて来た。

### 3. 分析装置

#### 3.1 分析装置の分類及び特徴

分析化学的に使用例の多い PGA の装置の一例を Table 3 に示す。装置は大きく分けて、試料

を原子炉内で照射する炉内 (Internal) 型, 原子炉の水平又は垂直実験孔の中性子ビームを用いるビーム型 (Beam) 型, 及び中性子の全反射を利用したガイド管で導いた低速中性子ビームを用いるガイドビーム (Guide Beam) 型に分類される。

ガイドビーム型を含んだビーム型の装置と炉内型の装置を比較すると, 炉内型は中性子束を大きくとる事ができるが計数効率が低い。一方, ビーム型は中性子束は低くなるが計数効率が高い, 分析試料の形状に自由度がある, 試料の誘導放射能が無視できる, 等優れている点が多い。さらに, ガイドビーム型の装置は近年になって用いられる様になったもので, ビーム中の高速中性子, 熱外中性子及び  $\gamma$  線含量が低い為, 従来の炉内型及びビーム型と比べ次の様な特長をもつ。1) 試料による散乱放射線が少くなり, 試料と検出器間距離を小さくでき, 放射線の遮蔽も簡単になる。2) 試料の散乱放射線によるバックグラウンド及び装置外からのバックグラウンド計数率が低い。3) 反応断面積が大きい (冷中性子の場合  $1/v$  則により熱中性子の 2.5 ~ 3 倍)。それ故に, ガイドビーム型の装置では炉内型及びビーム型と比べ感度が高く, PGA の欠点である低感度の問題が改善される。以下に代表的な装置を紹介する。

### 3.2 炉内型

炉内型の装置の代表例として California 大学 Los Alamos の装置<sup>10), 11)</sup> を Fig. 2 に示す。これは原子炉, OWR (最大熱出力 5 W) のサーマルカラムを利用したもので, 試料は黒鉛製のカプセルに入れ, Bi 製の真空容器内で照射される。炉心からの  $\gamma$  線, 熱外中性子及び高速中性子は Pb, Bi, 黒鉛等で除去され, 試料位置における中性子束は  $\sim 4 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ , Cd 比は 1000 となっている。検出器は Ge(Li) (26 cm<sup>3</sup>) とアニュラス型 NaI(Tl) (直径 20 cm, 長さ 25 cm, 穴の直径 6.5 cm) から成り, 試料と約 6 m 離れた位置に置かれ, 反同時及び同時計数モードによるコンプトンサブレッショング及びペアースペクトルを測定できるようになっている。試料と検出器間には, 検出器への中性子の入射を防ぐため LiF が置かれ,  $\gamma$  線は直径 1.2 cm にコリメートされ, 検出器に導かれる。この装置は隕石中の B の定量, 各種環境試料中の B, Cd, S 等の定量に使用されている。

ドイツ GKSS-Forschungszentrum の実験装置<sup>12)~14)</sup> を Fig. 3 に示す。これは原子炉 FRG-1 (最大熱出力 5 MW) のタンジェンシャル型水平実験孔を利用したもので, 照射場の熱中性子束は  $8 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  と California 大学のものより高いが, Cd 比は不明である。照射カプセルの材質, 及び測定器等の配置及び構成等は California 大学のものとほぼ同じ様になっている。ブラジルの原子力研究所の装置<sup>15), 16)</sup> もこれらのものとほぼ同様の構造になっている。

### 3.3 ビーム型

ビーム型の装置として米国 Missouri 大学の装置<sup>17)</sup> を Fig. 4 に示す。これは原子炉 MURR (最大熱出力 10 MW) の水平実験孔を利用したもので, 中性子束  $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  の中性子を He を充填した Al 製筒,  $\gamma$  線及び高速中性子を除くための Si 単結晶 (全長 50 cm), 及び Pb とメゾナイトのコリメーターを通し, 直径 6.5 cm の中性子ビームを得ている。試料位置にお

ける中性子束は  $5 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ , Cd 比は 42 となっている。試料は窒素によるバックグラウンドを減らす為真空容器内にセットされる。検出器は Ge(Li) (相対効率 19 %, エネルギー分解能 1.85 keV) とアニュラス型 NaI(Tl) (直径 24 cm, 長さ 32 cm) を試料と 75 cm の位置にセットされ、シングル, コンプトンサプレッション及びペアースペクトルを同時に測定できる様になっている。また検出器への中性子の入射を防ぐため, Ge(Li) 検出器のエンドキャップには熔融  $^6\text{LiF}$  (厚さ 1 cm) のカバーが施されている。この装置は考古学的試料及び岩石等の標準試料の分析に使用されている。

米国の Maryland 大学と National Bureau of Standard (NBS) \* により NBS の原子炉 NBSR (最大出力 10 MW, 現在は 20 MW) に設置した装置<sup>18)</sup> を Fig. 5, 6 に示す。この装置は垂直実験孔を利用したもので, 燃料要素から約 50 cm の重水反射体領域 (中性子束  $3.2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ) に Fig. 5 に示す様なコリメーターを挿入し, 直径 4.5 cm のビームを得ている。コリメーターの最下部には即発ガム線バックグラウンドを減らす為 He が充填されている。原子炉上部遮蔽体上のビーム取出口上には Fig. 6 に示す様なガイド管と検出器及びビームストップバーがセットされている。ガイド管は Plexglas 製の 3 重管 (外径 10.2, 25.4, 30.6 cm) から成り, 内側には  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ , 外側には  $\text{B}_4\text{C}$ -パラフィンを充填し, 外部への中性子の漏れを防いでいる。試料位置における中性子束は  $2 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  であり, Cd 比は 55 となっている。試料 (0.1 ~ 2.5 g) はテフロン膜 (0.0025 cm) またはマイラー膜等で包みビーム中にセットされ, N 等によるバックグラウンドを減らすため, ガイド管中に He ガスを通じながら即発  $\gamma$  線を測定できる様になっている。検出器としては Ge(Li) (相対効率 24 %, エネルギー分解能 1.85 keV) とアニュラス型 NaI(Tl) (直径 30 cm, 長さ 38 cm) を用い, 試料と約 50 cm の位置にセットされている。 $\gamma$  線スペクトロメーターは Fig. 7 のブロックダイヤグラムに示す様な機器から成り, エネルギー領域 0 ~ 11 MeV のシングル, コンプトンサプレッション及びペアースペクトルを同時に測定できる様になっている。この装置で得られた岩石試料の即発  $\gamma$  線スペクトルの一例を Fig. 8 に示す。Ge(Li) 検出器だけによるシングルスペクトル (下段) では, 光電ピーク, シングルエスケープ及びダブルエスケープピークが現われ, 複雑なスペクトルとなる。これに対して Ge(Li) と NaI(Tl) 検出器による反同時計数モードのコンプトンサプレッションスペクトル (中段) では, コンプトンバックグラウンドがシングルスペクトルの 1/3 ~ 1/5 に減少し, 更にシングルエスケープ及びダブルエスケープピークも減少したスペクトルとなる。また同時計数モードのペアースペクトルではダブルエスケープピークだけのスペクトルとなる。これら 3 種類のスペクトルを比較することにより, 複雑なスペクトル中の各ピークの同定が容易になる。更にまた, シングルスペクトルでは Ti の 6761 keV の光電ピークは Fe のシングルエスケープピーク 6768 keV と重なるが, コンプトンサプレッションスペクトルでは Fe のシングルエスケープピークの影響を受ける事無く, Ti の 6761 keV のピークを測定する事ができる等の利点もある。この装置は NBS の各種標準試料の分析, 及びセントヘレンズ火山の噴出物等各種地球化学的試

---

\* NBS は 1988 年から National Institute of Standard and Technology (NIST) に名称が変更した。NIST では, その後も冷中性子ガイドビームを利用した PGA の研究が行われている。ここで紹介する PGA の研究は NBS の時代に行われたものであり, NIST になってからの冷中性子を利用した PGA の研究と区別するため, 旧名称を使用した。なお, 原子炉 (NBSR) の名称は変更されていない。

料の分析に使われている。NBSR はその後最大熱出力 20 MW に改造され、中性子束も更に高くなっている。

筆者らが改造前の JRR-3 に設置した装置<sup>19)</sup>を Fig. 9, 10 に示す。これはタンゼンシャル型の水平実験孔 (H-6) に設置したもので、Pb と Li-ポリエチレンにより直径 4 cm にコリメートした中性子ビームを、コンクリート及びパラフィンブロックで組立てたトンネルを通し、試料に照射している。試料位置における中性子束は  $8.0 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  で、Cd 比は 21 であった。散乱中性子と試料周辺の物質との反応によるバックグラウンド  $\gamma$  線を減らすため、試料の回りは LiF タイルと粉末 LiF で囲んでいる。検出器としては高純度 Ge 検出器（相対効率 14.9 %, エネルギー分解能 2.04 keV）とサイドホール付ウェル型 NaI(Tl)（直径 17.8 cm, 長さ 20.3 cm）を試料と 66 cm の位置にセットし、Maryland 大学-NBS の装置等と同様 3 種類のモードのスペクトルを測定できる様になっている。この装置は高温ガス炉用耐熱合金及びフライアッシュ中の B の分析に使用された。

この他ビーム型の装置としてベネズエラの Instituto Venezolano de Investigaciones Cientificas<sup>20)</sup>、及び武藏工業大学<sup>21)</sup>の装置等があるが、装置の構成はこれまでに紹介したものとほぼ同様となっている。

### 3.4 ガイドビーム型

低速中性子ガイドビームを利用した PGA は 1973 年に Henkelmann と Born により初めて試みられた<sup>22)</sup>。装置の略図を Fig. 11 に示す。これはフランスの Institut Laue-Langevin (ILL) の高中性子束炉 HFR の冷中性子ガイドビームを利用したもので、液体重水素減速による冷中性子 ( $1 \sim 4 \text{ meV}$ ) を曲線ガイド管で約 40 m 導いたものを使用している。中性子ビームのサイズは  $3 \times 5 \text{ cm}$  で、試料位置における中性子束は  $1.5 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  と高い。検出器としては Ge(Li) 検出器を用い、低エネルギー ( $0 \sim 1.5 \text{ MeV}$ ) 用（有感体積  $25 \text{ cm}^3$ ）と、高エネルギー ( $3 \sim 10 \text{ MeV}$ ) 用（有感体積  $8.5 \text{ cm}^3$ ）をそれぞれ試料から 17 cm の位置にセットされている。ビーム型の装置では試料と検出器距離が 50 ~ 70 cm であったのに比べ小さく、即発  $\gamma$  線の検出効率が大きくなっている。更に、高中性子束の冷中性子ガイドビームを使用しているため、非常に高感度なデーターが得られている（後述）。

ガイドビームを使用した PGA の報告はその後約 13 年間見当たらなかったが、1986 年の国際会議 Modern Trends in Activation Analysis (Copenhagen) で熱中性子<sup>23)</sup> 及び冷中性子<sup>24)</sup> ガイドビームを使用した PGA が報告された。前述の Henkelmann 等と同様フランス ILL の HFR の熱中性子ガイドビームを利用した装置<sup>23)</sup>の略図を Fig. 12 に示す。炉心より 114 m 導いた熱中性子ビームを  ${}^6\text{LiF}$  製コリメーター ( $12 \times 10 \text{ mm}$ ) を通した後、 $\text{Li}_2\text{CO}_3$ -パラフィンを充填した真空容器を通し、試料に照射している。試料位置における中性子束は  $1.3 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  であった。検出器として高純度 Ge 検出器（相対効率 23 %, エネルギー分解能 1.75 keV）を試料と 18 cm の位置にセットし、検出器の前面には中性子の入射を防ぐため  ${}^6\text{LiF}$  が置かれている。ビームストッパー及び装置の中性子及び  $\gamma$  線の遮蔽は、ビーム型に比べ簡単になっている。

NBS の Lindstrom 等がドイツ Nuclear Research Center (KFA) の研究炉 FRJ-2 の冷中性子ガイドビームを使用して行った実験装置<sup>24), 25)</sup> の略図を Fig. 13 に示す。原子炉の冷中性子源から曲線ガイド管で 50 m 導いた冷中性子ビームを、<sup>6</sup>Li で直径 2 cm のビームにコリメートして使用している。試料位置における中性子束は  $2 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  で、Cd 比は  $1 \times 10^4$  であった。高純度 Ge 検出器（相対効率 23.6 %, エネルギー分解能 1.72 keV）は試料と 23 cm の位置にセットされている。中性子及び  $\gamma$  線の遮蔽は簡単で、特に中性子に対しては<sup>6</sup>Li だけによる簡単なもので充分であるとしている。

この他ガイド管の長さが 6 m と短いが、京都大学 KUR の熱中性子ガイドビームを利用した実験の報告<sup>26)</sup>もある。

### 3.5 感度及び検出限界の比較

これまでに紹介した装置の、実験的に求めた感度及び検出限界を比較する。代表的な元素について各装置の感度を Table 4 に示す。表中の感度は元素 1 mg 当りの  $\gamma$  線の計数率 (cps) を示し、使用した  $\gamma$  線のエネルギー値とともに示した。炉内型の装置の値は見当らなく、ビーム型とガイドビーム型の装置についてのみ比較した。ビーム型の Maryland 大学 - NBS<sup>18)</sup>, Missouri 大学<sup>17)</sup> 及び原研<sup>19)</sup> の装置の感度はほぼ中性子束に比例し、Missouri 大学の装置が最も高い。ガイドビーム型の ILL の装置<sup>23)</sup> は中性子束の割には感度が高く、Maryland 大学 - NBS 及び Missouri 大学の装置の 4 ~ 10 倍となっている。冷中性子ガイドビームを利用した装置の感度の値は見当らないが、ドイツ KFA の FRJ-2 の冷中性子ガイドビームを使用した NBS の Lindstrom 等の実験<sup>24), 25)</sup> では、彼等の Maryland 大学 - NBS の装置<sup>18)</sup> の 9 倍、及び出力 20 MW に改造後の装置の 4.5 倍の上昇を得ている。

冷中性子ガイドビームを使用して測定した元素の検出限界<sup>22)</sup> を Table 5 に示す。これは各元素が単独に存在した場合について、各元素の低エネルギー領域 (0 ~ 1.5 MeV) 及び高エネルギー領域 (3 ~ 10 MeV) の  $\gamma$  線について求めたもので、測定時間 20 min, ピークの検出限界をバックグラウンド計数率の標準偏差の 2 倍 ( $2\sigma$ ) として求めたものである。表中大部分の元素の検出限界は  $\mu\text{g}$  以下であり、B, Cd, Gd の場合  $\text{ng}$  以下と低い。

各装置による各種物質中の元素の検出限界の比較を Table 6 に示す。装置により測定  $\gamma$  線、測定時間、試料量及び検出限界の求め方等が異り、またマトリックスの違い等の影響も有り、単純に比較するには問題もあることを念頭に入れて置く必要がある。炉内型のドイツ GKSS - Forschungszentrum の装置は Bentonite (粘土の一種) について求めたもので、試料量 6 g, 測定時間 22.5 hr, ピークの検出限界をピーク位置のバックグラウンド計数値の  $3\sigma$  として求めたものである<sup>12), 13)</sup>。ここで使用した  $\gamma$  線エネルギーは Cd と Hg 以外は不明である。ビーム型の Maryland 大学 - NBS の装置の検出限界は石炭、玄武岩、及び Bovine Liver (牛の肝臓) について試料量及び測定時間を石炭 (1 g, 20 hr), 玄武岩 (1.5 g, 12 hr), Bovine Liver (1 g, 20 hr) とし、各元素の検出限界 (DL) を次式により求めたものである<sup>5), 18), 27)</sup>

$$\text{DL} = 3.29 (\text{B}/\text{t})^{1/2}/\text{S}$$

ここで B : ピーク位置におけるバックグラウンド計数率 (cps)

t : 測定時間 (sec)

S : 感度 (cps/mg)

ガイドビーム型の KFA の装置の検出限界は Bovine Liver, フライアッシュ, 石炭について, 試料量 200 mg, 測定時間 30 min とし, ピークの検出限界を 100 cps として, 計算により各元素の検出限界を求めている<sup>25)</sup>。同様にガイドビーム型の ILL の装置の検出限界は, 花崗岩 500 mg について, 測定時間 2350 sec とし, ピークの検出限界をピーク位置のバックグラウンド計数値の 2 σ として求めたものである<sup>26)</sup>。

これらを比較すると, 炉内型の GKSS - Forschungszentrum の装置は試料量が多く, 測定時間も長いにもかかわらず, 他の装置のものより検出限界が高い。ガイドビーム型の KFA の装置の値は, 主に計算により求めたものらしく, おかしいと思われる値もある。しかし, 同じガイドビーム型 ILL の装置とともに, ビーム型の Maryland 大学 - NBS の装置の値と試料量及び測定時間を加味して比較してみても, ガイドビーム型は約 1 衍以上低いことがわかる。また, Maryland 大学 - NBS の装置による石炭, 玄武岩, Bovine Liver の検出限界から, 大部分の元素について物質間の差は小さい事がわかる。

この様にガイドビーム型の装置は, 炉内型及びビーム型の装置に比べ, 感度及び検出限界が優れており, 更に中性子及び γ 線の遮蔽が簡単になり, 装置を小型化できるという特長をもつ。

#### 4. 即発ガンマ線分析の応用

##### 4.1 B の分析

PGA はその特長を生かし種々の分野の分析に応用されている。B は生物学, 地球及び宇宙化学, 材料学的に重要な元素であり, また, 大きな中性子吸収断面積の為, 原子炉材料中の不純物としても最も問題となる元素に数えられる。しかし, その分析は一般的に困難な元素の 1 つである。これに対して B は原理的に PGA の最も得意とする元素の 1 つで, 他の方法では問題となる汚染及び蒸発の影響を受ける事なく, 微量 B を迅速に非破壊分析できる。B を含む試料の即発 γ 線スペクトルの一例<sup>27)</sup>を Fig. 14 に示す。B の即発 γ 線 (478 keV) は  $^{10}\text{B}$  (n, α) $^{7}\text{Li}^*$  反応による励起状態の  $^{7}\text{Li}^*$  から放出されるので, ドップラー効果による半値幅の大きな特徴のあるピークとなる。California 大学のグループは PGA を主に B の分析に利用しており, B の宇宙における存在比及び元素の合成論に関連し隕石中の B の定量<sup>28)</sup>, 石炭火力発電所から環境中の B の放出を調べる為の石炭及びフライアッシュ中の B 定量<sup>29)</sup>, 及び各種標準試料中の B の定量<sup>30)</sup>等を行っている。筆者らは Ni, Cr 及び Cl の標準法について検討し, 高温ガス炉用耐熱合金中の B の定量に応用した<sup>31)</sup>。B は医学上も重要な元素で, 各種人体試料の分析結果, リューマチ性関節炎患者の歯と骨中の B 含量は正常人のものより低い事が明らかになった<sup>32)</sup>。また, 脳腫瘍の治療に原子炉の熱中性子照射法が有効である事が知られているが, この治療のために注

ここで B : ピーク位置におけるバックグラウンド計数率 (cps)

t : 測定時間 (sec)

S : 感度 (cps/mg)

ガイドビーム型の KFA の装置の検出限界は Bovine Liver, フライアッシュ, 石炭について, 試料量 200 mg, 測定時間 30 min とし, ピークの検出限界を 100 cps として, 計算により各元素の検出限界を求めている<sup>25)</sup>。同様にガイドビーム型の ILL の装置の検出限界は, 花崗岩 500 mg について, 測定時間 2350 sec とし, ピークの検出限界をピーク位置のバックグラウンド計数値の 2 σ として求めたものである<sup>26)</sup>。

これらを比較すると, 炉内型の GKSS - Forschungszentrum の装置は試料量が多く, 測定時間も長いにもかかわらず, 他の装置のものより検出限界が高い。ガイドビーム型の KFA の装置の値は, 主に計算により求めたものらしく, おかしいと思われる値もある。しかし, 同じガイドビーム型 ILL の装置とともに, ビーム型の Maryland 大学 - NBS の装置の値と試料量及び測定時間を加味して比較してみても, ガイドビーム型は約 1 衍以上低いことがわかる。また, Maryland 大学 - NBS の装置による石炭, 玄武岩, Bovine Liver の検出限界から, 大部分の元素について物質間の差は小さい事がわかる。

この様にガイドビーム型の装置は, 炉内型及びビーム型の装置に比べ, 感度及び検出限界が優れており, 更に中性子及び γ 線の遮蔽が簡単になり, 装置を小型化できるという特長をもつ。

#### 4. 即発ガンマ線分析の応用

##### 4.1 B の分析

PGA はその特長を生かし種々の分野の分析に応用されている。B は生物学, 地球及び宇宙化学, 材料学的に重要な元素であり, また, 大きな中性子吸収断面積の為, 原子炉材料中の不純物としても最も問題となる元素に数えられる。しかし, その分析は一般的に困難な元素の 1 つである。これに対して B は原理的に PGA の最も得意とする元素の 1 つで, 他の方法では問題となる汚染及び蒸発の影響を受ける事なく, 微量 B を迅速に非破壊分析できる。B を含む試料の即発 γ 線スペクトルの一例<sup>27)</sup>を Fig. 14 に示す。B の即発 γ 線 (478 keV) は  $^{10}\text{B}$  (n, α) $^{7}\text{Li}^*$  反応による励起状態の  $^{7}\text{Li}^*$  から放出されるので, ドップラー効果による半値幅の大きな特徴のあるピークとなる。California 大学のグループは PGA を主に B の分析に利用しており, B の宇宙における存在比及び元素の合成論に関連し隕石中の B の定量<sup>28)</sup>, 石炭火力発電所から環境への B の放出を調べる為の石炭及びフライアッシュ中の B 定量<sup>29)</sup>, 及び各種標準試料中の B の定量<sup>30)</sup>等を行っている。筆者らは Ni, Cr 及び Cl 内標準法について検討し, 高温ガス炉用耐熱合金中の B の定量に応用した<sup>31)</sup>。B は医学上も重要な元素で, 各種人体試料の分析結果, リューマチ性関節炎患者の歯と骨中の B 含量は正常人のものより低い事が明らかになった<sup>32)</sup>。また, 脳腫瘍の治療に原子炉の熱中性子照射法が有効である事が知られているが, この治療のために注

入した  $^{10}\text{B}$  び迅速定量法としての検討<sup>26)</sup>, 及び各種生体試料中の  $^{10}\text{B}$  の分析<sup>21)</sup> 等がある。その他, 堆積岩<sup>33)</sup> 及び半導体用シリコン<sup>34)</sup> 中の B の定量の応用もある。

#### 4.2 標準試料の分析

PGA は NAA では定量困難な元素の定量ができる事から, NAA と組合せる事によりかなり多くの元素の定量が可能となる。この様な事から標準試料の分析法としての応用例が多い。試料としては動物, 植物, 石炭, コールフライアッシュ<sup>27)</sup>, 石炭<sup>35)</sup>, 岩石<sup>11), 17), 18), 22), 23), 36)</sup> と多方面にわたっている。Maryland 大学 - NBS のグループによるコールフライアッシュ標準試料の分析<sup>27)</sup> で得られた即発  $\gamma$  線スペクトルの一例を Fig. 14 に, またその定量結果を Table 7 に示す。PGA では INAA で定量困難な B, Si, S, Cd, Gd を初めとし, 合計 17 元素の定量が行われ, 表に示す様に他の方法による定量値とも良い一致を示している。石炭中で PGA と INAA により定量可能な元素<sup>27)</sup> を Fig. 15 に示す。PGA により 20 元素, INAA と組合せる事により合計 48 元素が定量可能である事を示している。

#### 4.3 その他の分析例

多元素非破壊同時定量, 試料の誘導放射能が無視できる, 試料の形状及び大きさに自由度がある, 等の特長を生かし PGA は試料が貴重な文化財及び考古学的試料の分析にも応用されている<sup>23), 41)</sup>。この例としては, ローマ時代の物と思われた遺跡の発掘物の年代推定の為の分析, pre-Aztec 人が石器として使用した黒曜石 (Obsidian Glass) の産地推定の為の分析, 及び埋葬人骨の分析等があげられる。

人体に有害な Gd に高感度である事, 及び多元素同時定量法である事を利用した環境汚染調査の為の分析にも利用されている。この様なものとして, 南極周辺に住む長寿命の魚 (Dissosticus Mawsoni, 寿命 100 年またはそれ以上) の分析<sup>33), 41)</sup>, 及び河川の堆積物中の Cd, Hg の分布測定<sup>12)~14)</sup> の例もある。

PGA の迅速性を生かし北米のセントヘレンズ火山の爆発 (1980 年 5 月 18 日) の際, 大規模な噴出物の分析<sup>33), 34), 37), 38)</sup> に利用された。更に火山の析出物, ポアホールサンプル, オイルシェール等地球化学的試料<sup>33), 34)</sup>, 及びアポロ 17 号の持帰った月試料分析<sup>39)</sup> にも利用されている。また他の分析法では困難な N の非破壊定量性を利用し穀物中のタンパク質の定量<sup>40), 41)</sup> も行われている。原子炉材料中の不純物として中性子吸収断面積の大きな元素が問題となるが, PGA はこの様な元素に対して感度が高く原理的に最も適している分析法と考えられる。この様な例として核燃料中の Sm, Gd, Dy の定量<sup>15), 16)</sup>, 黒鉛及びベリリウム中の不純物の定量<sup>17)</sup> 等がある。NAA でのアクチバブルトレーサー的な利用<sup>23)</sup> もあり, 希土類元素をトレーサーとして動物の消化機構, 及び石油採掘用井戸の亀裂の調査等がある。その他水素化脱硫触媒中の Co, Mo, Ni<sup>20)</sup>, 水分<sup>42)</sup> の定量, 合金の分析<sup>43)~45)</sup>, 各種試料中の S<sup>46), 47)</sup>, N, C, H<sup>48)</sup> の定量等がある。また応用例の報告は見当らないが, PGA は同位体比測定<sup>23)</sup> 及び短寿命核種の測定<sup>33)</sup> にも有効と思われる。

## 5. 即発ガンマ線データ

元素分析用即発ガンマ線データ集としては、Lone 等<sup>49)</sup> 及び Duffey 等<sup>50), 51)</sup> によりまとめられたものが有る。これらのデータ集は、各元素の即発  $\gamma$  線についてエネルギー順、及び元素毎に、放出率及び反応断面積等とともにまとめられており、PGA による元素分析の際、即発  $\gamma$  線スペクトルのピークの同定に有用である。上記データ集には同位体に関する情報が無く、ピークの同位体同定のためには Bartholomew 等<sup>52), 53), 54)</sup> のデータ集を利用するか、質量数毎に毎月刊行される Nuclear Data Sheets<sup>55)</sup> を参照する必要がある。PGA は元素分析のみならず同位体分析にも有用と思われ、今後同位体情報も加えた即発  $\gamma$  線データ集の整備が望まれる。

## 6. JRR-3 (改造炉) のガイドビームを利用した 即発ガンマ線分析

### 6.1 JRR-3 (改造炉) の冷及び熱中性子ガイドビームの特性

JRR-3 (改造炉)<sup>56), 57), 58)</sup> は熱出力 20 MW、最大中性子束  $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  の高性能汎用炉で、1990 年 3 月に臨界に達した。本原子炉は多くの照射設備を初めとして、各種の中性子ビーム実験設備を備え、特に、液体軽水素冷却による冷中性子及び熱中性子ガイドビーム実験設備<sup>59), 60)</sup> を有する。JRR-3 (改造炉) のビーム実験設備の平面図を Fig. 16 に示すとともに、中性子導管の鳥瞰図を Fig. 17 及びその仕様を Table 8 に示す。これらの中性子導管は、金属 Ni を蒸着したホウケイ酸ガラスの鏡管からなり、液体水素冷却による冷中性子源及び重水領域からの中性子を鏡管の金属 Ni の全反射を利用して導いている。各導管は Table 8 に示すような曲率半径をもち、この半径に応じたエネルギーの中性子のみを導くようになっており、 $\gamma$  線及び高速中性子の混入の少ない中性子ビームが得られる。これらの導管からのガイドビームのうち、PGA 用としては冷中性子ガイドビーム (C2-3-2)，及び熱中性子ガイドビーム (T1-4-1) が割当てられており、これらのビームを使用した PGA の実験が可能となった。

PGA に使用する冷中性子ガイドビーム (C2-3-2)，及び熱中性子ガイドビーム (T1-4-1) の仕様を Table 9 に示すとともに、その中性子スペクトルを Fig. 18, 19 に示す。中性子束は双方とも  $10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  以上と、Kerr 等のフランス ILL HFR の装置<sup>23)</sup>，及び Lindstrom 等のドイツ KFA FRJ-2 の装置<sup>24), 25)</sup> とほぼ同等かもしくはそれ以上の中性子束が得られており、これらの装置と同等以上の分析感度が期待される。冷中性子ガイドビーム (C2-3-2) と熱中性子ガイドビーム (T1-4-1) を比較した場合、(C2-3-2) は中性子束が高く、かつその中性子のエネルギーが低い (長波長)。このことから、分析感度は (C2-3-2) の方が約 5 倍以上高いものと予想される。一方、軽水素を多量に含む生物試料の分析では、

## 5. 即発ガンマ線データ

元素分析用即発ガンマ線データ集としては、Lone 等<sup>49)</sup> 及び Duffey 等<sup>50), 51)</sup> によりまとめられたものが有る。これらのデータ集は、各元素の即発  $\gamma$  線についてエネルギー順、及び元素毎に、放出率及び反応断面積等とともにまとめられており、PGA による元素分析の際、即発  $\gamma$  線スペクトルのピークの同定に有用である。上記データ集には同位体に関する情報が無く、ピークの同位体同定のためには Bartholomew 等<sup>52), 53), 54)</sup> のデータ集を利用するか、質量数毎に毎月刊行される Nuclear Data Sheets<sup>55)</sup> を参照する必要がある。PGA は元素分析のみならず同位体分析にも有用と思われ、今後同位体情報も加えた即発  $\gamma$  線データ集の整備が望まれる。

## 6. JRR-3 (改造炉) のガイドビームを利用した 即発ガンマ線分析

### 6.1 JRR-3 (改造炉) の冷及び熱中性子ガイドビームの特性

JRR-3 (改造炉)<sup>56), 57), 58)</sup> は熱出力 20 MW、最大中性子束  $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  の高性能汎用炉で、1990 年 3 月に臨界に達した。本原子炉は多くの照射設備を初めとして、各種の中性子ビーム実験設備を備え、特に、液体軽水素冷却による冷中性子及び熱中性子ガイドビーム実験設備<sup>59), 60)</sup> を有する。JRR-3 (改造炉) のビーム実験設備の平面図を Fig. 16 に示すとともに、中性子導管の鳥瞰図を Fig. 17 及びその仕様を Table 8 に示す。これらの中性子導管は、金属 Ni を蒸着したホウケイ酸ガラスの鏡管からなり、液体水素冷却による冷中性子源及び重水領域からの中性子を鏡管の金属 Ni の全反射を利用して導いている。各導管は Table 8 に示すような曲率半径をもち、この半径に応じたエネルギーの中性子のみを導くようになっており、 $\gamma$  線及び高速中性子の混入の少ない中性子ビームが得られる。これらの導管からのガイドビームのうち、PGA 用としては冷中性子ガイドビーム (C2-3-2)，及び熱中性子ガイドビーム (T1-4-1) が割当てられており、これらのビームを使用した PGA の実験が可能となった。

PGA に使用する冷中性子ガイドビーム (C2-3-2)，及び熱中性子ガイドビーム (T1-4-1) の仕様を Table 9 に示すとともに、その中性子スペクトルを Fig. 18, 19 に示す。中性子束は双方とも  $10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  以上と、Kerr 等のフランス ILL HFR の装置<sup>23)</sup>，及び Lindstrom 等のドイツ KFA FRJ-2 の装置<sup>24), 25)</sup> とほぼ同等かもしくはそれ以上の中性子束が得られており、これらの装置と同等以上の分析感度が期待される。冷中性子ガイドビーム (C2-3-2) と熱中性子ガイドビーム (T1-4-1) を比較した場合、(C2-3-2) は中性子束が多く、かつその中性子のエネルギーが低い (長波長)。このことから、分析感度は (C2-3-2) の方が約 5 倍以上高いものと予想される。一方、軽水素を多量に含む生物試料の分析では、

低エネルギー（長波長）の冷中性子ビームによる、軽水素の散乱断面積の上昇のためバックグラウンドの上昇が著しくなる、ということが Lindstrom 等<sup>24)</sup> も指摘している。従って、この様な生物試料の分析には、中性子エネルギーの高い熱中性子ガイドビーム（T1-4-1）が適しているものと考えられる。

## 6.2 分析装置の仕様

### 6.2.1 装置の基本仕様

以上の様に PGA 用としては、冷中性子ガイドビーム（C2-3-2），及び熱中性子ガイドビーム（T1-4-1）が割当てられているが、これらの実験ポートは PGA 専用のものではなく、他の実験装置と共に用いている。冷中性子ビームポート（C2-3）では中性子ラジオグラフィー装置（C2-3-1，原研），及び超冷中性子発生用クライオスタット（C2-3-3，高エネルギー物理学研究所）と共に用いており、タイムシーリング方式により使用することになっている。また、熱中性子ビームポート（T1-4）では、中性子カメラ回折装置（T1-4-2，東京大学物理研究所）とビームを 2 分して使用することになっている。この様なことから、分析装置は 2 箇所のビームポートで使用可能な可搬型とし、熱中性子ビームポート（T1-4-1）用ガイド管とともにその設計を行った。設計に当たっての基本仕様を以下に示す。

#### 分析装置の基本仕様

- ① 可搬型とする。
- ②  $\gamma$  線バックグラウンドを低下させるため、中性子の遮蔽材として LiF タイルを使用する。
- ③ 試料と検出器距離を 15 cm 程度まで接近できるとともに、大試料及びサンプルチャンジャー等も設置が可能な試料室を設ける。
- ④ 即発ガンマ線分析以外の実験にも使用が可能ないように、シャッター部、ストッパー部等に分割ができるとともに、3 箇所以上に検出器の取り付けを可能にする。
- ⑤ ヘリウム霧囲気中で試料の即発ガンマ線測定ができる。
- ⑥ 放射線の防護及び耐震性等は建家の基準を満足させる。

### 6.2.2 装置の構成及び配置

分析装置は次の各部から構成する。

- ① 本体部：試料に中性子照射を行うところで、中性子及び  $\gamma$  線の遮蔽材、コリメーター、ビームシャッター、試料箱及びビームストッパー等から構成する。
- ②  $\gamma$  線スペクトロメーター部：分析試料から発生する即発ガンマ線スペクトルを測定する。検出器及び測定用回路等から構成する。
- ③ 中性子測定系：中性子ビームをモニターするための検出器及び回路類。
- ④ ガイド管部：熱中性子ガイドビームの上半分を分析装置まで導くためのもの。

本分析装置を熱中性子ビームポート（T1-4-1）で使用する場合の装置の配置を Fig. 20, 21 に示す。冷中性子ビームポート（C2-3-2）では、超冷中性子実験装置（C2-3-3）の

仮設導管の中間部に本分析装置の本体部を直接接続する。なお、冷中性子ビームポート（C2-3-2）における実験の際、熱中性子ビームポート（T1-4-2）のガイド管にはビームストッパーを取り付け、中性子の漏洩を防ぐ。

### 6.2.3 各部仕様

#### (1) 本体部

本体部は中性子ビームを試料に照射し、発生する即発ガンマ線を $\gamma$ 線スペクトロメーターに導くとともに、散乱及び残りの中性子ビーム並びに即発ガンマ線を吸収するための機能を持つ。この様なことから本体部は、ビームシャッター、試料室、ビームストッパー、中性子及び $\gamma$ 線の遮蔽体からなる。 $\gamma$ 線バックグラウンドを低下させるため、検出器に近い部分の中性子のしゃへい材及び構造材としては $\gamma$ 線発生量の少ないLiF、 $^6\text{LiF}$ タイル及びテフロンを使用した。また、 $\gamma$ 線バックグラウンドを低下させるためのみならず、多種類の実験に対応できるようにするため、試料室を大きくするとともに、ビームシャッター室、試料室及びビームストッパー室を切り離すことができる様にした。主な仕様を以下に示す。

##### ① ビームシャッター室

- ビームシャッター： $\text{B}_4\text{C}$ 及びPb製、自動又は手動開閉式、遠隔操作も可能
- コリメーター：ビームシャッターと一体型、LiFタイル製、前後2個、穴のサイズ10×10, 20×20 mmが交換可能
- 遮蔽材：鉛、 $\text{B}_4\text{C}$ 入りゴム、上部遮蔽体は開閉可

##### ② 試料室

- 試料箱：テフロン製、ヘリウム中、大気中用の2種類
- 検出器用窓：3箇所もうけ、中性子遮蔽用として $^6\text{LiF}$ タイルを設置する。
- 遮蔽材： $\text{Pb}$ 5～10 cm, LiFタイル2～3 cm
- スライド式試料交換用扉付
- 上部遮蔽体はクレーンにより開閉可
- ケーブル及びHe通気管用孔付

##### ③ ビームストッパー

- $\text{B}_4\text{C}$ 及びPb製

#### (2) $\gamma$ 線スペクトロメーター部

通常、即発 $\gamma$ 線スペクトルの測定にはGe-NaI(Tl)検出器が用いられ、Ge検出器によるシングルモードのスペクトルの他、Ge-NaI(Tl)検出器による同時及び反同時モードのスペクトルが測定できるようになっていることが多い。即発ガンマ線は、壊変ガンマ線比べてエネルギー高く、最大約10 MeVにもおよぶものがあるという特徴をもつ。この様なことから、シンチレータとしてNaI(Tl)検出器に代えて、更に高エネルギー $\gamma$ 線に対して検出効率の高いBGO (Bismuth Germanate Oxide,  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ) 検出器を用いることにより、反同時モードによるコンプトンサプレッション能は一層大きくなり、また同時モードによるダブルエスケープピークの検出効率も大きくなることが期待される。この事から本分析装置では、検出器としてGe-BGOを用い、シングル、同時及び反同時モードの即発ガンマ線スペクトルを同時に

測定できるようにした。Ge 検出器としては、耐中性子損傷性の優れた N 型高純度 Ge 結晶を用いることにした。

また、即発ガンマ線スペクトロメトリーにおいて、考古学試料の場合の様に多量の試料量の分析が必要な場合、及び放射化断面積の大きな元素から構成される試料の分析が必要となる場合の様に、高線量率の試料の分析も予想される。この事から、高計数率試料 (200 kcps) に対しても良好な測定性能が得られるような、回路構成とした。

BGO 検出器の図面を Fig. 22, 23 に示すとともに、 $\gamma$  線スペクトロメーター部の主な仕様を以下に示す。

① Ge 検出器 (ORTEC 製 GMX-20190-PLUS-S-CFG-DUET-SL 型)

- N 型高純度 Ge 結晶、同軸型検出器
- エネルギー分解能 : 1.9 keV 以下 (1332 keV  $\gamma$  線)
- 相対検出効率 : 20 % 以上 (1332 keV  $\gamma$  線)
- サイドルッキング型液体窒素容器 (30 l) 付
- 200 kcps 以上の高計数率対応プリアンプ付

② BGO 検出器 (Fig. 22, 23)

- BGO 主検出器 (BICRON 製 6.387 HW 7.68 BGO/(8) 1.5-X 型)
  - BGO 結晶寸法 : 8 分割
  - PMT : 浜松テレビ R2060 型 (直径 1.5 inch) 8 本
  - BGO バックシールド検出器 (BICRON 製 2.37 HW 2.36 BGO/(4) 5L-X 型)
    - 結晶寸法 : 60 mm (直径) × 60 mm (長さ), 穴の直径 19 mm, を2分割
    - PMT : 浜松テレビ R647-01 (直径 0.5 inch) 4 本

③ 回路類

- Ge 検出器用高圧電源 (ORTEC 659 型)
- スペクトロスコピーアンプ (ORTEC 673 型) 2 台
- バイアスドアンプ (ORTEC 408A 型)
- タイミングアンプ (ORTEC 474 型)
- コンスタントフラクションデスクリ (CFD ORTEC 583 型)
- ゲートアンドデレージュネレーター (ORTEC 416A 型) 2 台
- ファーストンコインシデンス (ORTEC 414A 型)
- アナログツウデジタルコンバータ (ADC, セイコー EG&G 1850 型) 3 台
  - スリーステップサブレンジング方式による、変換時間 2.5  $\mu$ s の高速 ADC
- マルチチャンネルアナライザー (MCA, セイコー EG&G 7800-8A2 型)
  - メモリー容量 32 kch, ADC 付
- BGO 検出器用高圧電源 (ORTEC 556 型) 3 台
- 4 入力デバイダボックス (セイコー EG&G SG-04 型)
- 8 入力デバイダボックス (セイコー EG&G SG-08 型)
- プリアンプ (ORTEC 113 型) 2 台
- アンプ (ORTEC 575A 型) 2 台

- ・ タイミングシングルチャンネルアナライザ (ORTEC 551型) 2台
- ・ ユニバーサルコインシデンス (ORTEC 418A型)

## (4) データー解析

- ・ パーソナルコンピューター (NEC PC-9801DA5型)
  - 32ビットCPU, ハードデスク (40メガバイト), 5インチフロッピーデスク
- ・ カラーモニター (NEC N5913U)
- ・ プリンター (NEC PC-PR201/80A)
- ・ X-Yプロッター (ROLAND DXY-1300)

## (5) 遮蔽体

- ・ Pb 製 (厚さ 5 cm 以上)
- ・ Pb 製コリメーター付 (孔径 10 ~ 65 mm)
- ・ 架台

## (3) 中性子測定系

## (1) 検出器

- ・  $^3\text{He}$  検出器 (Reuter-Stokes 製 P4-0806-207型)

## (2) 回路類

- ・ プリアンプ (ORTEC 142PC型)
- ・ 高圧電源 (ORTEC 478型)
- ・ アンプ (ORTEC 575A型)
- ・ シングルチャンネルアナライザ (ORTEC 550A型)
- ・ レートメータ (ORTEC 661型)
- ・ カウンター付タイマー (ORTEC 996型)
- ・ ラインプリンター (ORTEC 777A型)

## (4) ガイド管部

熱中性子ガイドビームを本分析装置に導くためのガイド管, 及び分析装置を取り外した場合に使用するビームストッパーからなる。

## (1) ガイド管

- ・ 内部は減圧 ( $10^{-1} \sim 10^{-2}$  torr) 又は He ガスを充填し, 中性子ビーム散乱及び吸収を少なくする。
- ・ 中性子ビーム入射窓  
入口側: Al 製 (1 mm 以下), 出口側: デフロン膜 (0.5 mm 以下)
- ・ 遮蔽: Pb 3 cm, B<sub>4</sub>C 入りゴム

## (2) ビームストッパー

- ・ B<sub>4</sub>C 及び Pb 製

## 6.3 研究計画

研究内容は大きく分けて, 分析装置の据付・調整及び特性試験, 基礎実験, 応用実験, その他

の分析、分析以外の応用等に分類される。以下にその内容を示すとともに、その研究スケジュールを Table 10 に示す。

(1) 分析装置の据付・調整及び特性試験

- 分析装置の据付・調整
- 漏洩線量率測定：ビームシャッター開閉時における実験装置の中性子及びガンマ線の漏洩線量率を測定する。
- 中性子ビーム特性の測定：Au 箔等による中性子束、飛行時間法等による中性子スペクトル、In, Dy 等各種金属箔を使用したラジオグラフィーによる中性子ビームサイズの測定等。
- 即発ガンマ線スペクトロメーターの特性測定：RI 線源及び即発  $\gamma$  線によるシングルモード、同時及び反同時計数モードによる、 $\gamma$  線エネルギー対分解能曲線、 $\gamma$  線エネルギー対検出効率曲線（全エネルギー吸収、シングルエスケープ、ダブルエスケープピーク）コンプトンサプレッション能等の測定。

(2) 基礎実験

- 分析感度及び検出限界の測定：代表的な元素の標準試料及び代表的な各種標準試料の即発  $\gamma$  線スペクトルを測定し、元素の分析感度及び検出限界を求め、他の分析装置との比較を行う。
- 定量分析用較正法の検討：内標準法、ブラックスモニター法等の検討。
- 同位体分析：各種同位体の即発  $\gamma$  線スペクトルの測定及び即発ガンマ線データを取得し、同位体比分析法の検討を行うとともに、同位体希釈法による高精度、高確度の元素分析法を確立する。
- 即発ガンマ線測定法の検討： $^{6}LiF$  回転チョッパーによる中性子ビームの ON-OFF 信号を中性子検出器で測定し、この信号をゲート信号とした同時及び反同時  $\gamma$  線スペクトルから、即発  $\gamma$  線と壊変による  $\gamma$  線を区別して測定する。これにより半減期 1 sec 以下の短寿命核種の分析を行うとともに、壊変  $\gamma$  線の混入の無い即発  $\gamma$  線スペクトル測定を行う。その他、Ge-Ge 検出器同時計数法等の新たな測定法の検討を行う。
- 核データ測定：核の励起レベル、断面積等の測定。

(3) 即発ガンマ線分析法の応用

- 材料化学：原子炉材料（ジルカロイ、黒鉛等）中の B, Cd, ランタノイド等の分析、高純度材料（Si 等の半導体材料、セラミックス等）中の不純物分析、高温超電導体の組成及び不純物分析等。各種機能性材料中の主成分及び微量成分の分析。
- 地球及び宇宙化学：岩石、地下水、火山試料、堆積物、隕石等中の B, Cd, ランタノイド等の微量元素及び成分元素の分析。
- 環境化学：大気浮遊塵、環境水、食物等の分析
- 考古学及び美術品：古墳及び遺跡等の出土品及び歴史上重要な美術品の年代及び産地推定のための主成分及び微量成分の分析。
- 生物学：動物、植物、医学試料中の有害元素及び生物必須微量元素等の分析。
- その他裁判関係の試料等

## (4) その他の分析法

- ・ 短寿命核種中性子放射化分析 :  $^6\text{LiF}$  回転チョッパー法で即発  $\gamma$  線と分離測定した、半減期 1 sec 以下の短寿命核種を利用した中性子放射化分析の検討をする。
- ・ 荷電粒子測定法 :  $(n, \alpha)$ ,  $(n, p)$  反応による  $\alpha$  及び  $p$  粒子を測定し、半導体材料中等の B, Li の分布分析を行う、中性子デプスプロファイリング (NDP) 法等の検討を行う。
- ・ マイクロビームによる元素の分布分析 : 中性子マイクロビーム照射、即発放射線測定及びコンピューターによる画像解析、による元素及び同位体の分布分析法を検討する。

## (5) 分析以外の利用

- ・ 原子核の励起レベル、反応断面積等の核データの測定
- ・  $\gamma - \gamma$  角度相関
- ・ 核反応の際の発光現像の解明
- ・  $^{10}\text{B} (n, \alpha)^7\text{Li}$  反応の際の 478 keV  $\gamma$  線ピーク幅と化学形等に関する研究
- ・ メスバウアー効果への利用
- ・ その他各種核化学及びホットアトム化学への利用
- ・ その他

## 7. おわりに

PGA のこれまでの研究は主に海外で行われたものであり、米国の Maryland 大学 - NBS<sup>18)</sup> 及び Missouri 大学<sup>17)</sup> の装置を除き、大部分の研究は核物理等の物理系の実験装置を流用した試験的なものばかりであった。また、低速中性子ガイドビームを利用した PGA の研究も試験的なもので、本格的な装置によるものではなかった。現在 PGA の研究が最も盛んな米国 NIST (旧 NBS) では、冷中性子ガイドビームを使用した新しい実験装置を製作し、実験を開始している<sup>63)</sup>。日本でもこれまでの研究は他の装置等を流用した試験的なものであったが、新しくなった JRR-3 (改造炉) の冷及び熱中性子ガイドビームポートに専用の実験装置を設置し、原研と大学が共同で本格的な実験を開始することになった。これまでに示したように、低速中性子ガイドビームを利用した PGA は、従来のものに比べ分析感度及び検出限界が大幅に改善され、元素の非破壊多元素同時分析法としてのみならず、微量分析法及び同位体分析法としても有用となり、各種分野の試料への応用が期待される。さらに、PGA は元素及び同位体の定量法としてだけでなく、微小中性子ビームを使用した即発  $\gamma$  線トモグラフィー<sup>63), 64)</sup> 等による物質中の分布分析法としての発展、及び核化学分野等への寄与も期待される。

## (4) その他の分析法

- ・ 短寿命核種中性子放射化分析 :  $^6\text{LiF}$  回転チョッパー法で即発  $\gamma$  線と分離測定した、半減期 1 sec 以下の短寿命核種を利用した中性子放射化分析の検討をする。
- ・ 荷電粒子測定法 :  $(n, \alpha)$ ,  $(n, p)$  反応による  $\alpha$  及び  $p$  粒子を測定し、半導体材料中等の B, Li の分布分析を行う、中性子デプスプロファイリング (NDP) 法等の検討を行う。
- ・ マイクロビームによる元素の分布分析 : 中性子マイクロビーム照射、即発放射線測定及びコンピューターによる画像解析、による元素及び同位体の分布分析法を検討する。

## (5) 分析以外の利用

- ・ 原子核の励起レベル、反応断面積等の核データの測定
- ・  $\gamma - \gamma$  角度相関
- ・ 核反応の際の発光現像の解明
- ・  $^{10}\text{B} (n, \alpha)^7\text{Li}$  反応の際の 478 keV  $\gamma$  線ピーク幅と化学形等に関する研究
- ・ メスバウアー効果への利用
- ・ その他各種核化学及びホットアトム化学への利用
- ・ その他

## 7. おわりに

PGA のこれまでの研究は主に海外で行われたものであり、米国の Maryland 大学 - NBS<sup>18)</sup> 及び Missouri 大学<sup>19)</sup> の装置を除き、大部分の研究は核物理等の物理系の実験装置を流用した試験的なものばかりであった。また、低速中性子ガイドビームを利用した PGA の研究も試験的なもので、本格的な装置によるものではなかった。現在 PGA の研究が最も盛んな米国 NIST (旧 NBS) では、冷中性子ガイドビームを使用した新しい実験装置を製作し、実験を開始している<sup>20)</sup>。日本でもこれまでの研究は他の装置等を流用した試験的なものであったが、新しくなった JRR-3 (改造炉) の冷及び熱中性子ガイドビームポートに専用の実験装置を設置し、原研と大学が共同で本格的な実験を開始することになった。これまでに示したように、低速中性子ガイドビームを利用した PGA は、従来のものに比べ分析感度及び検出限界が大幅に改善され、元素の非破壊多元素同時分析法としてのみならず、微量分析法及び同位体分析法としても有用となり、各種分野の試料への応用が期待される。さらに、PGA は元素及び同位体の定量法としてだけでなく、微小中性子ビームを使用した即発  $\gamma$  線トモグラフィー<sup>21), 22)</sup> 等による物質中の分布分析法としての発展、及び核化学分野等への寄与も期待される。

## 謝 辞

JRR-3（改造炉）を利用した即発ガソル線分析の実験装置の設計、及び研究計画の立案にあたり、貴重な意見を戴いたJRR-3即発ガソル線分析ワーキンググループのメンバー（敬称省略、五十音順、大学関係：伊藤泰男、白石文夫、末木啓介、関李紀、中原弘道、松本哲男、葵袋佳孝、横山明彦、原研関係：東條隆夫、高橋秀武、立川圓造、和田延夫）にお礼を申し上げる。

## 文 献

- 1) E.T. Jurney: "Neutron capture gamma-ray spectroscopy", R.E. Chrien, W.R. Kane Ed., p.461(1979), (Plenum Press, New York).
- 2) M.D. Glascock: "Neutron-capture gamma-ray spectroscopy and related topics 1981", T. von Egidy, F. Gönnenwein, B. Maier Ed., p.641(1982), (The Institute of Physics, London).
- 3) D.L. Anderson, W.H. Zoller, G.E. Gordon, W.B. Walters: "Neutron-capture gamma-ray spectroscopy and related topics 1981", T. von Egidy, F. Gönnenwein, B. Maier Ed., p.655(1982), (The Institute of Physics, London).
- 4) R.E. Chrien: "Neutron radiative capture", B.J. Allen, I. Bergqvist, R.E. Chrien, D. Gardner, W.P. Poenitz Ed., p.187(1984), (Pergamon Press, Oxford).
- 5) R.M. Lindstrom, D.L. Anderson: "Capture gamma-ray spectroscopy and related topics-1984", S. Raman Ed., p.810(1985), (American Institute of Physics, New York).
- 6) 重松恒信, 合田四郎: Radioisotopes, 35, 215 (1986).
- 7) E.S. Gladney: LA-8028-MS (1979).
- 8) 米沢仲四郎: 化学と工業, 41, 553 (1988).
- 9) T.L. Isenhour, G.H. Morrison: Anal. Chem., 38, 162(1966).
- 10) E.T. Jurney, H.T. Motz, S.H. Vegors Jr.: Nucl. Phys. A94, 351(1967).
- 11) E.S. Gladney, D.B. Curtis, E.T. Jurney: J. Radioanal. Chem., 46, 299(1978).
- 12) M. Spycharala, W. Michaelis, H.-U. Fanger: J. Radioanal. Nucl. Chem., 112, 331(1987).
- 13) M. Spycharala, W. Michaelis, H.-U. Fanger: Nucl. Geophys., 1, 309 (1987).

## 謝 辞

JRR-3（改造炉）を利用した即発ガンマ線分析の実験装置の設計、及び研究計画の立案にあたり、貴重な意見を戴いたJRR-3即発ガンマ線分析ワーキンググループのメンバー（敬称省略、五十音順、大学関係：伊藤泰男、白石文夫、末木啓介、関李紀、中原弘道、松本哲男、葵袋佳孝、横山明彦、原研関係：東條隆夫、高橋秀武、立川圓造、和田延夫）にお礼を申し上げる。

## 文 献

- 1) E.T. Jurney: "Neutron capture gamma-ray spectroscopy", R.E. Chrien, W.R. Kane Ed., p.461(1979), (Plenum Press, New York).
- 2) M.D. Glascock: "Neutron-capture gamma-ray spectroscopy and related topics 1981", T. von Egidy, F. Gönnenwein, B. Maier Ed., p.641(1982), (The Institute of Physics, London).
- 3) D.L. Anderson, W.H. Zoller, G.E. Gordon, W.B. Walters: "Neutron-capture gamma-ray spectroscopy and related topics 1981", T. von Egidy, F. Gönnenwein, B. Maier Ed., p.655(1982), (The Institute of Physics, London).
- 4) R.E. Chrien: "Neutron radiative capture", B.J. Allen, I. Bergqvist, R.E. Chrien, D. Gardner, W.P. Poenitz Ed., p.187(1984), (Pergamon Press, Oxford).
- 5) R.M. Lindstrom, D.L. Anderson: "Capture gamma-ray spectroscopy and related topics-1984", S. Raman Ed., p.810(1985), (American Institute of Physics, New York).
- 6) 重松恒信, 合田四郎: Radioisotopes, 35, 215 (1986).
- 7) E.S. Gladney: LA-8028-MS (1979).
- 8) 米沢仲四郎: 化学と工業, 41, 553 (1988).
- 9) T.L. Isenhour, G.H. Morrison: Anal. Chem., 38, 162(1966).
- 10) E.T. Jurney, H.T. Motz, S.H. Vegors Jr.: Nucl. Phys. A94, 351(1967).
- 11) E.S. Gladney, D.B. Curtis, E.T. Jurney: J. Radioanal. Chem., 46, 299(1978).
- 12) M. Spycharala, W. Michaelis, H.-U. Fanger: J. Radioanal. Nucl. Chem., 112, 331(1987).
- 13) M. Spycharala, W. Michaelis, H.-U. Fanger: Nucl. Geophys., 1, 309 (1987).

- 14) M. Spychala: GKSS86/E/11(1986).
- 15) B.R.S. Pecequilo, A.A. Suarez: "Neutron capture gamma-ray spectroscopy", R.E. Chrien, W.R. Kane Ed., p.710(1979), (Plenum Press, New York).
- 16) B.R.S. Pecequilo, G.C. Vandenput, C.R.S. Stopa, A.A. Suarez: 1980 Proc. 4th Int. Conf. Nucl. Methods (Columbia, Mo), p.247(1980), CONF-80043.
- 17) A.G. Hanna, R.M. Brugger, M.D. Glascock: Nucl. Instrm. Methods, 188, 619(1981).
- 18) D.L. Anderson, M.P. Failey, W.H. Zoller, W.B. Walters, G.E. Gordon, R.M. Lindstrom: J. Radioanal. Chem., 63, 97(1981).
- 19) 東條隆夫, 米沢仲四郎, 小浦 茂, 荒井清明, 小森卓二: JAERI-M 8791(1980).
- 20) M. Heurtebise, H. Buenafama, J.A. Lubkowits: Anal. Chem., 48, 1969 (1976).
- 21) T. Matsumoto, O. Aizawa: Appl. Radiat. Isot., 41, 897(1990).
- 22) R. Henkelmann, H.-J. Born: J. Radioanal. Chem., 16, 473(1973).
- 23) S.A. Kerr, R.A. Oliver, P. Vittoz, G. Vivier, F. Hoyler, T.D. MacMahon, N.I. Ward: J. Radioanal. Nucl. Chem., 113, 249(1987).
- 24) R.M. Lindstrom, R. Zeisler, M. Rossbach: J. Radioanal. Nucl. Chem., 112, 321(1987).
- 25) M. Rossbach, R. Zeisler, R.M. Lindstrom: "Multipurpose Research Reactors", IAEA-SM-300/16 p.475(1987).
- 26) T. Kobayashi, K. Kanda: Nucl. Instrm. Methods, 204, 525(1983).
- 27) M.P. Failey, D.L. Anderson, W.H. Zoller, G.E. Gordon, R.M. Lindstrom: Anal. Chem., 51, 2209(1979).
- 28) D. Curtis, E. Gladney, E. Journey: Geochim. Cosmochim. Acta, 44, 1945(1980).
- 29) E.S. Gladney, L.E. Wangen, D.B. Curtis, E.T. Journey: Environ. Sci. Technol., 12, 1084(1978).
- 30) E.S. Gladney, E.T. Journey, D.B. Curtis: Anal. Chem., 48, 2139 (1976).
- 31) 米沢仲四郎, 東條隆夫, 小森卓二: 分析化学, 35, 782 (1986).
- 32) N.I. Ward: J. Radioanal. Nucl. Chem., 110, 633(1987).
- 33) S.A. Kerr, W.V. Prestwich, T.J. Kennett, D.M. Shaw: J. Radioanal. Chem., 57, 525(1980).
- 34) G.E. Gordon, W.H. Zoller, W.R. Walters: DOE/ER/5173-12(1980).
- 35) M.S. Germani, I. Gokmen, A.C. Sigleo, G.S. Kowalczyk, I. Olmez, A.M. Small, D.L. Anderson, M.P. Failey, M.C. Gulovali, C.E.

- Choquette, E.A. Lepel, G.E. Gordon, W.H. Zoller: Anal. Chem., 52, 240(1980).
- 36) C.C. Graham, M.D. Glascock, J.J. Carni, J.R. Vogt, T.G. Spalding: Anal. Chem., 54, 1623(1982).
- 37) T. Vossler, D.L. Anderson, N.K. Aras, J.M. Phelan, W.H. Zoller: Science, 211, 827(1981).
- 38) D.L. Anderson, J.M. Phelan, T. Vossler, W.H. Zoller: J. Radioanal. Chem., 71, 47(1982).
- 39) M.A. Islam, T.J. Kennett, W.V. Prestwich, C.E. Rees: J. Radioanal. Chem., 56, 123(1980).
- 40) P.N. Tiwari: Radiochem. Radioanal. Lett., 6, 363(1971).
- 41) L. András, A. Bálint, A. Csőke, A.Z. Nagy: Radiochem. Radioanal. Lett., 40, 27(1979).
- 42) M. Heurtebise, J.A. Lubkowitz: Anal. Chem., 48, 2143(1976).
- 43) H. Zwittlinger: J. Radioanal. Chem., 14, 147(1973).
- 44) M. Heurtebise, J.A. Lubkowitz: J. Radioanal. Chem., 31, 503(1976).
- 45) M. Heurtebise, J.A. Lubkowitz: Trans. Am. Nucl. Soc., 21, Supplement 2, 60(1975).
- 46) E.T. Journey, D.B. Curtis, E.S. Gladney: Anal. Chem., 49, 1741(1977).
- 47) D.B. Curtis, E.S. Gladney, E.T. Journey: Anal. Chem., 51, 158(1979).
- 48) E.S. Gladney, D.B. Curtis, E.T. Journey: Anal. Chim. Acta, 110, 339(1979).
- 49) M.A. Lone, R.A. Leavitt, D.A. Harrison: At. Data Nucl. Data Tables, 26, 511(1981).
- 50) D. Duffey, A. El-Kady, F.E. Senftle: Nucl. Instr. Methods, 80, 149(1970).
- 51) F.E. Senftle, H.D. Moore, D.B. Leep, A. El-Kady, D. Duffey: Nucl. Instr. Methods, 93, 425(1971).
- 52) G.A. Bartholomew, A. Doveika, K.M. Eastwood, S. Monaro, L.V. Groshev, A.M. Demidov, V.I. Pelekhan, L.L. Sokolovskii: Nucl. Data, A3, 368 (1967).
- 53) L.V. Groshev, A.M. Demidov, V.I. Pelekhan, L.L. Sokolovskii, G.A. Bartholomew, A. Doveika, K.M. Eastwood, S. Monaro: Nucl. Data Table, A5, 1(1968).
- 54) L.V. Groshev, A.M. Demidov, V.I. Pelekhan, L.L. Sokolovskii, G.A. Bartholomew, A. Doveika, K.M. Eastwood, S. Monaro: Nucl. Data Table, A5, 243(1969).
- 55) Nucl. Data Sheets, National Nuclear Data Center Ed. Academic Press

Inc., 質量数毎に毎月刊行されている。

- 56) 日本原子力研究所研究炉管理部編：JAERI-M85-149 (1985).
- 57) 大西信秋, 高橋秀武, 高柳政二, 市川博喜, 川崎 稔：原子力誌, 32, 962 (1990).
- 58) Y. Morii: Neutron News, 1, 14(1990).
- 59) Y. Kawabata, M. Suzuki, H. Takahashi, N. Onishi, A. Shimanuki, Y. Sugawa, N. Niino, T. Kasai, K. Funasho, S. Hayakawa, K. Okuhata: J. Nucl. Sci. Technol., 27, 1138(1990).
- 60) 鈴木正年, 川端祐司, 工藤三好, 坂本正誠, 大西信秋, 高橋秀武, 須川 豊, 新野信行, 畑山君男, 鳩賀昭雄, 笠井泰治郎, 舟所勝行, 奥畑浩治, 早川正治: JAERI-M90-079 (1990).
- 61) 川端祐司, 鈴木正年, 黒沢正義, 熊井敏夫, 菊池仁志, 阿部盛一: 日本原子力学会1991年(第29回)春の年会要旨集, P. 64 (1991).
- 62) R.M. Lindstrom, C.A. Stone: "NBS Reactor:Summary of Activitys July 1987 Through June 1988", NIST Technical Note 1257, C. O'Connor Ed., p.126(1989).
- 63) N.M. Spyrou: J. Radioanal. Nucl. Chem., 110, 641(1987).
- 64) N.M. Spyrou Kusminarto, G.E. Nicolau: J. Radioanal. Nucl. Chem., 112, 57(1987).

Table 1 P G A と N A A の推定感度因子の比較<sup>9)</sup>

Element	Product	Delayed gamma			Prompt gamma			$\log(S_D/S_P)$
		$T_{1/2}$	$E_\gamma(\text{m.e.v.})$	$S_D$	Reaction	$E_\gamma(\text{m.e.v.})$	$S_P$	
Ag	Ag <sup>10m</sup>	24s	0.340	$7 \times 10^1$	Ag <sup>10m</sup> ( $n, \gamma$ )	0.202	$1 \times 10^1$	+2
Al	Al <sup>24</sup>	2.3m	1.78	$4 \times 10^1$	Al <sup>24</sup> ( $n, \gamma$ )	7.73	$1 \times 10^1$	0
As	As <sup>75</sup>	27h	0.561	$5 \times 10^1$	As <sup>75</sup> ( $n, \gamma$ )	7.05	$3 \times 10^1$	0
Au	Au <sup>196</sup>	2.7d	0.412	$6 \times 10^1$	Au <sup>196</sup> ( $n, \gamma$ )	0.2149	$4 \times 10^1$	-1
B					B <sup>10</sup> ( $n, \alpha$ )Li <sup>7</sup>	0.477	$4 \times 10^{-1}$	
Ba	Ba <sup>139</sup>	85m	0.165	$1 \times 10^1$		4.10	$2 \times 10^2$	+1
Be					Be <sup>9</sup> ( $n, \gamma$ )	6.80	$4 \times 10^1$	
Bi					Bi <sup>190</sup> ( $n, \gamma$ )	4.170	$1 \times 10^1$	
Br	Br <sup>80</sup>	17.6m	0.62	$4 \times 10^1$		7.579	$2 \times 10^2$	0
C					C <sup>12</sup> ( $n, \gamma$ )	4.95	$1 \times 10^1$	
Ca	Ca <sup>40</sup>	8.8m	3.10	$6 \times 10^1$	Ca <sup>40</sup> ( $n, \gamma$ )	6.42	$3 \times 10^1$	+1
Cd	Cd <sup>113</sup>	5.4h	0.523	$3 \times 10^1$	Cd <sup>113</sup> ( $n, \gamma$ )	0.58	$2 \times 10^{-1}$	+7
Ce	Ce <sup>144</sup>	32h	0.29	$4 \times 10^1$		0.120	$3 \times 10^1$	+2
Cl	Cl <sup>35</sup>	37m	3.75	$4 \times 10^1$	Cl <sup>35</sup> ( $n, \gamma$ )	1.165	$8 \times 10^{-1}$	+4
Co	Co <sup>60</sup>	10.3m	1.17	$1 \times 10^1$	Co <sup>60</sup> ( $n, \gamma$ )	0.562	$3 \times 10^1$	+1
Cr	Cr <sup>43</sup>	27d	0.323	$2 \times 10^1$	Cr <sup>43</sup> ( $n, \gamma$ )	8.88	$3 \times 10^1$	+4
Cs	Cs <sup>133m</sup>	2.9h	0.127	$6 \times 10^1$	Cs <sup>133m</sup> ( $n, \gamma$ )	0.120	$6 \times 10^1$	0
Cu	Cu <sup>64</sup>	12.8h	1.34	$2 \times 10^1$	Cu <sup>64</sup> ( $n, \gamma$ )	7.01	$2 \times 10^1$	+3
Dy	Dy <sup>144</sup>	1.3m	0.108	$8 \times 10^{-1}$	Dy <sup>144</sup> ( $n, \gamma$ )	0.104	$9 \times 10^{-1}$	+1
Er	Er <sup>171</sup>	7.5h	3.03	$4 \times 10^1$		0.823	$8 \times 10^{-1}$	+3
Eu	Eu <sup>152m</sup>	0.3h	1.327	$3 \times 10^1$	Eu <sup>152m</sup> ( $n, \gamma$ )	0.090	$5 \times 10^{-1}$	+3
F	F <sup>20</sup>	11s	1.632	$3 \times 10^1$	F <sup>20</sup> ( $n, \gamma$ )	1.36	$1 \times 10^1$	+1
Fe	Fe <sup>55</sup>	45d	1.299	$1 \times 10^1$	Fe <sup>55</sup> ( $n, \gamma$ )	7.639	$2 \times 10^1$	+6
Ga	Ga <sup>71</sup>	14h	3.350	$5 \times 10^1$		6.359	$1 \times 10^1$	+1
Gd	Gd <sup>159</sup>	18h	0.364	$1 \times 10^1$	Gd <sup>159</sup> ( $n, \gamma$ )	0.070	$2 \times 10^{-1}$	+7
Hf					Hf <sup>179</sup> ( $n, \gamma$ )	2.23	$8 \times 10^{-1}$	
Hg	Hg <sup>197m</sup>	19s	0.100	$3 \times 10^1$	Hg <sup>197m</sup> ( $n, \gamma$ )	0.213	$9 \times 10^{-1}$	+2
Ho	Ho <sup>164</sup>	65h	0.077	$4 \times 10^1$	Hg <sup>197</sup> ( $n, \gamma$ )	0.37	$4 \times 10^{-1}$	+4
I	I <sup>132</sup>	27h	1.37	$6 \times 10^1$	Ho <sup>164</sup> ( $n, \gamma$ )	0.142	$2 \times 10^1$	+1
In	In <sup>113m</sup>	25m	0.45	$5 \times 10^1$	I <sup>132</sup> ( $n, \gamma$ )	0.135	$2 \times 10^1$	+2
Ir	Ir <sup>194</sup>	54m	1.09	$8 \times 10^1$		0.558	$3 \times 10^1$	0
K	K <sup>41</sup>	19h	0.328	$1 \times 10^1$		5.68	$8 \times 10^1$	+1
La	La <sup>140</sup>	12.5h	1.53	$1 \times 10^1$	K <sup>41</sup> ( $n, \gamma$ )	0.770	$2 \times 10^1$	+3
Mg	Mg <sup>27</sup>	40h	1.597	$3 \times 10^1$	La <sup>140</sup> ( $n, \gamma$ )	0.440	$3 \times 10^1$	+1
Mn	Mn <sup>55</sup>	9.5m	0.843	$3 \times 10^1$	Mg <sup>27</sup> ( $n, \gamma$ )	3.92	$2 \times 10^1$	+2
Mo	Mo <sup>96</sup>	2.6h	0.845	$1 \times 10^1$	Mn <sup>55</sup> ( $n, \gamma$ )	7.26	$1 \times 10^1$	0
Na	Na <sup>24</sup>	67h	0.140	$3 \times 10^1$	Mo <sup>96</sup> ( $n, \gamma$ )	0.770	$1 \times 10^1$	+3
Nb	Nb <sup>150m</sup>	15h	2.75	$3 \times 10^1$	Na <sup>24</sup> ( $n, \gamma$ )	0.475	$2 \times 10^1$	+1
Nd	Nd <sup>149</sup>	6.6m	0.042	$3 \times 10^1$	Nb <sup>150m</sup> ( $n, \gamma$ )	6.85	$3 \times 10^1$	-1
Ni	Ni <sup>113</sup>	11.6d	0.091	$7 \times 10^1$		0.695	$1 \times 10^1$	+6
P		2.6h	1.48	$2 \times 10^1$	Ni <sup>113</sup> ( $n, \gamma$ )	8.997	$1 \times 10^1$	+3
Pr	Pr <sup>141</sup>				Pt <sup>114</sup> ( $n, \gamma$ )	0.43	$7 \times 10^1$	
Pt	Pt <sup>199</sup>	19h	1.57	$3 \times 10^1$	Pr <sup>141</sup> ( $n, \gamma$ )	5.67	$1 \times 10^1$	+1
Re	Re <sup>184</sup>	31m	0.540	$3 \times 10^1$	Pt <sup>199</sup> ( $n, \gamma$ )	0.35	$3 \times 10^1$	+2
Rh	Rh <sup>104m</sup>	17h	0.155	$1 \times 10^1$	Re <sup>184</sup> ( $n, \gamma$ )	5.94	$4 \times 10^1$	+1
S	S <sup>31m</sup>	4.4m	0.077	$2 \times 10^1$	Rh <sup>104m</sup> ( $n, \gamma$ )	6.20	$1 \times 10^1$	0
Sb	Sb <sup>122</sup>	5.0m	3.09	$5 \times 10^1$		5.44	$4 \times 10^1$	+5
Sc	Sc <sup>46</sup>	2.8d	0.564	$1 \times 10^1$		8.50	$4 \times 10^1$	+1
Se	Se <sup>75</sup>	84d	1.19	$3 \times 10^1$	Sc <sup>46</sup> ( $n, \gamma$ )	8.18	$7 \times 10^1$	+3
Si	Si <sup>31</sup>	120d	0.402	$2 \times 10^1$	Se <sup>75</sup> ( $n, \gamma$ )	6.586	$5 \times 10^1$	+5
Sm	Sm <sup>152</sup>	2.6h	1.264	$4 \times 10^1$	Si <sup>31</sup> ( $n, \gamma$ )	4.93	$1 \times 10^1$	+3
Sn	Sn <sup>113m</sup>	47h	0.1032	$1 \times 10^1$	Sm <sup>152</sup> ( $n, \gamma$ )	0.338	$1 \times 10^{-1}$	+4
Sr	Sr <sup>87m</sup>	9.5m	0.326	$2 \times 10^1$		9.35	$1 \times 10^1$	+1
Ta	Ta <sup>112d</sup>	2.8h	0.388	$5 \times 10^1$	Sr <sup>87m</sup> ( $n, \gamma$ )	7.53	$4 \times 10^1$	0
Te	Te <sup>131</sup>	112d	1.22	$1 \times 10^1$	Ta <sup>112d</sup> ( $n, \gamma$ )	0.272	$3 \times 10^1$	+4
Ti	Ti <sup>41</sup>	25m	0.147	$1 \times 10^1$	Te <sup>131</sup> ( $n, \gamma$ )	0.609	$2 \times 10^1$	+3
Tl		5.8m	0.323	$2 \times 10^1$	Ti <sup>41</sup> ( $n, \gamma$ )	1.387	$3 \times 10^1$	+4
Tm	Tm <sup>170</sup>	127d	0.084	$7 \times 10^1$		5.63	$1 \times 10^1$	
V	V <sup>42</sup>	3.8m	1.433	$3 \times 10^1$	Tm <sup>170</sup> ( $n, \gamma$ )	0.150	$5 \times 10^1$	+3
W	W <sup>107</sup>	24h	0.686	$7 \times 10^1$	V <sup>42</sup> ( $n, \gamma$ )	8.51	$2 \times 10^1$	0
Zn	Zn <sup>65m</sup>	14h	0.438	$2 \times 10^1$	W <sup>107</sup> ( $n, \gamma$ )	5.25	$7 \times 10^1$	+1
Zr	Zr <sup>91</sup>	17h	0.747	$4 \times 10^1$	Zn <sup>65m</sup> ( $n, \gamma$ )	0.45	$1 \times 10^1$	+2
					Zr <sup>91</sup> ( $n, \gamma$ )	6.30	$9 \times 10^1$	+3

\* Information not available.

† No usable delayed gamma reaction known.

Table 2 分析感度<sup>4)</sup>

Sensitivity Range	Detection Limit (mg/g)	Elements Within Sensitivity Range
3333 - 10000	$10^{-5}$	Gd
1000 - 3333	$10^{-4}$	B, Cd, Sm
333 - 1000		Eu
100 - 333		Dy, Hg
33 - 100	$10^{-3}$	Cl, Hf, Yb
10 - 33		Co, Rh, Ag, In, Nd, Er, Ir
3.3 - 10		Sc, Ti
1.0 - 3.3		V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Y, Au
0.3 - 1.0	$10^{-2}$	H, Na, Si, S, K, Ga, As, La, Er, Tm, W,
0.10 - 0.22	$10^{-1}$	N, Mg, Al, P, Ca, Zn, Nb, Te, Cs, Ba Pr, Tb, Ho, Lu, Ta, Re, Pt, Th, U
0.03 - 0.10	1	Be, Ge, Br, Sr, Mo, Pb, Sb, I, Ce, Os, Tl, Pb
0.01 - 0.03	10	C, Rb, Zr, Ru
<0.01		He, Li, F, O, Sn, Bi

Table 4 分析感度の比較

Element	$E_{\gamma}$ keV	Sensitivity, cps/mg			
		Univ. Md-NBS <sup>a</sup>	Univ. Missouri <sup>b</sup>	JAERI <sup>c</sup>	ILL <sup>d</sup>
H	2223	0.86	1.23		
B	478	530	759	122	2700
Cl	1165	1.0	1.45	0.24	
Cr	835	0.11	0.176	0.029	
Ni	465	0.12	0.167	0.027	
Cd	558	170	247	35	
Sm	334	640	740		3700
Gd	182	680	956	147	6900
Flux, n/cm <sup>2</sup> sec		$2 \times 10^8$	$5 \times 10^8$	$8.0 \times 10^7$	$1.3 \times 10^8$

a: Ref. 18), b: Ref. 17), c: Ref. 19),  
 d: Ref. 23) Thermal Neutron Guide Beam

Table 3 PGA 装置一覧表

Facility	Reactor (Power)	Type	Flux n/cm <sup>2</sup> ·sec	Cd (Au) Ratio	Ref.
Univ. California Los Alamos (USA)	OWR (5 MW)	Internal	$4 \times 10^{11}$	1000	10), 11)
GKSS-Forschungszentrum (FRG)	FRG-1 (5 MW)	Internal	$8 \times 10^{12}$	n. r.	12) ~ 14)
Instituto de Energia Atomica (Brazil)	IEA-R1 (2 MW)	Internal	$3.7 \times 10^{12}$	n. r.	15), 16)
Univ. Missouri (USA)	MURR (10 MW)	Beam	$5 \times 10^8$	42	17)
Univ. Maryland-NBS (USA)	NBSR (10 MW)	Beam	$2 \times 10^8$	55	18)
JAERI (Japan)	JRR-3 (10 MW)	Beam	$8.0 \times 10^7$	21	19)
Instituto Venezolano de Investigaciones cientificas (Venezuela)	RV-1 (3 MW)	Beam	$4.75 \times 10^7$	30.5	20)
Musashi Insti. Tech. (Japan)	MITR (100 kW)	Beam	$5 \times 10^6$	n. r.	21)
Institut Laue- Langevin (France)	HFR (57 MW)	Guide Beam	$1.5 \times 10^{10}*$	n. r.	22)
		Guide Beam	$1.3 \times 10^{8}**$	n. r.	23)
Nuclear Research Center (FRG)	FRJ-2 (23 MW)	Guide Beam	$2 \times 10^{8}**$	10000	24), 25)
Univ. Kyoto (Japan)	KUR (5 MW)	Guide Beam	$2 \times 10^{8}**$	n. r.	26)

n. r.: Not Reported, \*: Cold Neutron, \*\*: Thermal Neutron

Table 5 冷中性子ガイドビームによるPGAの検出限界<sup>22)</sup>

Element	Low-energy region		High-energy region	
	$E_\gamma$ keV	Detection limit, $\mu\text{g}$	$E_\gamma$ keV	Detection limit, $\mu\text{g}$
Boron	477.0	$0.2 \cdot 10^{-3}$	-	-
Chlorine	1163.2	$4.6 \cdot 10^{-3}$	6111	0.5
Scandium	227.6	$2.4 \cdot 10^{-3}$	8175	1.6
Titanium	1378.0	0.1	6759	1.0
Manganese	212.5	0.28	7243	2.4
Iron	353.1	0.8	7631	6.0
Cobalt	229.6	$2.6 \cdot 10^{-3}$	6877	1.5
Nickel	465.4	0.3	8999	2.0
Copper	278.6	0.22	7914	4.3
Rhodium	180.8	$1.1 \cdot 10^{-3}$	5917	7.0
Silver	198.4	$1.6 \cdot 10^{-3}$	-	-
Cadmium	558.6	$0.7 \cdot 10^{-3}$	5824	0.2
Indium	275.8	$5.3 \cdot 10^{-3}$	-	-
Lanthanum	217.8	0.23	5098	18
Neodymium	696.4	0.11	6502	4.8
Samarium	333.9	$0.15 \cdot 10^{-3}$	-	-
Europlum	89.9	$0.2 \cdot 10^{-3}$	-	-
Gadolinium	182.1	$0.1 \cdot 10^{-3}$	6749	$8.0 \cdot 10^{-3}$
Dysprosium	184.2	$3.2 \cdot 10^{-3}$	5607	0.8
Holmium	136.6	$1.2 \cdot 10^{-3}$	-	-
Erblum	185.3	$4.5 \cdot 10^{-3}$	-	-
Thullium	148.8	$2.2 \cdot 10^{-3}$	-	-
Lutetium	149.6	$7.1 \cdot 10^{-3}$	-	-
Iridium	217.4	$1.2 \cdot 10^{-3}$	5958	5.4
Gold	215.7	$6.5 \cdot 10^{-3}$	6252	3.2
Mercury	371.5	$2.9 \cdot 10^{-3}$	5967	6.25

中性子束 =  $1.5 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2\text{sec}$

Table 6 検出限界の比較

Element	$E_{\gamma}$ , keV	Detection limit, ppm							
		GKSS*	Univ. Md-NBS*			Bovine Liver*	KFA*		ILL*
	Bentonite	Coal*	Basalt*	Bovine Liver*	Bovine Liver*	Fly ash*	Coal*	Granite*	
H	2223			10	20	30	15	15	12
Be	2589			0.05	0.02	0.07		0.13	0.5
B	478			27000	13000	37000		0.015	0.22
C	1262						33000	11000	
	3682						4000	1150	
N	1885			3400	1400	3500		10	
	2516						100	60	
F	597						100		
	1634(d)			6000	3000	8000	100	580	70
Na	472	445 <sup>j</sup>		300	60	100	400	2400	150
	2752						1000	1500	
Mg	585	19740 <sup>j</sup>		1200	700	1900			
	3910						100		
Al	1779(d)	790 <sup>j</sup>		500	200	500	100		
Si	3539	2840 <sup>j</sup>		600	300	800	400		
	4932						1000		
P	637			1300	1000	2600	850	460	150
S	841	220 <sup>j</sup>		200	100	300			
Cl	516	14 <sup>j</sup>		7	4	12			
	1165						10		
K	770	530 <sup>j</sup>		70	50	120	100	450	55
Ca	1942	450 <sup>j</sup>		500	200	1000		6000	5500
	4421								
Ti	1382	40 <sup>j</sup>		30	10	30	0.1	190	15
	6764						7.3	1.2	
V	124								
	1434(d)			25	10	35			
Cr	835	140 <sup>j</sup>		100	50	150			
Mn	847(d)	70 <sup>j</sup>		9	4	10			
Fe	352	165 <sup>j</sup>		300	300	400		580	500
	692						3.0	0.7	
Co	231								
	277			20	14	20			
Ni	465	65 <sup>j</sup>		1200	700	1700			
Cu	278	120 <sup>j</sup>		200	130	200			
Zn	1077	1000 <sup>j</sup>		400	300	600			
As	165			200	200	200			0.5
Se	239			80	80	80		0.47	0.085
	6604								
Br	244			120	150	190			
Sr	898			400	200	600	36.8	10	
Mo	778			90	60	90			
Ag	201						0.01	0.0014	
Cd	558			0.06	0.04	0.09			
	5824	2.5							
In	162			14	15	14		0.0025	0.0005
I	293								
Ba	627			20	10	20			
Nd	697			7	4	8			
Sm	334			0.03	0.02	0.03	10*	0.69	0.01
Gd	182			0.05	0.05	0.05		0.1	0.016
	944								
Hg	5966	7							0.025
Tl	5596								
Pb	7368			5000	5000	5000		100	
Sample amount		6 g	1 g	1.5 g	1 g		200 mg		500 mg
Measurement time		22.5 h	20 h	12 h	20 h		30 min		2350 sec
Detection limit		$3B^{1/2}$		$3.29(B/t)^{1/2}/S$			100 counts		$2B^{1/2}$

a: Ref. 12,13); b: Ref. 5),18),27); c: Ref. 25); d: Ref. 23); e: NBS SRM1632a; f: USGS BHVO-1; g: NBS SRM1577; h: NBS SRM1633; i: USGS G-2; j: Used gamma-ray did not clear; (d): Decay gamma-ray.

Table 7 NBS Coal Fly Ash の分析結果<sup>27)</sup>

element	SRM 1633			SRM 1633a	
	this work <sup>a</sup>	NBS <sup>b</sup>	other values	this work <sup>a</sup>	NBS <sup>b</sup>
B	433 ± 4	-	434 ± 9, <sup>c</sup> 493 ± 14, <sup>d</sup> 500 ± 29 <sup>e</sup>	39.2 ± 0.7	-
Na (%)	0.30 ± 0.02	-	0.32 ± 0.04, <sup>f</sup> 0.283 ± 0.014, <sup>f</sup> 0.36 <sup>h</sup>	0.21 ± 0.06	0.17 ± 0.01
Mg (%)	1.5 ± 0.2	-	1.8 ± 0.4, <sup>f</sup> 1.78 ± 0.20, <sup>f</sup> 2.4 <sup>h</sup>	-	0.455 ± 0.010
Al (%)	12.6 ± 0.2	-	12.7 ± 0.5, <sup>f</sup> 12.35 ± 0.25, <sup>f</sup> 12.3 <sup>h</sup>	14.0 ± 0.2	(14)
Si (%)	21.8 ± 0.3	-	21 ± 2, <sup>f</sup> 17.7, <sup>h</sup> 17 <sup>e</sup>	22.2 ± 0.4	22.8 ± 0.8
P (%)	-	-	0.3, <sup>h</sup> 0.088 <sup>c</sup>	~0.2	-
S (%)	0.39 ± 0.04	-	0.44 ± 0.07 <sup>f</sup>	0.27 ± 0.02	-
K (%)	1.76 ± 0.05	(1.72)	1.61 ± 0.15, <sup>f</sup> 1.80 ± 0.13, <sup>f</sup> 1.69, <sup>h</sup> 1.75 <sup>e</sup>	1.97 ± 0.04	1.88 ± 0.06
Ca (%)	4.75 ± 0.08	-	4.7 ± 0.6, <sup>f</sup> 4.69 ± 0.14, <sup>f</sup> 3.8 <sup>h</sup>	1.29 ± 0.11	1.11 ± 0.01
Ti (%)	0.72 ± 0.02	-	0.74 ± 0.03, <sup>f</sup> 0.70 ± 0.03, <sup>f</sup> 0.696 <sup>h</sup>	0.84 ± 0.01	(0.8)
V	190 ± 50	214 ± 8	235 ± 13, <sup>f</sup> 237 ± 20 <sup>f</sup>	360 ± 40	(300)
Mn	480 ± 25	493 ± 7	496 ± 19, <sup>f</sup> 488 ± 14 <sup>f</sup>	190 ± 15	(190)
Fe (%)	6.1 ± 0.1	-	6.2 ± 0.3, <sup>f</sup> 6.7 <sup>h</sup>	9.7 ± 0.2	9.40 ± 0.10
Cd	1.50 ± 0.07	1.45 ± 0.06	1.6 ± 0.2 <sup>d</sup>	1.07 ± 0.05	1.0 ± 0.15
Nd	62.1 ± 2.4	-	57.8 ± 1.6, <sup>f</sup> 81 <sup>j</sup>	65.6 ± 5.4	-
Sm	12.1 ± 0.4	-	12.4 ± 0.9, <sup>f</sup> 11.4 ± 1.6 <sup>f</sup>	16.0 ± 0.2	-
Gd	11.4 ± 0.2	-	-	15.3 ± 0.2	-

<sup>a</sup> Based on five separate irradiations. <sup>b</sup> NBS Office of Standard Reference Materials Certificate of Analysis. Values in parentheses are information values, not certified. <sup>c</sup> Ref. 31. <sup>d</sup> Ref. 9. <sup>e</sup> Ref. 27. <sup>f</sup> Ref. 4. <sup>g</sup> Ref. 29. <sup>h</sup> Ref. 11. <sup>i</sup> Ref. 10. <sup>j</sup> Ref. 30.

Table 8 J R R - 3 (改造炉) 中性子導管の仕様<sup>59), 60)</sup>

Guide Tube	Label	Characteristic Wave Length (Å)	Beam Size (cm × cm)	Curvature Radius (m)	Total Length (m)
Thermal Neutron Guide	T1	2	20 × 2	3337.4	59.91
	T2	2	20 × 2	3337.4	58.98
Cold Neutron Guide	C1	4	12 × 2	834.3	30.75
	C2	4	12 × 2	834.3	51.08
	C3	6	12 × 2	370.8	31.38

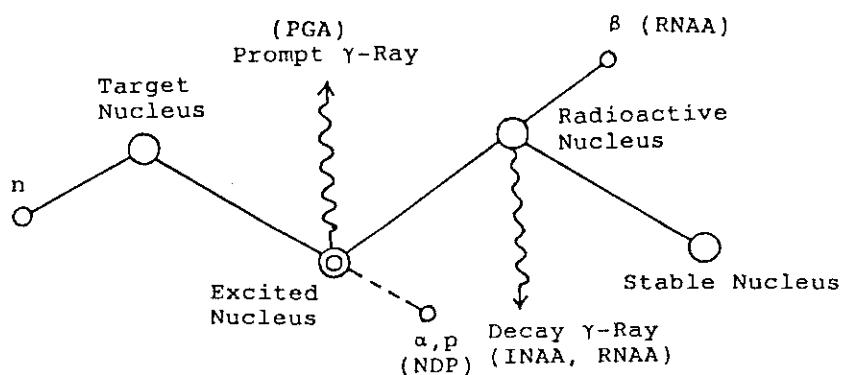
Table 9 冷中性子ガイドビーム(C2-3-2)及び熱中性子ガイドビーム(T1-4-1)の仕様

	(C2-3-2)	(T1-4-1)
Neutron Flux* (n/cm <sup>2</sup> ·sec)	$2.0 \times 10^8$	$1.2 \times 10^8$
Beam Size (mm)	20 × 50	20 × 91
Beam-Center to Floor Distance (mm)	1235	1250

\*: Ref. 61)

Table 10 即発ガソマ線分析研究スケジュール

項目	平成3年度												4年度	5年度	6年度	7年度	8年度以降
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3					
分析装置 製作																	
安全審査 据付・調製 特性試験													(C2-3-2)	(T1-4-1)			
基礎実験																	
応用実験																	
その他の分析																	
分析以外の利用																	



**Prompt Radiation Measurement**

Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Analysis (PGA)

Thermal Neutron Depth Profiling (NDP)

**Delayed (Decay) Radiation Measurement**

Neutron Activation Analysis (NAA)

Instrumental Neutron Activation Analysis (INAA)

Radiochemical Neutron Activation Analysis (RNAA)

Fig.1 热中性子利用分析法

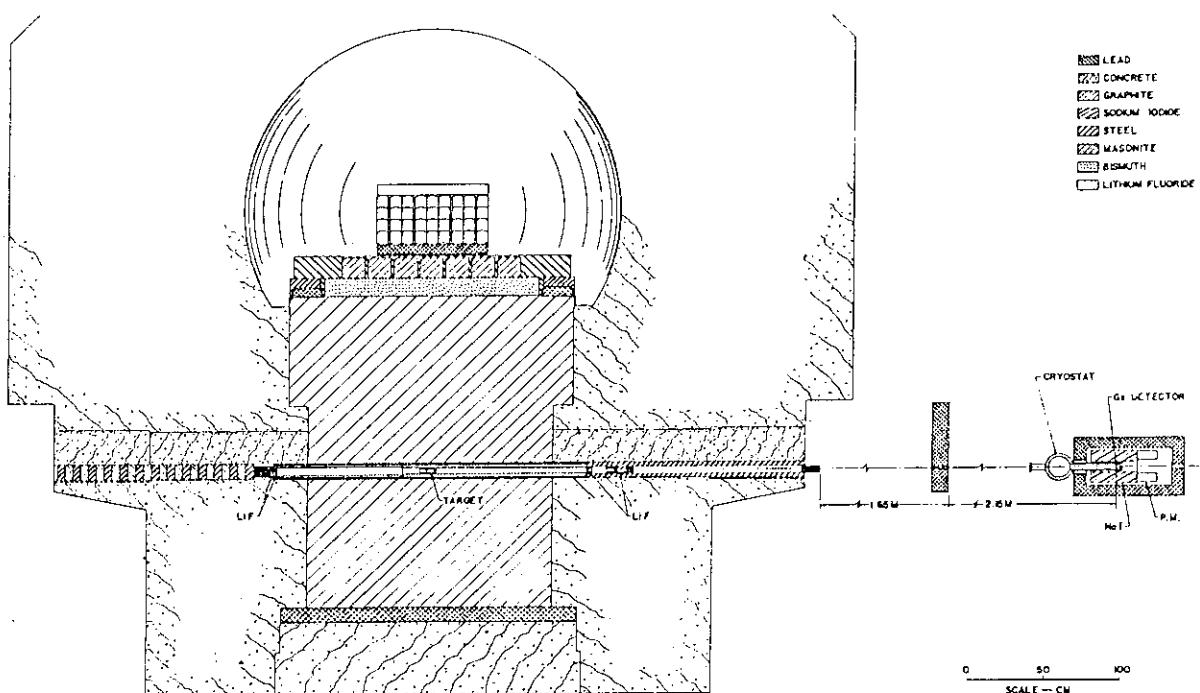
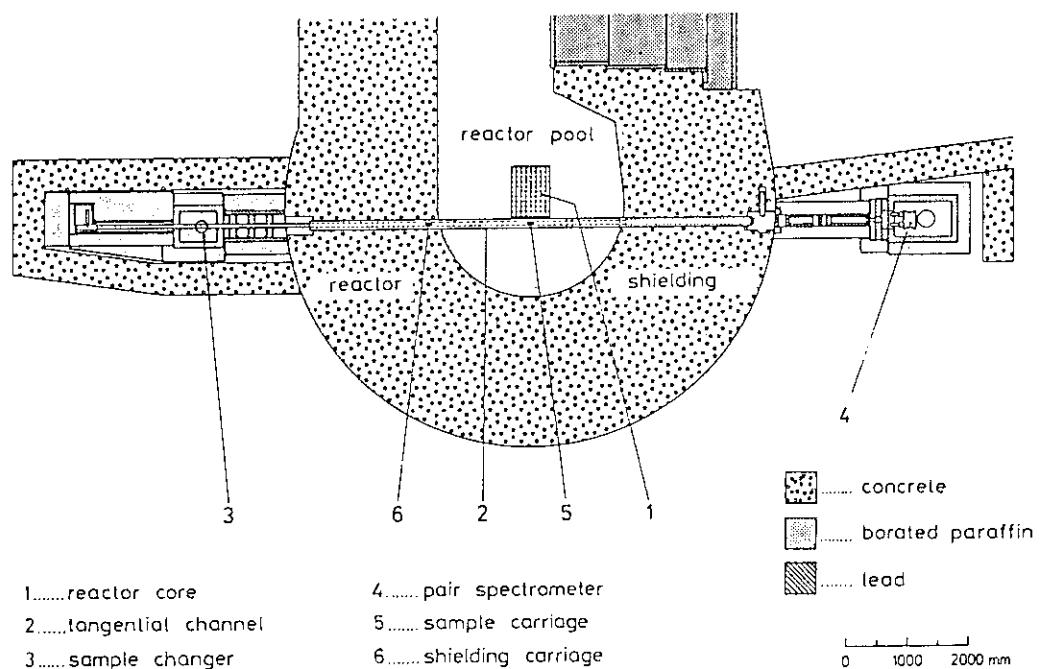
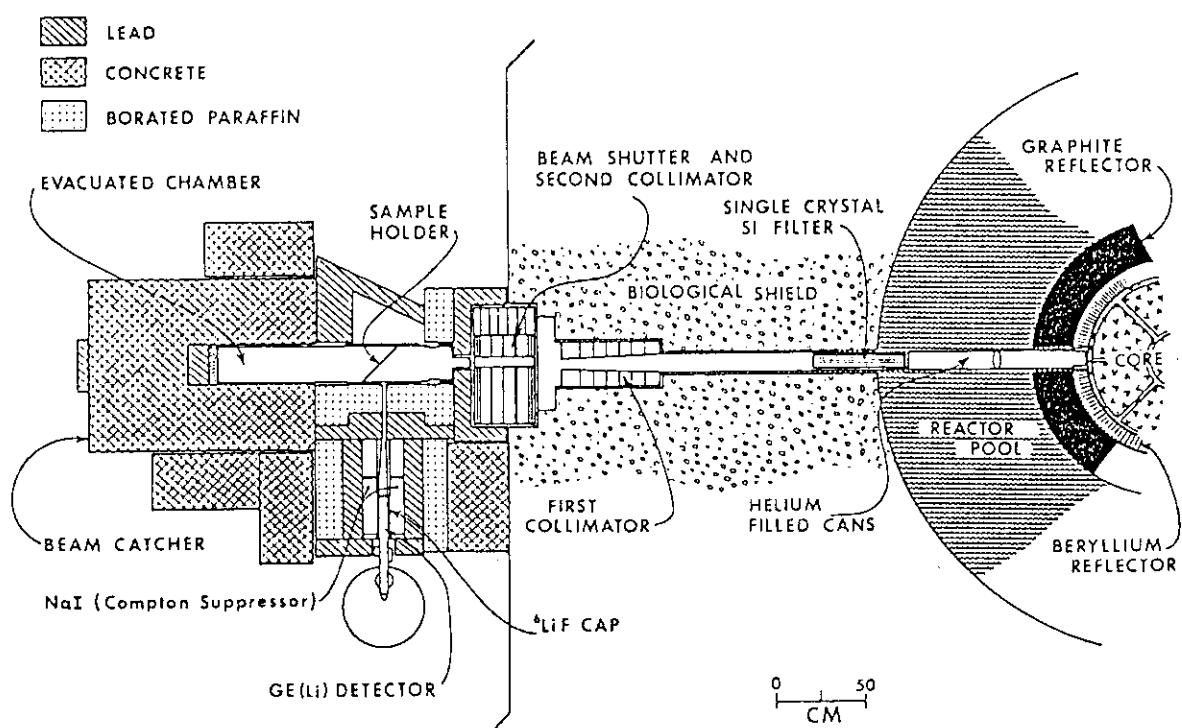


Fig.2 California 大学の PGA 装置<sup>10)</sup>

Fig.3 GKSS-Forschungszentrum の PGA装置<sup>12)~14)</sup>Fig.4 Missouri 大学の PGA 装置<sup>17)</sup>

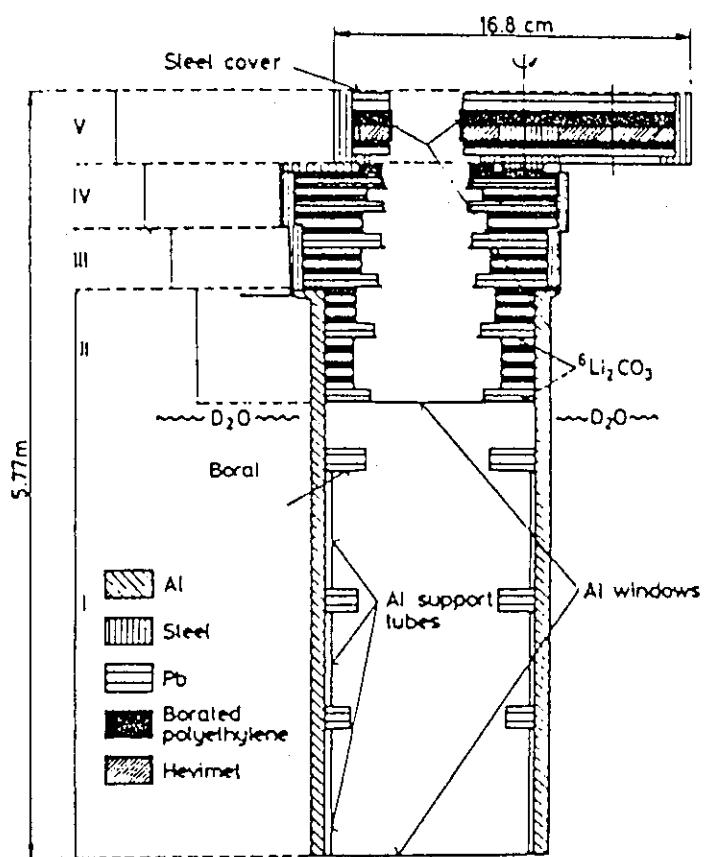
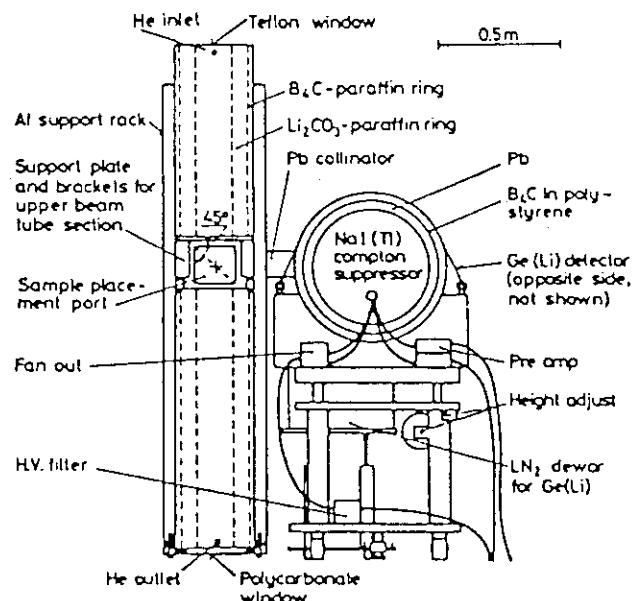
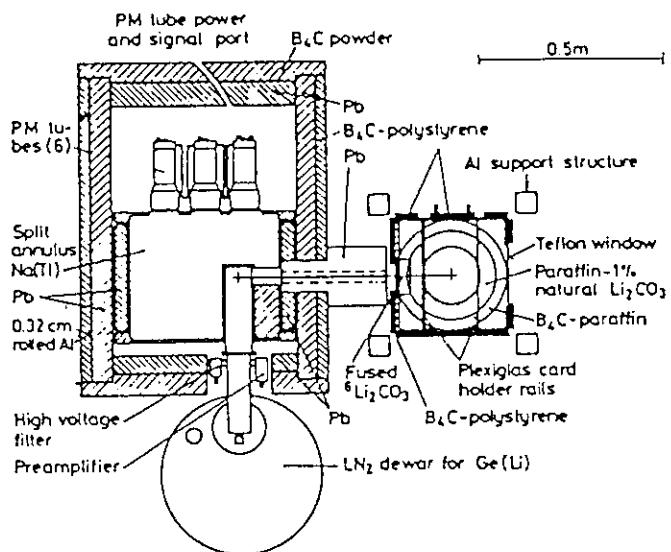


Fig.5 Maryland 大学 - N B S の P G A 装置<sup>18)</sup>  
- ビーム孔略図 -



Detection system and shielding configuration, horizontal view



Detection system and shielding configuration, vertical view

Fig. 6 Maryland 大学 - NBS の P G A 装置<sup>18)</sup>  
- 測定部略図 -

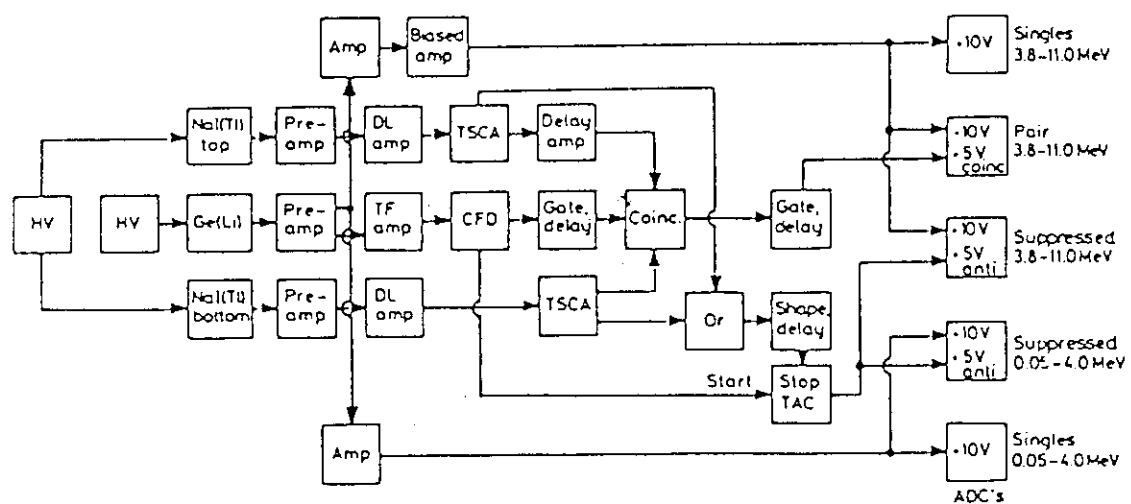


Fig. 7 Maryland 大学 - N B S の P G A 装置<sup>18)</sup>  
- 測定系ブロックダイヤグラム -

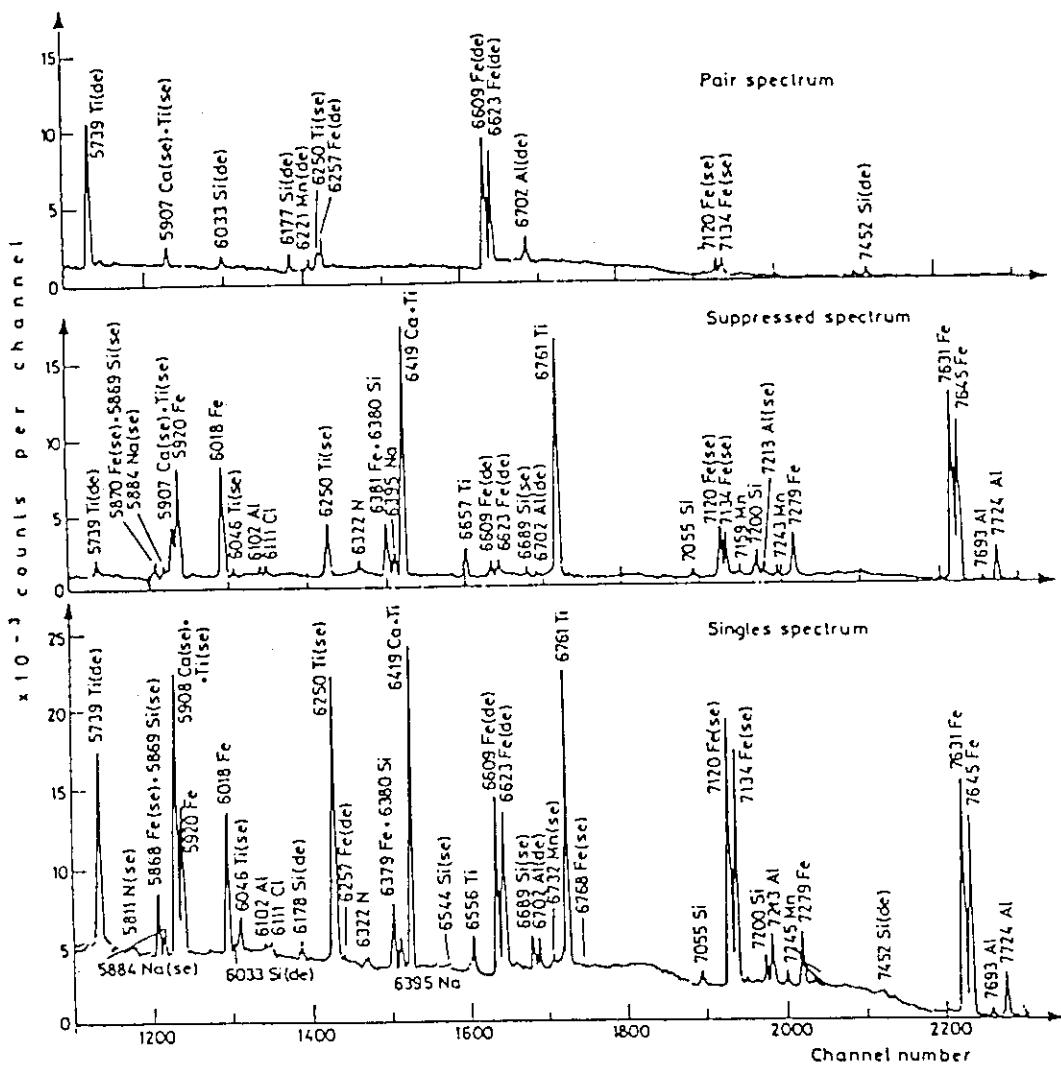


Fig. 8 Maryland 大学 - NBS の PGA 装置により得られた USGS Hawaiian Basalt BHVO-1 の即発  $\gamma$  線スペクトル<sup>18)</sup>

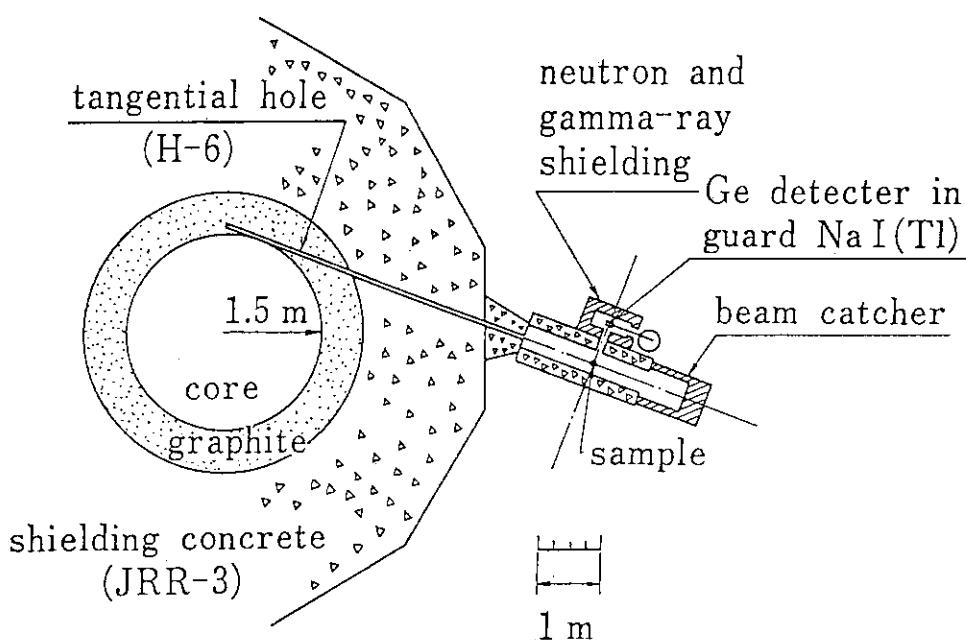


Fig. 9 J R R - 3 に設置した P G A 装置<sup>19)</sup>  
- 全 体 図 -

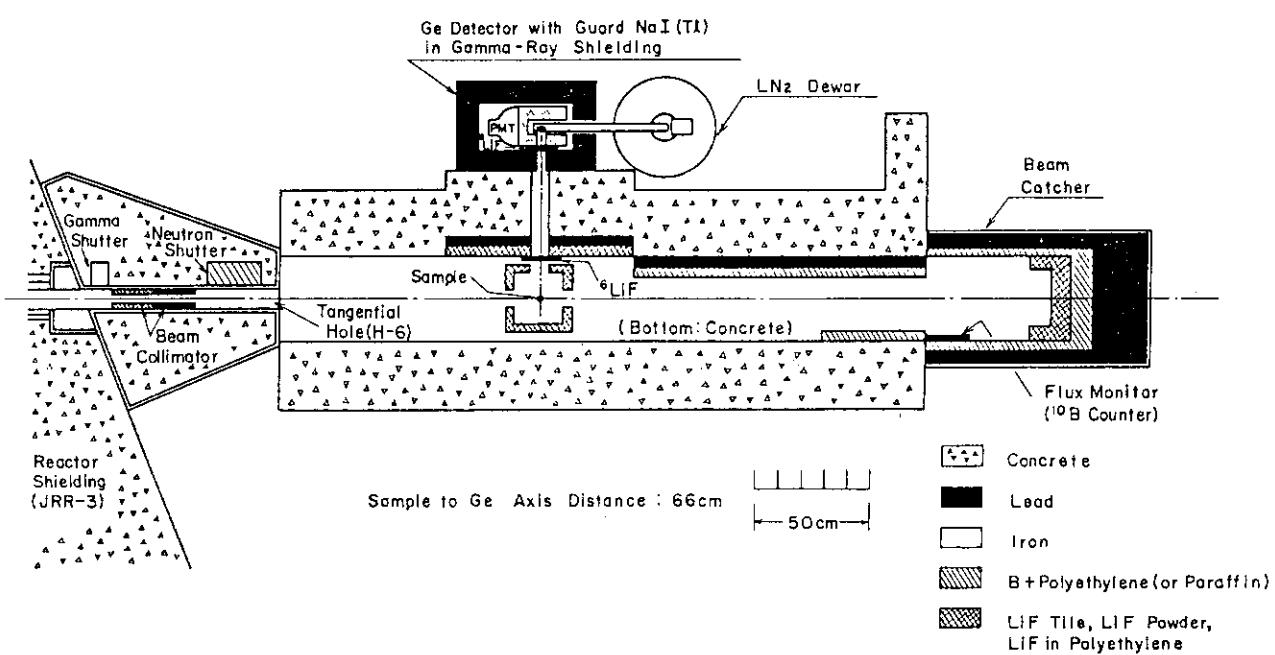
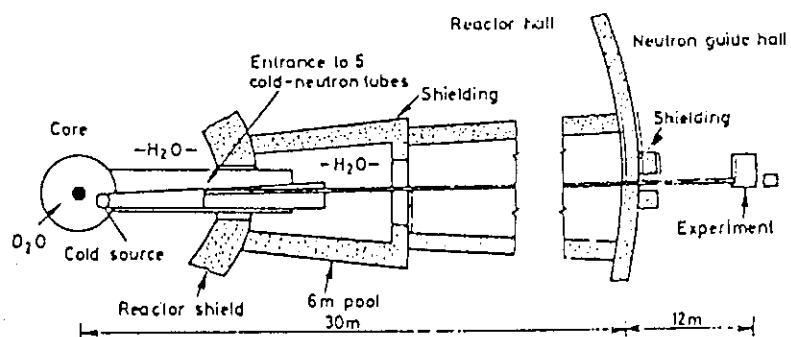


Fig. 10 J R R - 3 に設置した P G A 装置<sup>19)</sup>  
- 試料部拡大図 -



Schematic view of the neutron guide system for neutron-capture gamma-ray analysis at the HFR

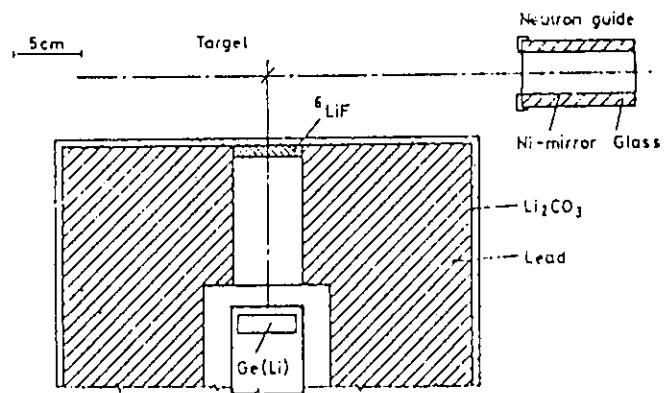


Diagram of the capture gamma-ray apparatus at the HFR

Fig. 11 Henkelmann 等の冷中性子ガイドビームを利用した P G A 装置<sup>22)</sup>

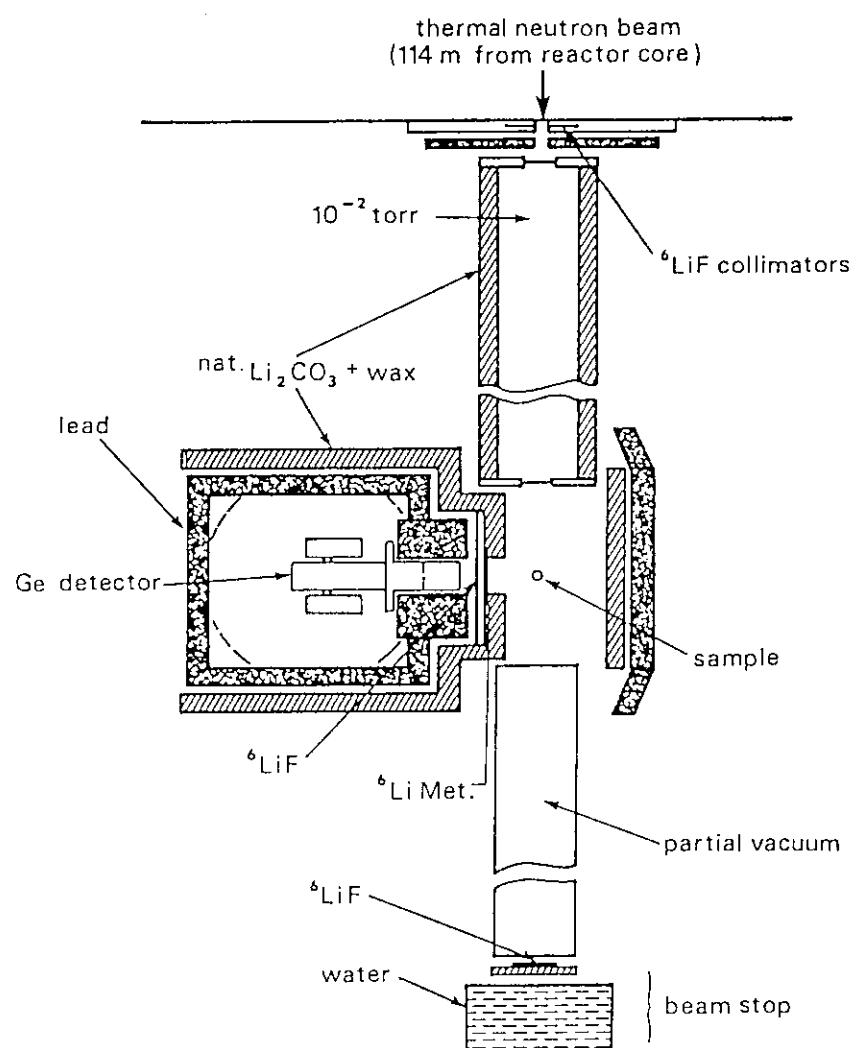


Fig.12 Kerr 等の熱中性子ガイドビームを利用した P G A 装置<sup>23)</sup>

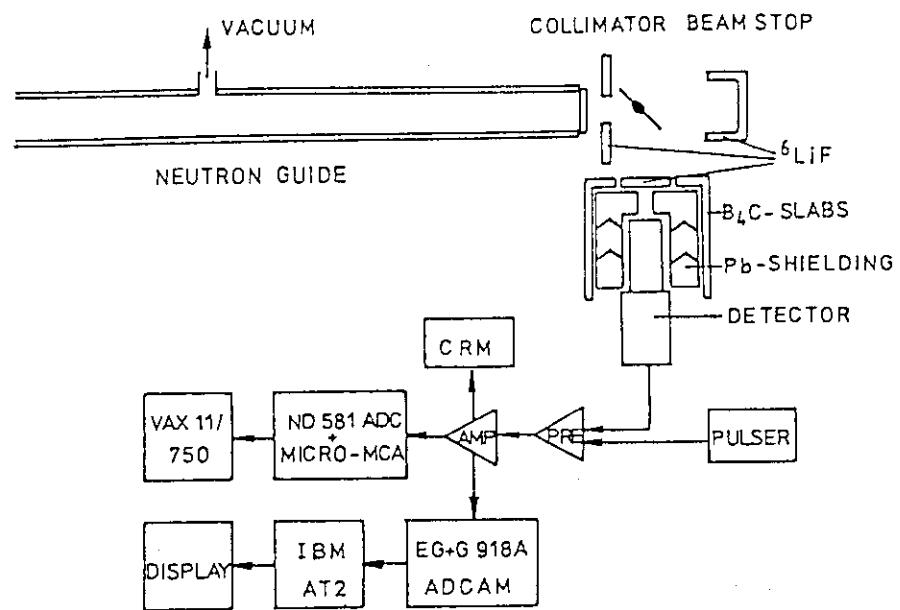


Fig.13 Lindstrom等の冷中性子ガイドビームを利用したPGA装置<sup>25)</sup>

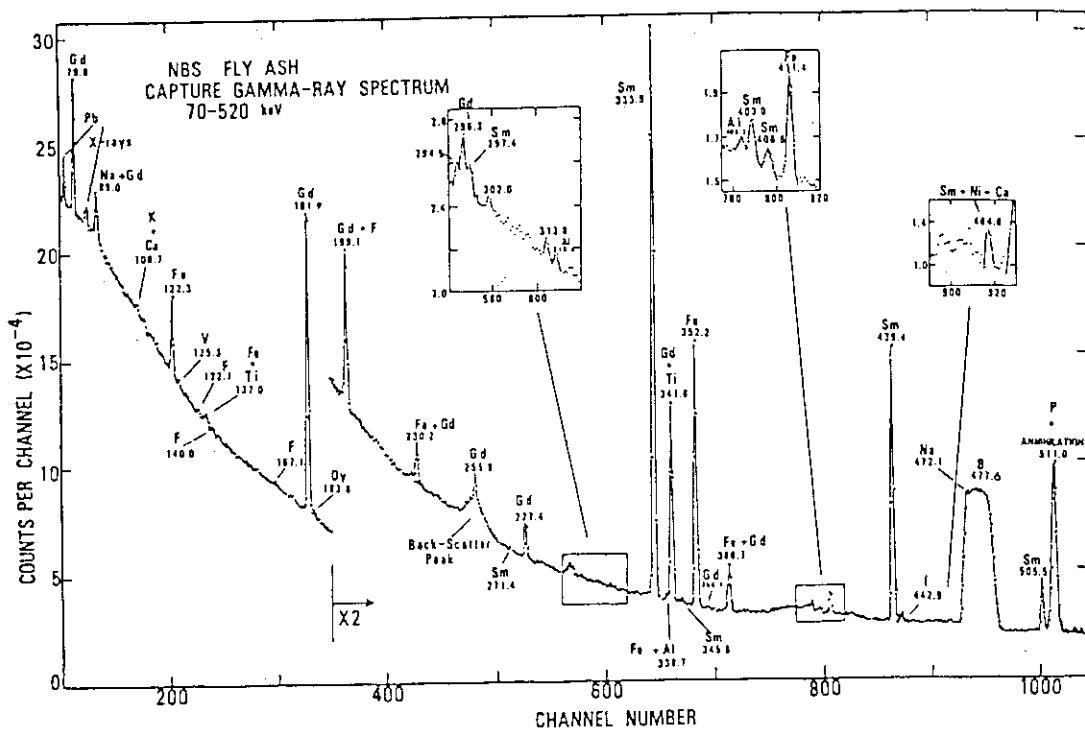


Fig.14 NBS Coal Fly Ash (SRM1633a)の即発 $\gamma$ 線スペクトル<sup>27)</sup>

## Elements Observable By INAA and PGA in NBS Coal

Fig. 15 PGAとINAAにより分析可能な元素<sup>27)</sup>

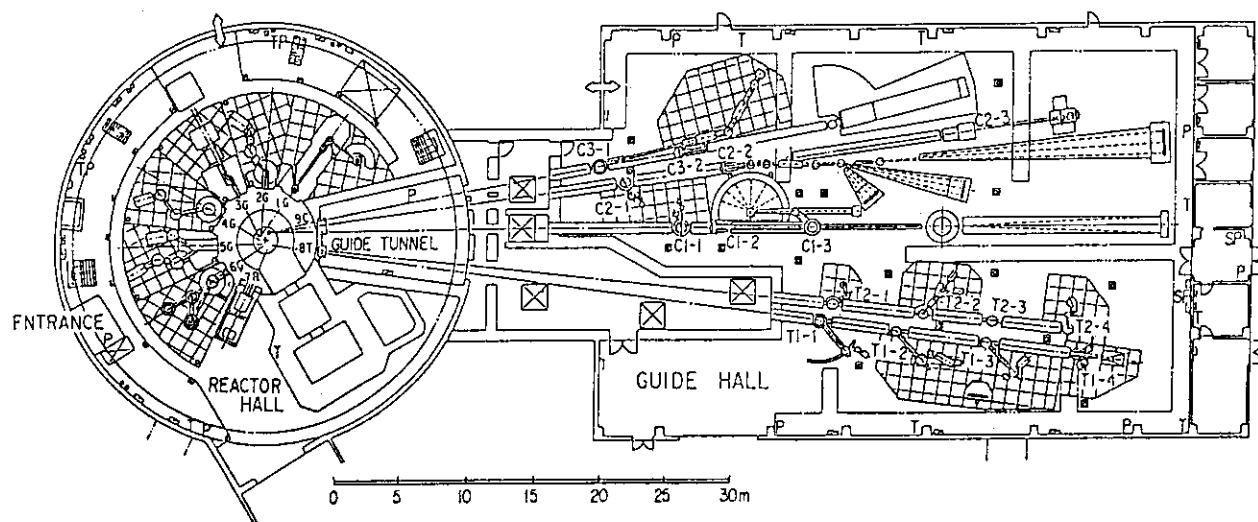


Fig. 16 J R R - 3 (改造炉) 中性子ビーム実験設備配置図<sup>56)</sup>

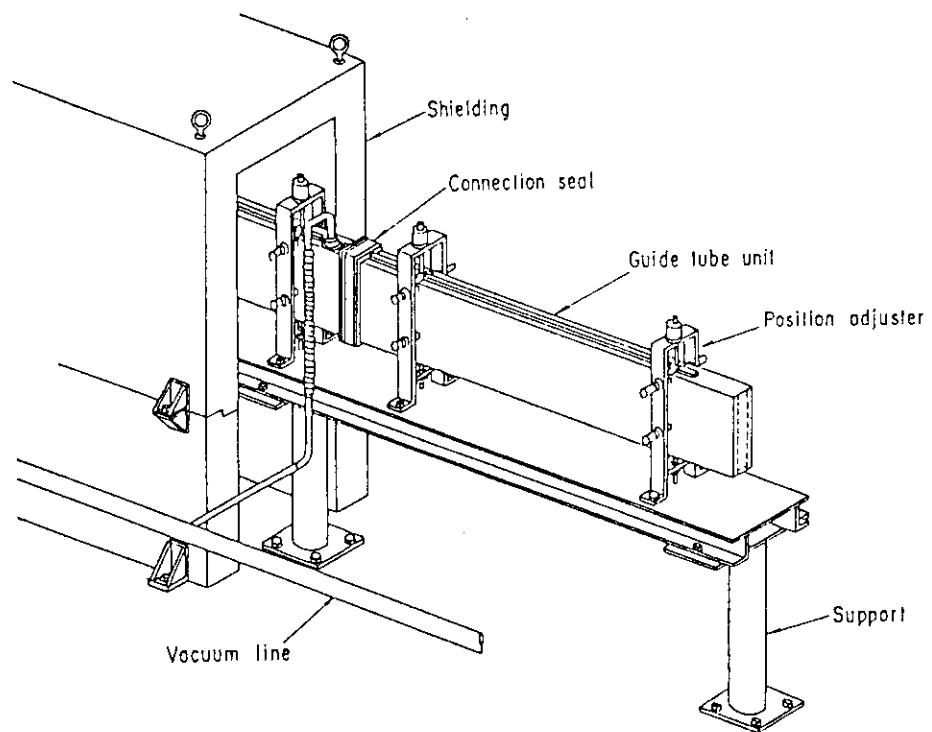


Fig.17 中性子導管鳥瞰図<sup>59)</sup>

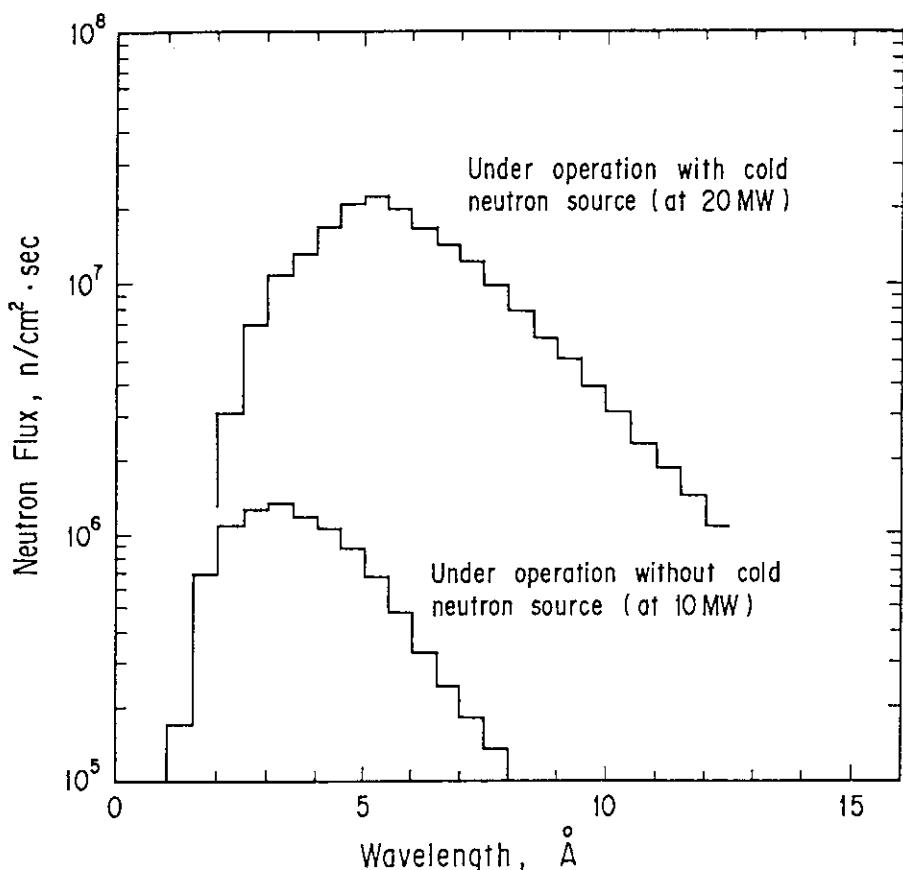


Fig.18 冷中性子ガイドビーム(C2-3-2)の中性子スペクトル<sup>59)</sup>  
原子炉熱出力：20MW(冷中性子源運転状態)  
10MW(冷中性子源停止状態)

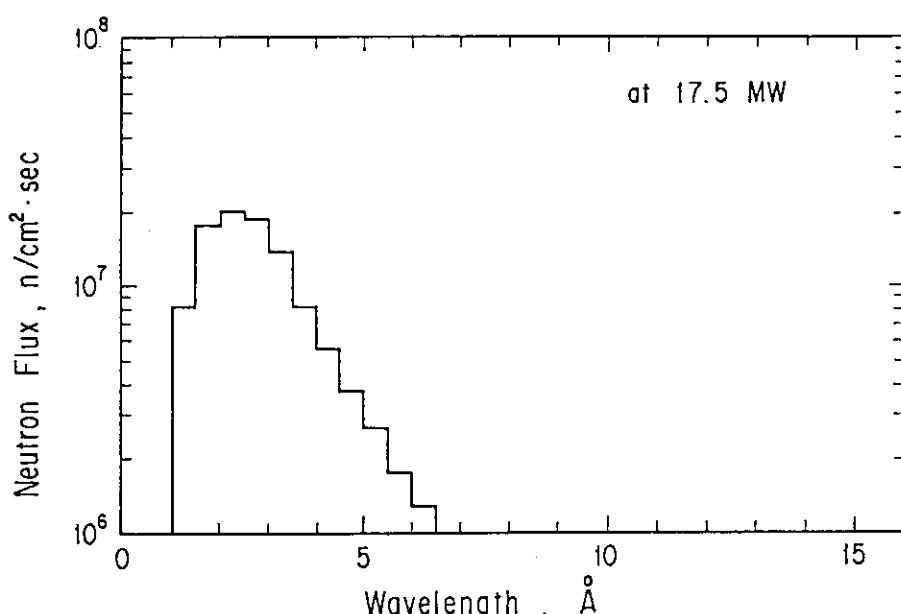


Fig.19 熱中性子ガイドビーム(T1-4-1)の中性子スペクトル<sup>59)</sup>  
原子炉熱出力：17.5 MW

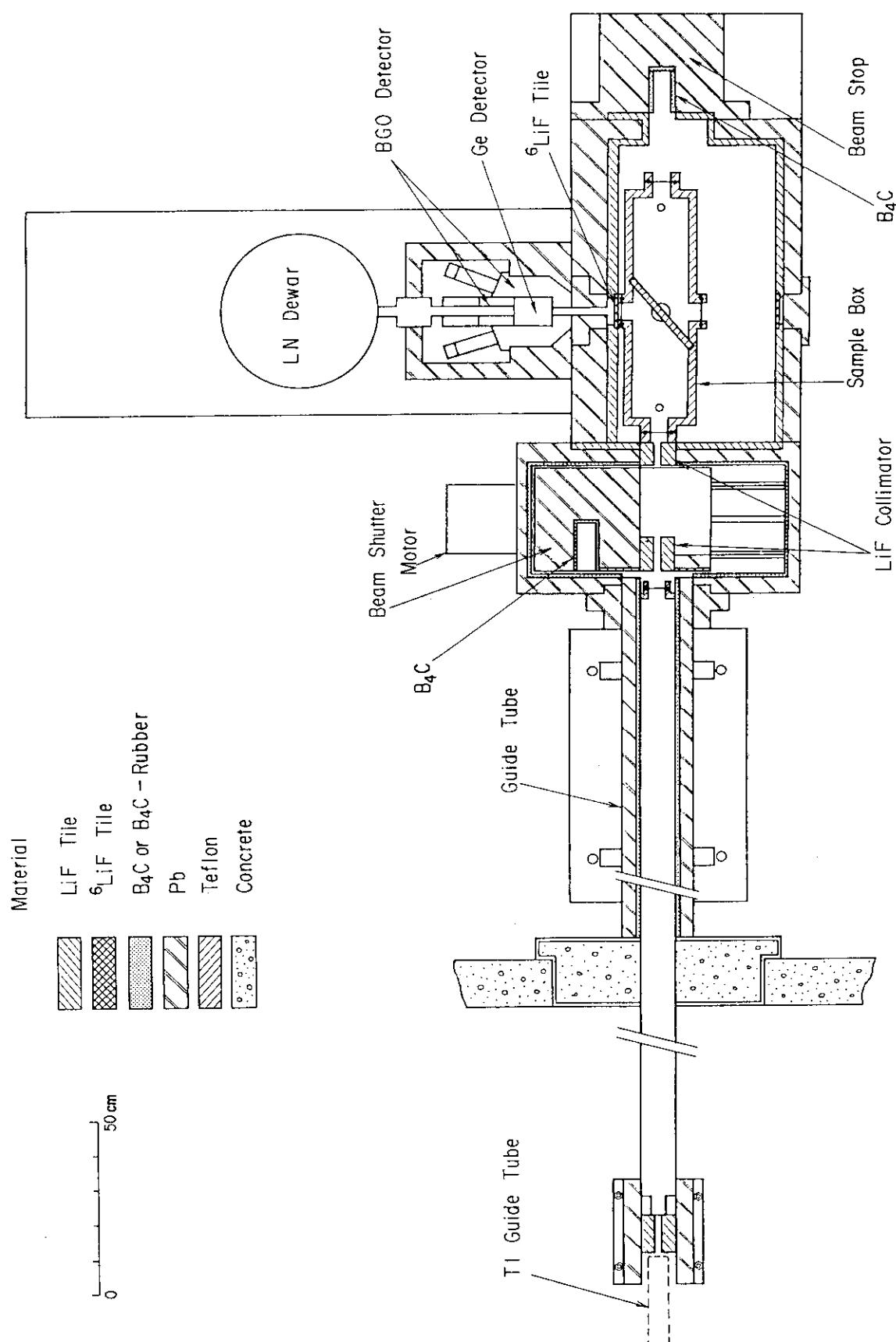


Fig. 20 JRR-3 (改造炉) PG A 装置平面断面図

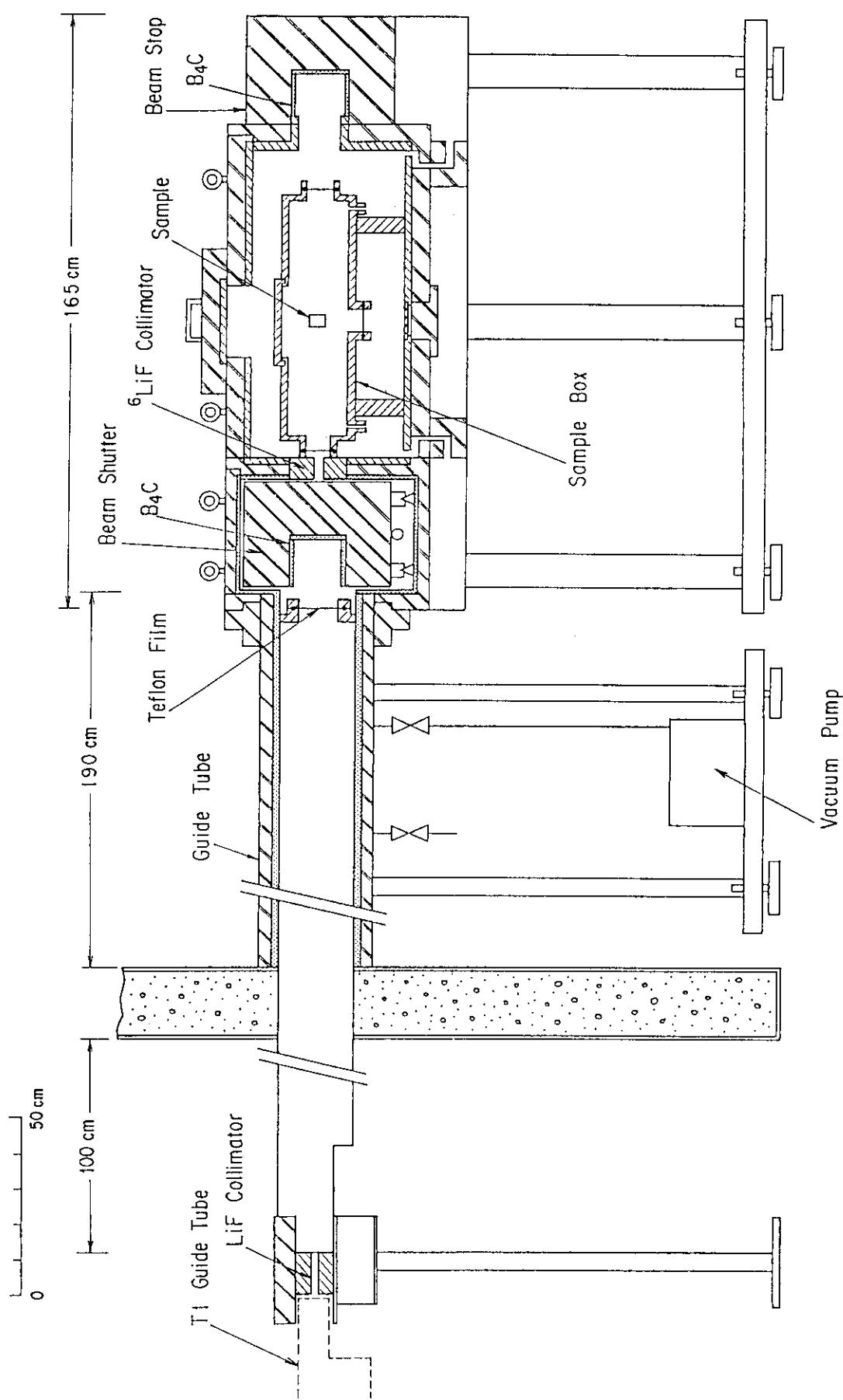


Fig. 21 JRR-3 (改造炉) PGA 装置側面断面図

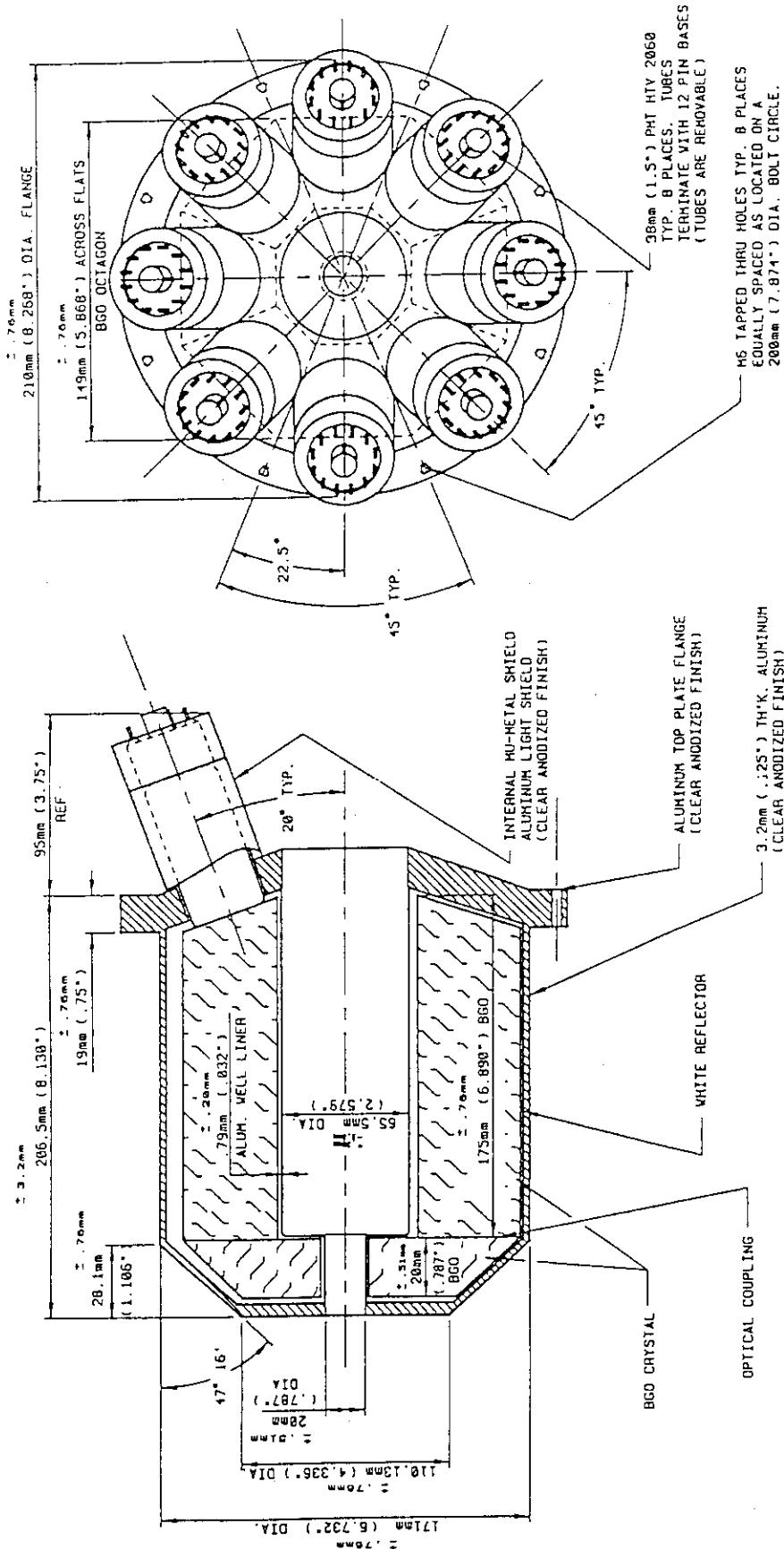


Fig. 22 BGO 主 檢 出 器

APPROXIMATE DETECTOR WEIGHT: 27.2 kg 60 lbs

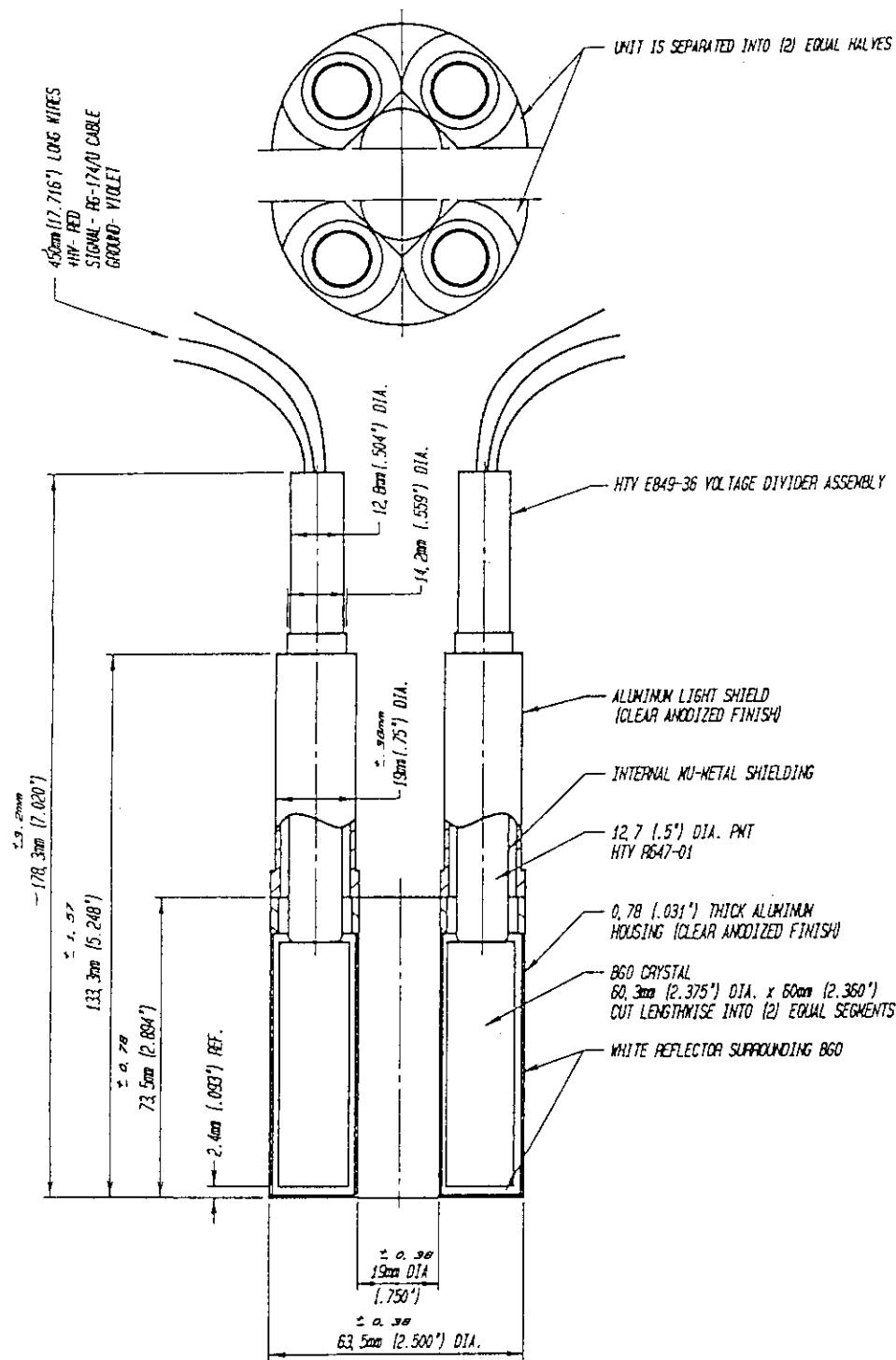


Fig.23 BGO バックシャルフ検出器