

人工バリア材料中の ^{30}Si の同位体分析

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
Σ	J1500 94-001	1994, 3, 25
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1994年3月

日本原子力研究所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

限 定 資 料
PNC ZJ1500 94-001
1994 年 3 月

人工バリア材料中の ^{30}Si の同位体分析

米沢伸四郎*, 星三千男*, 立川圓造*

要 旨

JRR-3M 冷中性子ビームを使用した中性子誘起即発 γ 線分析により、人工バリア材料中の ^{30}Si 分析法の検討を行った。同位体標準試料の測定により ^{28}Si , ^{30}Si 定量のための検量線を作成し、 ^{28}Si , ^{30}Si の分析感度を求めた。 ^{30}Si トレーサー実験の分析のために、拡散試料の測定を行い、水に浸せきする試料調製法における ^{28}Si , ^{30}Si の検出限界を求めた。2種類のベントナイト中の、 ^{28}Si , ^{30}Si の定量を行い、その検出限界を求めるとともに、H, B, Na, Mg, Al, Si, S, Cl, K, Ca, Ti, Mn, Fe, Sm, Gd の定量を行った。元素の定量結果は、Mg, S, Mn を除き動燃の値と良い一致が得られた。

本報告書は、米沢伸四郎、星三千男、立川圓造が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：050D0241

事業団担当部課室および担当者：環境技術開発部地層処分開発室 間野正室長

*：日本原子力研究所東海研究所燃料研究部分析センター

COMMERCIAL PROPRIETARY
PNC Z1500 94 001
MARCH, 1994

Isotope Analysis of ^{30}Si in Engineered Barrier Materials

Chushiro Yonezawa*

Michio Hoshi*

Enzo Tachikawa*

Abstract

Isotope analysis of ^{30}Si in engineered barrier materials for high-level radioactive waste glass disposal was performed by neutron-induced prompt γ -ray analysis (PGA) with the cold neutron guided beam of JRR-3M. Calibration curves and analytical sensitivities of ^{28}Si and ^{30}Si were obtained from measurements of standard samples of ^{28}Si and ^{30}Si . Detection limits of ^{28}Si and ^{30}Si in leached samples of ^{30}Si diffusion experiment with water were measured. Silicon-28, ^{30}Si and 15 elements (H, B, Na, Mg, Al, Si, S, Cl, K, Ca, Ti, Mn, Fe, Sm, Gd) were determined in two kinds of Bentonite. Analytical results of the elements in the samples were in good agreement with the values of PNC except Mg, S, and Mn. Detection limit of ^{28}Si and ^{30}Si were also measured in the Bentonites.

Work performed by Chushiro Yonezawa, Michio Hoshi and Enzo Tachikawa under contact with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

PNC Liaison: Tadashi Mano, Geological Isolation Technology Section, Waste Technology Development Division, Tokai Work

*: Analytical Chemistry Laboratory, Department of Chemistry and Nuclear Fuel Research, Tokai Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

目 次

1	まえがき	1
2	実験	1
2.1	装置	1
2.2	測定試料	2
2.3	実験方法	2
3	結果及び考察	3
3.1	Si 同位体の即発 γ 線測定	3
3.2	Si 同位体定量法の検討	3
3.3	^{30}Si 拡散試料の測定	4
3.4	ベントナイトの分析	4
4	あとがき	5
	文献	5
	表1~10	6~10
	図1~21	11~25

1. ま え が き

動力炉・核燃料開発事業団（動燃）では、高レベルガラス固化体放射性廃棄物の地層処分
の健全性評価の一環として、ガラス固化体及び人工バリア材として使用されるベントナ
イトの主要構成元素である Si の拡散挙動を調べるため、安定同位体 ^{30}Si のトレーサ
実験が検討されている。 ^{30}Si の同位体分析法としては、1)質量分析、2)中性子放射化分
析、3)中性子誘起即発 γ 線分析（Neutron-Induced Prompt Gamma-Ray Analysis, PGA）が
考えられる。質量分析に於いては、一酸化窒素の妨害（誘導結合プラズマ質量分析）及び
フッ化物（ $^{30}\text{Si}^{19}\text{F}_4$ ）取り扱いの困難さ（通常の質量分析）等の問題により分析がむずか
しい。また、中性子放射化分析では核反応断面積が小さいため分析感度が低く、分析が困
難である。

PGA は試料に原子炉の中性子ビームを照射し、中性子捕獲反応等の際、反応後 10^{-14} 秒
以内に放出される即発ガンマ線を測定することにより、試料中の元素又は同位体を分析す
る方法であり、他の分析法では分析が困難な H, B, N, Si, Cd, Gd 等を含む多元素を非破
壊分析ができるという特長を持つ。さらに PGA は、中性子捕獲反応等によって励起された
原子核からの脱励起 γ 線を測定する方法であるため、同位体分析も可能であり、中性子放
射化分析では生成する核種が、1)非放射性、2)測定が容易な放射線を放出しない、3)短寿
命、等の理由で分析が困難な同位体の分析も可能となる。このようなことから、JRR-3M の
冷中性子ビームガイドに設置した実験装置^{1, 2)} を使用し、PGA による人工バリア材中の
 ^{30}Si 同位体分析法の検討を行った。

2. 実 験

2.1 装 置

実験には JRR-3M 即発 γ 線分析装置を使用した。JRR-3M即発 γ 線分析装置の熱中性子ビ
ームポート（T1-4-1）における配置図を図 1 に示す。本装置は、特性波長 0.2nm の熱中
性子ビームポート（T1-4-1）又は特性波長 0.5 nm の冷中性子ビームポート（C2-3-2）で
使用可能であり、低ガンマ線バックグラウンドの装置となっている。装置の主な仕様を
表 1 に示す。本実験は冷中性子ビームポートで実験を行った。冷中性子ビームポートでの
試料位置における中性子束は、 $1.4 \times 10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ であった。本装置により γ 線エネルギ
ー 0～12 MeV のシングル、コンプトンサプレッション及びペアーの 3 モードスペクトル
をそれぞれ 8192 チャンネルのデーターとして同時に測定することができる。

2.2 測定試料

即発 γ 線測定を行った試料とその測定時間を表 2 に示す。各試料は、四フッ化エチレン六フッ化プロピレン共重合樹脂 (FEP) フィルム (厚さ 25 μm) に 15 x 15 mm の大きさに熔封した。

(1) 同位体標準試料

天然 SiO_2 : 天然同位体組成 (添川理化学製, 純度 99.99 %, 粒径 1.8 ~ 2.0 μm) を 78.49 mg 採取した。 ^{28}Si 濃度は 92.23 atom %, ^{30}Si 濃度は 3.1 atom % である。

$^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体 : $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体 (ISOTEC 社製, ^{30}Si 濃縮度 96.5 atom %) を SiO_2 として 37.35 mg 採取した。 ^{28}Si , ^{29}Si の同位体組成は不明であったため, ここでは ^{30}Si の濃度 96.5 atom % を差し引いた残りの 3.5 atom % を ^{28}Si の濃度として使用した。

$^{30}\text{SiO}_2$ 混合 1 : 天然 SiO_2 試料 49.33 mg と $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体試料 22.87 mg を混合し, 49.44 mg 採取した。 ^{28}Si 濃度は 64.12 atom %, ^{30}Si 濃度は 32.69 atom % である。

$^{30}\text{SiO}_2$ 混合 2 : $^{30}\text{SiO}_2$ 混合 1 試料 22.76 mg と天然 SiO_2 試料 49.20 mg を混合し, 42.91 mg 採取した。 ^{28}Si 濃度は 83.34 atom %, ^{30}Si 濃度は 12.46 atom % である。

(2) 拡散実験試料

$^{30}\text{SiO}_2$ トレーサー : $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体 1 mg を 10 ml の沸騰水に 2 時間浸せきし, 限外ろ過後, ろ液を FEP フィルム上に蒸発乾固した。

^{30}Si -1 拡散 : ベントナイト (クニゲル VI) をペレット状 (20 mm ϕ x 20 mm) に固め, $^{30}\text{SiO}_2$ トレーサーを塗布し拡散させ 2 mm 幅に切断した。トレーサー塗布面の切断試料を 1 ~ 2 ml の水で 5 ~ 10 分間超音波洗浄し, 洗浄水を限外ろ過した後, ろ液を FEP フィルム上に蒸発乾固した。

^{30}Si -4 拡散 : トレーサー塗布面から 4 番目の切断試料を ^{30}Si -1 拡散と同様に処理した。

(3) ベントナイト試料

クニゲル VI : 試料 0.30259g を赤外線スペクトル用錠剤成型品でペレット状 (直径 13 mm) に成型して測定した。

クニピア F : 試料 0.16296g をとり, クニゲル VI と同様直径 13 mm のペレット状に成型して測定した。

2.3 実験方法

FEP フィルムに熔封した試料を四フッ化エチレン樹脂 (PTFE) 製糸 (直径 0.3 mm) を用い, PTFE 製試料保持具に固定し, これを PTFE 製試料箱にセットし, He を 1000 cc/min の流速で流しながら, 5,000 ~ 25,000 s 即発 γ 線スペクトルを測定した。得られた即発 γ 線スペクトルはセイコー E G & G 製 γ 線解析プログラムにより解析を行った。中性子束

の変動は、Ti 中性子束モニター (Ti 0.05 mm厚) の即発 γ 線スペクトル測定を 500 s 行い、341 と 1381 keV のピーク面積の平均値 181.3(CPS) を使用して行った。

3. 結果及び考察

3.1 Si 同位体の即発 γ 線測定

^{30}Si の定量条件を確立するため、Si 同位体標準試料の測定を行った。天然同位体組成 SiO_2 、 $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体、天然同位体組成 SiO_2 と $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体との混合試料 ($^{30}\text{SiO}_2$ 混合1) のコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトルを図 2~4 に示す。各スペクトル中には ^{28}Si 、 ^{29}Si 、 ^{30}Si の即発 γ 線のピークが確認された。各ピークが ^{28}Si 、 ^{30}Si から放射されていることを確認するため、Ti 中性子束モニターの計数値で規格化した ^{28}Si 及び ^{30}Si の比計数率 (^{28}Si 、 ^{30}Si cps/Si mg/Ti Av. cps) と Si 原子中の ^{28}Si 及び ^{30}Si の濃度 (atom %) との相関関係を調べた。結果を表 3, 4 及び図 5~12 に示す。図 5, 6, 8, 9 より 3539, 1273, 2093, 3661, 3954 keV のピークは、 ^{28}Si 比計数率と ^{28}Si 濃度間には良い相関関係が得られ、これらのピークは ^{28}Si に起因することが確認された。図 7 の 2426 keV のピークについてはピーク面積が小さく ^{28}Si との間には相関関係は認められなかった。図 10~12 より、752, 2205, 2780, 3054 keV ピークの ^{30}Si 比計数率と ^{30}Si 濃度間には相関関係が得られ、これらのピークは ^{30}Si に起因することが確認された。また、 ^{28}Si 1273, 2426, 3539 keV と ^{30}Si 752, 2780, 3054 keV のピークについて、 ^{28}Si 、 ^{30}Si のピーク面積比 (^{30}Si cps/ ^{28}Si cps) と、 ^{28}Si と ^{30}Si の同位体比の関係をプロットした。結果を図 13 と表 5 に示す。ピーク面積比と同位体比との間には良い直線関係が得られ、これらのピークは図 13 及び表 5 のデータからも ^{28}Si 、 ^{30}Si に起因 γ 線ピークであることが確認された。

3.2 Si 同位体定量法の検討

3.1 項の実験で得られた Si 同位体標準試料の即発 γ 線スペクトルより、 ^{28}Si と ^{30}Si 定量のための検量線を作成した。 γ 線放出率の大きな ^{28}Si 1273, 3539 keV、 ^{30}Si 752, 2780, 3054 keV のピークを、Ti 中性子束モニターの計数値で規格化し、 ^{28}Si 、 ^{30}Si 重量 (mg) と ^{28}Si 、 ^{30}Si の比計数率 (^{28}Si 、 ^{30}Si cps/Ti Av. cps) との関係プロットした。結果を図 14, 15 に示す。また検量線作成のためのデータを表 6 に示す。 ^{28}Si 、 ^{30}Si の比計数率と ^{28}Si 、 ^{30}Si 量の間には、良い比例関係が得られた。

^{28}Si 、 ^{30}Si の分析感度は、単位重量 (mg) ^{28}Si 又は ^{30}Si あたりの ^{28}Si 又は ^{30}Si の計数値を中性子束モニターの計数値で規格化して求めた。結果を表 7 に示す。 ^{28}Si 、 ^{30}Si

の分析感度と ^{28}Si , ^{30}Si 重量 (mg) のプロットを図 16, 17 に示す。 ^{28}Si において, $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体の分析感度が他の試料の分析感度の値と差がみられた。これは $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体試料中の ^{28}Si の同位体組成が不明であるため, ^{30}Si 以外を ^{28}Si と仮定し計算したためと思われる。このことから天然同位体組成 SiO_2 , $^{30}\text{SiO}_2$ 混合 1, $^{30}\text{SiO}_2$ 混合 2 の平均値を ^{28}Si の分析感度とした。 ^{28}Si の分析感度は, 1273keV 8.89×10^{-5} , 3539keV 1.54×10^{-4} であり, ^{30}Si の分析感度は 752keV 4.44×10^{-4} , 2780keV 1.13×10^{-4} , 3054keV 1.23×10^{-4} であった。

3.3 ^{30}Si 拡散試料の測定

^{30}Si トレーサー実験の分析のため, ^{30}Si 拡散試料の即発 γ 線スペクトルを測定した。得られた ^{30}Si -1 拡散試料のコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトルを図 18 に示す。また, バックグラウンドとして FEP フィルムの即発 γ 線スペクトルを図 19 に示す。 $^{30}\text{SiO}_2$ トレーサー, ^{30}Si -1 拡散及び, ^{30}Si -4 拡散のいずれの試料においても ^{28}Si , ^{30}Si の γ 線のピークは確認されなかった。このことから各試料のスペクトル中 ^{28}Si 1273, 3539keV 及び ^{30}Si 752, 2780, 3054keV の γ 線ピーク領域の計数値の標準偏差の 3 倍 (3σ) をピークの検出限界として, ^{28}Si と ^{30}Si の検出限界 (mg) を求めた。得られた結果を表 8 に示す。 ^{28}Si の検出限界は 3539keV の値が最も低く $^{30}\text{SiO}_2$ トレーサー 0.11mg, ^{30}Si -1 拡散 0.046 mg, ^{30}Si -4 拡散 0.079 mg であった。 ^{30}Si の検出限界は 752keV の値が最も低く $^{30}\text{SiO}_2$ トレーサー 0.090 mg, ^{30}Si -1 拡散 0.044 mg, ^{30}Si -4 拡散 0.067 mg であった。これらの結果より, 1) ^{28}Si と ^{30}Si の定量には 3539(^{28}Si) 及び 752(^{30}Si)keV ピークが最適である, 2) ^{30}Si 拡散実験のための定量としては, さらに高濃度になる試料調製法が必要である事が判明した。

3.4 ベントナイトの分析

PGA によりベントナイト (クニゲル VI, クニピア F) 中の ^{28}Si , ^{30}Si 同位体及び元素の定量を行った。ベントナイトのコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトルを図 20, 21 に示す。図のように ^{28}Si , ^{29}Si , ^{30}Si 及び H, B, Na, Mg, Al, Si, S, Cl, K, Ca, Ti, Mn, Fe, Sm, Gd 合計 15 元素の即発 γ 線が検出された。各ピークのピーク面積から ^{28}Si , ^{30}Si の定量及び 15 元素の定量を行った。検出限界は, 各ピークのベースライン計数値の標準偏差の 3 倍 (3σ) をピークの検出限界として各元素の検出限界を求めた。結果を表 9, 10 に示す。 ^{28}Si , ^{30}Si の定量値は, クニゲル VI 350 (^{28}Si), 12.4 (^{30}Si) mg/g, クニピア F 294 (^{28}Si), 10.4 (^{30}Si) mg/g であった。また, 検出限界はクニゲル VI 1.5 (^{28}Si), 0.95 (^{30}Si) mg/g, クニピア F 1.8 (^{28}Si), 1.2 (^{30}Si) mg/g であった。元素の定量値と動燃の分析値を比較した結果, Mn, クニゲル VI 中の Mg, S を除き 30% 以内での一致が得

られた。

4. あとがき

冷中性子ビームを使用した PGA により、人工バリア材料中 ^{30}Si の定量法の検討を行った結果、以下の事項が明らかになった。

- 1) Si 同位体標準試料の測定した結果、 ^{28}Si の即発 γ 線の中では 3539keV γ 線が最も高感度であり、 ^{30}Si の即発 γ 線の中では 752keV が最も高感度であった。 ^{28}Si 3539keV, ^{30}Si 752keV の分析感度は $1.54 \times 10^{-4} (^{28}\text{Si})$, $4.44 \times 10^{-4} (^{30}\text{Si})$ であった。
- 2) ^{30}Si 拡散実験試料中 ^{28}Si , ^{30}Si は検出されなかった。 ^{28}Si と ^{30}Si の検出限界を求めた結果、 $^{30}\text{SiO}_2$ トレーサー試料 0.11(^{28}Si), 0.090(^{30}Si) mg, 拡散試料 0.079(^{28}Si), 0.067(^{30}Si) mg であった。
- 3) 2種類のベントナイト中の ^{28}Si , ^{30}Si の定量を行った結果、 ^{28}Si , ^{30}Si はクニゲルVI 350(^{28}Si), 12.4(^{30}Si) mg/g, クニピアF 294(^{28}Si), 10.4(^{30}Si) mg/g であり、検出限界はクニゲルVI 1.5(^{28}Si), 0.95(^{30}Si) mg/g, クニピアF 1.8(^{28}Si), 1.2(^{30}Si) mg/g であった。また、2種類のベントナイト中の 15 元素の定量結果は、Mg, S, Mn を除き動燃の値と良い一致が得られた。

本受託研究は、下記の者が担当した

責任者	燃料研究部部长	立川圓造
担当者	燃料研究部分析センター室長	星三千男
	燃料研究部分析センター	米沢伸四郎

また、本受託研究は、財団法人放射線照射振興協会 黒沢達也、千田充久の協力により行われた。特に黒沢達也氏の労力は多大なものであった。両氏に感謝をする。

文 献

- 1) C. Yonezawa, A. K. Haji Wood, M. Hoshi, Y. Ito, E. Tachikawa., *Nucl. Instrum. Methods*, **A329**, 207(1993).
- 2) C. Yonezawa, *Anal. Sci.*, **9**, 185(1993).

表1 JRR-3M 即発 γ 線分析装置の主な仕様

	冷中性子 (C2-3-2)	熱中性子 (T1-4-1)
中性子源		
中性子束($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)	1.4×10^8	2.4×10^7
中性子エネルギー(meV)	3.0(0.52nm)	15(0.23nm)
ビームサイズ(mm)	20×20	20×20
試料-検出器間距離(cm)	29.5	24.5
γ 線スペクトロメーター		
検出器 Ge 検出器	n型 HPGe, FWHM 1.75keV. 相対検出効率 23.8%	
BGO 検出器	主 BGO (結晶部寸法 171mm ϕ ×206mm, 20~39mm厚) キリッパ-BGO (結晶寸法 60.3mm ϕ × 60mm)	
波高分析器	セイコー EG&G 7800, 8192ch ADC 4台	
測定モード	シングル, コンプトンサブレゾリューション, Λ° ア-	
照射雰囲気	He	

表2 測定試料及び測定時間

試料名	試料量 (mg)	測定時間 (s)
同位体標準試料		
天然SiO ₂	78.49	5000
³⁰ SiO ₂ 濃縮同位体	37.35	10000
³⁰ SiO ₂ 混合1	49.44	5000
³⁰ SiO ₂ 混合2	42.91	5000
拡散実験試料		
³⁰ SiO ₂ トレーサー試料	FEPフィルム上に蒸発乾固	5000
³⁰ Si-1拡散試料	〃	25000
³⁰ Si-4拡散試料	〃	10000
ベントナイト試料		
クニゲルVI	302.59	10000
クニピアF	162.96	10000

表3 同位体標準試料中 ^{28}Si , ^{30}Si の組成

	天然 SiO_2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合1	$^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体
SiO_2 重量 (mg)	78.49	42.91	49.44	37.35
Si重量 (mg)	36.69	20.06	23.11	17.46
^{28}Si 濃度 (atom %)	92.23	83.34*	64.12*	3.5*
^{28}Si 重量 (mg)	33.84	16.72	14.82	0.6111
^{30}Si 濃度 (atom %)	3.1	12.46	32.69	96.5
^{30}Si 重量 (mg)	1.137	2.499	7.555	16.85

* $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体中の ^{28}Si 濃度を 3.5 atom % として計算した。

表4 同位体標準試料の ^{28}Si , ^{30}Si 即発 γ 線測定結果

同位体	E_γ keV	^{28}Si , ^{30}Si 比計数率 (^{28}Si , ^{30}Si cps/Si mg/Ti Av. cps)			
		天然 SiO_2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合1	$^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体
^{28}Si	1273	7.81×10^{-5} (0.519)	7.86×10^{-5} (0.286)	5.62×10^{-5} (0.236)	1.61×10^{-5} (0.00508)
	2093	6.50×10^{-5} (0.432)	6.07×10^{-5} (0.221)	4.40×10^{-5} (0.184)	— (—)
	2426	8.71×10^{-6} (0.0579)	9.81×10^{-6} (0.0357)	7.16×10^{-6} (0.0300)	— (—)
	3539	1.43×10^{-4} (0.951)	1.31×10^{-4} (0.478)	9.55×10^{-5} (0.400)	2.79×10^{-6} (0.00882)
	3539	1.48×10^{-4} (0.982)	1.37×10^{-4} (0.498)	1.01×10^{-4} (0.425)	2.66×10^{-6} (0.00843)
	3661	7.66×10^{-6} (0.0509)	7.25×10^{-6} (0.0264)	5.54×10^{-6} (0.0232)	— (—)
	3954	3.93×10^{-6} (0.0261)	3.82×10^{-6} (0.0139)	2.99×10^{-6} (0.0125)	— (—)
^{30}Si	752	1.41×10^{-5} (0.0935)	5.26×10^{-6} (0.191)	1.40×10^{-4} (0.587)	4.57×10^{-4} (1.45)
	2205	— (—)	2.60×10^{-6} (0.00946)	1.14×10^{-5} (0.0478)	2.89×10^{-5} (0.0916)
	2780	3.02×10^{-6} (0.0201)	1.27×10^{-5} (0.0463)	4.15×10^{-5} (0.174)	1.22×10^{-4} (0.386)
	3054	4.38×10^{-6} (0.0291)	1.39×10^{-5} (0.0507)	3.86×10^{-5} (0.162)	1.18×10^{-4} (0.373)

() 内はピーク面積 (cps)

Ti Av. cps = 181.3

表5 同位体標準試料の ^{28}Si , ^{30}Si ピーク面積比

E, keV	天然 SiO_2	$^{30}\text{Si}/^{28}\text{Si}$ ピーク面積比		
		$^{30}\text{SiO}_2$ 混合2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合1	$^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体
752/1273	0.180	0.669	2.49	285
752/2426	1.61	5.36	19.6	-
752/3539	0.0982	0.401	1.47	164
2780/1273	0.0387	0.162	0.739	76.0
2780/3539	0.0211	0.0970	0.435	43.8
3054/1273	0.0561	0.177	0.687	73.4
3054/3539	0.0306	0.106	0.404	42.3
$^{30}\text{Si}/^{28}\text{Si}$ 同位体比	0.0336	0.149*	0.510*	27.6

* $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体中の ^{28}Si 濃度を 3.5 atom % として計算した。

表6 ^{28}Si , ^{30}Si 検量線作成のためのデータ

同位体	E, (keV)	$^{28}, ^{30}\text{Si}$ 比計数率 ($^{28}, ^{30}\text{Si}$ cps/Ti Av. cps)			
		天然 SiO_2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合1	$^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体
^{28}Si	1273	2.86×10^{-3}	1.58×10^{-3}	1.30×10^{-3}	2.80×10^{-5}
	3539	5.25×10^{-3}	2.63×10^{-3}	2.21×10^{-3}	4.86×10^{-5}
^{30}Si	752	5.15×10^{-4}	1.06×10^{-3}	3.24×10^{-3}	7.97×10^{-3}
	2780	1.11×10^{-4}	2.55×10^{-4}	9.60×10^{-4}	2.13×10^{-3}
	3054	1.61×10^{-4}	2.79×10^{-4}	8.92×10^{-4}	2.06×10^{-3}

Ti Av. cps = 181.3

表7 ^{28}Si , ^{30}Si の分析感度

同位体	E_r (keV)	$^{28,30}\text{Si}$ 分析感度 ($^{28,30}\text{Si}$ cps/Ti Av. cps/ $^{28,30}\text{Si}$ mg)				
		天然 SiO_2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合2	$^{30}\text{SiO}_2$ 混合1	$^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体	平均
^{28}Si	1273	8.46×10^{-5}	9.43×10^{-5}	8.77×10^{-5}	(4.59×10^{-5})	8.89×10^{-5} *
	3539	1.55×10^{-4}	1.58×10^{-4}	1.49×10^{-4}	(7.96×10^{-5})	1.54×10^{-4} *
^{30}Si	752	4.53×10^{-4}	4.22×10^{-4}	4.29×10^{-4}	4.73×10^{-4}	4.44×10^{-4}
	2780	9.75×10^{-5}	1.02×10^{-4}	1.27×10^{-4}	1.26×10^{-4}	1.13×10^{-4}
	3054	1.41×10^{-4}	1.12×10^{-4}	1.18×10^{-4}	1.22×10^{-4}	1.23×10^{-4}

Ti Av. cps = 181.3

* 天然 SiO_2 , $^{30}\text{SiO}_2$ 混合2, $^{30}\text{SiO}_2$ 混合1 の平均値

表8 拡散実験試料中 ^{28}Si , ^{30}Si の検出限界

同位体	E_r keV	分析感度*	検出限界					
			$^{30}\text{SiO}_2$ トレーサー試料		^{30}Si -1拡散試料		^{30}Si -4拡散試料	
			cps	mg	cps	mg	cps	mg
^{28}Si	1273	8.89×10^{-5}	0.00609	0.38	0.00272	0.17	0.00397	0.25
	3539	1.54×10^{-4}	0.00300	0.11	0.00128	0.046	0.00221	0.079
^{30}Si	752	4.44×10^{-4}	0.00725	0.090	0.00353	0.044	0.00543	0.067
	2780	1.13×10^{-4}	0.00262	0.13	0.00150	0.073	0.00263	0.13
	3054	1.23×10^{-4}	0.00472	0.21	0.00227	0.10	0.00393	0.18

Ti Av. cps = 181.3

* $^{28,30}\text{Si}$ cps/Ti Av. cps/ $^{28,30}\text{Si}$ mg

表9 ベントナイト中 ^{28}Si , ^{30}Si の定量値及び検出限界

同位体	E _r keV	分析感度*	定量値及び検出限界 (mg/g)			
			クニゲルVI		クニピアF	
			定量値	検出限界	定量値	検出限界
^{28}Si	1273	8.89×10^{-5}	351	3.6	296	4.8
	3539	1.54×10^{-4}	349	1.5	292	1.8
	Av.		350		294	
^{30}Si	752	4.44×10^{-4}	13.5	0.95	10.4	1.2
	2780	1.13×10^{-4}	10.9	2.1	9.78	2.7
	3054	1.23×10^{-4}	12.8	1.8	11.0	2.2
	Av.		12.4		10.4	

Ti Av. cps = 181.3

*: ^{28}Si , ^{30}Si cps/Ti Av. cps/ ^{28}Si , ^{30}Si mg

表10 ベントナイト中の元素の定量結果

元 素	クニゲルVI		クニピアF	
	定量値	他の値*	定量値	他の値*
H (%)	0.474	—	0.890	—
B (ppm)	25.4	—	45.7	—
Na (%)	2.35	1.91	2.94	2.54
Mg (%)	2.92	1.36	1.83	1.95
Al (%)	8.00	7.30	12.5	11.6
Si (%)	34.0	33.0	28.4	28.7
S (%)	0.530	0.290	0.132	0.130
Cl (ppm)	64.0	—	353	300
K (%)	0.335	0.274	0.108	0.0830
Ca (%)	1.80	1.64	0.383	0.364
Ti (%)	0.128	0.120	0.0892	—
Mn (ppm)	826	170	45.1	77.4
Fe (%)	1.56	1.52	1.60	1.45
Sm (ppm)	7.80	—	6.25	—
Gd (ppm)	7.50	—	5.61	—

* : 動燃の値

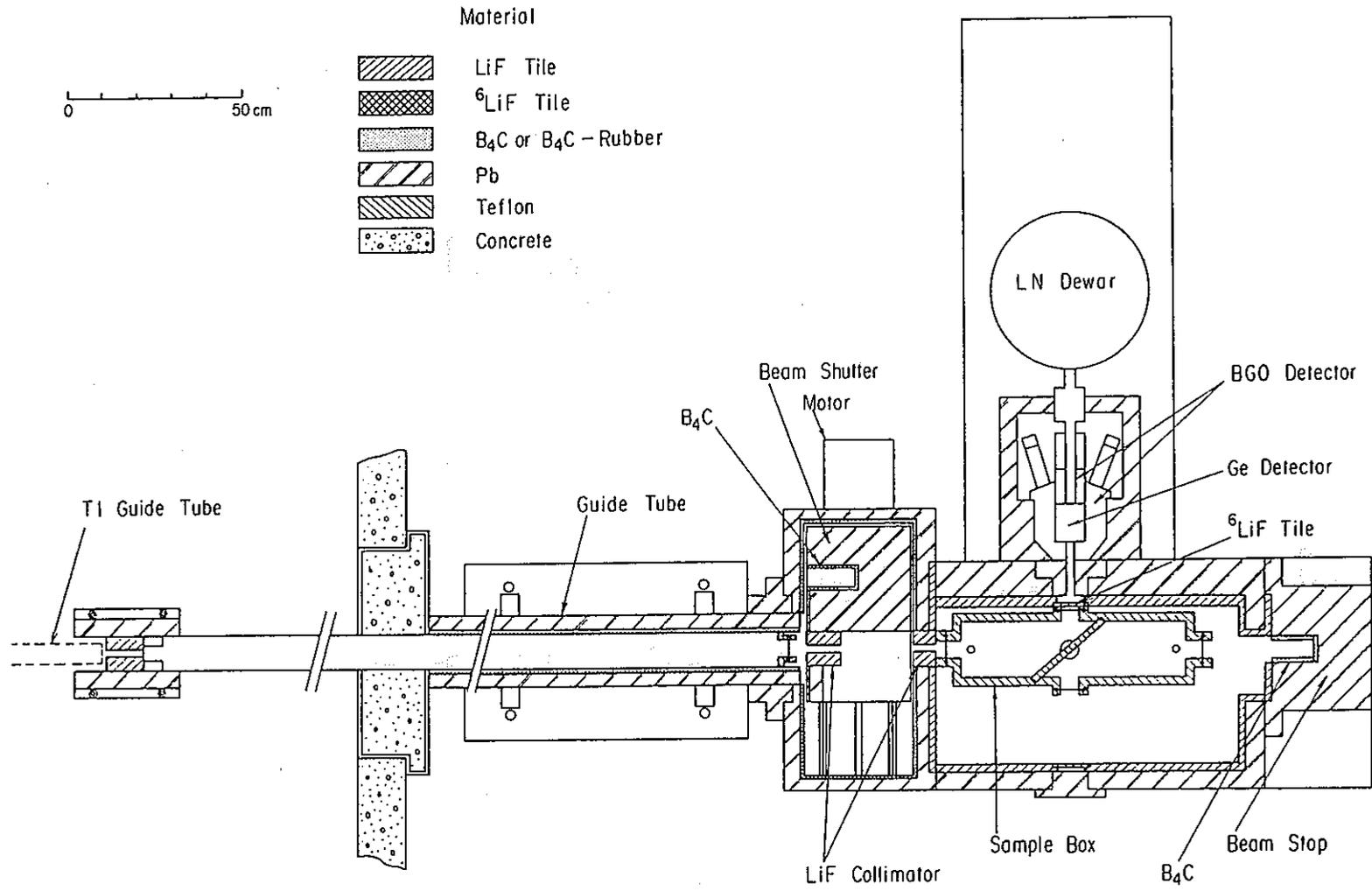


図 1 JRR-3M 即発 γ 線分析装置の熱中性子ビームポートにおける配置図¹⁾

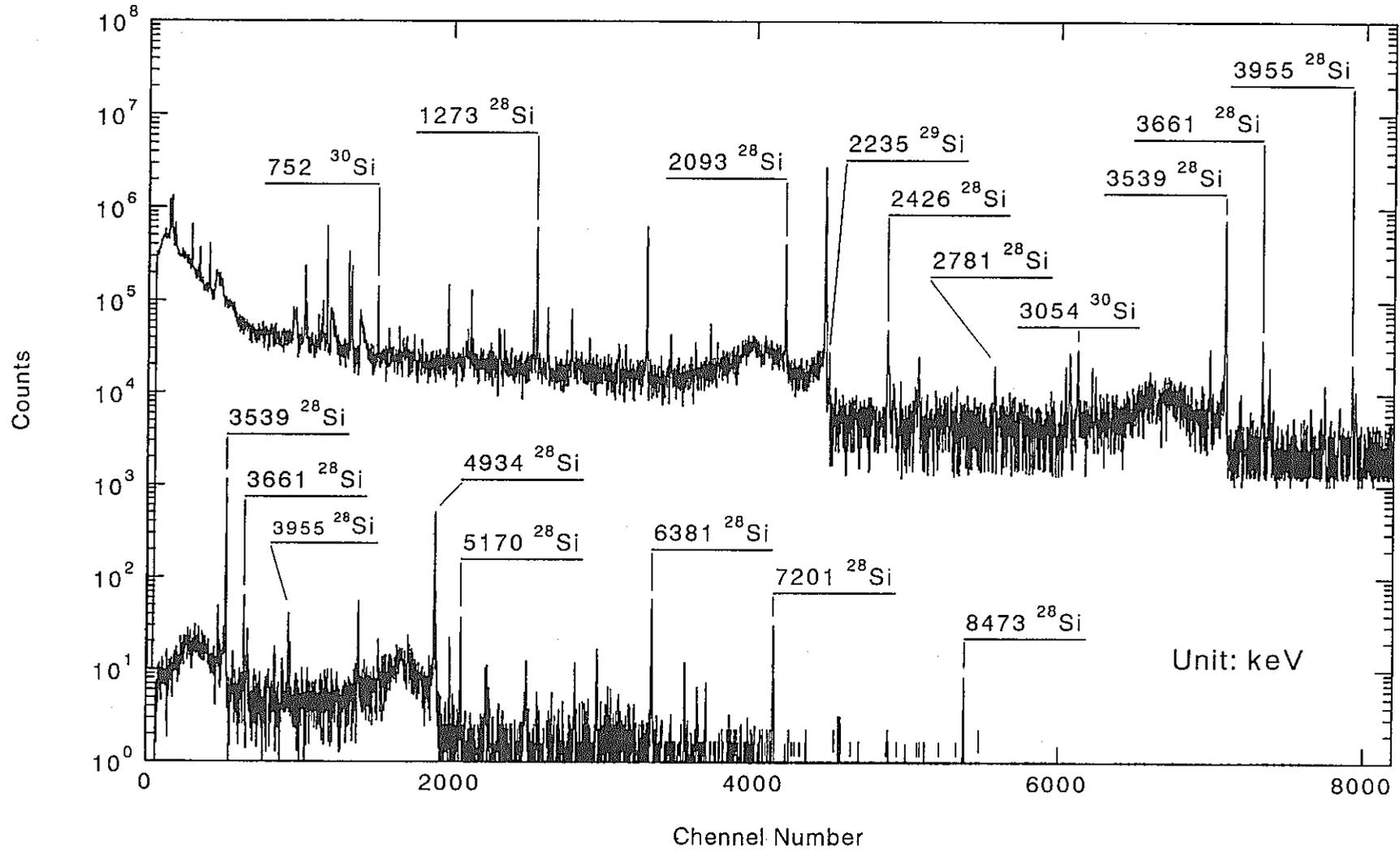


図 2 天然 SiO_2 のコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトル
測定時間 5000 s

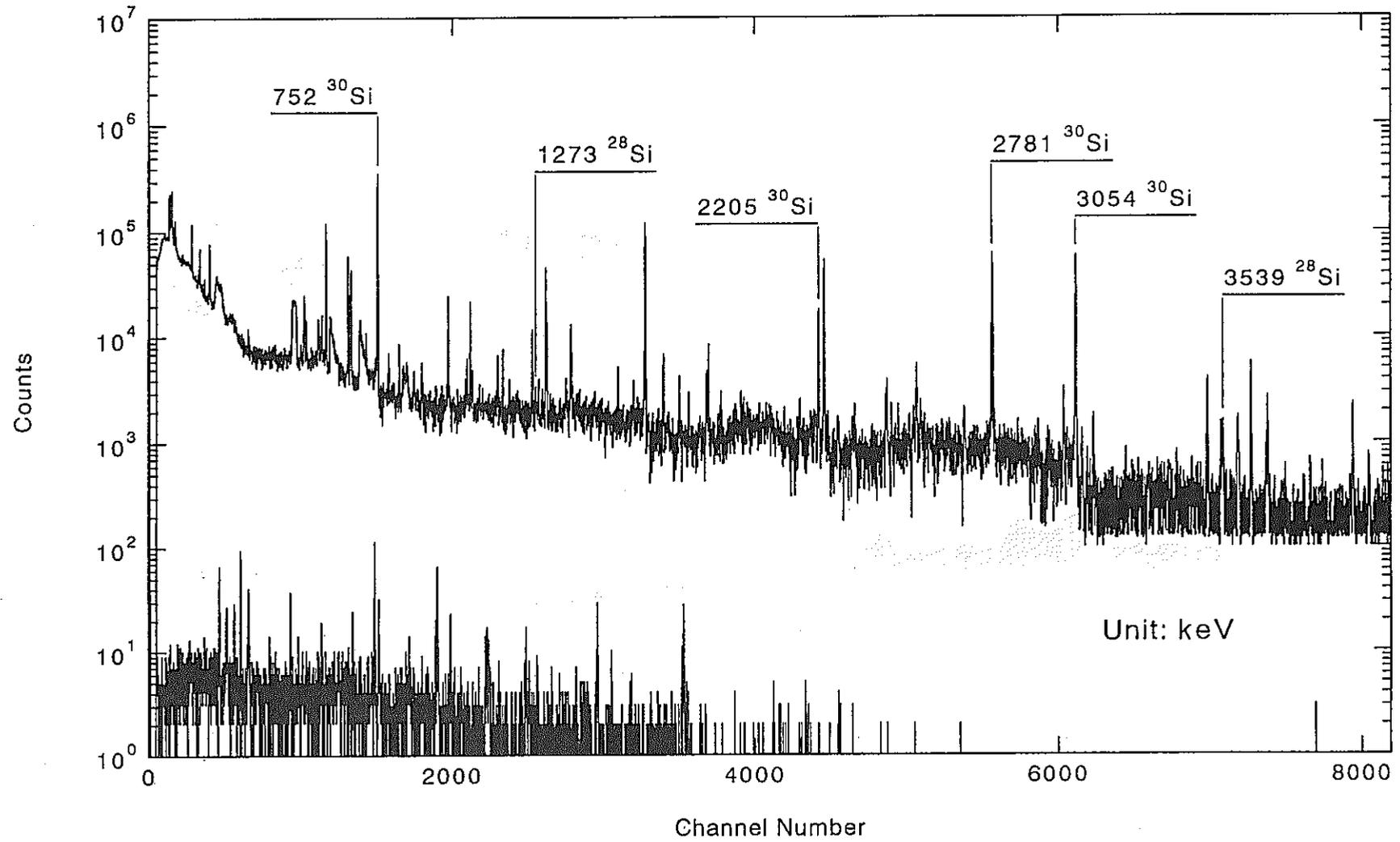


図 3 $^{30}\text{SiO}_2$ 濃縮同位体のコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトル
測定時間 10000 s

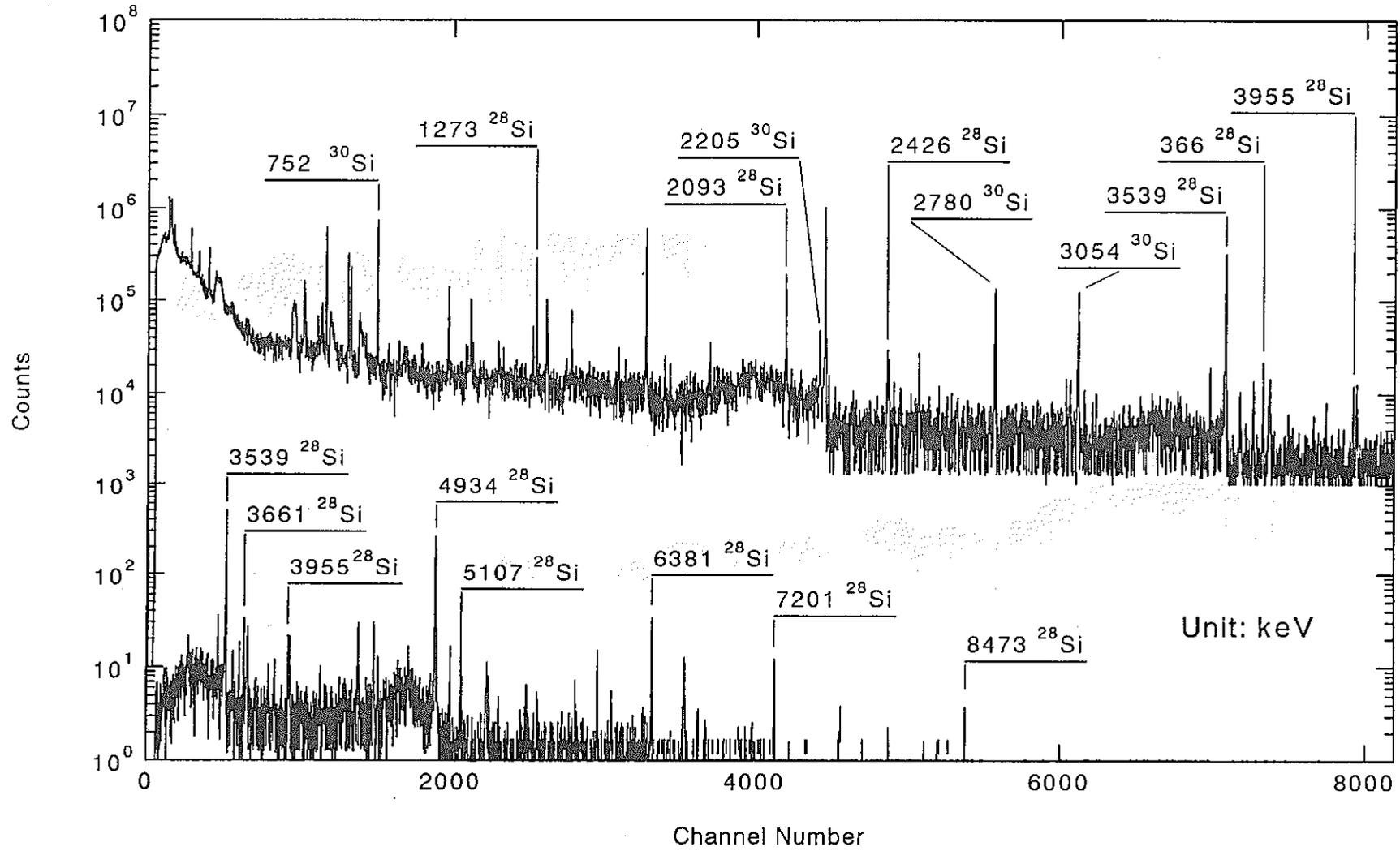


図 4 $^{30}\text{SiO}_2$ 混合 1 のコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトル
測定時間 5000 s

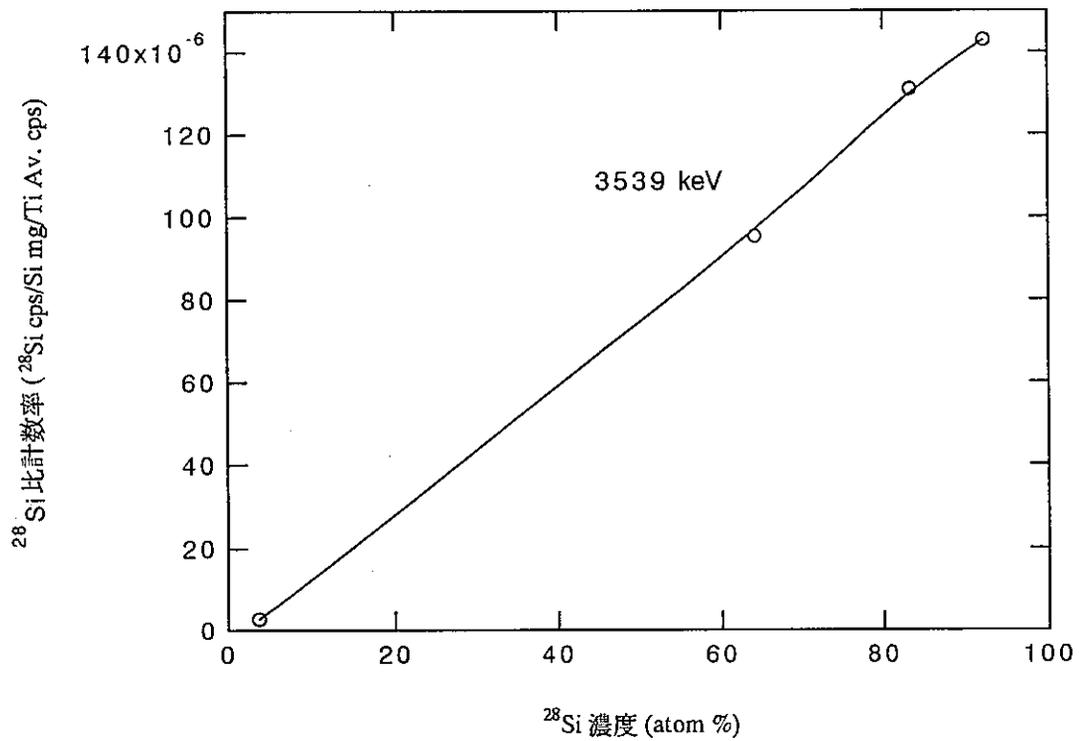


図 5 ^{28}Si 濃度と 3539 keV ピークの ^{28}Si 比計数率のプロット

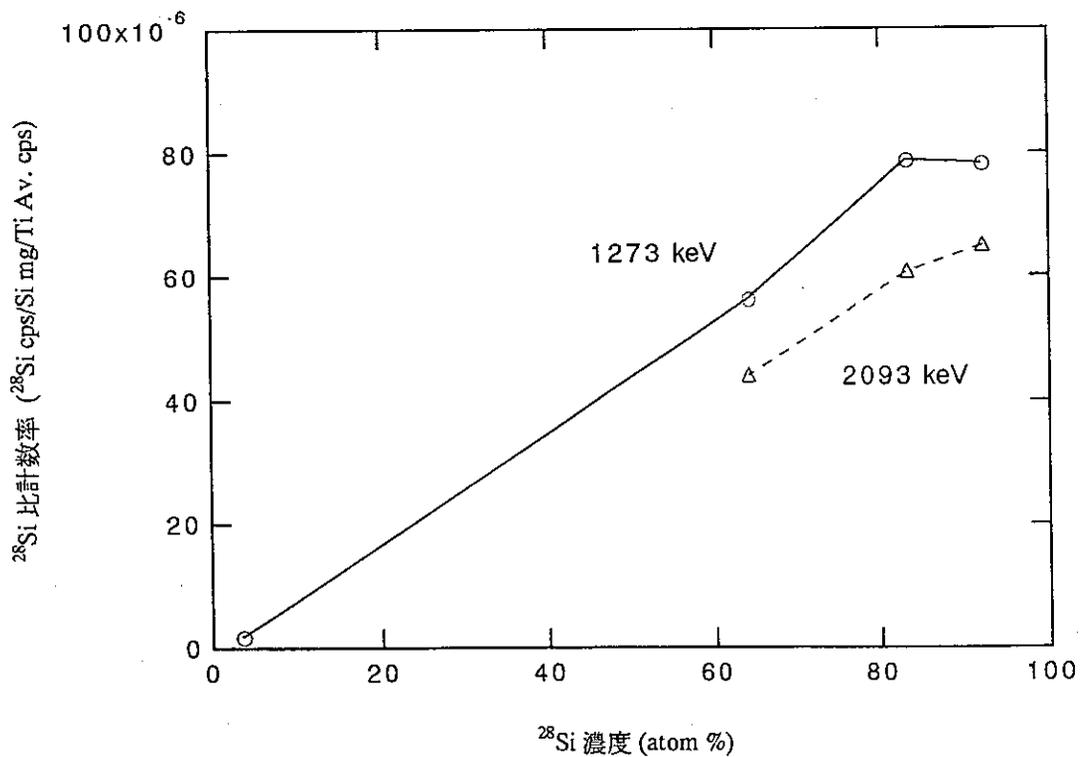


図 6 ^{28}Si 濃度と 1273, 2093 keV ピークの ^{28}Si 比計数率のプロット

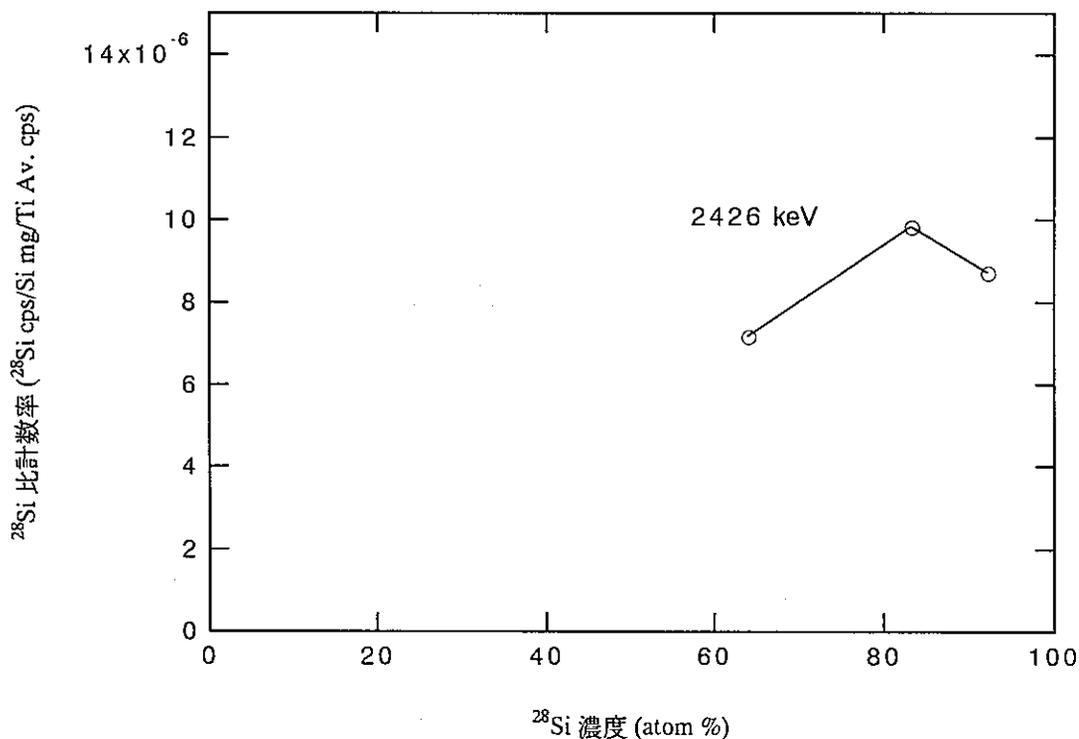


図 7 ^{28}Si 濃度と 2426 keV ピークの ^{28}Si 比計数率のプロット

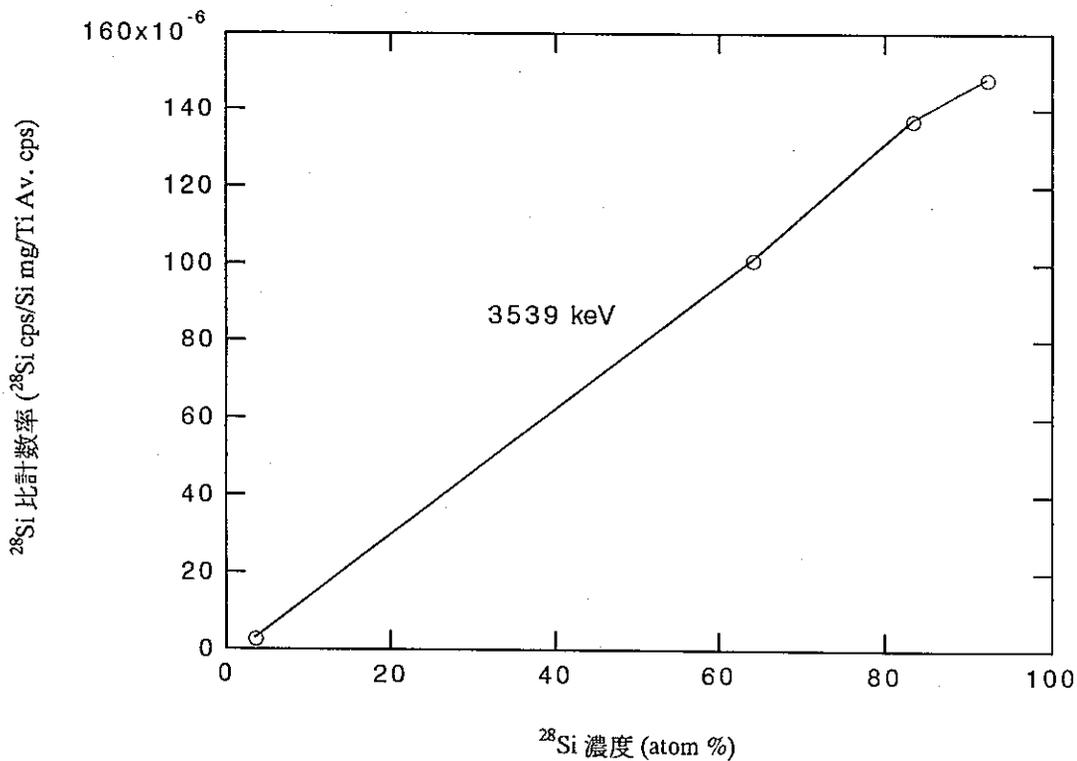


図 8 ^{28}Si 濃度と 3539 keV ピークの ^{28}Si 比計数率のプロット

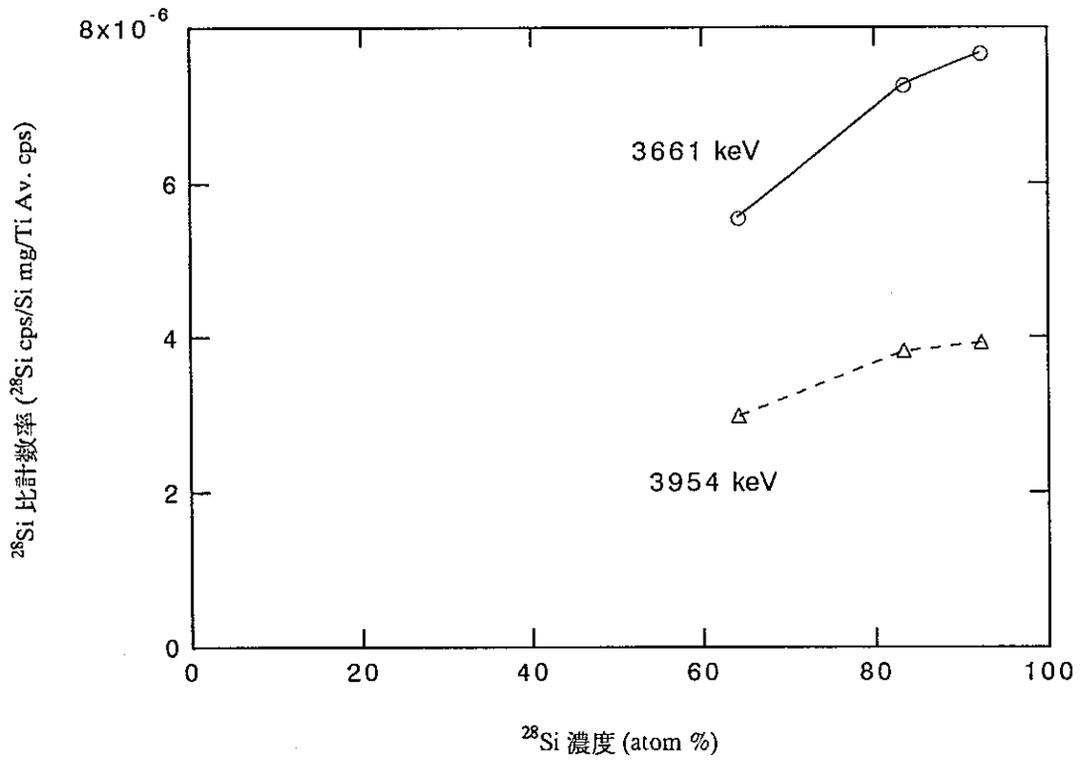


図 9 ^{28}Si 濃度と 3661, 3954 keV ピークの ^{28}Si 比計数率のプロット

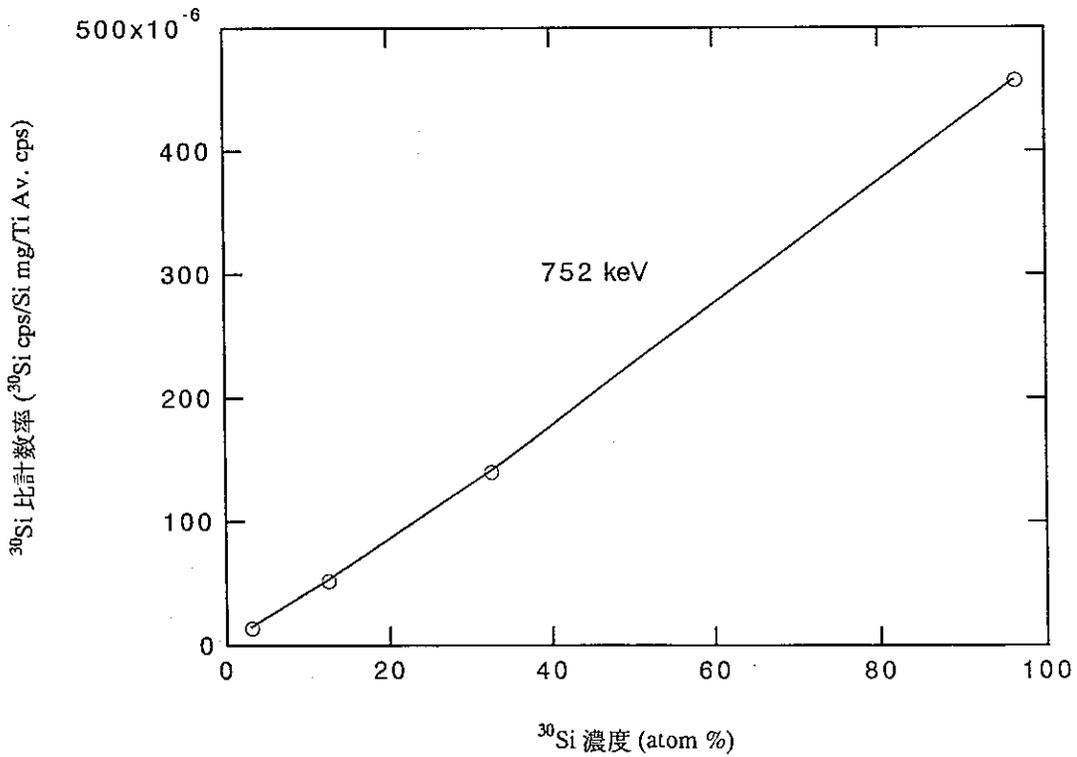


図 10 ^{30}Si 濃度と 752 keV ピークの ^{30}Si 比計数率のプロット

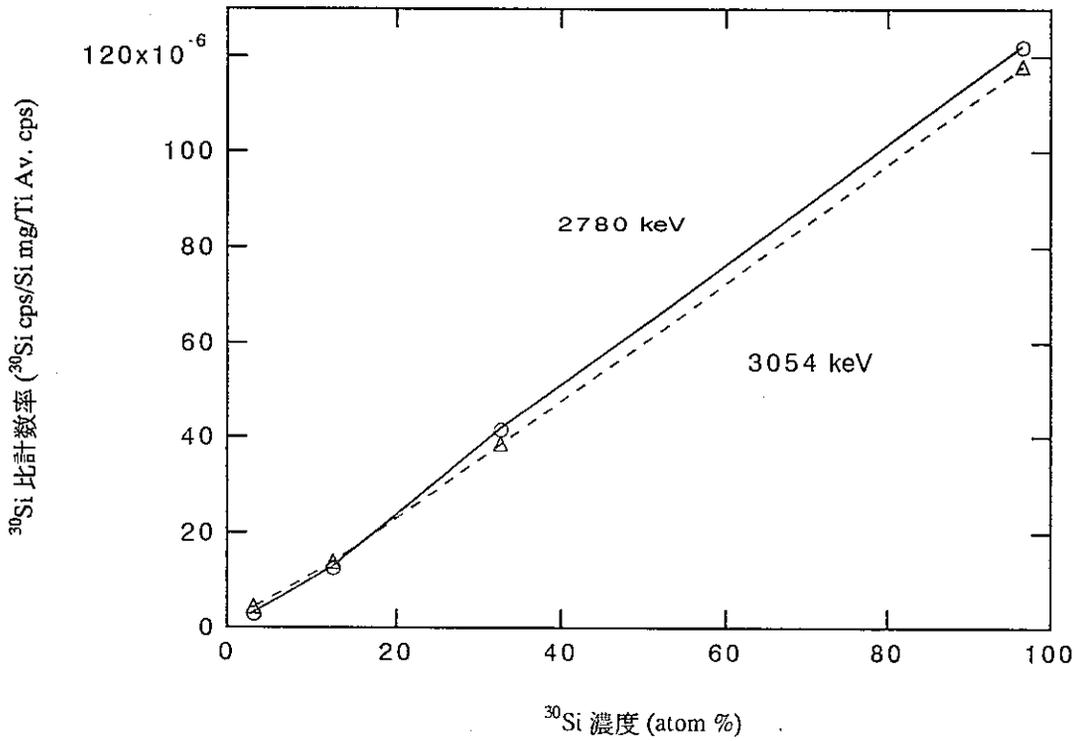


図 11 ^{30}Si 濃度と 2780, 3054 keV ピークの ^{30}Si 比計数率のプロット

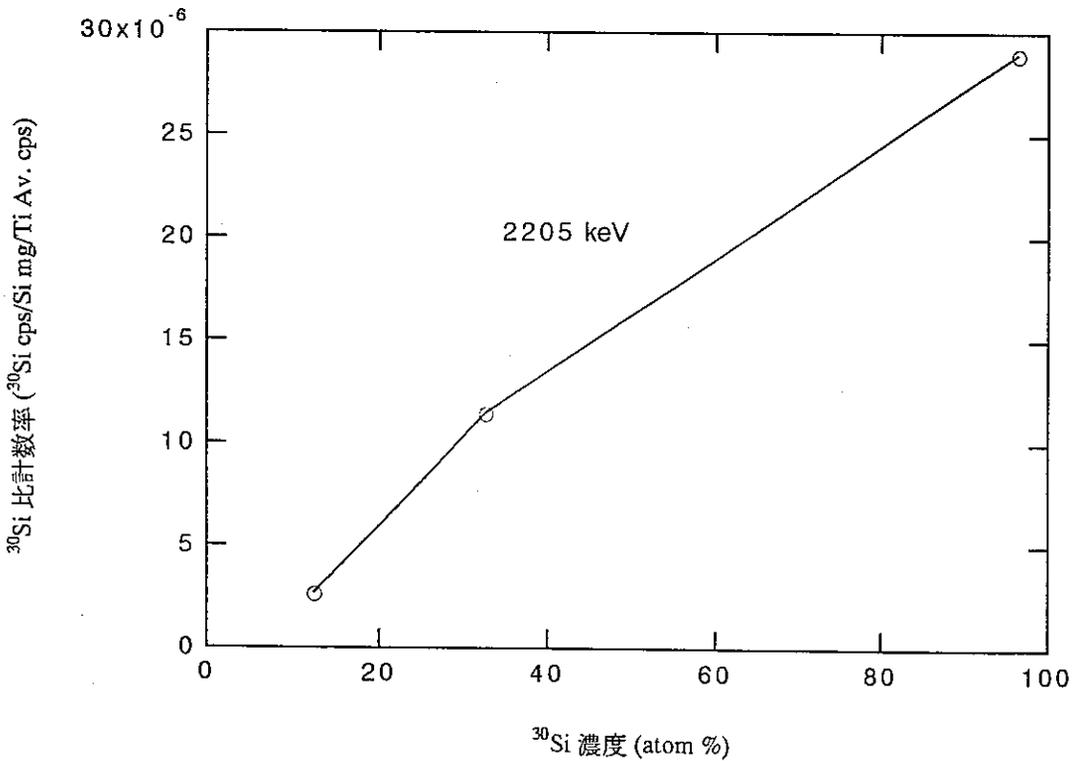


図 12 ^{30}Si 濃度と 2205 keV ピークの ^{30}Si 比計数率のプロット

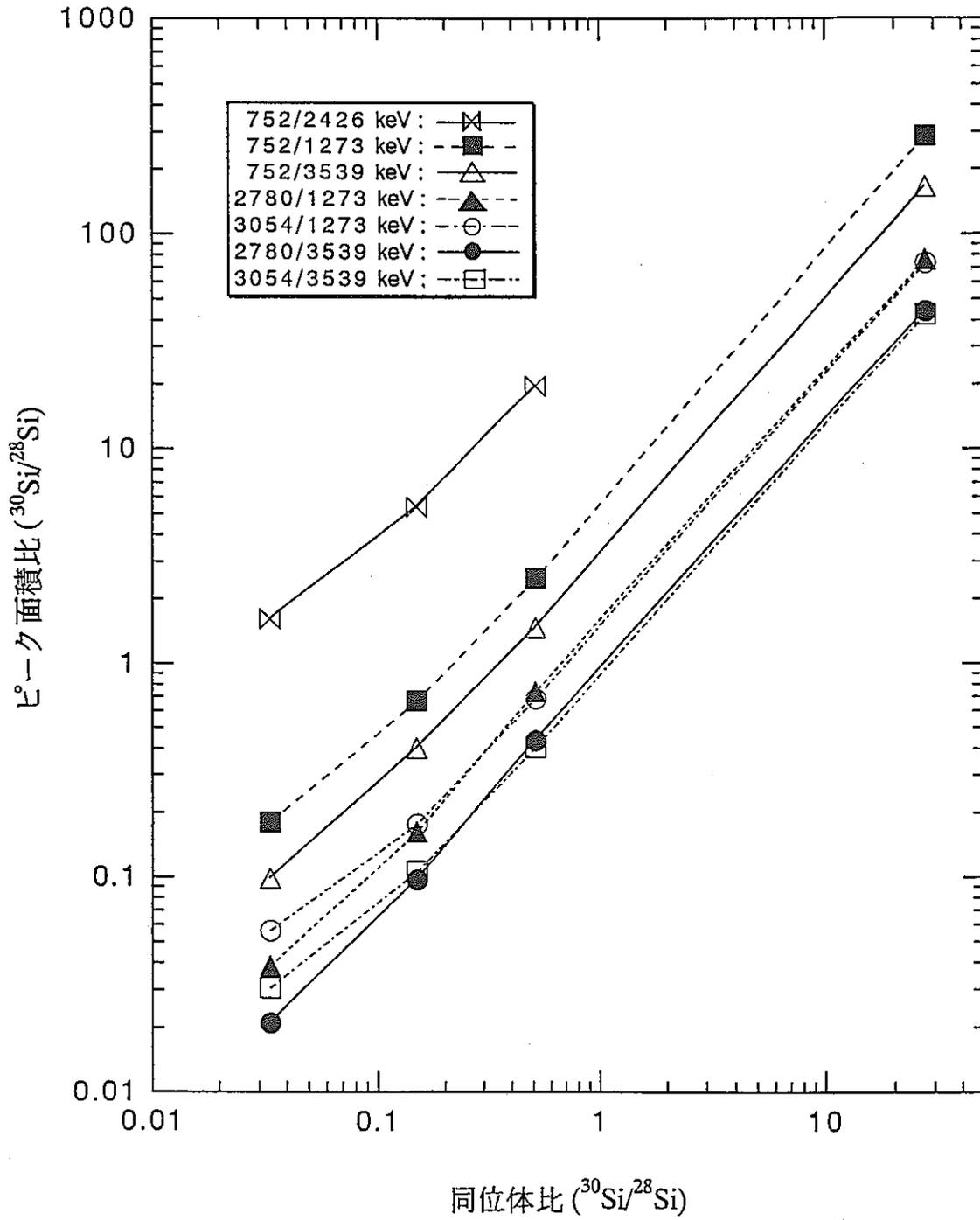


図 13 $^{30}\text{Si}/^{28}\text{Si}$ ピーク面積比と $^{30}\text{Si}/^{28}\text{Si}$ 同位体比のプロット

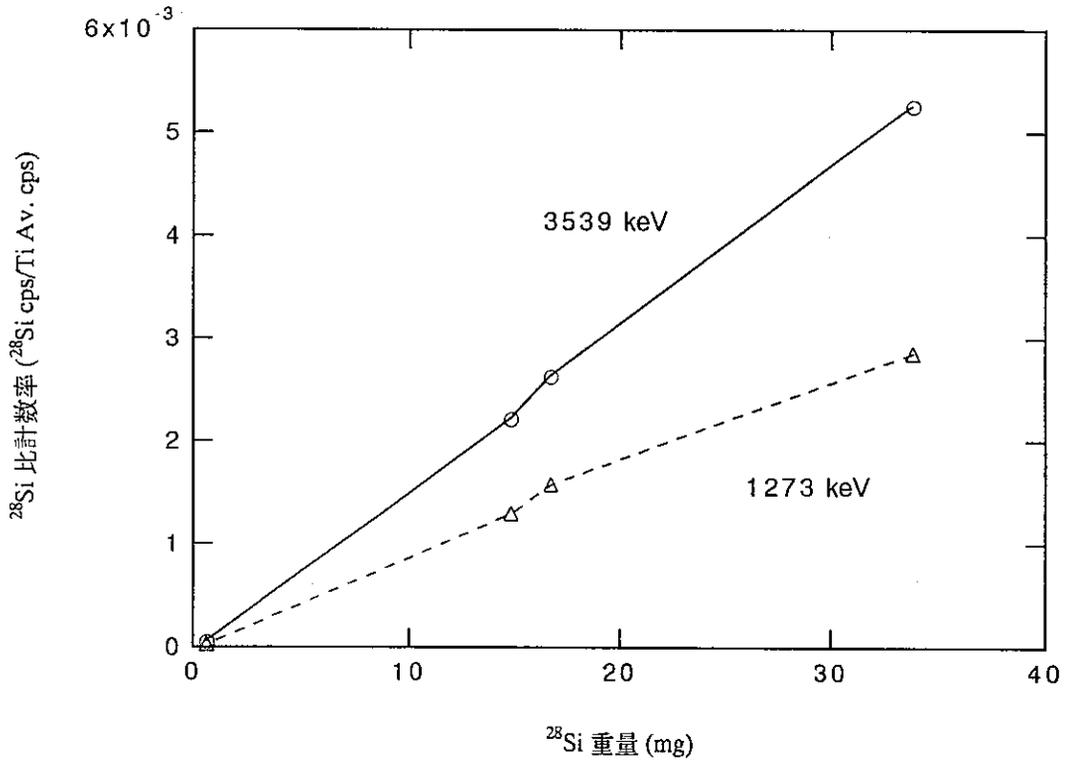


図 14 ^{28}Si の検量線

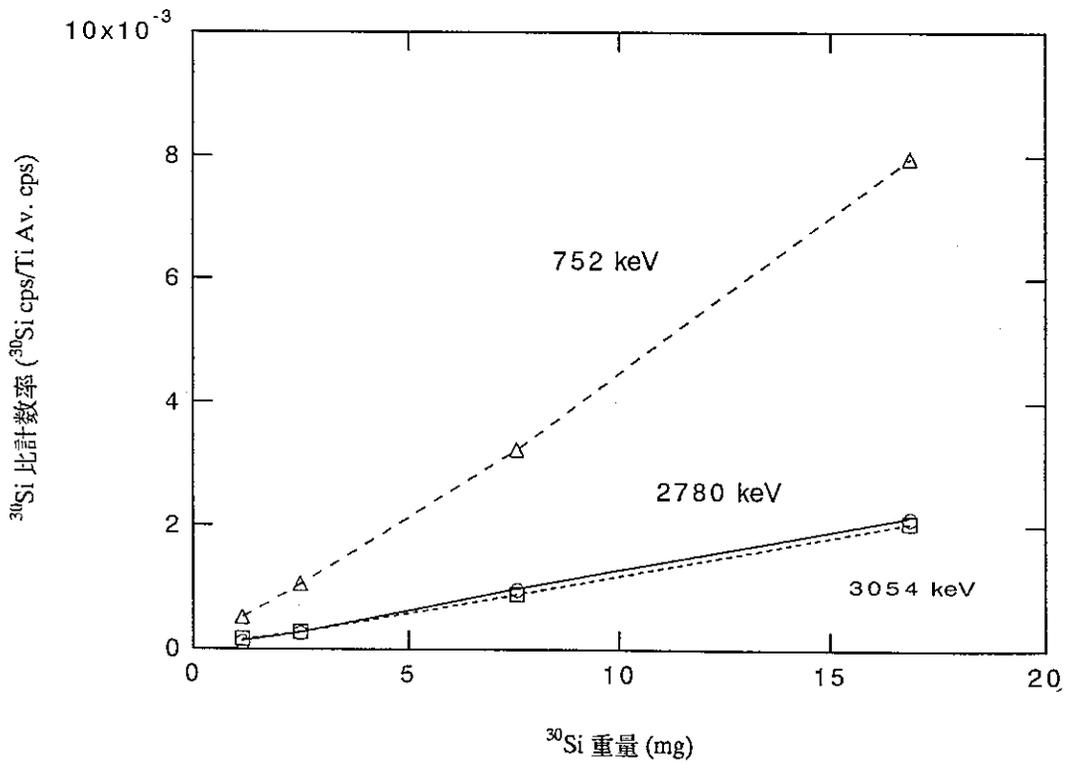


図 15 ^{30}Si の検量線

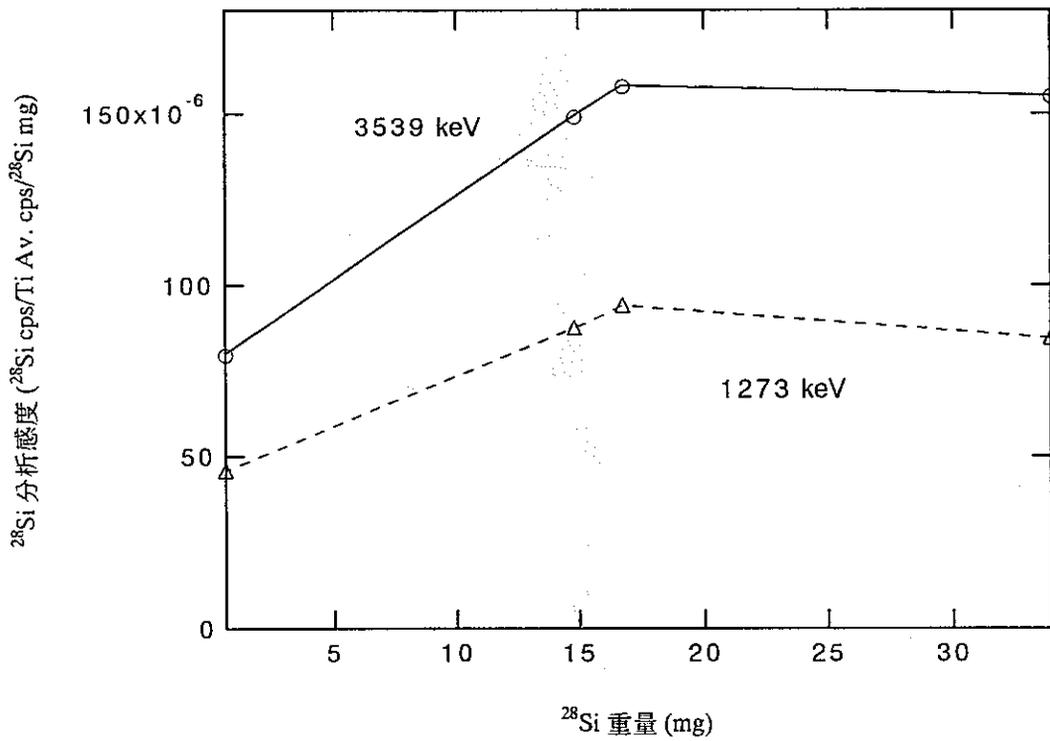


図 16 ^{28}Si 重量と ^{28}Si (1273, 3539keV) γ 線分析感度のプロット

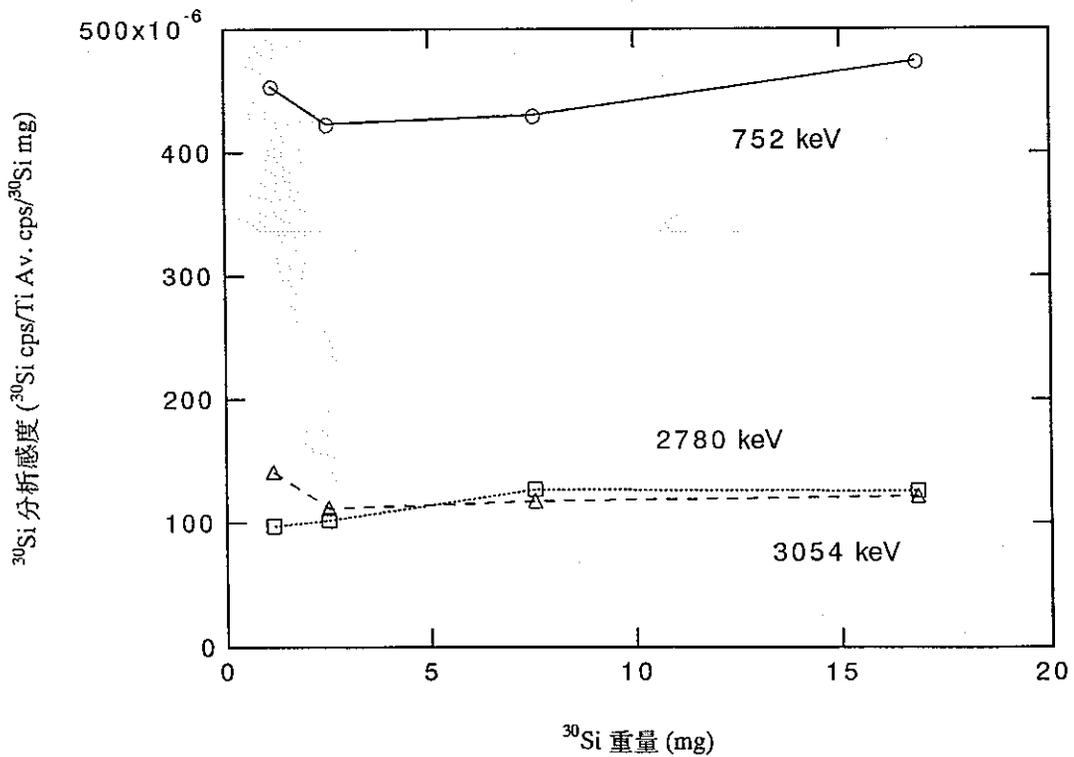


図 17 ^{30}Si 重量と ^{30}Si (752, 2780, 3054keV) γ 線分析感度のプロットの分析感度

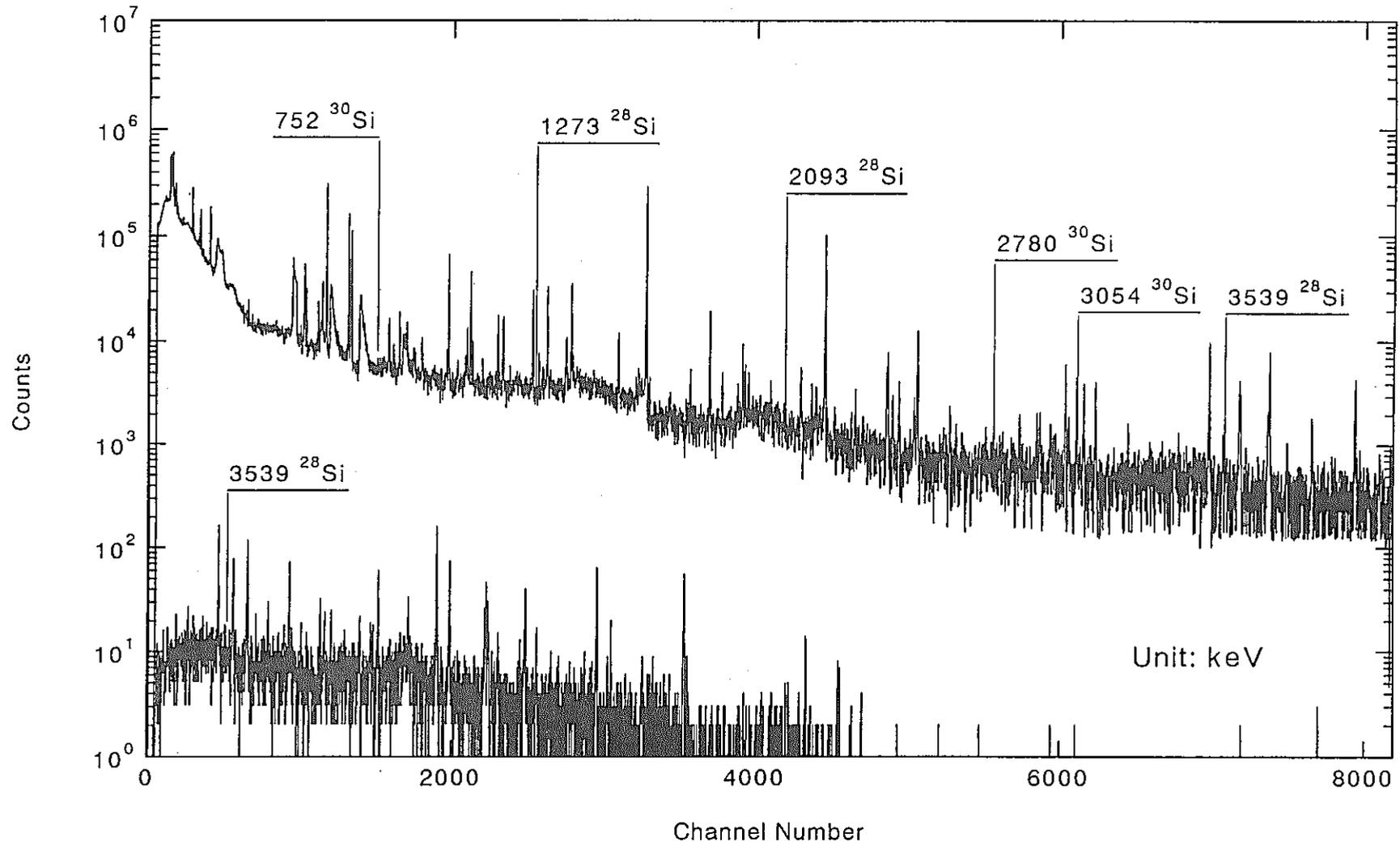


図 18 ^{30}Si -I 拡散試料のコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトル
測定時間 25000 s

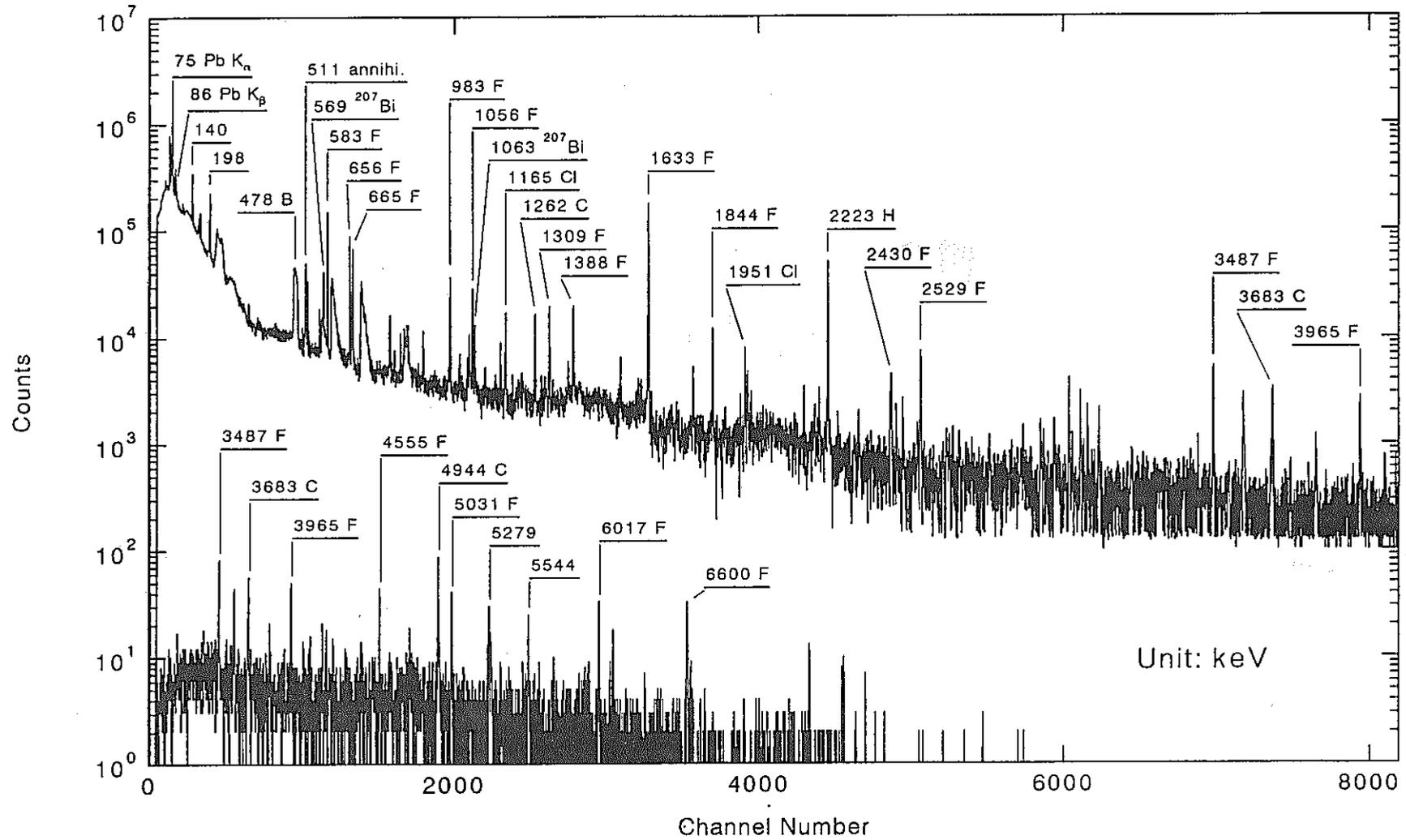


図 19 FEP フィルムのコンプトンサプレッション即発γ線スペクトル
測定時間 30000 s

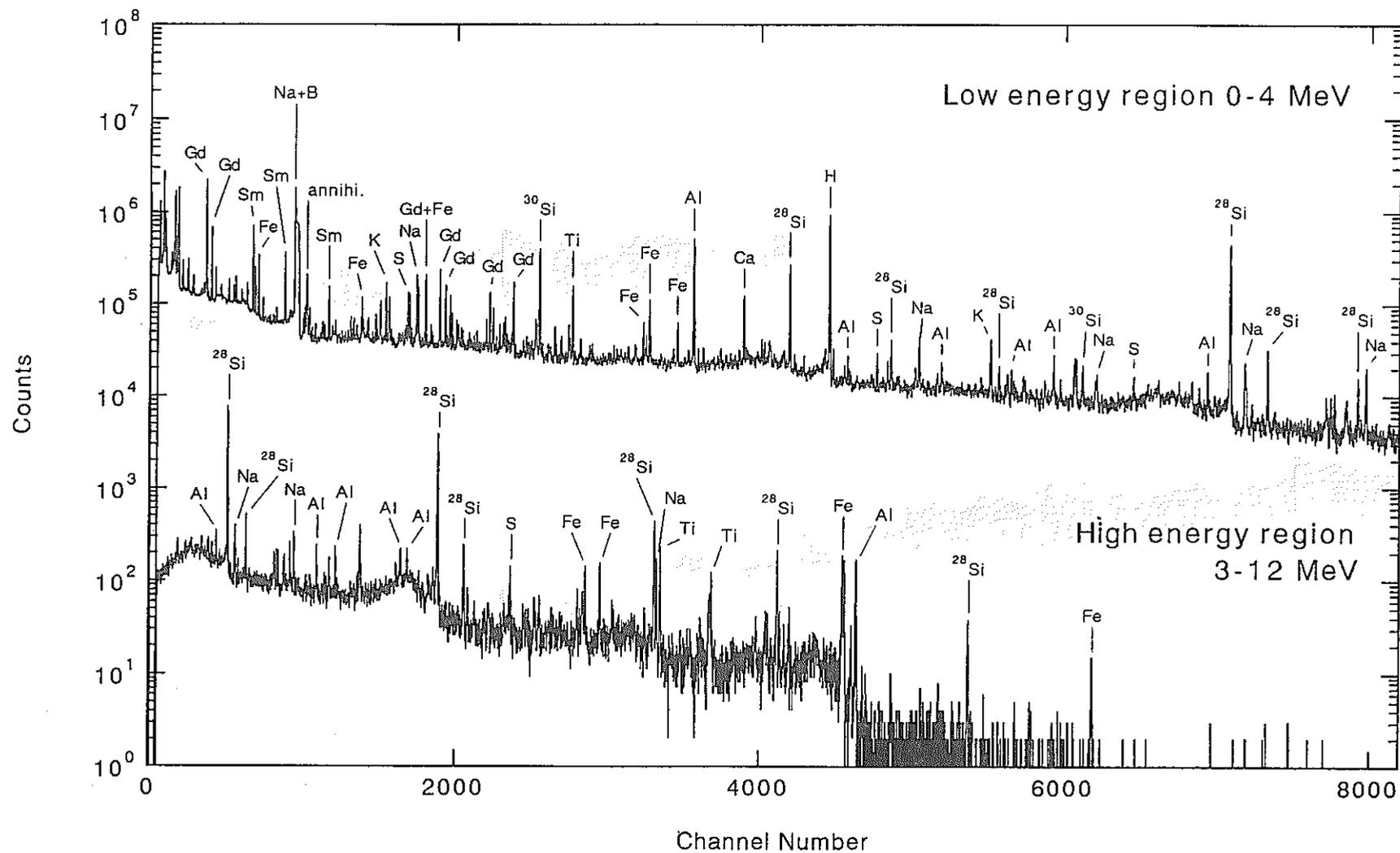


図 20 クニゲルVIのコンプトンサプレッション即発 γ 線スペクトル
測定時間 10000 s

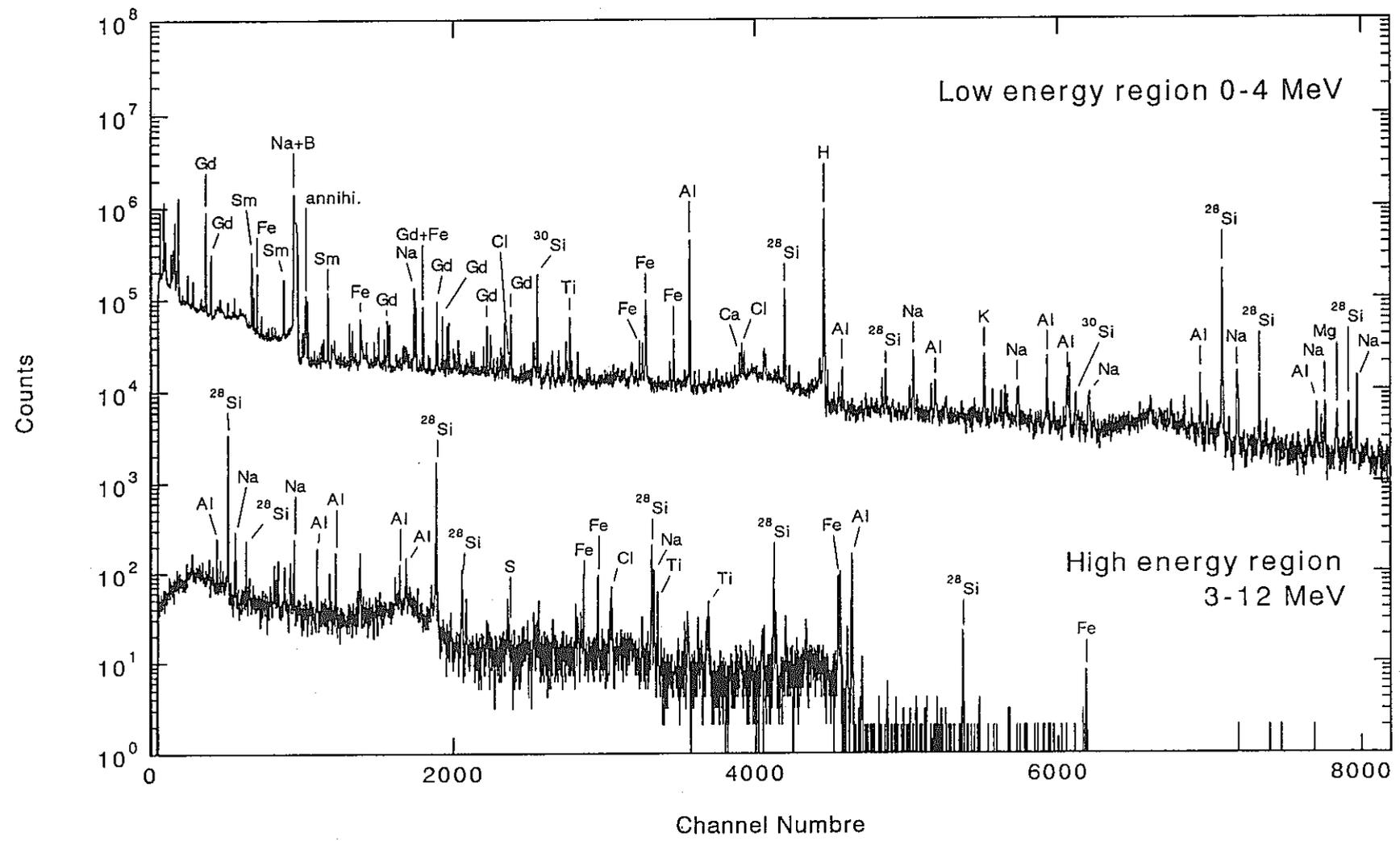


図 21 クニピアFのコンプトンサプレッション即発γ線スペクトル
測定時間 10000 s