研究用原子炉を用いた中性子放射化分析

三浦　勉

産業技術総合研究所　計量標準総合センター

物質計測標準研究部門　無機標準研究グループ

NPO法人　放射線教育フォーラム　2022年度第1回勉強会
2022年6月12日(日)　14:20～14:50　オンライン開催

講演内容

本講演では放射線利用技術の一つである原子核反応で生成した放射性核種を測定し目的元素を定量する放射化分析法、特に研究用原子炉で得られる安定した中性子場を利用する中性子放射化分析法の応用例と今後の展開について紹介する。

1. 放射化分析法の歴史
2. 中性子放射化分析法
3. 中性子放射化分析法の応用
4. 今後の展開：福井県新試験研究炉計画を含めて

NPO法人　放射線教育フォーラム　2022年度第1回勉強会
2022年6月12日(日)　14:20～14:50　オンライン開催

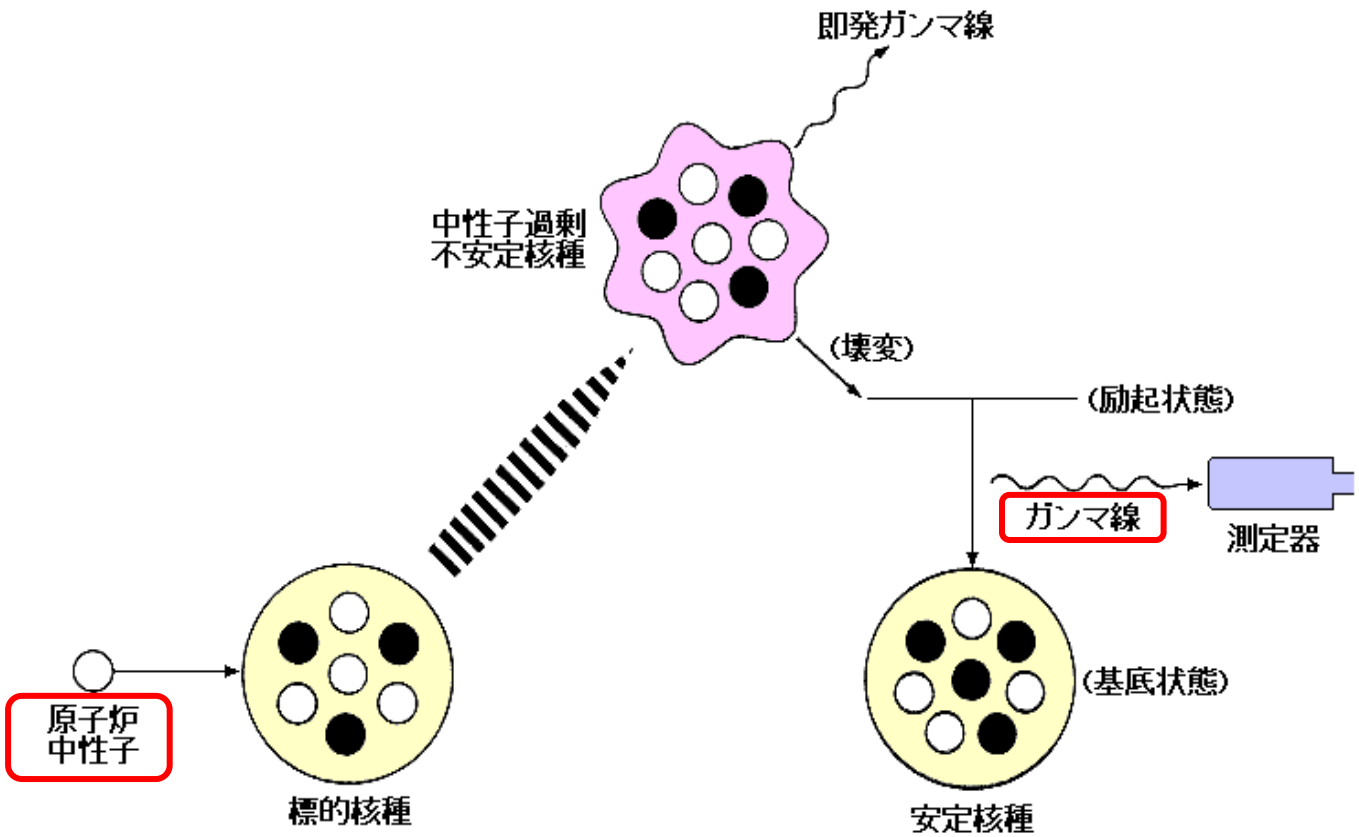
中性子放射化分析法

$$^{37}_{17}Cl + ^{1}_{0}n \rightarrow ^{38}_{17}Cl + \gamma$$

$$^{38}_{17}Cl \xrightarrow{\beta^-} ^{38}_{18}Ar$$

$$^{81}_{35}Br + ^{1}_{0}n \rightarrow ^{82}_{35}Br + \gamma$$

$$^{82}_{35}Br \xrightarrow{\beta^-} ^{82}_{36}Kr$$



中性子放射化分析の概念図

[出典]海老原充:放射化学的中性子放射化分析(解説)、ぶんせき、(1988) p.905

Neutron Activation Analysis（NAA）

1-1：Frédéric Joliot and Irène Joliot-Curieによる 人工放射性元素^{30}Pの製造

I.ジョリオ・キュリーとJ.F.ジョリオ・キュリーは^{210}Po線源のα線をAlに照射し、^{30}P（半減期：2.498 min）を製造した。初の人工放射性核種製造である。

$$^{27}\mathrm{Al} + {}^{4}\mathrm{He} \rightarrow {}^{30}\mathrm{P} + {}^{1}\mathrm{n}$$

The Novel Prize in Chemistry 1935

Work

Radiation from radioactive substances also became an important tool in investigating atoms. When Frédéric Joliot and Irène Joliot-Curie bombarded a thin piece of aluminum with alpha particles (helium atom nuclei) in 1934, a new kind of radiation was discovered that left traces inside an apparatus known as a cloud chamber. The pair discovered that the radiation from the aluminum continued even after the source of radiation was removed. This was because aluminum atoms had been converted into a radioactive isotope of phosphorus. That meant that, for the first time in history, a radioactive element had been created artificially.
(https://www.nobelprize.org/prizes/chemistry/1935/summary/)

https://www.atomicarchive.com/img/bios/irene-frederic-joliot-curie.jpg

1-2: E. Fermiによる減速中性子核反応の発見

Physics | The Nobel Prize in Physics 1938 | Enrico Fermi - Facts

The Nobel Prize in Physics 1938

Enrico Fermi

Share this

Enrico Fermi
Facts

Photo from the Nobel Foundation archive.

Enrico Fermi
The Nobel Prize in Physics 1938

Born: 29 September 1901, Rome, Italy

Died: 28 November 1954, Chicago, IL, USA

Affiliation at the time of the award: Rome University, Rome, Italy

Prize motivation: "for his demonstrations of the existence of new radioactive elements produced by neutron irradiation, and for his related discovery of nuclear reactions brought about by slow neutrons"

Prize share: 1/1

Work

Discovered in 1932, the neutron proved to be a powerful new tool for studying atoms. When Enrico Fermi irradiated heavy atoms with neutrons, these were captured by the atomic nuclei, creating new and often radioactive isotopes. In 1934, Fermi and his colleagues discovered that when neutrons are slowed down, e.g. by paraffin shielding, the interaction rate with nuclei increases. This revelation led to the discovery of many hitherto-unknown radioactive isotopes.

https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1938/fermi/facts/

1-3: G. Hevecyによる放射性トレーサーの化学・生物学への応用

Chemistry | The Nobel Prize in Chemistry 1943 | George de Hevesy - Facts

The Nobel Prize in Chemistry 1943

George de Hevesy

Share this

George de Hevesy
Facts

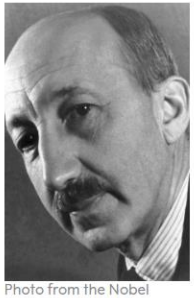


Photo from the Nobel Foundation archive.

George de Hevesy
The Nobel Prize in Chemistry 1943

Born: 1 August 1885, Budapest, Austria-Hungary (now Hungary)

Died: 5 July 1966, Freiburg im Breisgau, West Germany (now Germany)

Affiliation at the time of the award: Stockholm University, Stockholm, Sweden

Prize motivation: "for his work on the use of isotopes as tracers in the study of chemical processes"

George de Hevesy received his Nobel Prize one year later, in 1944.

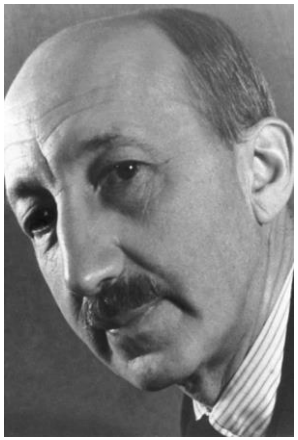
Prize share: 1/1

Work

Tracking various elements through different processes is important in understanding how organisms work. After failing to separate an isotope of radium from lead in 1913, George de Hevesy realized that lead could be marked using the isotope. Radium is radioactive, and by measuring radiation emitted from it, he could study lead's journey through different processes. De Hevesy published the first studies to use the method in 1923. The method has since come to play a key role in chemistry and biology.

https://www.nobelprize.org/prizes/chemistry/1943/hevesy/facts/

1-4.：G. Hevecy、H.Leviによる中性子放射化分析法の開発



https://www.nobelprize.org/images/hevesy-13024-portrait-mini-2x.jpg

https://nbi.ku.dk/hhh/george/de_hevesy/del3/hilde-levi/Hilde_Levi215.jpg

1936年、1938年に発表した論文で初の中性子放射化分析を発表した。1938年の論文ではパラフィンブロックの中心にRa-Be中性子源（^{226}Ra: 600 mg）を設置し3日間、Gd_2O_3試料に遅い中性子を照射した。照射後、半減期9時間の^{152m}Euの放射能を測定し、Gd_2O_3中の0.4%のEuの定量に成功した。

TABLE I*

ACTIVATION ANALYSIS OF GADOLINIUM OXIDE

(The sample "Standard" is pure Gd_2O_3 to which 2% of Eu_2O_3 was added. Samples 1 - 4 represent stages in the purification process carried out by Professor Rolla)

Samples	*count/minutes*
"Standard"	125
1	60
2	60
3	30
4	25

* *G. Hevesy and H. Levi: "Artificial Activity of Hafnium and Some Other Elements" Kgl. Danske Vid. Sels. Math-fys. Medd. 15, 11 (1938).*

G. Hevesy, Hilde Levi, The Action of Neutrons on the Rare Earth Elements, Det. Kgl. Danske Videnskabernes Selskab, Mathematisk-fysiske Meddelelser XIV, 5(1936) 3–34.

G. Hevesy, Hilde Levi, Artificial Activity of Hafnium and some other Elements, Det. Kgl. Danske Videnskabernes Selskab, Mathematisk-fysiske Meddelelser XV, (1938) 11–21.

1-5：Hilde Levi

https://nbi.ku.dk/hhh/george/de_hevesy/del3/hilde-levi/Hilde_Levi215.jpg

Hilde Bertha Levi (1909 – 2003) had a doctorate in chemistry and physics and was an assistant to George de Hevesy during his stay in Copenhagen,

Hilde Levi, who was of Jewish descent, received a doctorate in chemistry and physics at the University of Berlin in 1934. The Nazi dominance in Germany meant she had no future there and through the International Federation of University Women she instead became attached to the Niels Bohr Institute for Theoretical Physics, where she worked as an assistant for Georg de Hevesy.

In 1943, Hilde Levi had to flee to Sweden, where she worked at the Wenner-Gren Institute in Sweden for the rest of the war. When Niels Bohr phased out biological research after the war, Hilde Levi received an offer to continue at August Krogh's Zoophysiological Laboratory in Copenhagen – she worked here until she retired in 1979.

In the late 1940s, she took the initiative to build an apparatus for ^{14}C dating, which – as the first of its kind in Europe – became operational in 1951 and was used for dating Grauballe Man.

From 1952 to 1970, Hilde Levi was a consultant in connection with the Danish Health and Medicines Authority's efforts to develop legislation for radiation protection. In later life she became a scientific historian and published a biography of George de Hevesy.(https://nbi.ku.dk/english/www/george_/de_hevesy/del3/)

その他、Carbon 14 Beta Track Autoradiography, G. Boyd, H. Levi, Science, 111, 58-59 DOI: 10.1126/science.111.2873.58

International Committee on Activation Analysis (ICAA)

1-6: Hevesy Medal Awards since 1968

HEVESY MEDAL AWARDS

The George Hevesy Medal Award is the premier international award of excellence in radioanalytical and nuclear chemistry. It is named after George de HEVESY (1885-1966) who received the Nobel Prize for Chemistry in 1943 for his work on the use of isotopes as tracers in the study of chemical processes.

The George Hevesy Medal is awarded to an individual in recognition of excellence through outstanding, sustained career achievements in the fields of pure as well as applied nuclear and radiochemistry, in particular applications to nuclear analytical chemistry.
Established originally in 1968 by Professor Tibor BRAUN, Editor-in-Chief of the Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (JRNC), the Hevesy Medal Award was given 19 times during 1968-86. This Award was reactivated in 2000 by Professors BRAUN and CHATT. It is sponsored by JRNC and administered as well as adjudicated by the JRNC Board of the Hevesy Award.

List of Hevesy Medal Award Recipients (1968-2022):

1968 W. Wayne **MEINKE**
1969 Albert A. **SMALES**
1970 Ivan Pavlovich **ALIMARIN**
1972 Philippe **ALBERT** and Julien **HOSTE**
1975 Tibor **BRAUN** and Juraj **TÖLGYESSY**
1976 Francesco **GIRARDI**
1977 Saadia **AMIEL** and Richard E. **WAINERDI**
1978 Robert E. **JERVIS**
1979 Vincent P. **GUINN**
1981 William S. **LYON** and Max **PEISACH**
1983 Edward V. **SAYRE** and Garman **HARBOTTLE**
1984 Georges **AMSEL**
1985 Nobuo **SUZUKI**
1986 Emile A. **SCHWEIKERT**
2000 Frans **DE CORTE**
2001 Amares **CHATT** and Eiliv **STEINNES**
2002 Enrico **SABBIONI**
2003 Jeroen J.M. **DE GOEIJ**
2004 Attila **VÉRTES**
2005 Zhifang **CHAI**, Gregory **CHOPPIN**, and Nicholas M. **SPYROU**
2006 Jan **KUČERA**
2007 Robert R. **GREENBERG**
2008 Syed M. **QAIM**
2009 Richard M. **LINDSTROM**
2010 Darleane C. **HOFFMAN**
2011 Peter **BODE**
2012 Boris F. **MYASOEDOV**
2013 Rajmund S. **DYBCZYŃSKI**
2014 Heino **NITSCHE**
2015 Kattesh V. **KATTI** and Susanta **LAHIRI**
2016 Tomoko M. **NAKANISHI**
2017 Pavel P. **POVINEC**
2018 Rolf L. **ZEISLER**
2019 Xiaolin **HOU**
2020 Stefaan **POMMÉ**
2021 Vladimir **KOLOTOV**
2022 Frank **RÖSCH**

1-7:Hevesy medal

中西特任教授とノーベル賞受賞者G.Hevesy氏ご子息

受賞メダル

賞状

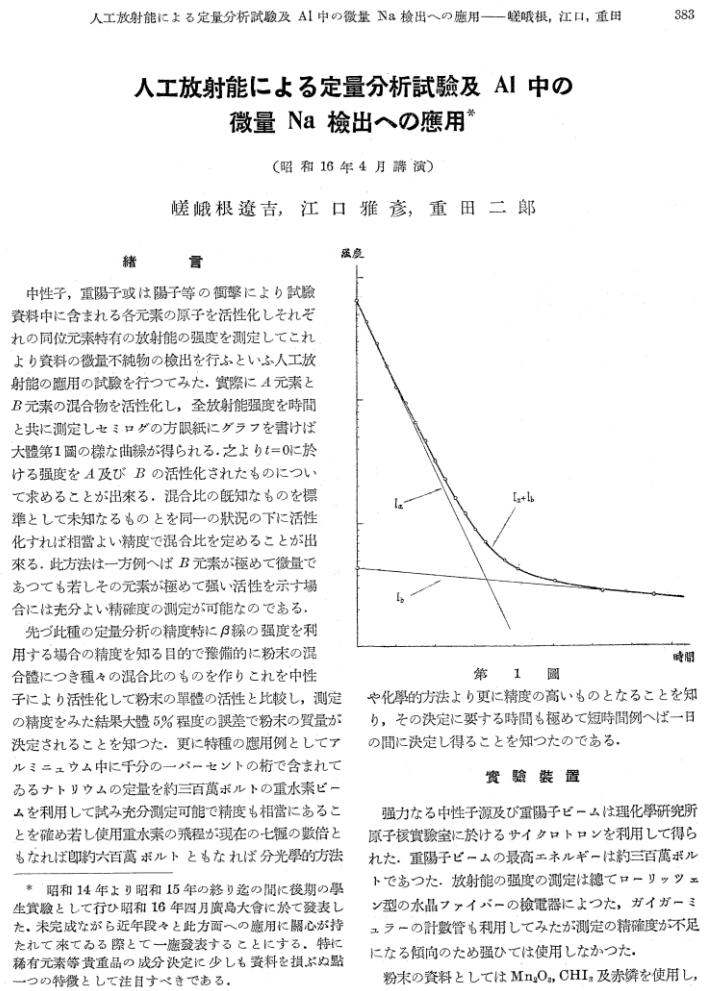
当研究科附属食の安全研究センター　中西友子　特任教授（元放射性同位元素施設教授）がHevesy賞を受賞しました。
授賞式は、2016年4月10日にハンガリーブダペストにおいて開催された国際会議International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistryの中で行われました。
中西特任教授が培ってきた放射線や放射性同位元素を駆使したイメージング開発 により、生きた植物における水と元素の動態の解析に成功したこと、ならびに、福島事故の調査研究が高く評価されたものであり、中西特任教授の受賞は日本人としては2人目になります。

George de Hevesy:（ゲオルク･ド･ヘヴェシー, 1885年8月1日 - 1966年7月5日）ハンガリー生まれの化学者、1923年ハフニウムを発見。1943年化学反応研究におけるトレーサーとしての同位体の応用研究でノーベル化学賞を受賞。

Hevesy賞: 1943年に放射性同元素を用いた化学反応プロセスの解明によりノーベル化学賞を受賞したG.Hevesyを記念して、放射科学や核科学の分野で秀でた業績をあげた研究者に与えられます。
http://www.jrnc-ranc.com/index.php/programme/hevesy-award

(https://www.a.u-tokyo.ac.jp/news/2016/20160510-1.html)

1-8: 日本国内での放射化分析



人工放射能による定量分析試驗及 Al 中の微量 Na 檢出への應用——嵯峨根，江口，重田　383

人工放射能による定量分析試驗及 Al 中の微量 Na 檢出への應用*

（昭 和 16 年 4 月 講 演）

嵯峨根遼吉，江 口 雅 彦，重 田 二 郎

緒　　言

中性子，重陽子或は陽子等の衝擊により試驗資料中に含まれる各元素の原子を活性化しそれぞれの同位元素特有の放射能の强度を測定してこれより資料の微量不純物の檢出を行ふといふ人工放射能の應用の試驗を行つてみた．實際に A 元素と B 元素の混合物を活性化し，全放射能强度を時間と共に測定しセミログの方眼紙にグラフを書けば大體第1圖の樣な曲線が得られる．之より $t=0$ に於ける强度を A 及び B の活性化されたものについて求めることが出來る．混合比の既知なものを標準として未知なるものとを同一の狀況の下に活性化すれば相當よい精度で混合比を定めることが出來る．此方法は一方例へば B 元素が極めて微量であつても若しその元素が極めて强い活性を示す場合には充分よい精確度の測定が可能なのである．

先づ此種の定量分析の精度特に β 線の强度を利用する場合の精度を知る目的で豫備的に粉末の混合體につき種々の混合比のものを作りこれを中性子により活性化して粉末の單體の活性と比較し，測定の精度をみた結果大體 5% 程度の誤差で粉末の質量が決定されることを知つた．更に特種の應用例としてアルミニュウム中に千分の一パーセントの桁で含まれてゐるナトリウムの定量を約三百萬ボルトの重水素ビームを利用して試み充分測定可能で精度も相當にあることを確め若し使用重水素の飛程が現在の七倍の數倍ともなれば即約六百萬ボルトともなれば分光學的方法や化學的方法より更に精度の高いものとなることを知り，その決定に要する時間も極めて短時間例へば一日の間に決定し得ることを知つたのである．

第 1 圖

實 驗 裝 置

强力なる中性子源及び重陽子ビームは理化學研究所原子核實驗室に於けるサイクロトロンを利用して得られた．重陽子ビームの最高エネルギーは約三百萬ボルトであつた．放射能の强度の測定は總てローリッツェン型の水晶ファイバーの檢電器によつた，ガイガーミュラーの計數管も利用してみたが測定の精確度が不足になる傾向のため强ひては使用しなかつた．

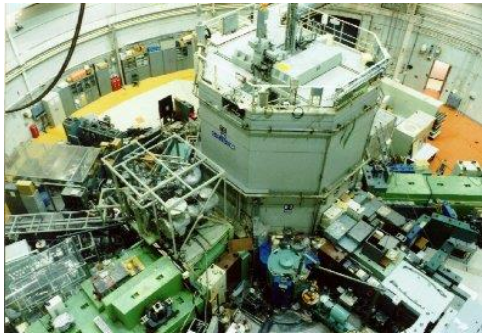
粉末の資料としては Mn_3O_4, CHI_3 及赤燐を使用し，

* 昭和 14 年より昭和 15 年の終り迄の間に後期の學生實驗として行ひ昭和 16 年四月廣島大會に於て發表した．未完成ながら近年段々と此方面への應用に關心が持たれて來てゐる際とて一應發表することにする．特に稀有元素等貴重品の成分決定に少しも資料を損ぶぬ點一つの特徴として注目すべきである．

嵯峨根遼吉,江口雅彦,重田二郎:
目本数学物理学会誌, 16, 383 (昭17:1942).

- 1942年に理研サイクロトロンによる重陽子をAlに照射して生成する^{24}Naを測定するNaの放射化分析が報告されている。
- 1957年に臨界に達成したJRR-1の中性子を利用する放射化分析が実施されるようになった。
- 近大炉（1961~）、JRR-2（1960~1996）、JRR-4（1960-2010）、改造JRR-3（1990~）、京大炉KUR（1964~2025予定）、立教大炉（1961~2001）、武蔵工大炉（1963~1989）が利用できるようになり放射化分析は広く普及した。
- 2022年現在、中性子束10^{13} n cm^{-2} s^{-1}の照射を実施できる研究炉はJRR-3、KURの2基となっている。

2-1:中性子放射化分析の実際



京都大学原子炉実験所
研究用原子炉
KUR

原子力機構　JRR-3

照射試料の調製
（ポリエチレン袋　2重溶封）

原子炉内で中性子照射

ポリ袋の外側を交換し、測定試料とする。

γ線スペクトル測定

照射終了時に減衰補正

定量値算出

試料と比較標準を同時に照射できる

照射試料及びキャプセル

Ge半導体検出器

2-2:中性子放射化分析法(NAA)の利点と適用可能な試料

- 中性子と標的原子核との原子核反応に基づく分析法
- 目的元素の存在状態に影響されないので、試料を分解・溶解することなく全量分析が可能。→ 中性子照射後、複数回試料を測定することで、試料を分解し、溶液化することなく30元素以上の定量が可能。
- トレーサビリティチェーンが切れないので、SIトレーサビリティの確保が容易、ハロゲン等の揮発性元素の定量に有効
- 試料中のH, C, N, O, Sは他の元素の定量に影響しない。10^{-9} gから 10^{-6} g程度の存在量の元素の定量に適している。

完全分解が困難な試料
　土壌、鉱物、岩石、隕石・宇宙塵、大気浮遊塵、セラミックス
水素、炭素、窒素、酸素が主成分の試料
　植物、生物試料
溶液化に伴い汚染の危険がある試料
　高純度物質(Si半導体材料)、極微少量試料(宇宙塵、大気浮遊塵)
厳密な定量が必要な試料
　認証標準物質の値付け、科学捜査関係試料、美術・考古学試料

2-3:中性子放射化分析の分析能力
Results of the CCQM-P118: As

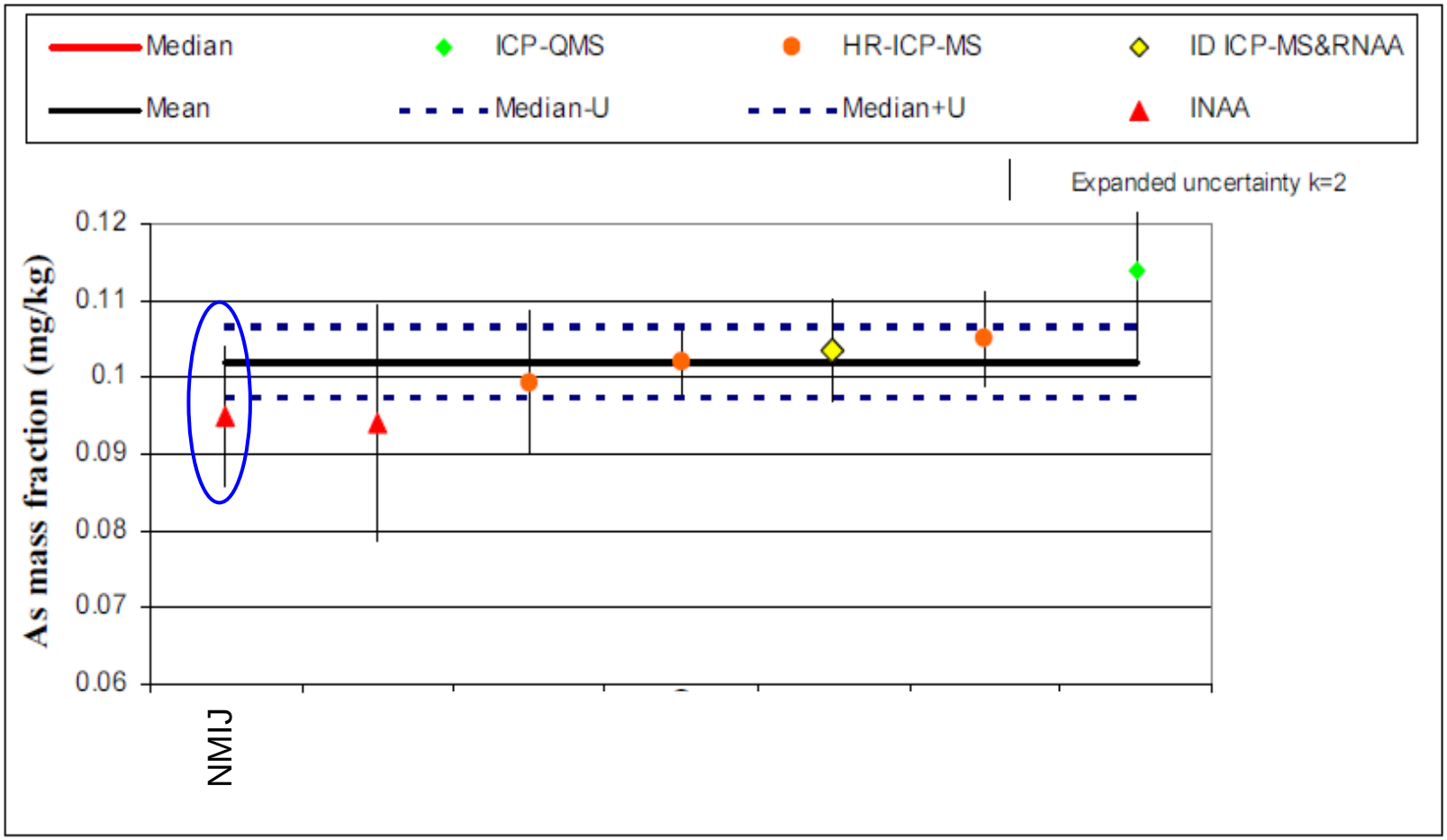


Figure 3. Arsenic measurement results in algae of the CCQM-P118

2-4:中性子放射化分析の分析能力
Results of the CCQM-P118: Cr

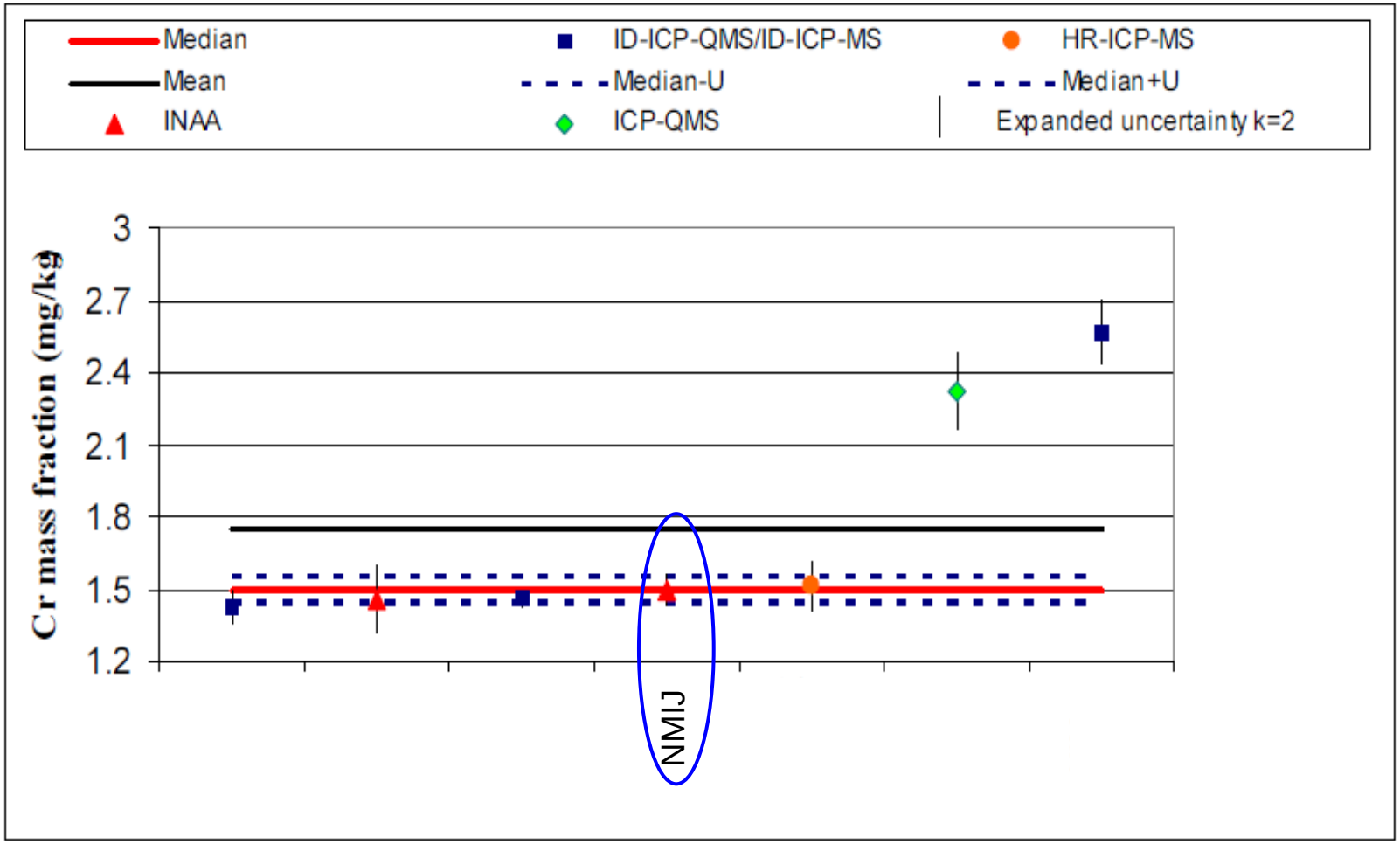


Figure 5. Chromium measurement results in algae of the CCQM-P118

3-1:中性子放射化分析の応用白亜紀第三紀境界粘土試料への応用

6 June 1980, Volume 208, Number 4448 SCIENCE

Extraterrestrial Cause for the Cretaceous-Tertiary Extinction

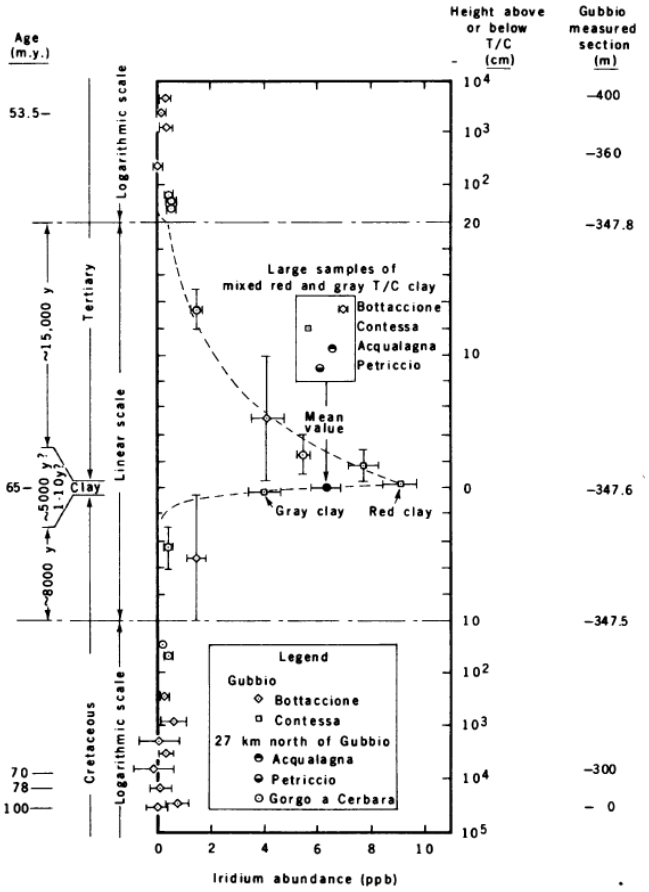
Experimental results and theoretical interpretation

Luis W. Alvarez, Walter Alvarez, Frank Asaro, Helen V. Michel

Summary. Platinum metals are depleted in the earth's crust relative to their cosmic abundance; concentrations of these elements in deep-sea sediments may thus indicate influxes of extraterrestrial material. Deep-sea limestones exposed in Italy, Denmark, and New Zealand show iridium increases of about 30, 160, and 20 times, respectively, above the background level at precisely the time of the Cretaceous-Tertiary extinctions, 65 million years ago. Reasons are given to indicate that this iridium is of extraterrestrial origin, but did not come from a nearby supernova. A hypothesis is suggested which accounts for the extinctions and the iridium observations. Impact of a large earth-crossing asteroid would inject about 60 times the object's mass into the atmosphere as pulverized rock; a fraction of this dust would stay in the stratosphere for several years and be distributed worldwide. The resulting darkness would suppress photosynthesis, and the expected biological consequences match quite closely the extinctions observed in the paleontological record. One prediction of this hypothesis has been verified: the chemical composition of the boundary clay, which is thought to come from the stratospheric dust, is markedly different from that of clay mixed with the Cretaceous and Tertiary limestones, which are chemically similar to each other. Four different independent estimates of the diameter of the asteroid give values that lie in the range 10 ± 4 kilometers.

イタリアグビオの白亜紀・第三紀境界粘土層中の多元素を中性子放射化分析法で測定し、Ir異常を発見。地球外物質の寄与を示した。

Fig. 5. Iridium abundances per unit weight of 2*N* HNO_3 acid-insoluble residues from Italian limestones near the Tertiary - Cretaceous boundary. Error bars on abundances are the standard deviations in counting radioactivity. Error bars on stratigraphic position indicate the stratigraphic thickness of the sample. The dashed line above the boundary is an "eyeball fit" exponential with a half-height of 4.6 cm. The dashed line below the boundary is a best fit exponential (two points) with a half-height of 0.43 cm. The filled circle and error bar are the mean and standard deviation of Ir abundances in four large samples of boundary clay from different locations.



3-2:貴重な小惑星回収試料への応用

試料:
小惑星イトカワから回収された微小粒子(~3 μg)

分析結果:
Na, Sc, Cr, Fe, Co, Ni, Zn, Se, Sm, Eu, Hf
→ ngレベルを定量
Ir → 30 fgのIrを定量

照射:京大原子炉KURで19 h

Neutron Activation Analysis of a Particle Returned from Asteroid Itokawa

M. Ebihara,[1*] S. Sekimoto,[2] N. Shirai,[1] Y. Hamajima,[3] M. Yamamoto,[3] K. Kumagai,[1] Y. Oura,[1] T. R. Ireland,[4] F. Kitajima,[5] K. Nagao,[6] T. Nakamura,[7] H. Naraoka,[5] T. Noguchi,[8] R. Okazaki,[5] A. Tsuchiyama,[9] M. Uesugi,[10] H. Yurimoto,[11] M. E. Zolensky,[12] M. Abe,[10] A. Fujimura,[10] T. Mukai,[10] Y. Yada[10]

A single grain (~3 micrograms) returned by the Hayabusa spacecraft was analyzed by neutron activation analysis. This grain is mainly composed of olivine with minor amounts of plagioclase, troilite, and metal. Our results establish that the Itokawa sample has similar chemical characteristics (iron/scandium and nickel/cobalt ratios) to chondrites, confirming that this grain is extraterrestrial in origin and has primitive chemical compositions. Estimated iridium/nickel and iridium/cobalt ratios for metal in the Itokawa samples are about five times lower than CI carbonaceous chondrite values. A similar depletion of iridium was observed in chondrule metals of ordinary chondrites. These metals must have condensed from the nebular where refractory siderophile elements already condensed and were segregated.

The Hayabusa spacecraft was launched on 9 May 2003 and reached asteroid 25143 Itokawa in September 2005 (*1*). After accomplishing numerous scientific observations (*2*, *3*), the spacecraft tried to collect surface material from Itokawa by touching down to the asteroid in November 2005 (*4*). The spacecraft then navigated back to Earth. Despite encountering several difficulties, Hayabusa finally returned to Earth on 12 June 2010, and its entry capsule was successfully recovered. Although the sample collection was not nominally performed, it was hoped that some extraterrestrial material was stored in the capsule. After careful and extensive examination, more than 1500 particles were recognized by microscopes, most of which were eventually judged to be extraterrestrial, probably originating from Itokawa (*5*).

[1]Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University, Hachioji, Tokyo 192-0397, Japan. [2]Kyoto University Research Reactor Institute, Kumatori, Osaka, Japan. [3]Low Level Radioactivity Lab, Kanazawa University, Tatsunokuchi, Japan. [4]Research School of Earth Sciences, The Australian National University, Canberra, Australia. [5]Department of Earth and Planetary Sciences, Kyushu University, Fukuoka, Japan. [6]Geochemical Research Center, The University of Tokyo, Tokyo, Japan. [7]Department of Earth and Planetary Material Sciences, Tohoku University, Sendai, Japan. [8]College of Science, Ibaraki University, Mito, Japan. [9]Department of Earth and Space Science, Osaka University, Toyonaka, Japan. [10]Institute of Space and Astronautical Science Japan Aerospace Exploration Agency, Sagamihara, Kanagawa, Japan. [11]Natural History Sciences, Hokkaido University, Sapporo, Japan. [12]NASA Johnson Space Center, Houston, TX 77058, USA.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: ebihara-mitsuru@tmu.ac.jp

We analyzed one of the largest grains returned by Hayabusa (RA-QD02-0049) through instrumental neutron activation analysis (INAA). We used a scanning electron microprobe (SEM) to perform the initial characterization of this grain at the receiving room at Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency. The SEM results indicate that the particle is a large crystal of olivine (Fig. 1A), and small inclusions of troilite are contained in this olivine (Fig. 1B). In addition, small pieces of silicates are attached on the surface of olivine (Fig. 1B). Before assaying to INAA, the sample was rinsed with ethanol for the inspection of organic materials at Kyushu University, Fukuoka, Japan, where the rinsed sample was also analyzed by a Raman spectrometer for the characterization of carbonaceous compounds. The sample was then carefully placed into a quartz sample holder for neutron irradiation at Kyushu and brought to the Kyoto University Research Reactor Institute (KURRI), Kumatori, Osaka, Japan. Along with reference standards, the Itokawa sample was irradiated with neutrons at a thermal neutron flux of 8.2×10^{13} $cm^{-2}s^{-1}$ for 19 hours. After irradiation, the quartz holder was replaced with a new (nonirradiated) one to reduce the background radioactivity during gamma-ray counting. During this procedure, the sample was split into five small grains, the largest of which was named RA-QD02-0049-1. The remaining four smaller grains were placed together into one sample holder and named RA-QD02-0049-2. Together with reference standards, both samples were measured for their radioactivity at KURRI for the first three weeks and then at the Low Level Radioactivity Laboratory of Kanazawa University, Tatsunokuchi, Kanazawa, Japan. The detailed procedure for INAA is described in the supporting online material (SOM).

Both samples have similar chemical compositions, suggesting that the grain is fairly homogeneous in its chemical composition (Table 1). According to the surface observation by SEM, grain RA-QD02-0049 is composed mainly of olivine, with plagioclase and troilite as trace components. A slightly high Na content for RA-QD02-0049-1 suggests that it is somewhat plagioclase-rich relative to RA-QD02-0049-2.

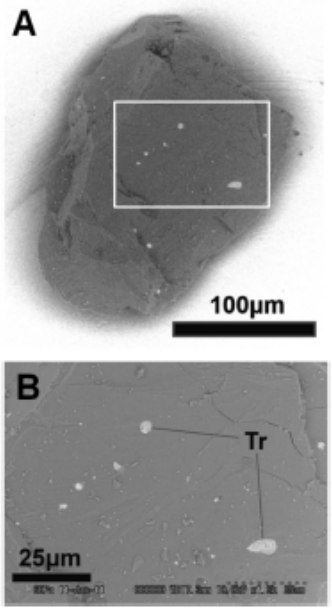


Fig. 1. Back-scattered electron image of a whole view (**A**) and a partial view (**B**) of Itokawa particle RA-QD02-0049. (**A**) The particle is almost exclusively made of olivine with minor amounts of what are probably plagioclase and opaque inclusions mostly of troilite. (**B**) Enlarged view of the boxed area in (**A**) where some troilite (Tr) inclusions are observed. Many small pieces of silicates deposit on the surface.

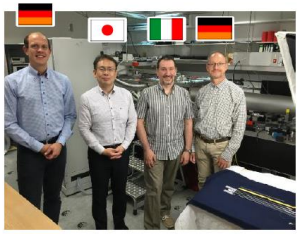
Downloaded from www.sciencemag.org on August 30, 2011

3-3:高純度物質への応用:kg再定義用の^{28}Si濃縮シリコンの不純物分析

アボガドロ国際プロジェクト

ターゲット
- ^{28}Si同位体濃縮結晶の製作
- プランク定数高精度測定

プロジェクト参加機関
- 産業技術総合研究所 (AIST)
- 国際度量衡局 (BIPM)
- イタリア計量研究所 (INRIM)
- 欧州標準物質計測研究所 (IRMM)
- 米国標準技術研究所 (NIST)
- オーストラリア計量研究所 (NMIA)
- 英国物理研究所 (NPL)
- ドイツ物理工学研究所 (PTB)



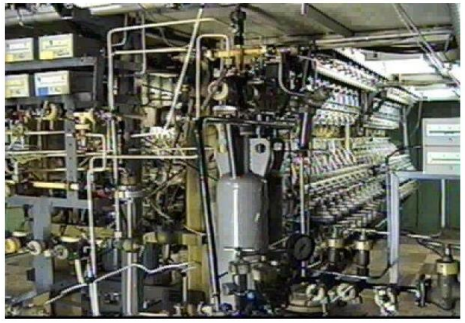
国際共同測定@ PTB in 2016

プロジェクト会合@ NMIA in 2008

遠心分離法を用いた^{28}Si濃縮

ロシアの研究機関による同位体濃縮
- 気体状態にしたシリコン(SiF_4)を遠心分離器内で高速に回転
- 各同位体にかかる遠心力の差を利用して濃縮

	原子量
^{28}Si	27.976 926 53246
^{29}Si	28.976 494 7005
^{30}Si	29.973 770 171



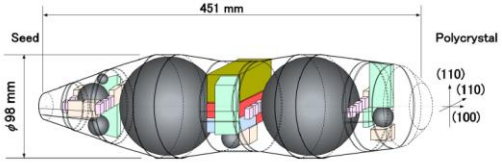
230台の遠心分離器が直列に接続された同位体濃縮システム

約2年をかけて$^{28}SiF_4$ガス(28 kg)を作成

INRIMが中性子放射化分析を実施

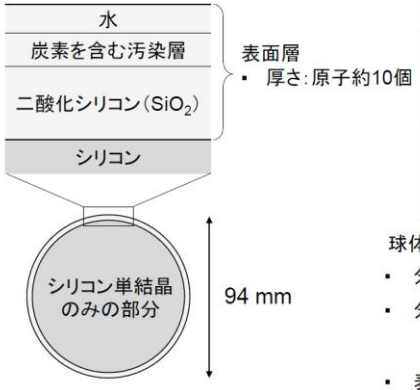
^{28}Si 同位体濃縮結晶

^{28}Si同位体濃縮結晶
- 質量 : 5 kg
- 濃縮度 : 99.99 %

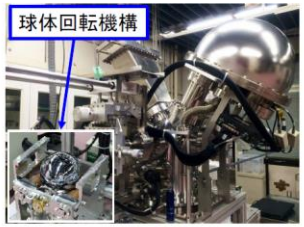


1 kg ^{28}Si 球体
- 体積や質量などを様々な研究機関において測定

シリコン球体表面分析



シリコン球体表面モデル



球体表面分析用X線光電子分光法システム
- 分析の基準:薄膜分析用国家標準
- 分析結果から表面層の質量と体積を評価

- 表面層の質量と体積を、球体全体の質量と体積から差し引き、シリコン単結晶のみの部分の質量と体積を決定

3-3-2高純度物質への応用：^{28}Si濃縮けい素単結晶中の不純物分析

analytical chemistry
Letter
pubs.acs.org/ac

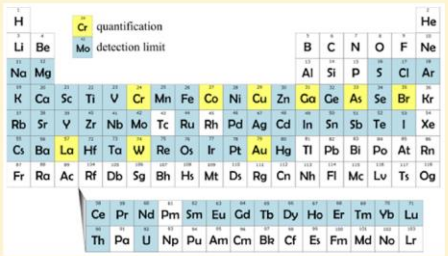
Impurities in a ^{28}Si-Enriched Single Crystal Produced for the Realization of the Redefined Kilogram

Marco Di Luzio,[†,‡] Attila Stopic,[§] Giancarlo D'Agostino,[*,†] John W. Bennett,[§] Giovanni Mana,[†] and Massimo Oddone[‡]

[†]Istituto Nazionale di Ricerca Metrologica (INRIM), Strada delle Cacce 91, 10135 Torino, Italy
[‡]Department of Chemistry, University of Pavia, via Taramelli 12, 27100 Pavia, Italy
[§]Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO), New Illawarra Road, Lucas Heights, New South Wales 2234, Australia

Anal. Chem., 89, 6214-6317, 2017.

ABSTRACT: The practical realization of the unit of mass is possible by manufacturing a perfect one-kilogram sphere from a ^{28}Si-enriched single crystal. The mass of the sphere can be determined in terms of a fixed value of the Planck constant by counting the number of silicon atoms in the core of the single crystal. To reach the target 2.0×10^{-8} relative standard uncertainty, the mass of the surface layer and the mass deficit due to point defects such as impurities and vacancies must be investigated and corrected for. A sample of a ^{28}Si-enriched single crystal produced to test the possibility of obtaining material at a scale useful to the dissemination of mass standards was measured by instrumental neutron activation analysis to check the purity with respect to a large number of possible contaminant elements. The results collected in a neutron activation experiment performed with the high thermal neutron flux available at the 20 MW OPAL research reactor are described. The data collected in this study showed that the produced material has a purity level never achieved with silicon used to manufacture previous one-kilogram spheres.



ANSTO, OPAL research reactor（$6 \times 10^{13} cm^{-2} s^{-1}$）で300 s、116.7 h照射後γ線測定し定量

	半減期	質量分率（kg kg^{-1}）
Cr	27.7 d	$(1.40 \pm 0.14) \times 10^{-12}$
Co	1925.3 d	$(7.6 \pm 1.5) \times 10^{-14}$
Cu	12.7 h	$(6.9 \pm 1.2) \times 10^{-10}$
Ga	14.1 h	$(3.1 \pm 1.0) \times 10^{-13}$
As	26.2 h	$(1.28 \pm 0.47) \times 10^{-12}$
Br	35.3 h	$(1.80 \pm 0.30) \times 10^{-13}$
La	1.68 d	$(7.14 \pm 0.71) \times 10^{-14}$
W	23.7 h	$(6.87 \pm 0.42) \times 10^{-12}$

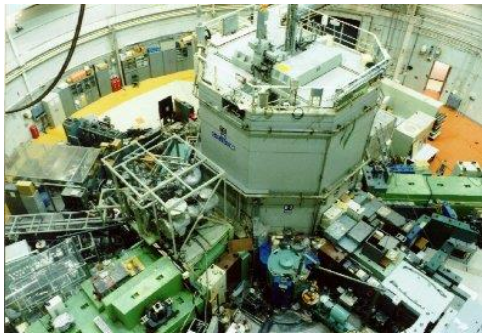
	上限値（kg kg^{-1}）
Ir	$< 4.5 \times 10^{-16}$
Na, Ar, Sc, Mn, Zn, Se, Mo, Ru, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te, Cs, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, Re, Os, Ir, Pt, Hg, Th, U	$< 1 \times 10^{-11}$
Cl, K, Ca, Ti, V, Fe, Ni, Ge, Rb, Sr, Y, Zr, Sn, I, Ba, Er	$< 1 \times 10^{-7}$ ～ $< 1 \times 10^{-11}$
Mg	$< 3.0 \times 10^{-7}$
Nb	$< 2.3 \times 10^{-5}$
S	$< 7.0 \times 10^{-3}$

3-4:中性子放射化分析法(NAA)の利点と適用可能な試料

- 中性子と標的原子核との原子核反応に基づく分析法
- 目的元素の存在状態に影響されないので、試料を分解・溶解することなく全量分析が可能。→ 中性子照射後、複数回試料を測定することで、試料を分解し、溶液化することなく30元素以上の定量が可能。
- トレーサビリティチェーンが切れないので、SIトレーサビリティの確保が容易、ハロゲン等の揮発性元素の定量に有効
- 試料中のH, C, N, O, Sは他の元素の定量に影響しない。10^{-9} gから 10^{-6} g程度の存在量の元素の定量に適している。

完全分解が困難な試料
　土壌、鉱物、岩石、隕石・宇宙塵、大気浮遊塵、セラミックス
水素、炭素、窒素、酸素が主成分の試料
　植物、生物試料
溶液化に伴い汚染の危険がある試料
　高純度物質(Si半導体材料)、極微少量試料(宇宙塵、大気浮遊塵)
厳密な定量が必要な試料
　認証標準物質の値付け、科学捜査関係試料、美術・考古学試料

4：今後の展開（福井県新試験研究炉計画を含めて）



京都大学原子炉実験所
研究用原子炉
KUR

KUR
（大阪府泉南郡熊取町）
・2025年に運転停止予定

- 最も充実していた時期では近大炉、JRR-2、JRR-4、京大炉、立教大炉、武蔵工大炉の7基の原子炉が利用できた。

原子力機構　JRR-3

JRR-3
（茨城県那珂郡東海村）

新たな試験研究炉を活用したイノベ
pref.fukui.lg.jp/doc/dengen/sikenkenkyuro.html

くらし・環境 | 医療・福祉 | しごと・産業 | 観光・文化 | 教育・子育て | 県政情報

ガイドナビを開く

ホーム > しごと・産業 > 産業振興 > 原子力・エネルギー > 新たな試験研究炉を活用したイノベーションの創出、利活用の促進

いいね！0　ツイートする

新たな試験研究炉を活用したイノベーションの創出、利活用の促進

最終更新日 2022年5月19日 ｜ **ページID** 049396 印刷

試験研究炉とは、放射線の一種である「中性子」を利用して研究開発を行う実験施設です。発電を目的とした商業炉とは異なりかなり小規模であることから、一般的に安全性が高いと言われており、学生等の人材育成や、大学や企業等の研究開発に活用されます。

【参考】県外の主な既存試験研究炉
- JRR-3
  - ▶日本原子力研究開発機構ホームページ
- KUR（京都大学研究用原子炉）
  - ▶京都大学複合原子力科学研究所ホームページ
- UTR-KINKI（近畿大学原子炉）
  - ▶近畿大学ホームページ

「もんじゅ」サイトに新たに建設される試験研究炉

平成28年12月、国は敦賀市の「もんじゅ」サイトに新たな試験研究炉を建設することを決定しました。国は、試験研究炉を西日本における原子力関連の研究開発や人材育成の中核的拠点として位置づけており、現在、早期の建設・運転に向け、準備が進められています。

県においても、令和２年３月策定した「嶺南Ｅコースト計画」のなかで、試験研究炉を基本戦略Ｉプロジェクト２に位置づけ、利用促進に向けた人材の育成や周知のための活動を進めています。

▶嶺南Ｅコースト計画と計画推進会議についてはこちらから

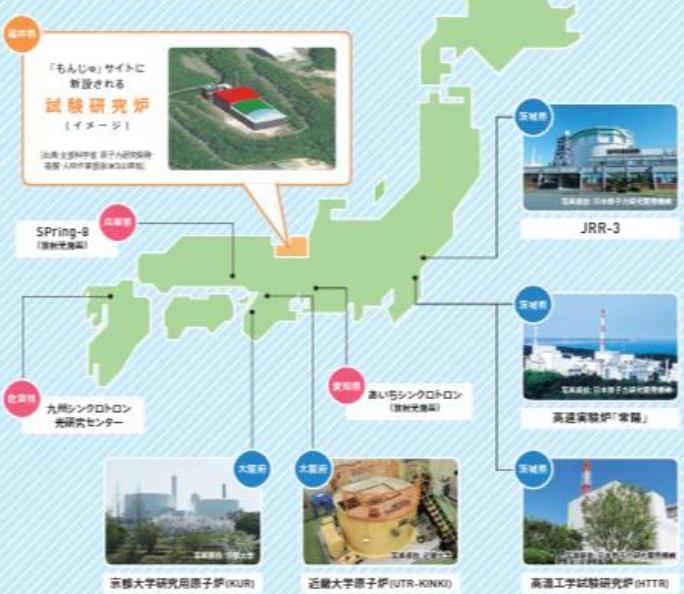
産業振興
- ▶ 地場産業（眼鏡・繊維等）
- ▶ 伝統工芸品・デザイン
- ▶ 産学官連携・技術開発
- ▶ 試験研究
- ▶ 原子力・エネルギー

https://www.pref.fukui.lg.jp/doc/dengen/sikenkenkyuro.html

試験研究炉は、放射線の一種である「中性子」を利用して、研究開発を行う実験施設です。私たちの生活に身近な衣類、食品、化粧品、スマホなどの生活用品の素材開発、ガン治療や診断、新薬の開発、電気自動車の先端的な部品や材料開発、高性能半導体の製造、建物や橋梁などの安全性を確認する技術開発など幅広い産業分野で役に立っています。
一方、学術面でも新しい発見や新技術の開発などの基礎的な研究に使われ、ノーベル賞につながるような数多くの成果が出ています。
このように、先進的な実験施設である試験研究炉を、西日本の新たな研究拠点として「もんじゅ」サイト（福井県敦賀市）に建設する計画が進められています。

西日本の研究開発を牽引する新たな拠点

新試験研究炉は、JRR-3などの中性子利用施設やSPring-8などの放射光施設とのネットワークにより我が国の科学技術の発展に貢献します。



主要な試験研究炉と放射光施設

※放射光とは、光に近い速度で運動する電子の進行方向を磁石などで変えた際に発生する指向性のよい明るい光を言う。

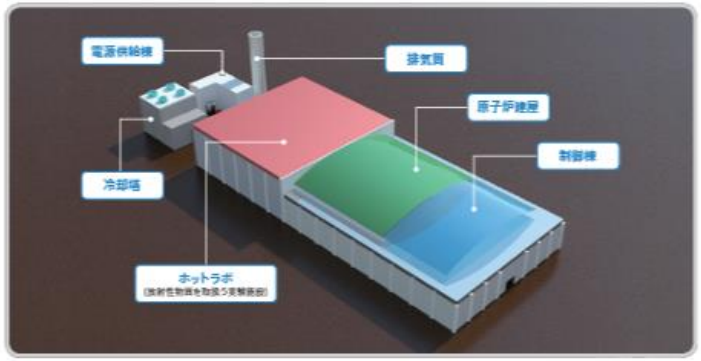
1

「もんじゅ」サイトに設置する新たな試験研究炉の計画概要

令和2年に文部科学省は、「もんじゅ」サイトに設置する試験研究炉として、中性子ビーム利用を主な目的とする「中出力炉（熱出力10MW程度）」に決定しました。試験研究炉の建設・運転を通して、研究開発・人材育成の中核的拠点を形成し、地元振興を図ります。令和4年度中に詳細設計を開始し、早期の建設・運転を目指します。

R2年度～R4年度 概念設計 地盤調査 → R4年度中～ 詳細設計 → 建設工事、検査など 許認可、基礎工事、施設建設工事、地盤改良・基礎工事 → 運転

（出典：文部科学省 原子力科学技術委員会（R2.12.22）資料に基づき作成）



新試験研究炉のイメージ図

（出典：文部科学省 原子力科学技術委員会（R2.12.22）資料に基づき作成）

コンテンツ

西日本の研究開発を牽引する新たな拠点 P1
「もんじゅ」サイトに設置する新たな試験研究炉の計画概要 P2
中性子の実際
試験研究炉と発電用原子炉の違い ―中性子の大きさ P3
放射線の種類 ―中性子の5つの役割 P4
ノーベル賞と中性子散乱 P5
多くの産業分野で利用される試験研究炉 P6
研究開発
中性子ラジオグラフィの利用 P7
中性子散乱の利用 P9
放射化分析の利用 P11
放射性同位元素(RI)の製造と利用 P12
産業分野での利用例
医療／化学分野 P13
基盤産業／社会インフラ分野 P15
輸送機械分野［自動車／航空／宇宙］ P17

表紙の写真は、電気を帯びた電子や陽子（荷電粒子）が水中の光の速さより早い速度で進む時に発生する青白い光（チェレンコフ光）で、原子炉を運転した時などに見られる現象です。（写真提供：京都大学）

2

https://www.pref.fukui.lg.jp/doc/dengen/sikenkenkyuro_d/fil/sikenkenkyuro_pamphlet2.pdf

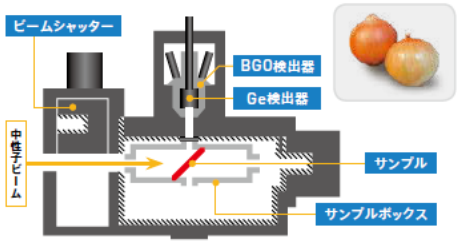
研究開発 3 放射化分析の利用

放射化分析とは、試料に中性子を照射し、放射化された元素から放出される放射線を測定することにより、試料に含まれる元素を分析する手法です。検出感度が高く、少量の試料でも多元素の同時分析が可能です。物質中の透過能力が高いので、表面分析にとどまらず、試料全体を分析できることが特徴で、自然科学、工学の分野だけでなく、考古学、医学、環境の分野でも元素分析法として利用されています。

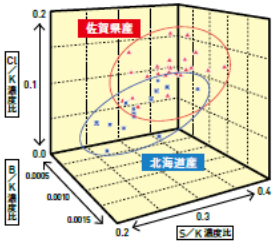
たまねぎの産地を調べる！

たまねぎのカリウム(K)濃度に対するホウ素(B)、イオウ(S)、塩素(Cl)の濃度比の分布は、佐賀県産と北海道産とで異なっているため、放射化分析により産地を同定できます。

即発ガンマ線法分析装置



タマネギ試料の元素濃度比分布



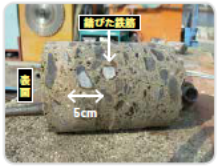
(資料提供:日本原子力研究開発機構)

コンクリート中への塩水浸透測定

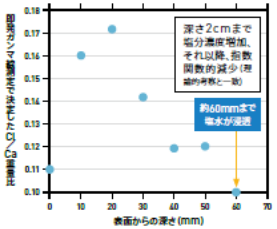
防波堤(海岸壁)のコンクリート壁からコア試料を取り、放射化分析によってカルシウム(Ca)と塩素(Cl)のガンマ線の強度を測定することで、コンクリート中の塩水の浸透度合いを評価できます。

海岸のコンクリート中の塩分濃度分布

20～30年程度、海風にさらされていたコンクリート



コア抜きしたコンクリート表面から1cm間隔で試料を採取



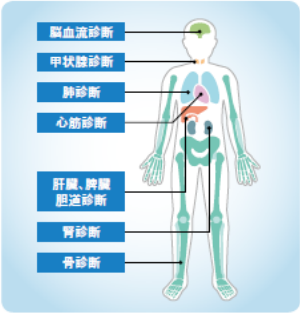
(資料提供:日本原子力研究開発機構)

研究開発 4 放射性同位元素(RI)の製造と利用

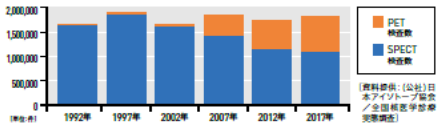
放射性同位元素(RI)は、その多くが試験研究炉の中性子や加速器からの陽子線等を照射することにより製造されます。工業分野では非破壊検査、計測装置・分析装置、医療用具の滅菌や殺菌に、医療分野では悪性腫瘍の治療や診断に利用されています。

医療用RIの利用

国内の医療用RIは核医学診断や治療に利用されています。核医学診断では国内で年間100万件以上行われ、様々な病気の発見に寄与しています。最近では治療薬も増えており、年々治療件数が増加しています。

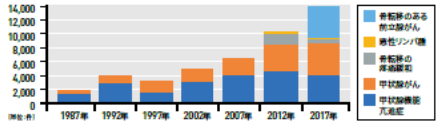


核医学診断の実績



(資料提供:(公社)日本アイソトープ協会／全国核医学診療実態調査)

核医学治療の実績

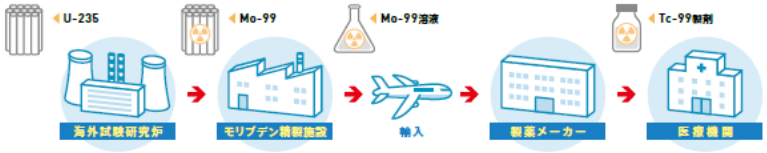


(資料提供:(公社)日本アイソトープ協会／全国核医学診療実態調査)

核医学診断の現状

核医学診断には、PET用の薬剤等の国内(加速器)で製造される短半減期のRIと、海外の試験研究炉で製造され日本に輸入されているRIが使われます。特にSPECT検査に用いるテクネチウム(^{99m}Tc)の原料となるモリブデン(^{99}Mo)は、100%を海外から輸入しています。モリブデンの国産化を目指し、試験研究炉や加速器を用いた製造技術の研究開発が進められています。

現在のテクネチウム製品供給の流れ



コラム

放射性同位元素(RI)は、同じ元素で中性子の数が異なり放射線を発するもので天然に存在するものと、試験研究炉等で人工的に製作するものがあります。人工のRIは、放射線治療・診断や工業分野で利用され、国民生活の向上に大きく貢献しています。

https://www.pref.fukui.lg.jp/doc/dengen/sikenkenkyuro_d/fil/sikenkenkyuro_pamphlet2.pdf

おわりに

中性子放射化分析法は無機分析の中で特有の位置を占める重要な分析法です。本講演では、中性子放射化分析法の歴史、応用例、今後の展開について紹介しました。残念ながら、日本国内の研究用原子炉の減少、放射化分析を研究手段として使用する大学・研究者が減っていることから放射化分析法の利用者は減少しています。有用な分析法が今後も使用できるように活動しています。

NPO法人　放射線教育フォーラム　2022年度第1回勉強会
2022年6月12日(日)　14:20～14:50　オンライン開催