

文部科学省

国際原子力人材育成イニシアティブ事業 (原子力人材育成等推進事業費補助金) 「機関連携強化による未来社会に向けた新たな原子力教育拠点の構築」

中性子放射化分析·元素分析実験

佐藤 博隆

大学院生募集中!

北海道大学 大学院工学研究院 <u>応用量子科学部門</u> 中性子ビーム応用理工学研究室

Website: https://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/QBMA/

Contents 1

- 量子ビーム科学と中性子ビーム科学
- 粒子加速器(北大の電子線形加速器を例に)
- 粒子加速器を利用した中性子源(パルス中性子 源を中心に)
- 中性子エネルギースペクトル
- 中性子の輸送と検出
 - TOF法による白色中性子のエネルギー分解
 - 2次元位置敏感型検出器を用いた中性子イメージング
- 中性子と原子核の反応断面積
- 中性子発生施設の放射線安全

Contents 2

- 中性子放射化分析による元素分析の原理
- 中性子放射化分析法の応用
 - ・ ナポレオンの死因の調査
 - ・はやぶさプロジェクト
- Nalシンチレーション検出器の波高スペクトル
- Nalシンチレーション検出器のエネルギー校正と エネルギー分解能
- バックグラウンドとその対策法
- 同定・定性分析:元素(核種)分析
- 定量分析: 中性子束の推定、元素の定量

タイムスケンュール計画 (ゆる~く交流しながら楽しみましょう!)					
	Mon.	Tue.	Wed.	Thu.	Fri.
		TA 3人?	TA 3人?	TA 3人(午前)	TA 3人?
8:45-10:15	放射線施設 の教育訓練	中性子放射 化分析実験 (10pps,15分)	放射化試料 のスペクトル 測定	追加実験(時間・距離・遮 蔽とか?)	プレゼンテー ション
10:30-12:00	施設の説明、 施設見学	Nalシンチ式γ 線スペクトロ メーター試験	元素(核種) 同定	追加実験の データ解析	プレゼンテー ション
	= *				0

エネルギー校

エネルギー分

解能評価、

ンド

バックグラウ

ディスカッショ

ン(バッファ)

正実験

中性子束推

定(元素の定

プレゼンテー

ションのテー

ディスカッショ

ン(バッファ)

マ設定

量)

調査、プレゼ

ンテーション

調査、プレゼ

ンテーション

調査、プレゼ

ンテーション

準備

準備

準備

プレゼンテー

解散

黒:講義等

青:実習

の実習

ション、まとめ、

赤:管理区域内で

13:00-14:30

14:45-16:15

16:30-18:00

量子ビーム/

中性子科学

加速器•中性

子源•中性子

中性子放射

化分析概論

工学概論

概論

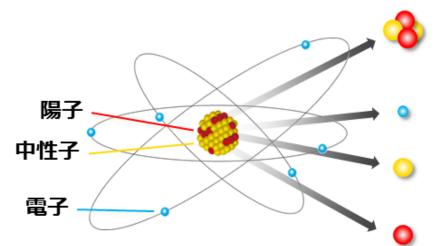
量子ビーム科学と中性子ビーム科学

量子ビームとは?

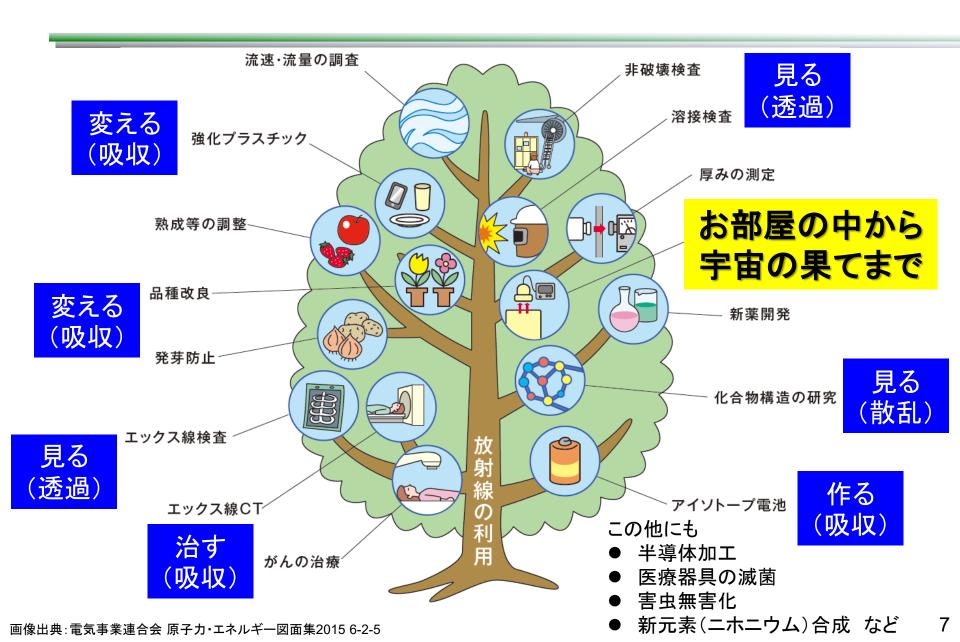
● 放射線のビームのこと

●では、放射線とは?

- 高い運動エネルギーを持って流れる粒子線
- 高エネルギーの電磁波(光や電波 = 光子)

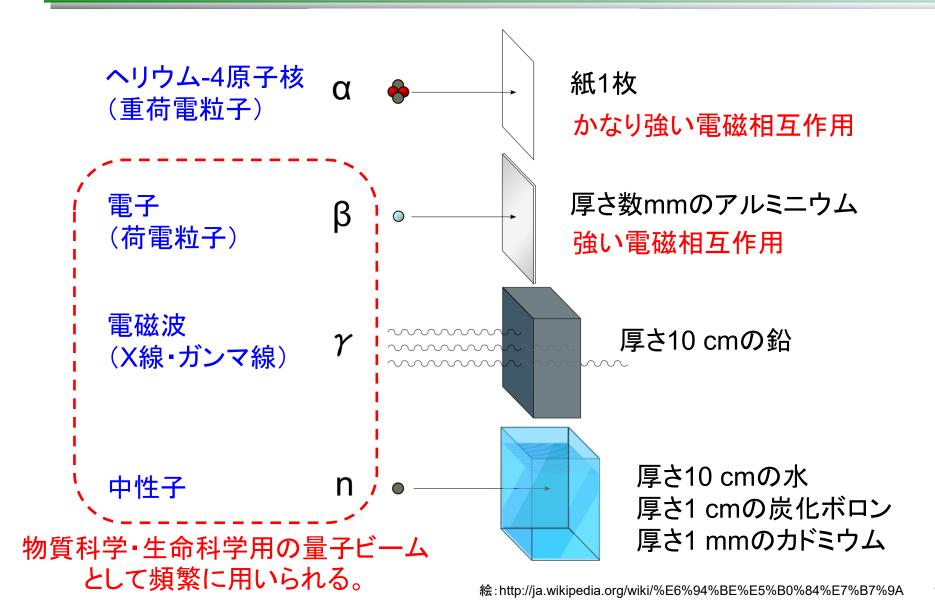


放射線の活用例は、多岐にわたる。



放射線の種類によって異なる 物質との相互作用

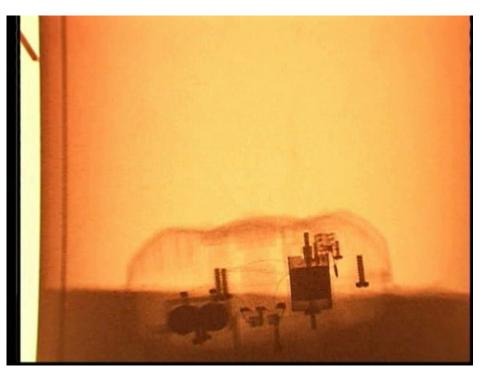
物質を電離・励起する。 物質により散乱・吸収される。



Time-resolved imaging: Dynamic radiography/tomography

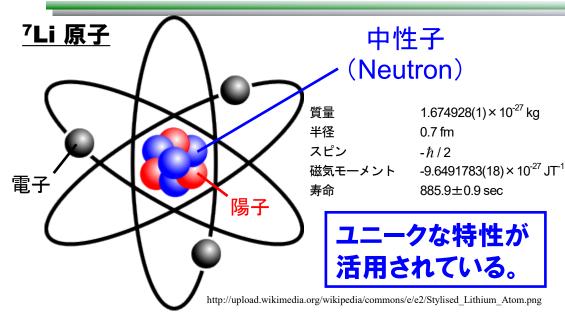
70 keV X-ray

25 meV neutron



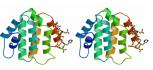


中性子の特性と応用



物質・材料・生命・地球惑星・物理分野への応用

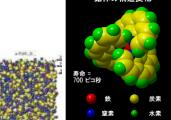
- 原子・分子の構造解析
- 原子・分子のダイナミクス解析
- 透視(イメージング)
- 元素分析•同位体分析
- 素粒子物理学 · 原子核物理学











20 mm



- 高い物質透過能力
- 軽元素•同位体識別能力
- 原子核に近い質量を持つ
 - 物質の微視的な時空間情報を 非破壊的に解析できる。
- スピンと磁気モーメントを持つ
 - 磁気情報の探査

エネルギー分野への応用

- 原子力発電
- 長寿命放射性廃棄物核変換処理

医療分野への応用

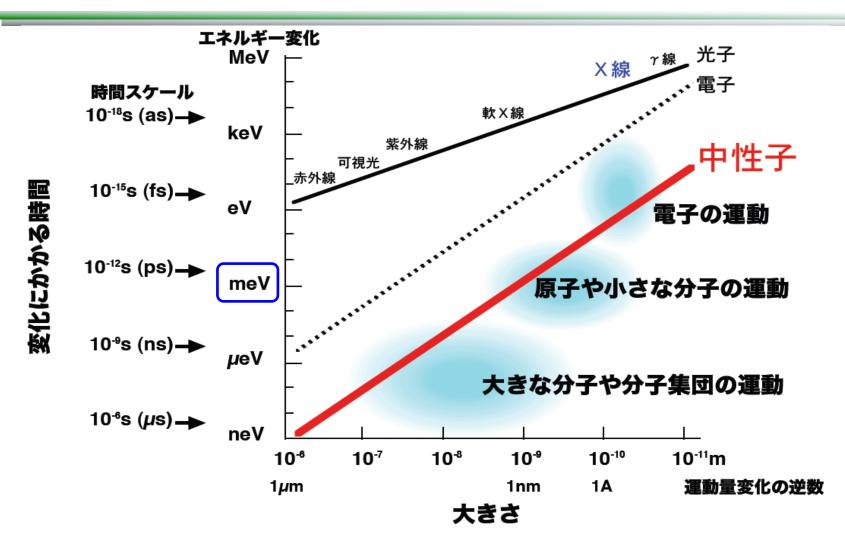
- (ホウ素)中性子捕捉療法
- RI薬剤製造

その他の応用

- 中性子照射試験(材料・電子機器)
- 水分計、・・・

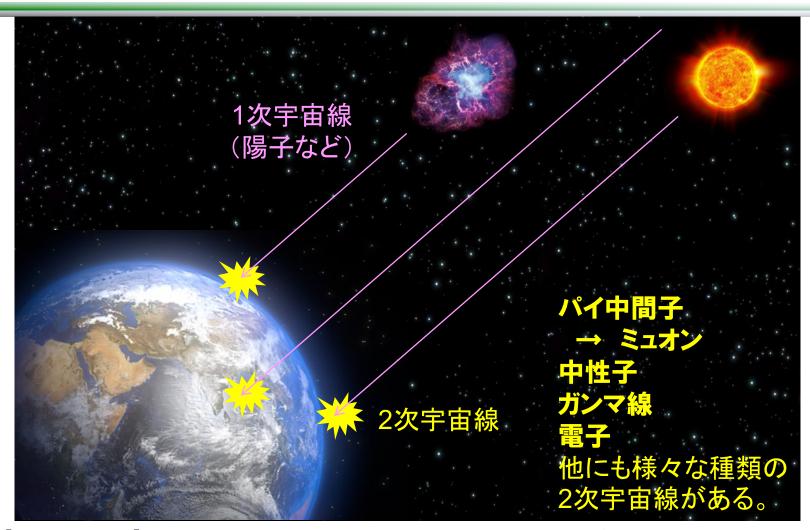


原子核に近い質量 → 物質解析にマッチ



他の放射線に比べ、meVまでエネルギーを下げる必要がある。

放射線源(1:宇宙線(超高エネルギー)



1次宇宙線: 宇宙から飛来する放射線。陽子が主。

2次宇宙線: 1次宇宙線が大気と反応してできた粒子。ミュオン等。12

放射線源②: 放射性同位元素(RI)

● α(アルファ)線源

Am(アメリシウム)-241(約5.5 MeV)、 Po(ポロニウム)-210(約5.3 MeV) など



画像出典:http://blog-imgs-38.fc2.com/w/i/n/wine4wine/R0010667.jpg

● β(ベータ)線源

Sr(ストロンチウム)-90(最大 約2.28 MeV)、Na(ナトリウム)-22(β+(陽電子)線源) など

● γ(ガンマ)線源

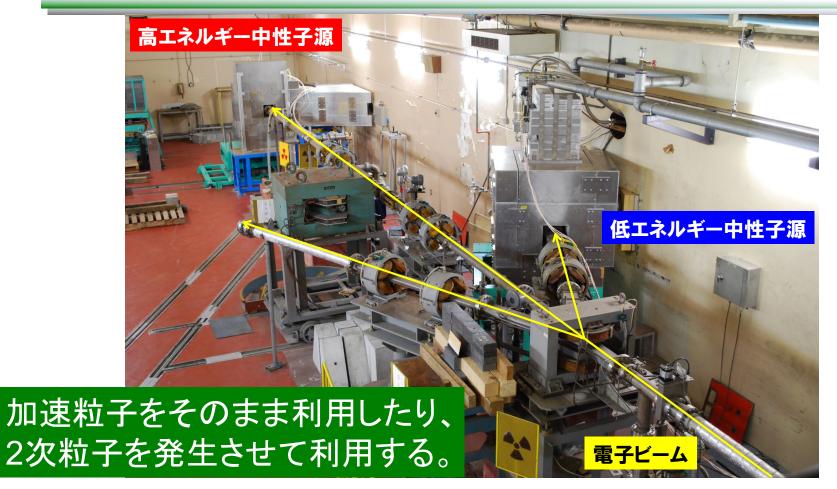
Co(コバルト)-60(約1.17 MeV & 約1.33 MeV)、Cs(セシウム)-137(約0.66 MeV) など

● 中性子線源: ²⁵²Cf、 ²⁴¹Am-Beなど

放出量が少なく、放射線が四方八方に放射される。が、お手軽。

放射線源③:加速器(高強度・高エネルギー)

写真:北大工学部「電子加速器駆動中性子実験施設」



- 高強度・高指向性の放射線の束(量子ビーム)を供給。
- 発生できる放射線の種類が豊富(素粒子からウラン原子核まで)。
- 小型加速器は街中にもある(病院にある放射線治療装置など)。14

大強度陽子加速器施設「J-PARC」



火災報知器(煙を探知する。)

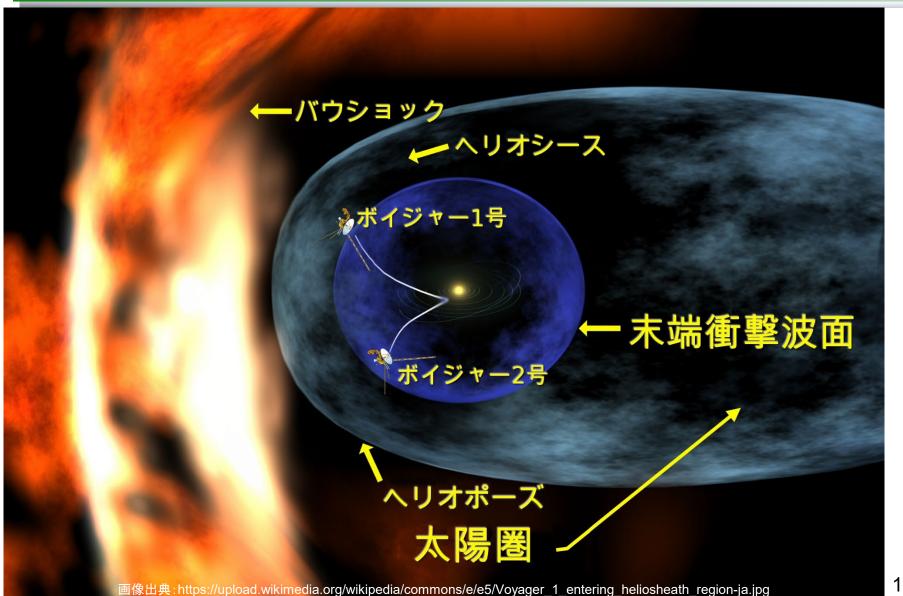
日本の家庭ではあまり使われていないが・・・。

- Am-241(α線源)を用いて、
 煙の電離(イオン化)を起こす。
- 電離電流の変化を検知することで、煙を探知する。
- 高感度に煙を探知することが可能。
- 「放射性同位元素装備機器」に該当するため、 相当の規制を受ける。



宇宙探査機「ボイジャー」(1977年打ち上げ) の2005年の位置

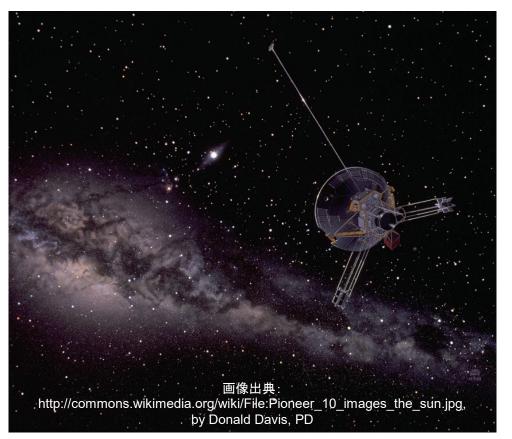
現在、ボイジャー1号は太陽圏の外にいる。



RI(ラジオアイソトープ)電池

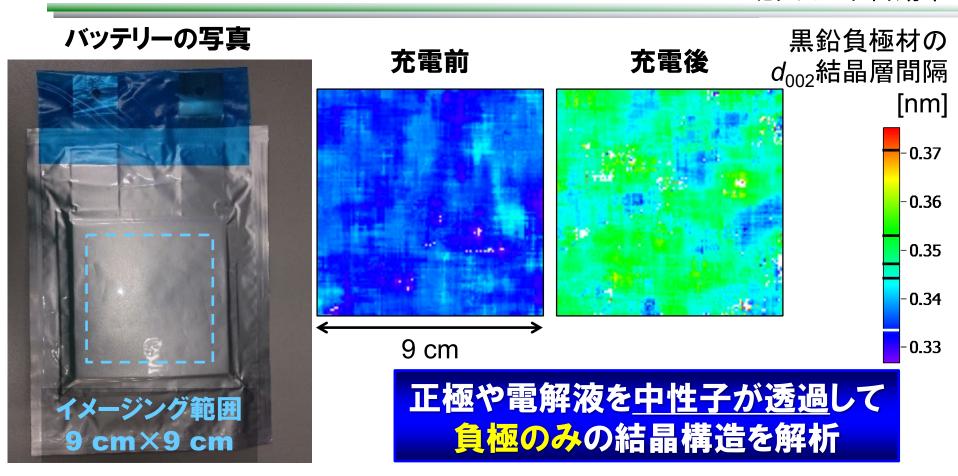
太陽光が十分に届かない所で、安定した電力を、長期間にわたって供給できる。

- α線源(Pu-238やPo-210など)が用いられる。
- ●α線が物質に<mark>吸収されて生じる熱を、</mark> 熱電変換素子により、電力に変換する。



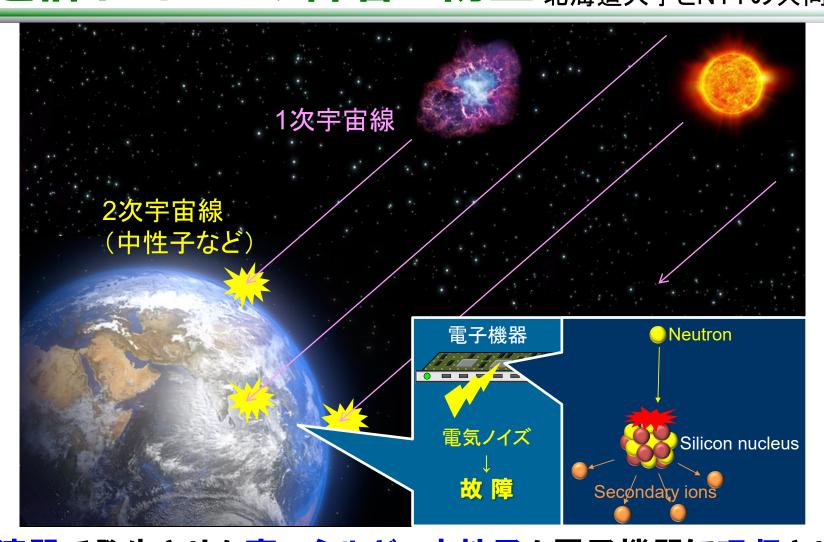
自動車用リチウムイオンバッテリーの 中性子散乱解析型イメージング

北大-トヨタ自動車



【充電(Liイオンの黒鉛層への侵入)によって拡がる層間隔】 製品内の<u>場所によって違いが存在</u>する。

加速器ビームを利用した宇宙線起因の大規模 通信ネットワーク障害の防止 北海道大学とNTTの共同研究



加速器で発生させた高エネルギー中性子を電子機器に吸収させ、 故障を<u>わざと</u>発生させ、自然界での故障頻度の推定などを行う。

情報通信ネットワーク用伝送システムの 宇宙線中性子ソフトエラー対策実験



害虫無害化

沖縄におけるウリミバエ駆除作戦

- ・ ウリミバエの幼虫は野菜の中身を食べる上に、繁殖力が高く、野菜の生産に壊滅的な打撃を与える。
- 1970年代、日本本土への侵入を防ぐため、 沖縄においてウリミバエの撲滅作戦が開始された。
- その中で、Co-60ガンマ線源により、大量のウリミバエの幼虫に放射線を照射し、不妊化させ、生息地域へ大量に放つことにより、繁殖を抑える作戦が効いた。
- 1993年までにウリミバエの根絶に成功。使用された ハエの数は500億匹を超える。

食品照射

- ●目的:食品の貯蔵期間の延長や殺菌・殺虫など
- 日本では、北海道の士幌町農業協同組合が、 ジャガイモに対してのみCo-60によるガンマ線 照射を行っている(目的は発芽防止)。



花の品種改良(突然変異の応用)

TIARA(高崎イオン加速器)での活動が有名

DNA損傷作用の強いイオンビームを照射し、色や 形に関する遺伝子突然変異の確率を上げる。



華麗な花びらをもつ菊の新品種



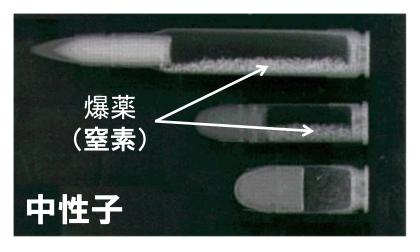
イオンビームを照射して、花びらの形が 変化した華やかな雰囲気の品種をつくる ことができます。このように品種改良さ れた菊は、祝い事やアレンジメントなど、 新しい用途開拓が期待されています。

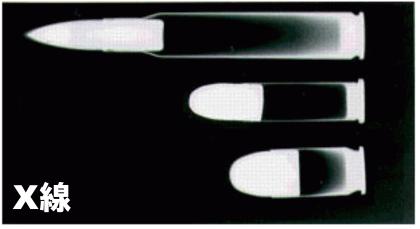
中性子ビームを利用した透過イメージング

特徴(1):いくつかの軽元素(水素・リチウム等)に対して高感度

特徴②:数センチメートルの重金属を容易に透過できる

⇒ エンジン内部のオイル挙動の可視化等で利用





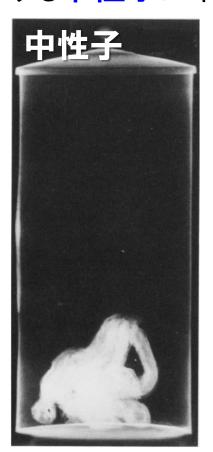
X線イメージングでは不可視だった物 (重金属中の軽元素)を可視化

中性子イメージングで文化財を透視

青銅製の経筒内部の様子の透視

金属容器内に存在する紙や布等の有機物の検知には X線よりも中性子が有利!





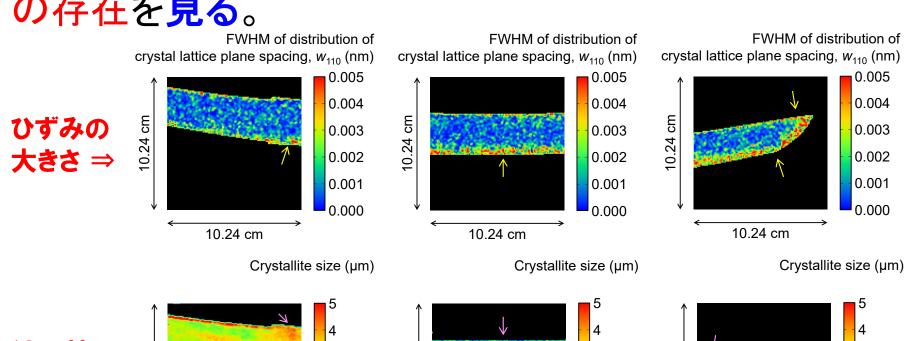


26

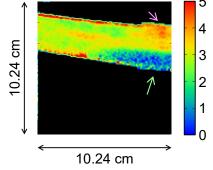
日本刀を壊さず分析

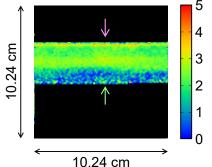
北海道大学をはじめとする日・伊の国際共同研究

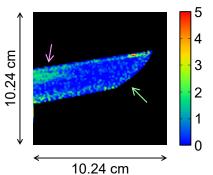
低エネルギー中性子の散乱により、日本刀の刃先の熱処理起因ひずみや、刀身の中の巨大結晶粒の存在を見る。





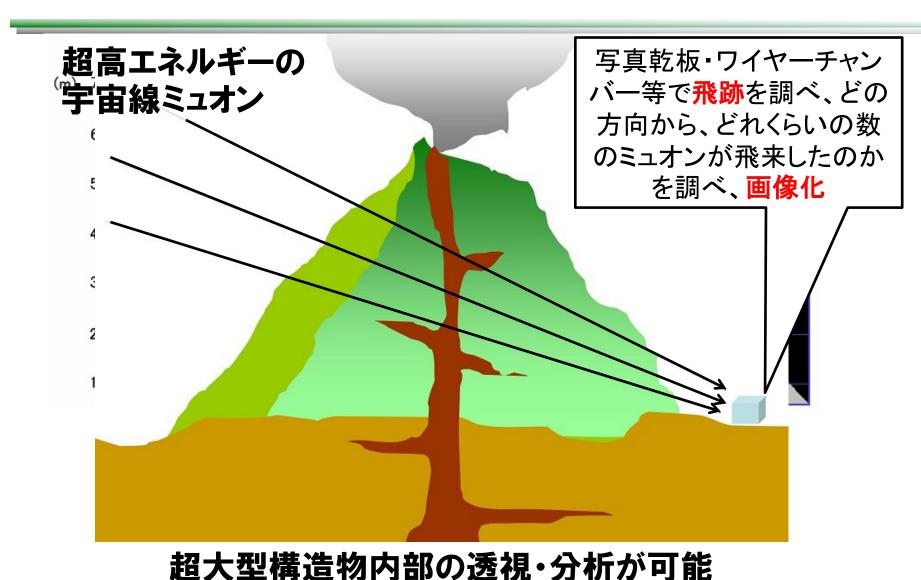






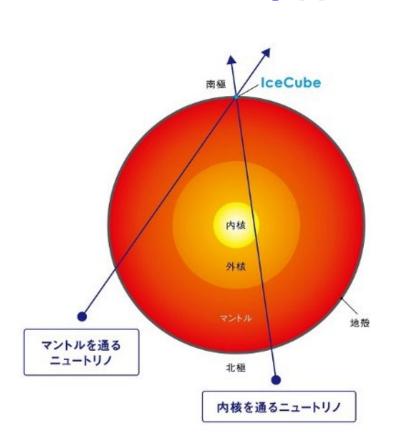
27

宇宙線ミュオンを利用した火山イメージング

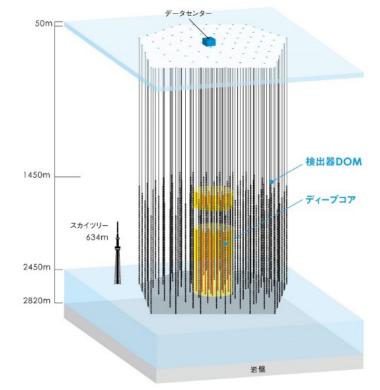


より物質透過能力の高い放射線(素粒子)で「地球のレントゲン撮影」ができないか?

やってます! 宇宙線ニュートリノによる地球イメージング



南極の氷柱にある超巨大検出器「IceCube」 (カミオカンデを超大型にしたようなもの)



地球の内部構造を実際に透視できる日は近い!

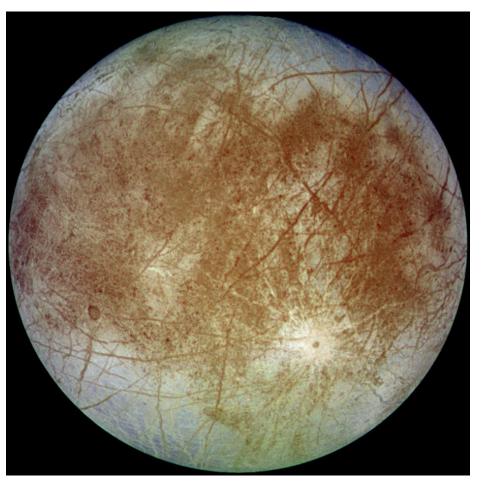
IceCube



宇宙線が

宇宙惑星物質に与える影響に関する研究

木星の衛星「エウロパ」



北大の電子加速器を利用した「エウロパ」環境模擬実験



理学院 宇宙理学専攻 惑星宇宙グループ 探査・観測ユニット との共同研究

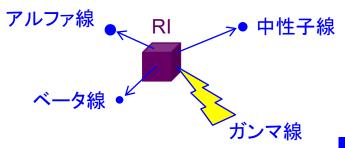
粒子加速器(北大の電子線形加速器を例に)

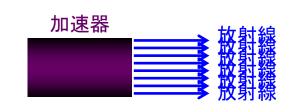
加速器の目的:高エネルギー・高強度・高指向性の放射線束の発生

① 高強度・高指向性の放射線の束(量子ビーム)を供給して、

放射性物質で発生する放射線

加速器で発生する放射線

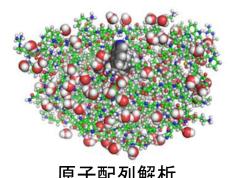




加速粒子をそのまま利用したり、2次粒子を発生させて利用する(発生できる放射線の種類が豊富)。

② 物質を「見る」「変える」「治す」。





原子配列解析原子運動解析



植物・半導体の品種改良 医療器具の滅菌



がん治療

日本の大型量子ビーム利用(加速器)施設

http://www.mext.go.jp/a_menu/shinkou/ryoushi/

物質材料科学·生命生体科学

素粒子物理学·原子核物理学

SPring-8-SACLA



電子 X線 放射光

設置者 :理化学研究所

立地 :兵庫県·播磨科学公園都市

主な機能:

強い光で物質の機能・構造を調べる!

TIARA



設置者:JAEA ※1

立地 : 群馬県高崎市

主な機能:イオンビームで 新しい物質や特殊な性質

を持った植物を創る!

陽子 中性子 ミュオン

J-PARC



陽子 ハドロン ニュートリノ

設置者 : JAEA、KEK(J-PARCのみ)

立地 : 茨城県那珂郡東海村

主な機能:中性子を使って物質の構造・ 機能や磁力の性質を調べる!その他の さまざまな粒子を使って物質の起源に迫

る

RIビームファクトリー



重イオン

設置者:理化学研究所 立地:埼玉県和光市

主な機能:

イオンビームで物質の起源に迫る!

KEKB

重イオン



電子 陽電子 中間子

設置者:KEK ※2

立地 : 茨城県つくば市

主な機能:電子と陽電子をぶつけて物質を形作る細かい粒子を調べて、宇宙

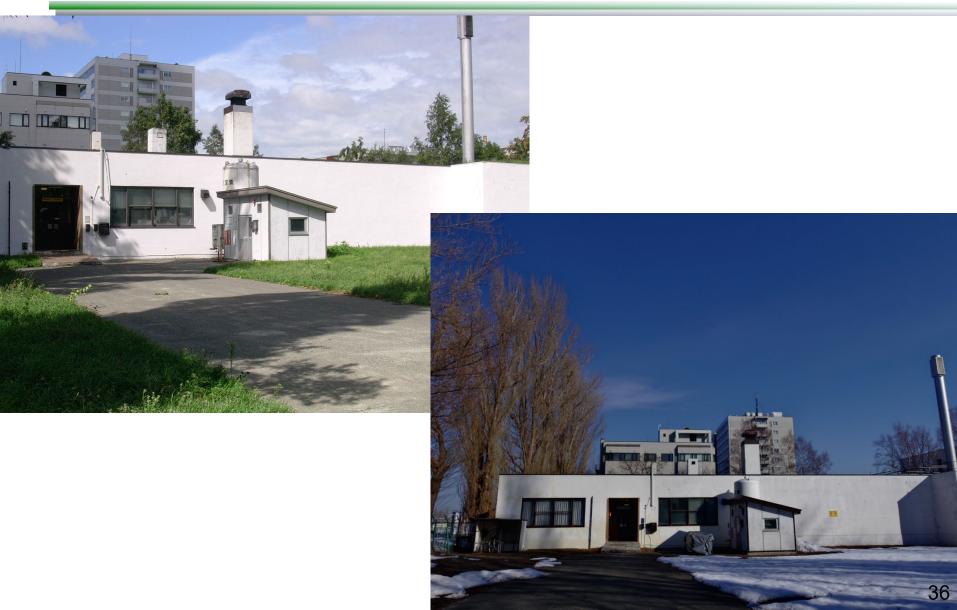
の起源に迫る!

北大LINAC施設の所在地



北大LINAC施設の外観写真

学内有数の放射線管理区域。北大病院陽子線治療センターと並ぶ、学内最大級の大型加速器施設。

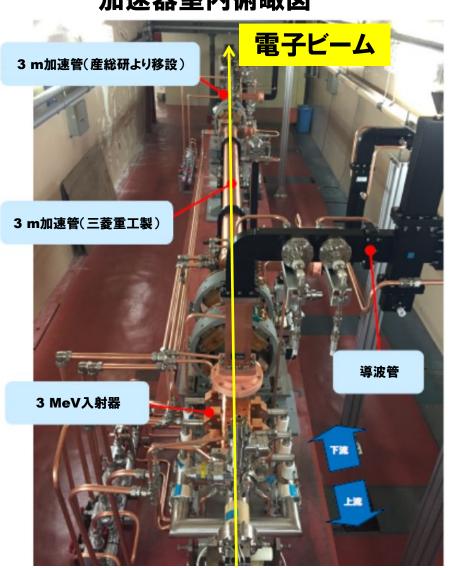


地下にあるコントロールルームの様子:加速器の運転、実験機器遠隔操作、打ち合わせ等

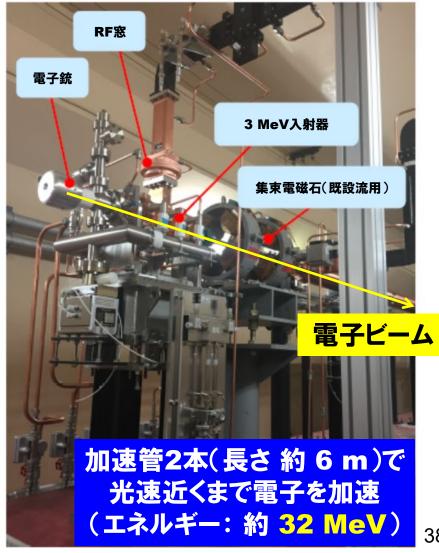


電子LINAC (Linear Accelerator): 電子線形(直線)加速器

加速器室内俯瞰図



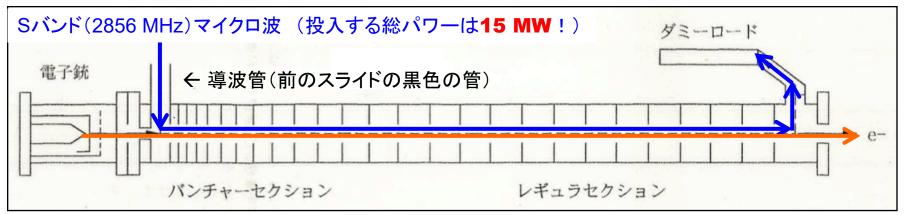
入射器周辺



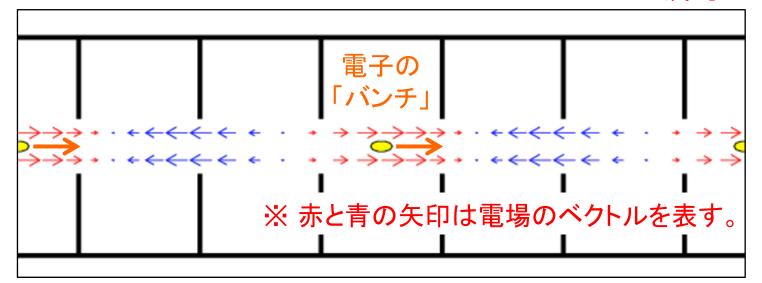
電子の加速の原理

(静電場では難しい)32 MVという電位差の電場を生み出す方法。

電子は電場・磁場と相互作用することを利用。電磁波(電波(マイクロ波))を使う。



マイクロ波の進行波を加速管の中に作り出す。その進行波に電子を波乗りさせる。



電子LINACの性能:まとめ

全体性能(現在)

- 電子の運動エネルギー: 32 MeV
- 電子ビームの時間平均電流値: 50 µA
- 電子線パワー: 1.6 kW(= エネルギー×電流)

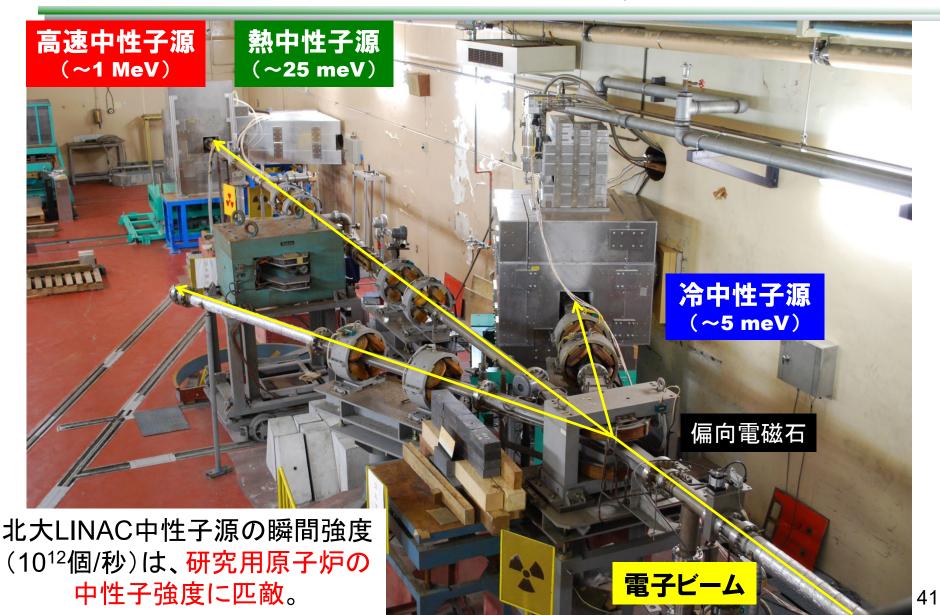
パルス運転の性能(現在)

- 電子線パルス幅: 4 µs
- パルスの繰り返し周期: 50 パルス/秒

最大では、パワー(電流値)が2倍になる!

年間の稼働実績:約160日

高エネルギー・高強度の電子線を使って 核反応により大量の中性子を発生させる!

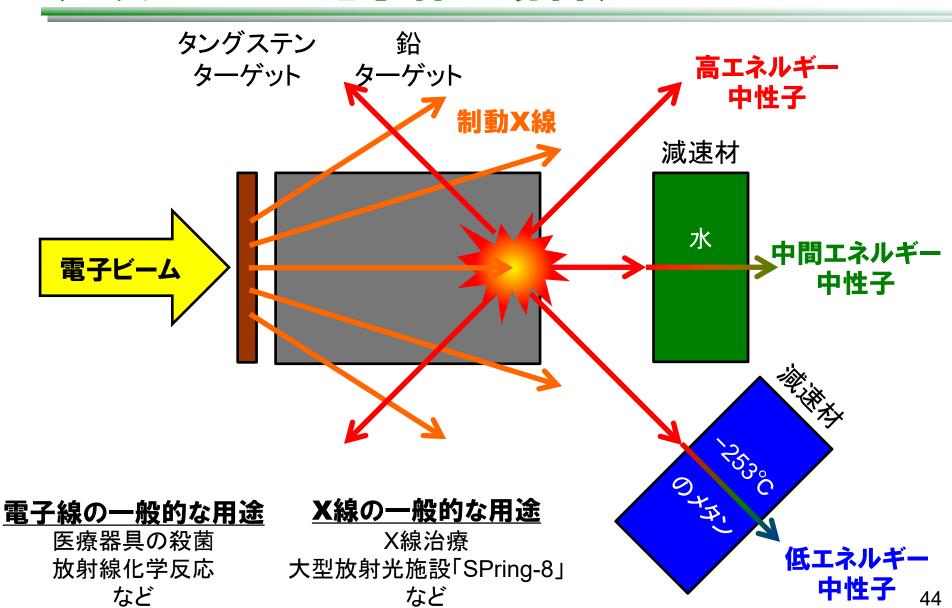


なぜ加速器が必要か?

- ✓ 放射線の種類によって、そのエネルギーによって、異なる反応断面積を 持つ物質との相互作用が起こる。
- ✓ 種々の相互作用を起こす種々の粒子を解析して、物質の構造や運動を 調べることができる。
- ✓「広いエネルギー帯を利用するため(電子線・X線)」や「2次粒子・3次粒子の効率的な生成のため(電子→X線→中性子・陽電子、陽子→中性子)」には、1次粒子を高エネルギー化(加速)できると利用の幅が拡がる。
- ✓ 相互作用を「より短時間で捉えるため」や「より小さな反応を捉えるため」 には、入射ビーム強度を高くする必要がある。
- 放射線の種類・エネルギー・強度・ショット時間の制御という 観点から、加速器は上記条件を満たすにあたって有効。
- 高強度 · 高エネルギーを狙った施設が、大型加速器施設。
- 使いやすさ・普及を狙った施設が、小型加速器施設。

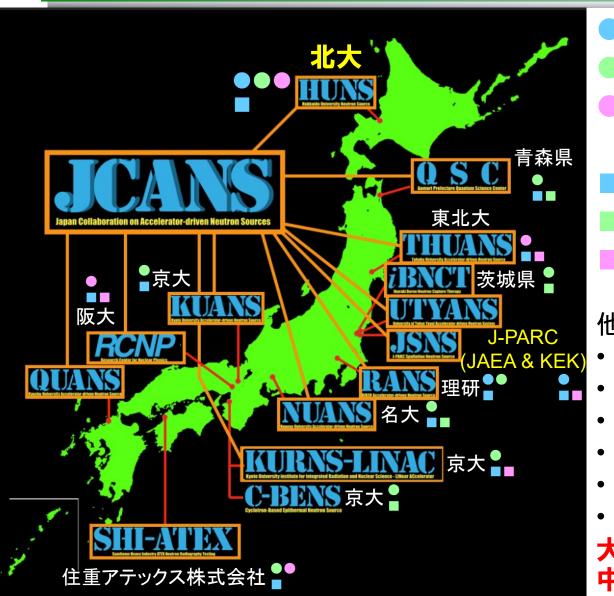
粒子加速器を利用した中性子源 (パルス中性子源を中心に)

中性子の発生及びエネルギー調整方法 (1次ビームが電子線の場合)



日本の主な加速器駆動中性子実験施設

日本加速器中性子源協議会「JCANS」のホームページの画像を加工



- ●冷中性子源
- ●熱中性子源 / 熱外中性子源
- ●高速中性子源
- ■物質・生命・産業応用系
- ■医療系
- ■素粒子•原子核物理系

他にも、

- 產業技術総合研究所 🖁
- その他、加速器中性子源
- その他、原子炉中性子源
- その他、レーザー中性子源
- その他、RI中性子源
- • •

大学・国研・民間企業で様々な 中性子源とその利用例がある45

国内の主要なパルス中性子イメージング施設

北海道大学 工学研究院 HUNS

J-PARC MLF BL22 RADEN(螺鈿)



https://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/QBMA/LINAC/

中性子束(最高): 10⁴ n/cm²/s

波長分解能(最小): 1%

波長帯域(最大): < 1.3 nm

ビームサイズ(最大): 10 cm×10 cm

ビーム発散角: 1/60 rad

中性子束(最高): 10⁸ n/cm²/s

波長分解能(最小): 0.20%

波長帯域(最大): < 1.76 nm

ビームサイズ(最大): 30 cm×30 cm

ビーム発散角(最小): 1/7500 rad

これらに加えて、産総研にAISTANSも整備中。

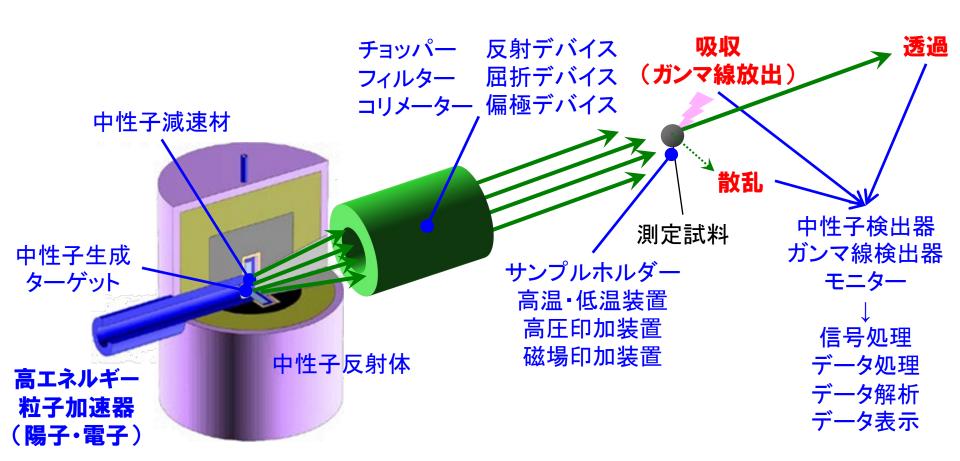
世界最高性能

中性子ビームラインの構成

中性子の発生

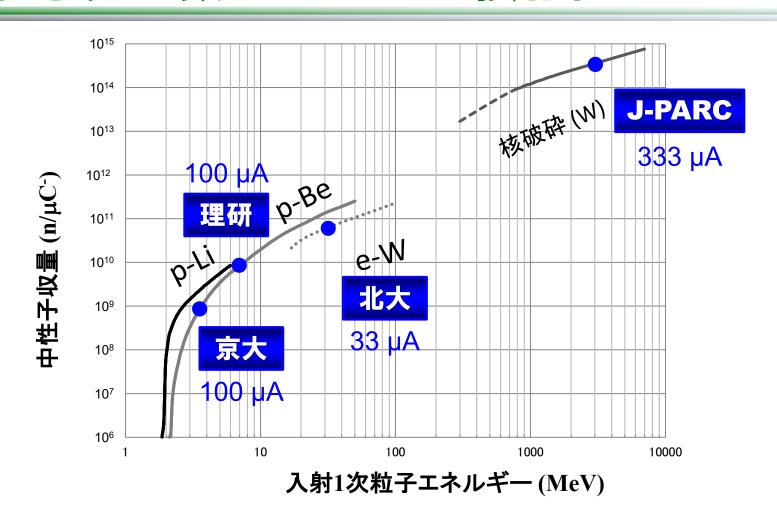
中性子の輸送

中性子の利用



大型陽子加速器(数百MeV以上) 核破砕反応 ~10¹⁷n/MW 小型陽子加速器(数十MeVまで) p(~11MeV) (Be,n) reaction ⁹Be ~10¹⁵n/MW 電子加速器 (e,γ) (γ,n) reaction p(~3MeV) (Li,n) reaction ~10¹⁵n/MW ~10¹⁴n/MW 48

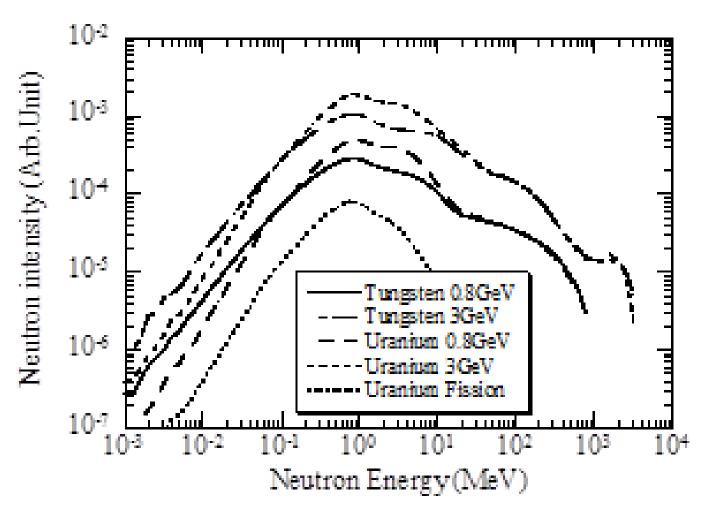
各反応の1次粒子数当たりの 中性子発生数のエネルギー依存性



加速器の仕様によって適切な中性子発生反応は異なる。

中性子エネルギースペクトル

発生する中性子スペクトルはMeVにピーク



しかし、物質・生命科学で必要なエネルギーはmeV。

HUNSの中性子源減速材体系

電子LINAC(線形加速器)

- $33 \text{ MeV} \times 33 \mu\text{A} = 1 \text{ kW}$
- 電子パルス幅:3 µs
- 電子パルス繰り返し:50 Hz

中性子の発生

- 電子線の制動放射による放射光X線の発生
- 光核反応
- ターゲット材:Pb
- 1秒間に1.6×10¹²個

中性子減速材

- 反射体結合型減速材
 - → ポリエチレン前置減速材
- 18 K固体メタン減速材
- 冷中性子パルス幅:160 µs

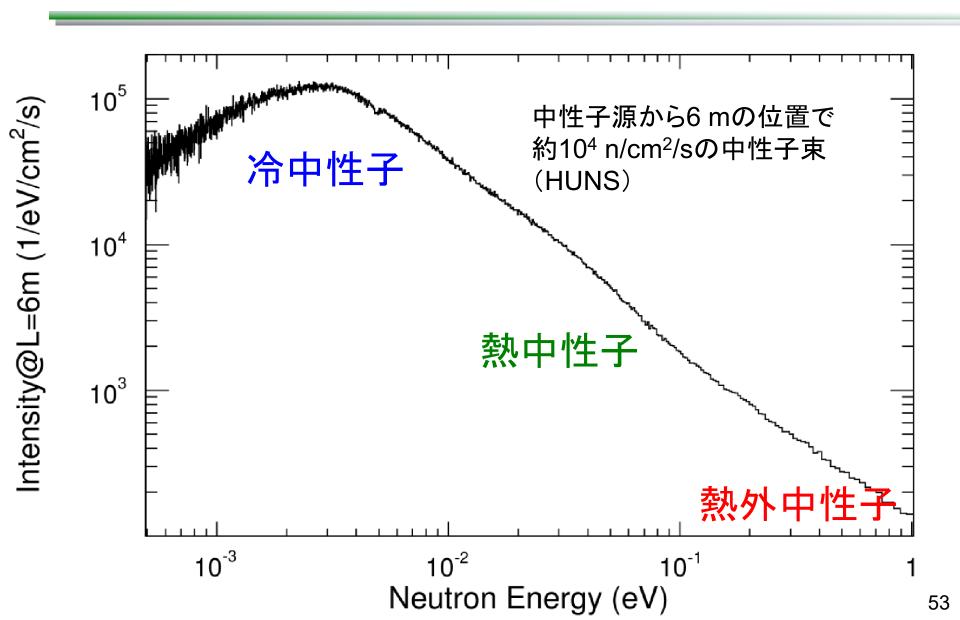
中性子反射体

黒鉛(80×80×80 cm³)

中性子に最も質量の近い**水素原子核**と 「ビリヤード」衝突させる。 Stainless B-Resin Polyethylene Graphite B4C premoderator (t 1.5 cm) Mica Water Solid methane moderator Polyethelene Cd $(12 \text{ cm} \times 12 \text{ cm} \times \text{ t 5 cm})$ Methane Lead target Graphite reflector 52

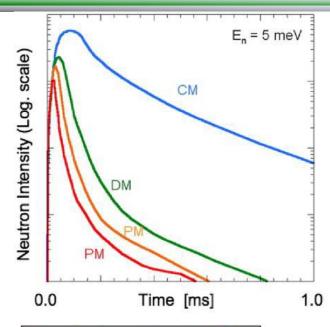
10 cm × 10 cm beam extraction

供給される中性子のエネルギースペクトル



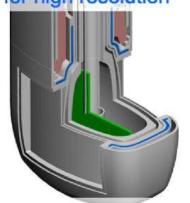
中性子の輸送と検出

中性子減速材の種類により変化する中性子パルス形状(J-PARCを例に)



Poisoned Decoupled moderator (PM)

for high resolution

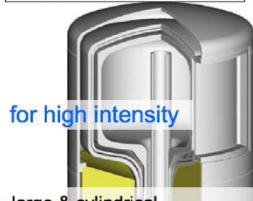


Decoupled moderator(DM)

for balanced performance

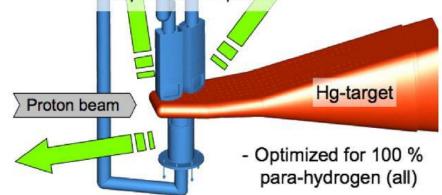


Coupled moderator (CM)



- large & cylindrical
- wide angle beam extraction

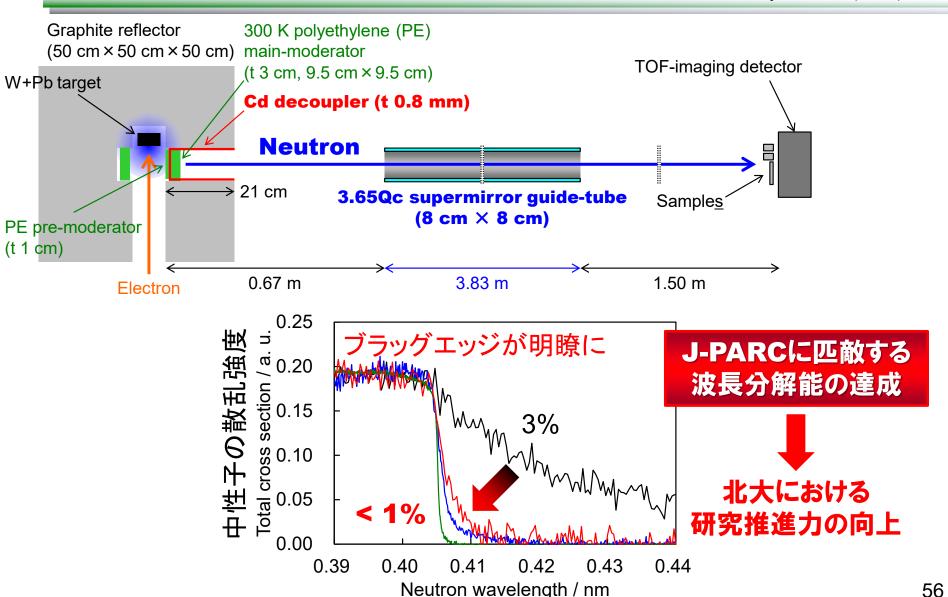
- Adoption of Ag-In-Cd (AIC) alloy for high decoupling energy at 1 eV
- optimized decouple coverage for lower pulse tail
- Adoption of Cd poison



短パルス中性子源&中性子反射導管による

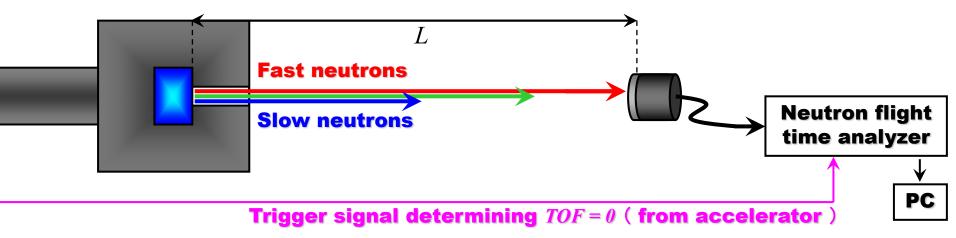
HUNS装置の高性能化

H. Sato et al., Phys. B 551 (2018) 452.



加速器パルス中性子源では飛行時間(TOF) 法による速度(エネルギー)分析が可能

Neutron detector



$$E = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{1}{2}m\left(\frac{L}{TOF}\right)^2 = \frac{1}{2m}\left(\frac{h}{\lambda}\right)^2$$

m: Mass of neutron v: Velocity of neutron

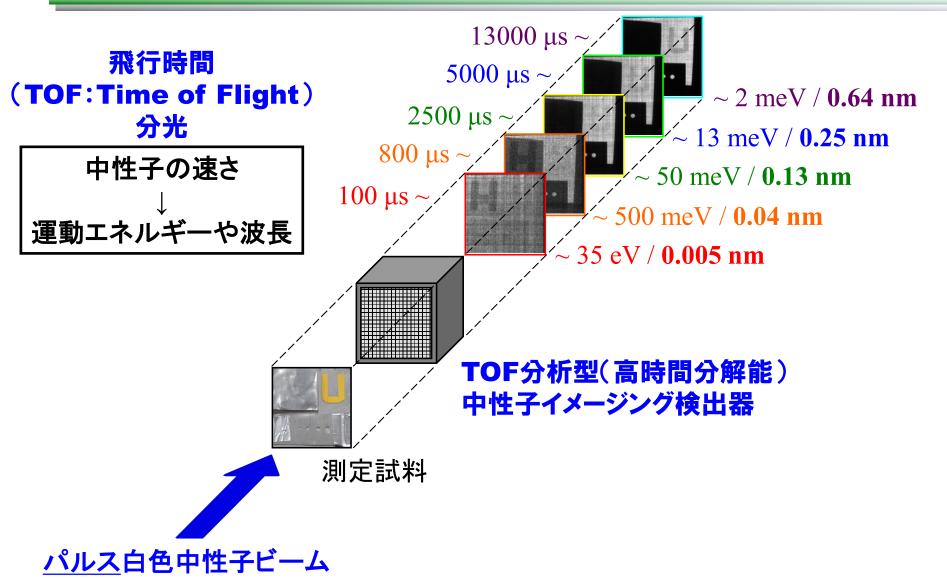
L: Path Length from source to detector

TOF : Elapse time from neutron generation

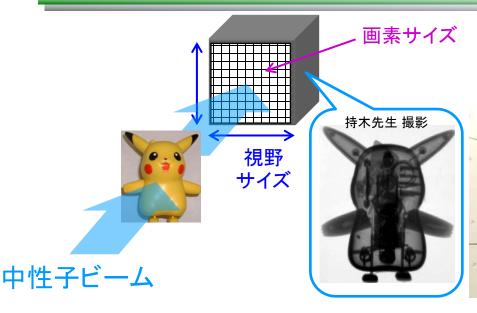
h: Plank's constant λ : Neutron wavelength

結構遅いので 機械的に制御できることも

加速器パルス中性子源とTOF法を用いた 波長分解型中性子透過イメージング



TOF分析型中性子イメージング検出器の性能



GEM型中性子画像検出器



KEK 宇野グループ

画素サイズ: 800 µm 視野: 10 cm×10 cm

> 中空間分解能 大面積 高い信頼性

高速度カメラ型中性子画像検出器

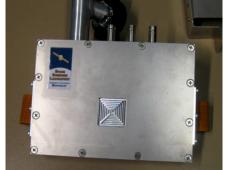


東京都市大 持木グループ

画素サイズ: 520 μm 視野: 13 cm×13 cm

> 高空間分解能 最大面積

。 **雪空間分解能**



MCP型中性子画像検出器

UC Berkeley Dr. A. S. Tremsin

画素サイズ: 55 µm

視野: 2.8 cm × 2.8 cm

超高空間分解能

中性子カラーイメージインテンシファイア(東芝) + 高速度CMOSビデオカメラ(NAC)

Major reactions for neutron conversion & detection

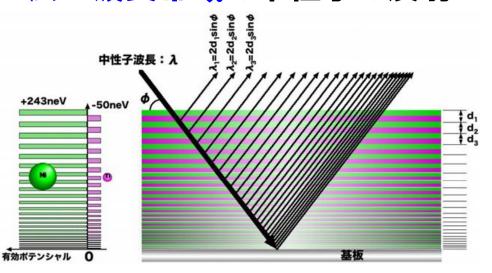
$$n + {}^{6}Li (7.5\% / 940 barn) \rightarrow {}^{3}H + \alpha$$

$$n + {}^{10}B (20\% / 3835 barn) \rightarrow {}^{7}Li + \alpha$$

n + ¹⁵⁵Gd (15% / 61100 barn)
$$\rightarrow$$
 ¹⁵⁶Gd + γ + e⁻ (IC)
n + ¹⁵⁷Gd (16% / 259000 barn) \rightarrow ¹⁵⁸Gd + γ + e⁻ (IC)

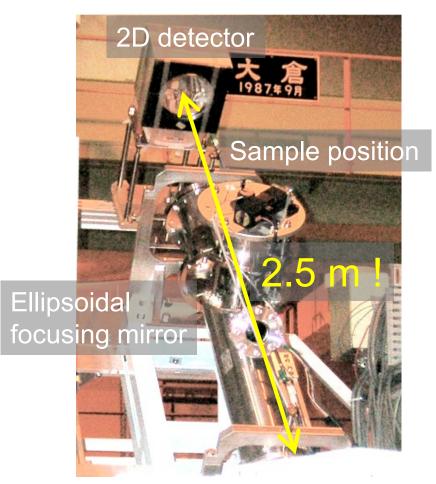
中性子スーパーミラー

Ni-Ti多層膜による 広い波長帯域の中性子の反射

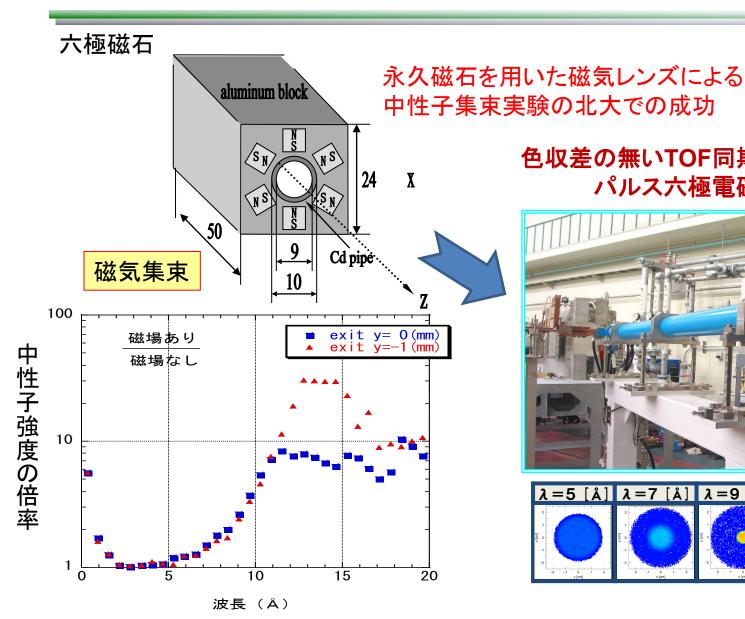




回転楕円体形状ミラーによる中性子集光と装置の小型化

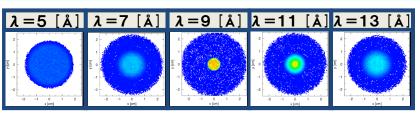


中性子磁気レンズ



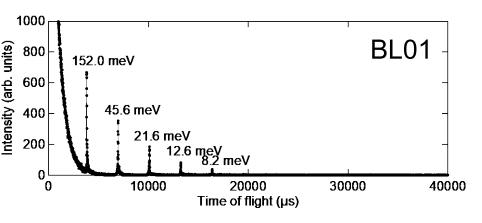
色収差の無いTOF同期型(広波長帯域型) パルス六極電磁石の開発へ



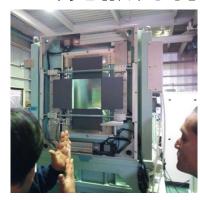


その他の中性子デバイスの例 (J-PARC MLF)

チョッパー(単色化装置)

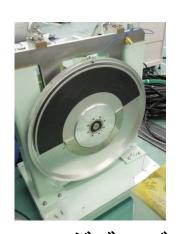


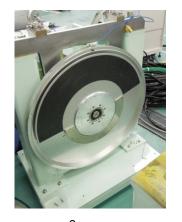
コリメーター(発散角制御装置)



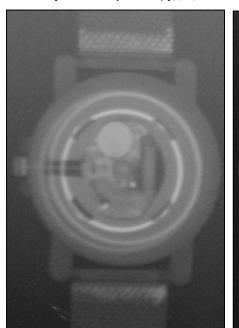
コリメーター無し

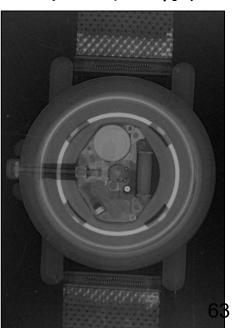
コリメーター有り





ダブルディスクチョッパー: 開口面積を可変にすることができる。





中性子の利用

機械工学における「量子ビーム」!

具体例の一部は後程紹介します。

●宇宙工学

JAXAによる宇宙推進スラスターの

中性子イメージング解析

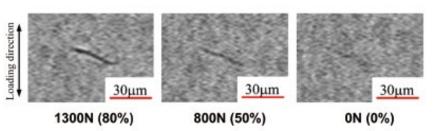
エンジン内部のオイル挙動の

- 熱流体工学
- ●材料工学
- 生体工学



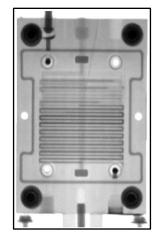
● 原子炉工学

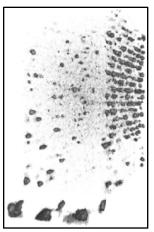
金属材料中の疲労亀裂の 放射光イメージング解析(中村教授)





燃料電池内の水挙動の 4D中性子イメージング解析



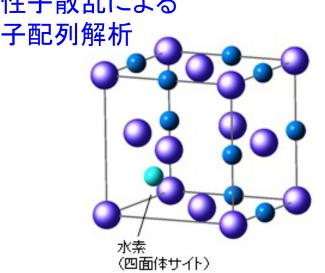


工学・理学における「量子ビーム」!

具体例の一部は後程紹介します。

- (応用)物理学
- (応用)化学
- ●生物学
- 宇宙惑星科学

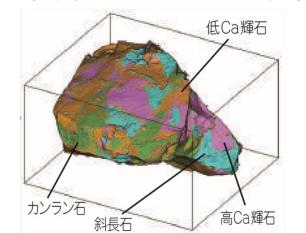
中性子散乱による 原子配列解析

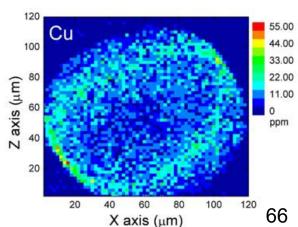


DNA構造と副溝の水和水

- ●材料工学
- 建築工学
- ●土壌工学
- ●環境工学

蛍光X線分析による 宇宙探査機「はやぶさ」が持ち帰った 小惑星物質の量子ビーム連携解析 花粉中の元素イメージ





北大の(ほぼ)全学部に関係する

「量子ビーム」!

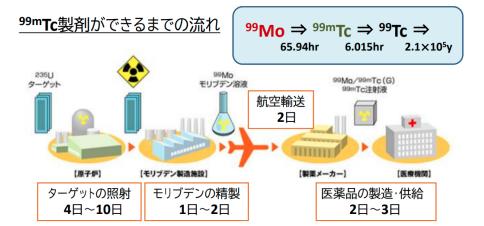
具体例の一部は後程紹介します。

●文学(文化財)

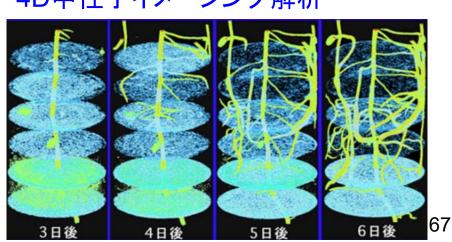
経筒の中の紙の 中性子イメージング解析

- ●法学(科学捜査)
- 医学・歯学(治療・診断)
- ●薬学(創薬・製薬)
- ●農学

医療診断用SPECTのための放射性 薬剤の中性子による製薬



土壌中の根の成長の 4D中性子イメージング解析

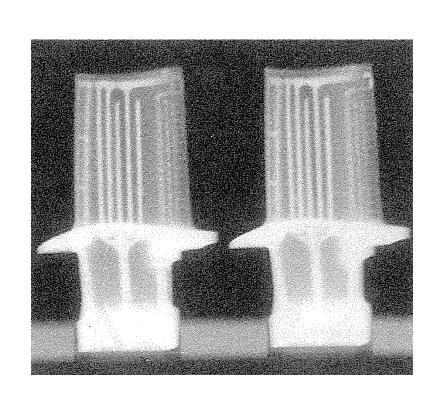


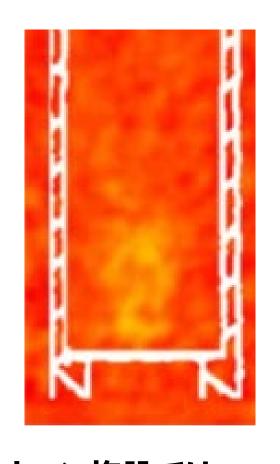


中性子イメージングによる 航空・宇宙機器の非破壊検査や開発研究

タービンブレード

人工衛星のスラスター



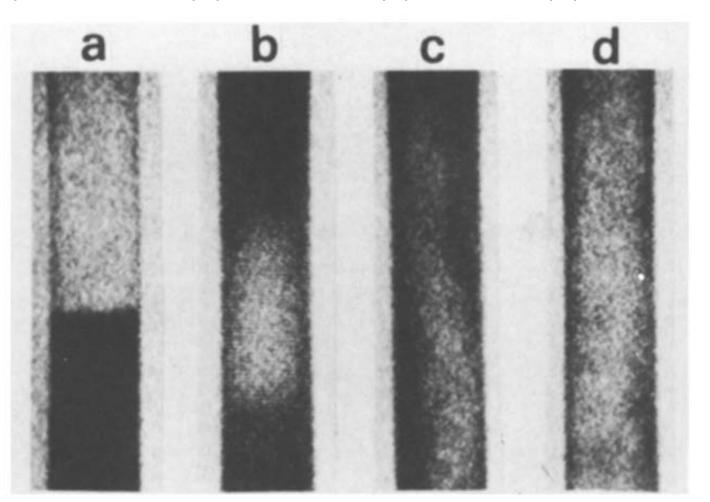


住重アテックス(株)陽子サイクロトロン施設では、 中性子イメージングによる宇宙機器の全数検査を実施

中性子イメージングによる二相流研究

ステンレス鋼管中の水/窒素ガスの二相流の可視化

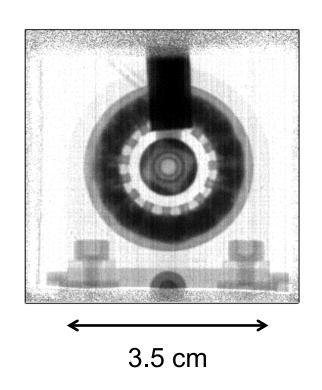
(a) 半分が水, (b) スラグ流, (c) 気泡流, (d) 環状流

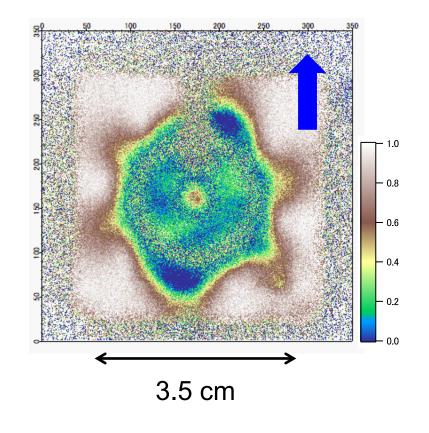


電気自動車用モーターの時間依存中性子磁場イメージング解析

中性子ストロボスコープ

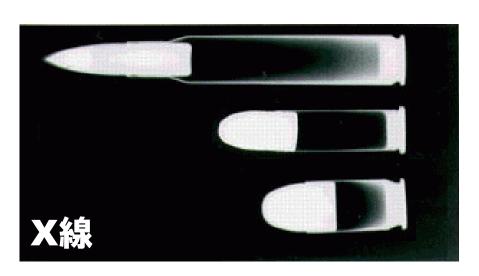
磁場のストロボスコープ (鉛直方向の磁場を可視化)

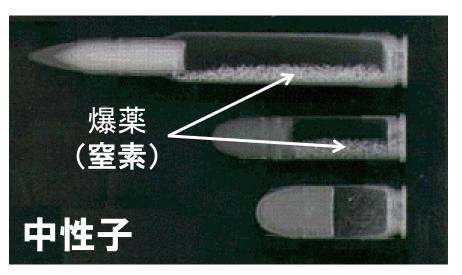




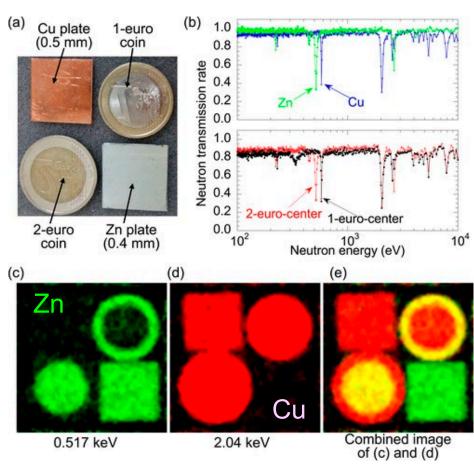
SDGs/カーボンニュートラル社会に向けた最先端研究

科学捜査向け中性子イメージング解析





中性子共鳴吸収を利用した元素分析による貨幣検査



北大の中性子実験室に設置されている装置

中性子小角散乱装置

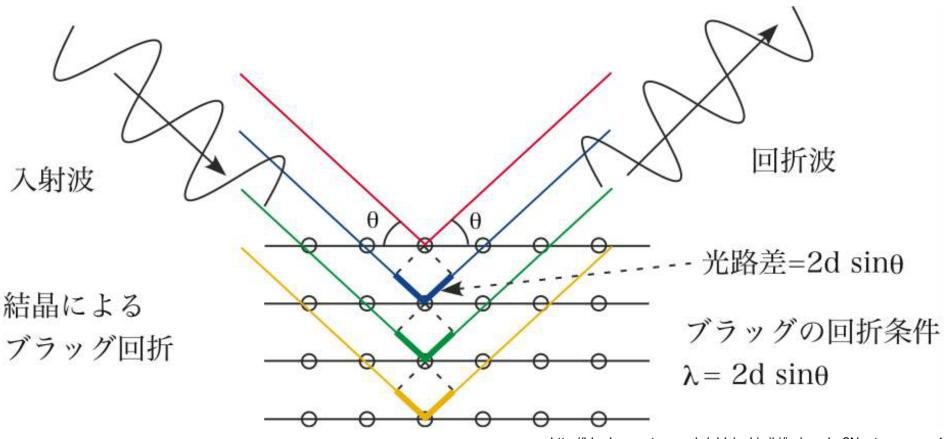


中性子イメージング装置



物質と反応する中性子の運動量変化を解析し物質の原子レベルのミクロな情報を得る!

例:回折(ブラッグ散乱)の利用による結晶構造解析



http://bb.phys.se.tmu.ac.jp/~bb/pukiwiki/index.php?Neutron_xray_1

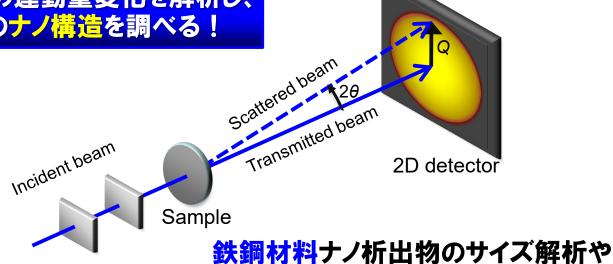
結晶格子の面間隔 d を知りたい場合は、回折現象(強め合い)を生じた中性子の 波長 λ と散乱角 2θ (つまり運動量の変化)を調べれば良い。

中性子小角散乱法による鉄鋼材料や食品、

建築材料のナノ構造解析

量子ビーム材料工学研究室A(大沼研究室)

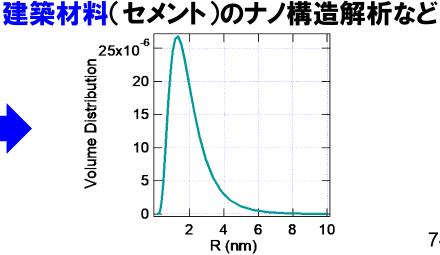
小さな角度の散乱中性子の運動量変化を解析し、 金属材料やソフトマターのナノ構造を調べる!



測定した小角散乱データの例

2 Intensity [cm⁻¹] 0.1 10 Q [nm





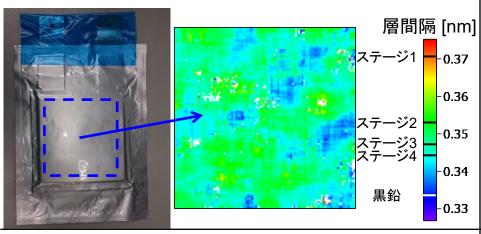
食品タンパク質の凝集状態の解析、

中性子イメージング法による自動車部品や

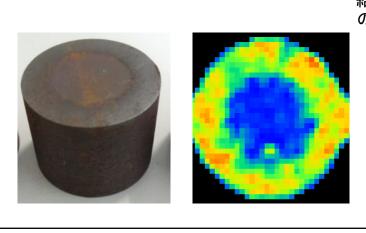
文化財の広範囲解析

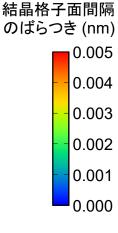
中性子ビーム応用理工学研究室(加美山・佐藤研究室)

リチウムイオンバッテリーの黒鉛負極材の 原子層間距離を可視化

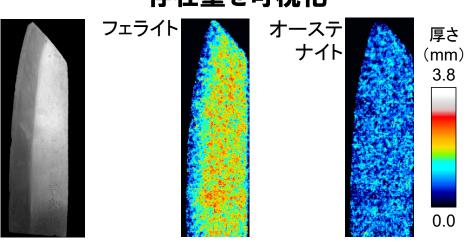


クランクシャフトの熱処理部の ひずみを可視化

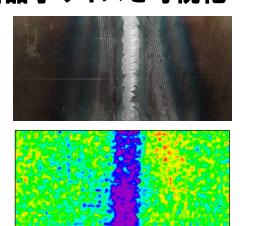


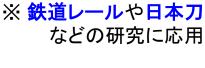


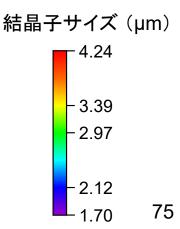
和包丁を構成する異種金属の存在量を可視化



鋼板溶接部の 結晶子サイズを可視化



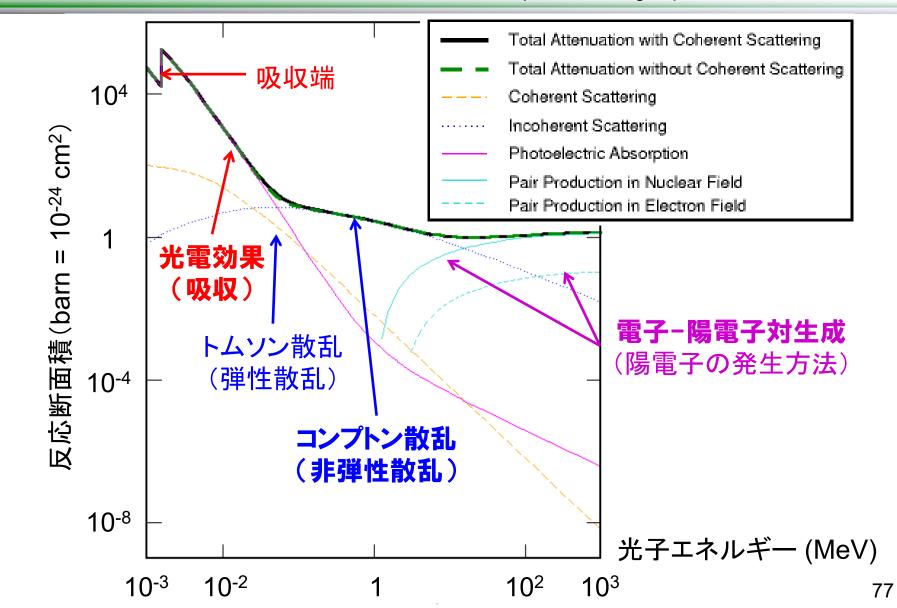




中性子と原子核の反応断面積

X線とAI原子1個の全断面積(散乱・吸収)

http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm

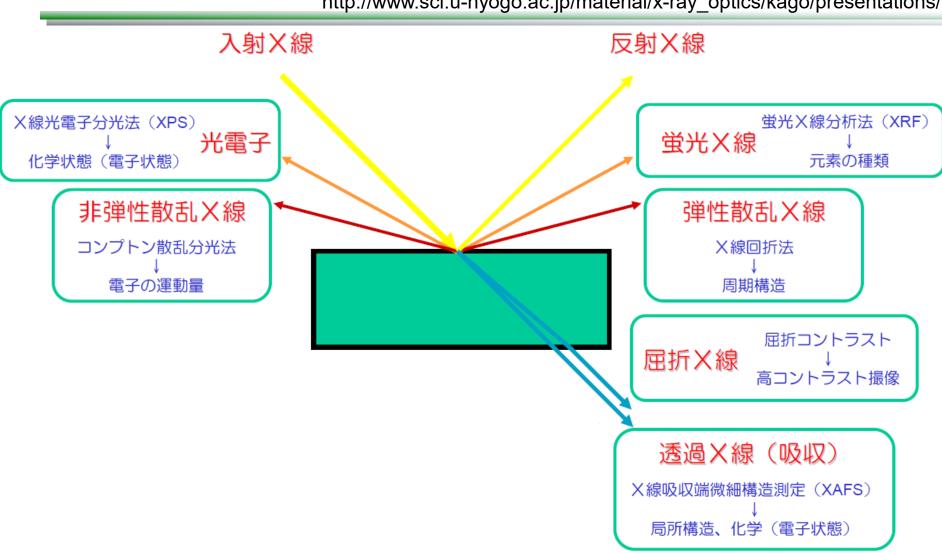


γ線と物質の相互作用

- ・光電効果: K軌道あるいはL軌道電子がγ線のエネルギーの全てを吸収して飛び出す。
- ●コンプトン散乱:γ線と衝突した軌道電子がγ線の エネルギーの一部を獲得する。
- ●電子対生成:γ線のエネルギーが1.022 MeVを超えると、電子と陽電子の対が生成される。
- これらの相互作用により、物質に入射したγ線はそのエネルギーの全て(あるいは一部)を物質に与えることができる。

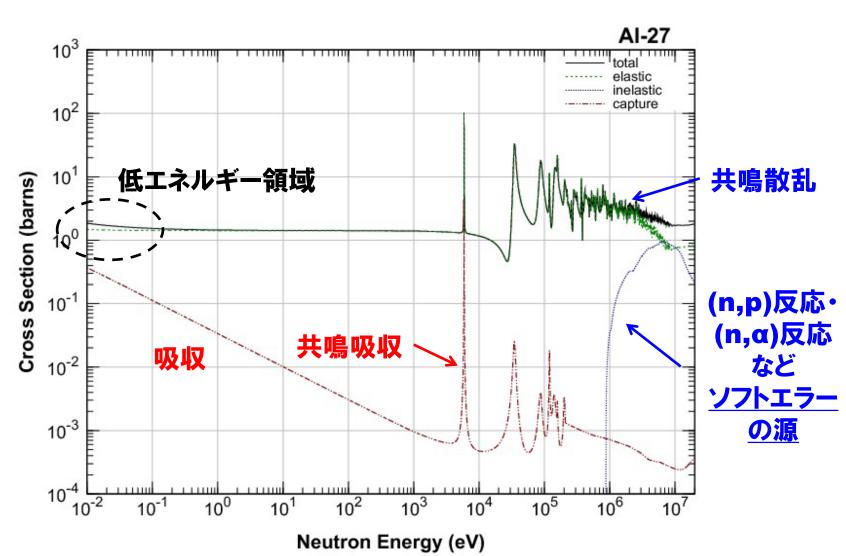
X線と物質の相互作用を利用した物質解析

http://www.sci.u-hyogo.ac.jp/material/x-ray optics/kago/presentations/



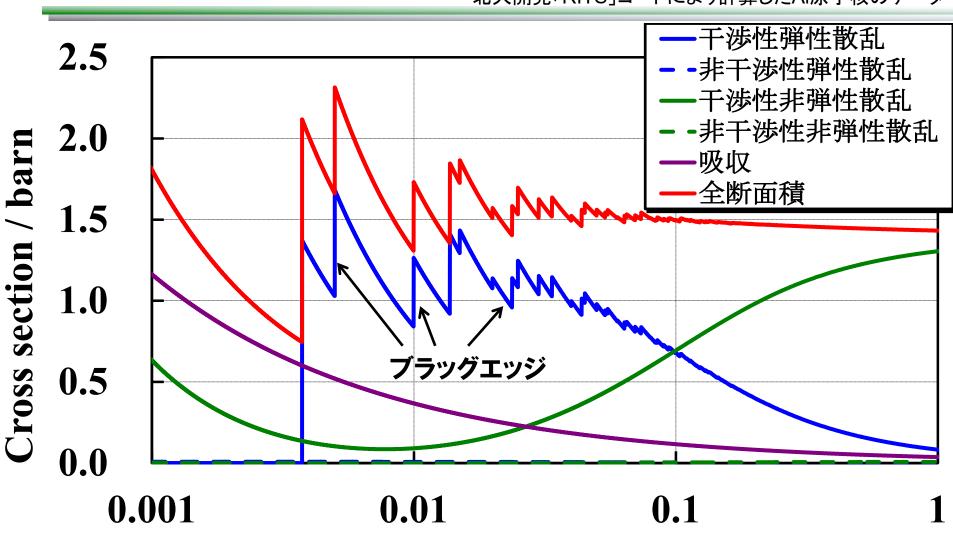
中性子とAI原子核1個の全断面積

http://wwwndc.jaea.go.jp/jendl/j40/J40_J.html



低エネルギー領域の全断面積

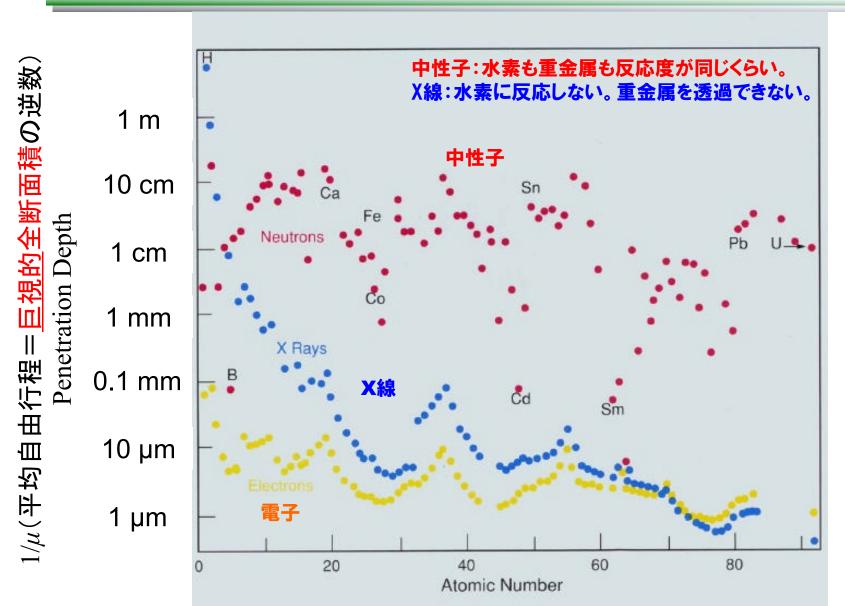
北大開発「RITS」コードにより計算したAI原子核のデータ



Neutron energy / eV

電子·X線·中性子の平均自由行程の比較

Roger Pynn, Neutron Scattering - A Primer, Los Alamos National Laboratory



主な元素の熱中性子に対する散乱・吸収の断面積

元素	散乱断面積(barn)	吸収断面積(barn)	中性子工学における用途
Н	82	0.33	減速材(∵軽い原子核) 中性子捕獲後、高エネルギーγ線 も出る
Li	1.37	71	中性子捕獲後のガンマ線の影響 が小さい吸収材
В	5.24	767	吸収材 中性子捕獲後、アルファ線を出す
Al	1.5	0.23	透明材(?)
Si	2.17	0.17	
Fe	11.6	2.56	散乱体
Со	5.6	37.18	中性子捕獲でCo-60(ガンマ線放 出体)生成
Cd	6.50	2520	吸収材、強烈なγ線放出体
Gd	180	49700	吸収材
Pb	11.1	0.17	非減速型の散乱体 優秀なガンマ線遮蔽材

中性子発生施設の放射線安全(今一度、現場を直接見て学んでみよう!)

中性子放射化分析による元素分析の原理

中性子放射化分析とは

- 中性子は様々な原子核に捕獲され、中性子を 捕獲した原子核からγ線が放出される場合があ る。これを放射捕獲反応((n,y)反応)と呼ぶ。
- 放射性核種から放出されるγ線のエネルギーは 核種毎に固有の値を有するので、そのエネル ギーを測定すれば核種を同定することが出来る。
- ■この原理に基づいて中性子により試料を照射し、 試料に含まれる核種を非破壊で定性または定 量することを中性子放射化分析と呼ぶ。

中性子放射化分析法の応用

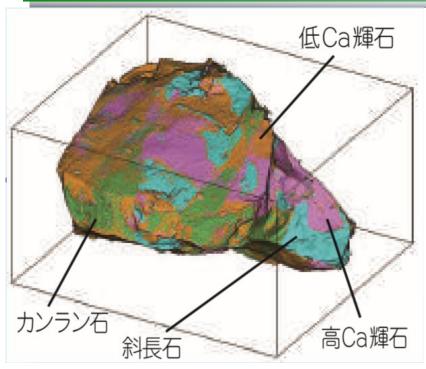
ナポレオンの「毒殺説」の可能性を高めた 中性子放射化分析(元素分析)



- 中性子を原子核に捕獲 させると、物質が放射化 する(放射線を帯びる)。
- ★財線(ガンマ線)の エネルギーを分析すると、 原子核の種類(元素)が わかる。
- 通常の化学分析のように 壊したり溶かしたりしない ので、文化財向き。

ナポレオンの遺髪を調べたら 多量のヒ素が検出された! 毒殺か!?

小惑星「イトカワ」から「はやぶさ」が持ち帰った微粒子を量子ビーム融合連携で分析



画像出典:一家に1枚「量子ビーム」

- X線CTイメージングによる 粒子の3次元形状および 3次元内部構造の解析
- X線回折(ブラッグ散乱)に よる鉱物の結晶構造解析
- 中性子放射化分析による 元素分析
- 電子顕微鏡による粒子の 構成鉱物の同定ならびに 組織構造解析

宇宙から持ち帰った小惑星イトカワの微粒子に含まれるカンラン石、輝石などの鉱物の3次元分布が得られました。

1つの分析法では全体像がつかめなくても、量子ビームの力を結集させれば太陽系の成り立ちの歴史さえも見える!

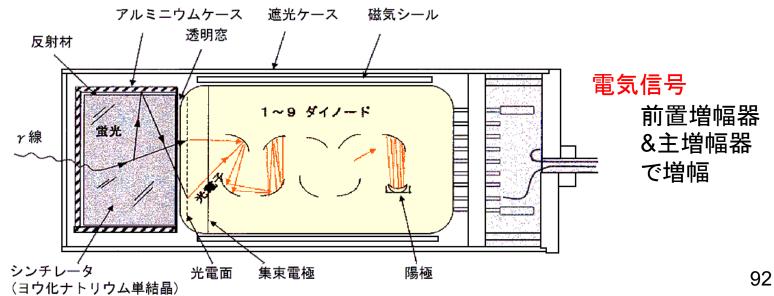
Nal(TI)シンチレーション検出器の 波高スペクトル

NaI(TI)シンチレーター

- ガンマ(γ)線測定装置として、微量のタリウム(TI)を含むヨウ化ナトリウム(NaI)の結晶からなるシンチレーション検出器を通称NaI(TI)シンチレーターと呼んでいる。
- Nal(TI)の結晶にγ線が入射すると両者の相互作用(光電子効果、コンプトン散乱、電子対生成)によって2次電子がNal(TI)結晶物質を励起し、励起状態が定常状態に戻る時、シンチレーションと呼ばれる蛍光を発生する。
- この光を捉え、光電子増倍管と組み合せて、放射線の量を電流パルスにおきかえ、放射線測定器として用いる。
- 光の強さは、結晶内で2次電子が失ったエネルギーに比例することから、入射γ線のエネルギーに関する情報が得られる。
- シンチレータは、(1)シンチレーションの減衰時間が短いので、分解時間の小さな速い計測ができる、(2)蛍光量と吸収エネルギーの比例関係からエネルギー測定ができる、などという利点がある。

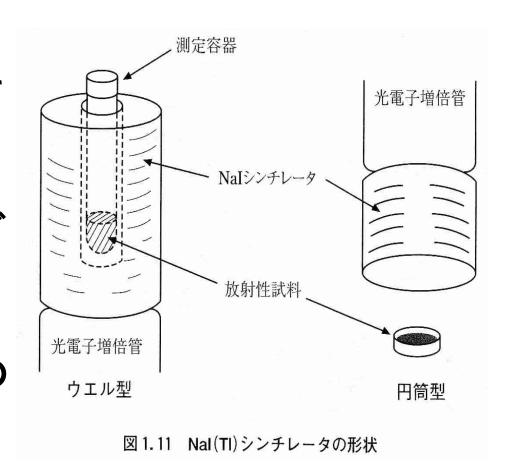
NaI(TI)シンチレーターの動作原理

- γ線がNal結晶に入射すると二次電子が作られ、TI原子が蛍光を発する。蛍光を発するタリウム(TI)は活性化物質と呼ばれる。
- TI原子の蛍光が光電子増倍管の光電陰極に当たると光電効果により光電子が飛び出し、これが多数のダイノードで増倍されて、回路にパルス電流が流れる。
- パルス電流の数を数えることにより、Nal結晶に入射したγ線の数を測定できる。



Nal(TI)シンチレーターの構造

- Nal(TI)シンチレータと光 電子増倍管を組み合わせ て使用する。
- Nal(TI)シンチレータと光 電子増倍管の接合面はガ ラス窓を有する。
- 直径5 cm×高さ5 cmの 円筒型や幾何学的効率の 大きなウエル(井戸)型が 使われる。

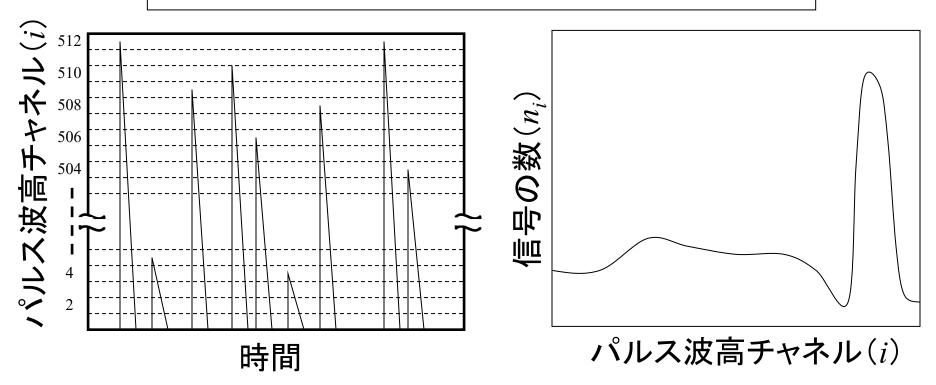


γ線のエネルギー測定

- ・光電子増倍管の光電陰極で一個の光電子を放出させるために必要なエネルギーは120 eVであり、 Nal(TI)シンチレータにγ線が入射しそのエネルギーを全てNal結晶に受け渡すと、γ線のエネルギーに 比例した個数の光電子が生成される。
- その結果、γ線のエネルギーに比例した強度を有するパルス電流が回路に流れるので、マルチチャネル・パルス波高分析器(MCA)を用いてパルス電流の波高を測定すれば、γ線のエネルギーを知ることが出来る。

γ線スペクトロメトリーにおけるMCAの動作

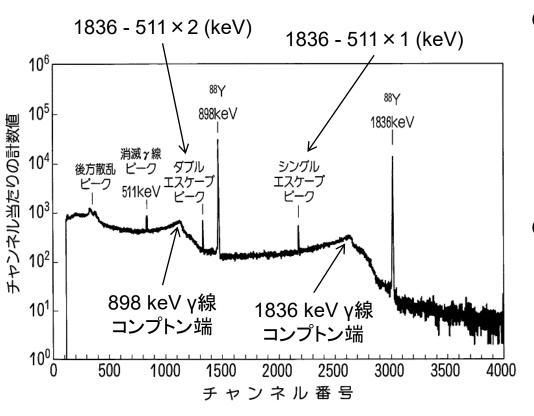
MCA:マルチチャネル・パルス波高分析器



パルス波高電圧を離散化し、チャネル(i)に属する信号の数 (n_i) を数える。

パルス波高チャネル(i)における信号の数 (n_i) をプロットする。

高エネルギー分解能Ge半導体検出器による γ線スペクトルの例(88Y)



- 1836 keVと898 keVの全 吸収ピークは、光電効果 によりγ線のエネルギーの 全てがNal結晶に吸収さ れることにより生じる。
- コンプトン散乱などによりγ 線のエネルギーの一部だけがNal結晶に受け渡さ れる事象も生じるので、連 続なスペクトルが測定される。

中性子照射実験

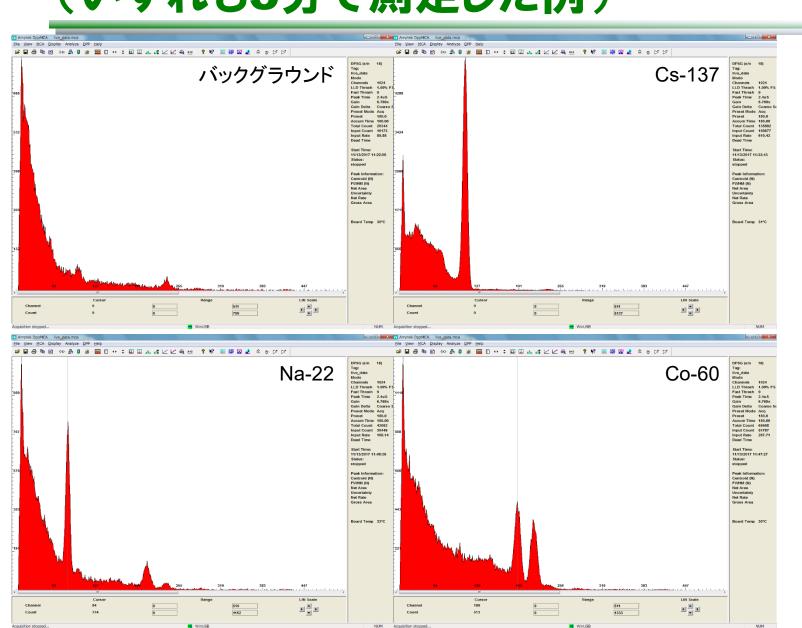
- ●照射物
 - ?(金属)

●電子加速器駆動条件:10 ppsで15分

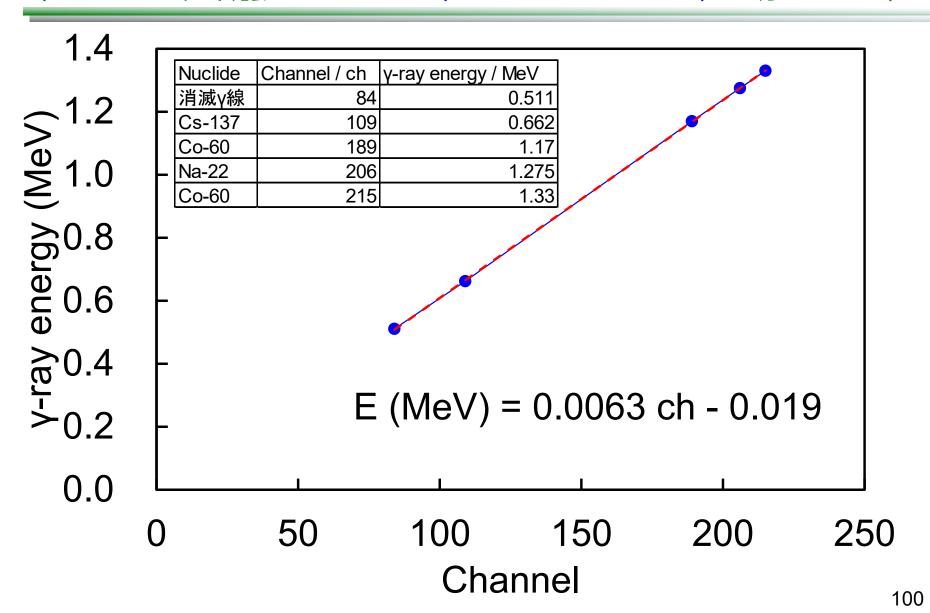
● ポリエチレン減速材に貼り付けて、中性子源の 傍に設置

Nalシンチレーション検出器の エネルギー校正とエネルギー分解能

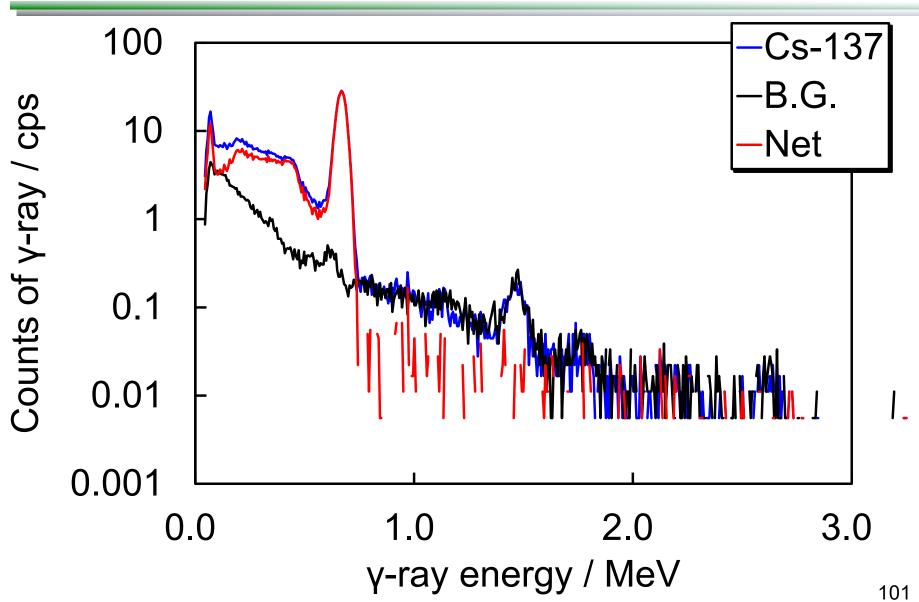
波高スペクトルの例(いずれも3分で測定した例)



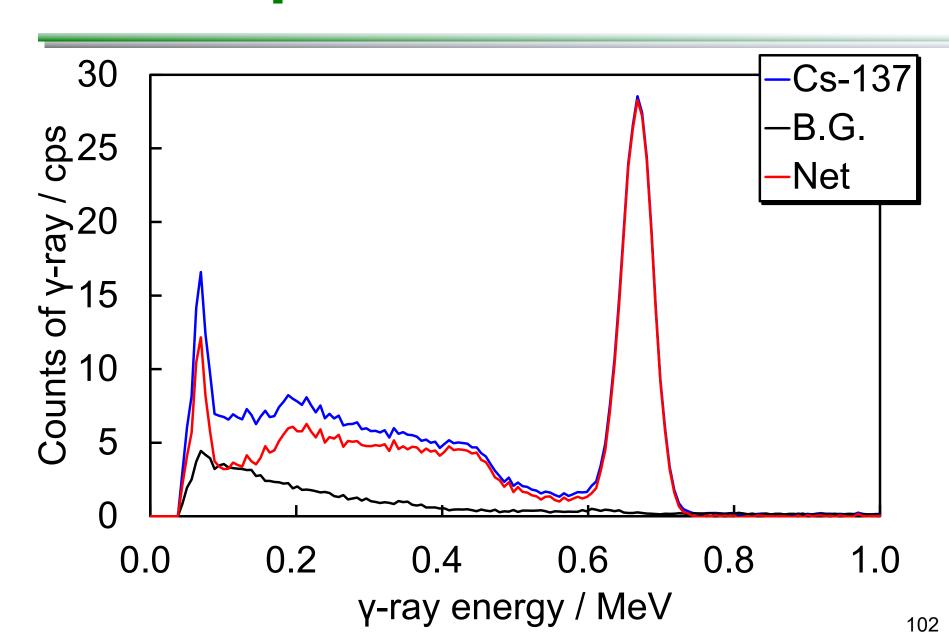
波高チャンネルとγ線エネルギーの校正曲線 (これに天然のK-40(1.46 MeV)も加える)



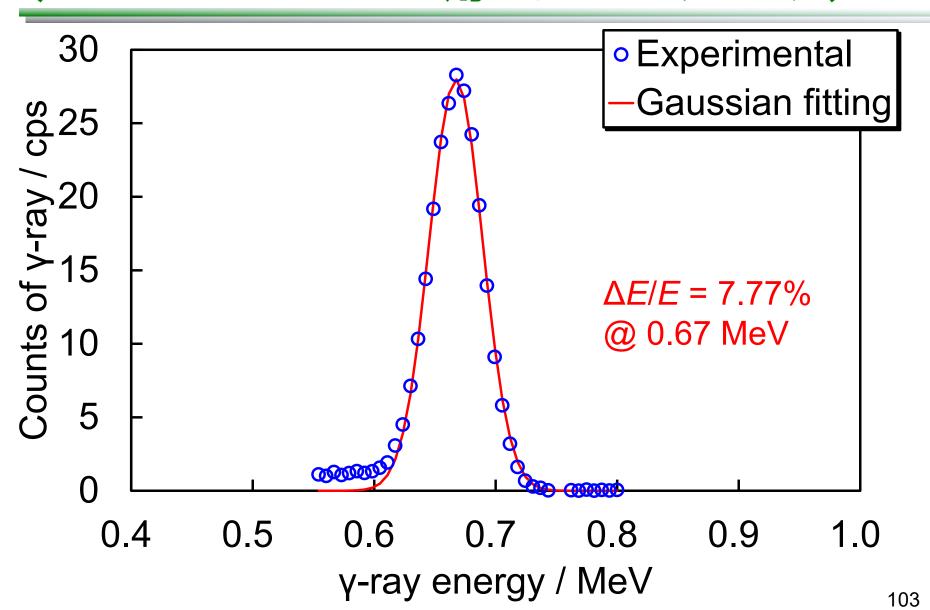
Cs-137のγ線スペクトル



Cs-137のγ線スペクトル(表示切替)



エネルギー分解能の評価 (Excelのソルバーを用いたフィッティング)



バックグラウンドとその対策法

同定・定性分析 元素(核種)分析

金属試料のY線スペクトル測定と核種同定

- MCAを用いて謎の金属試料のγ線スペクトルを 測定し、全吸収ピークのピーク中心チャネルを 読みとる。
- ●エネルギー校正曲線を用いて金属試料のγ線エネルギーを推定する。
- ●この結果、金属に誘導された放射性核種は<u>次の</u>いずれと考えられるか?

```
    64Cu
    65Zn
    1.11 MeV
    195mPt
    0.13 MeV
    198Au
    0.41 MeV
    203Hg
    0.28 MeV
```

<u>定量分析</u> 中性子束の推定 ⇔ 元素の定量

中性子による試料の照射で誘導される放射能

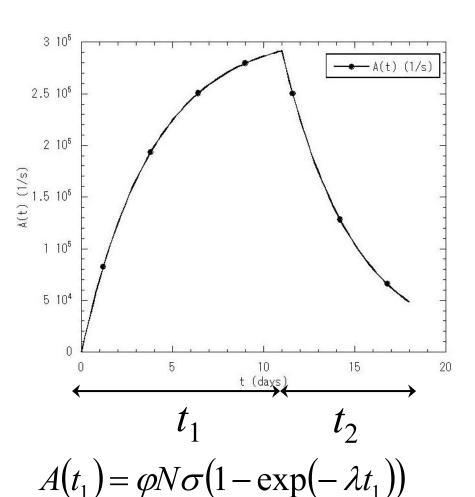
● 中性子減速材内の平均中性子東:

$$\varphi$$
 (1/cm²/s))

- 中性子減速材内に設置された試料に含まれる 放射化の対象となる原子核の数: N
- その原子核の実効放射化断面積: σ (cm²)
- 放射性原子核の壊変定数: λ (1/s)
- 照射開始から時間t₁(s)だけ経過したときに試料に誘導される放射能:

$$\varphi N\sigma(1-\exp(-\lambda t_1))$$
 (1/s)

試料の放射能の時間変化の計算例



 $A(t_2) = A(t_1) \exp(-\lambda t_2)$

中性子束 φを推定してみよう

$$A(t_1) = \varphi N \sigma (1 - \exp(-\lambda t_1))$$

$$A(t_2) = A(t_1) \exp(-\lambda t_2)$$

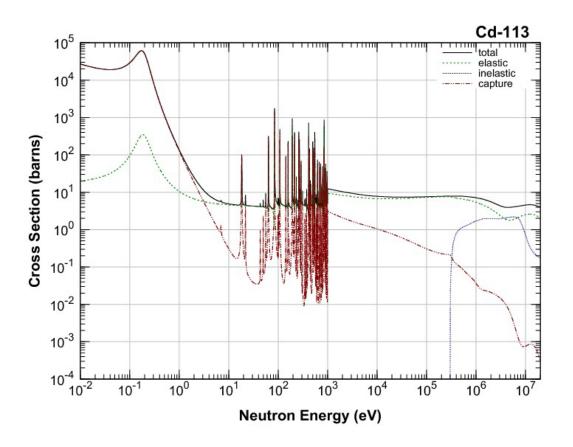
- 照射した金箔の重さは0.05 g。では、原子核の数 N はどうなる?
- 197Auの実効放射化断面積:

$$\sigma_{\text{thermal}} = 9.865 \times 10^{-23} (\text{cm}^2)$$
 $\sigma_{\text{resonance}} = 1.571 \times 10^{-21} (\text{cm}^2)$

- ¹⁹⁸Auの壊変定数: λ = 2.97×10⁻⁶(1/s)
- *t*₁: s
- *t*₂: s

Cdフィルターを用いた 熱中性子束と熱外中性子束の推定

- 金箔にCdフィルターを付けておけば、熱中性子よりも高エネルギーの中性子の中性子束を推定することができる。
- Cd無しの中性子束からこの中性子束を差し引けば、熱中性子束が導出できる。



正確な放射能測定のために必要な注意

- γ線検出効率(γ線エネルギー依存性あり)
 - シンチレーターの光電効果の断面積に依存
 - 2次電子のエネルギーにはほとんど依存しない。(γ線 シンチレーターは重元素であることが多いので、電子 はほぼシンチレーター内でストップする。)
 - ・ 窓材による吸収や、試料の自己遮蔽も考慮する必要あり。
- 幾何学的検出効率
- ●対象核種からのγ線放出率(1壊変(遷移)につき、必ずγ線が放出されるとは限らない)
- 数え落とし

中性子束 φ がわかっていれば、同定済みの元素の N を推定することができる(元素定量)

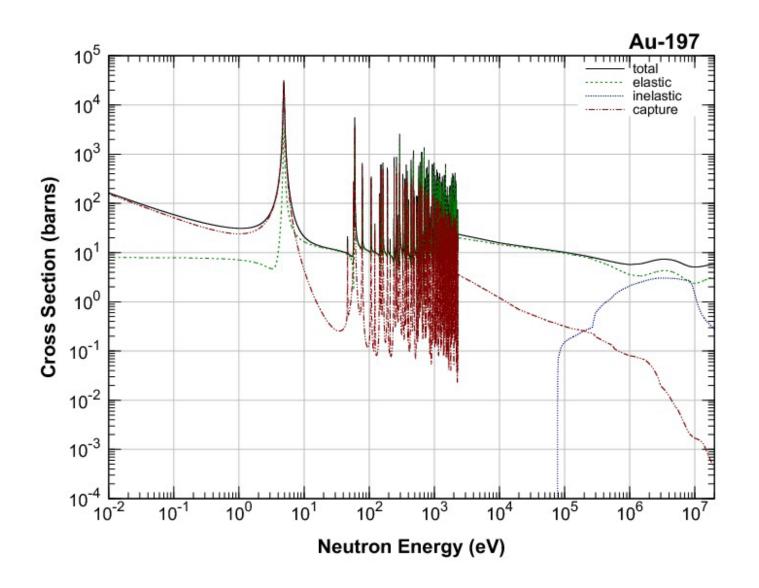
$$A(t_1) = \varphi N \sigma (1 - \exp(-\lambda t_1))$$

$$A(t_2) = A(t_1) \exp(-\lambda t_2)$$

● 同定済みなので、σ や λ はわかっている。

以下、定量分析に関する参考情報

Au-197の断面積① (JENDL-4.0より)



Au-197の断面積② (JENDL-4.0より)

Section Table (79-Au-197) 🗶 🕒

https://wwwndc.jaea.go.jp/cgi-bin/Tab80WWW.cgi?/data/JENDL/JENDL-4-prc/intern/Au197.intern

MT	Reaction	0.0253-eV	Maxwellian Average	g-factor	Resonance Integral	14-MeV	Fiss. Spec. Average			
1	(n,total)	106.6 (b)	108.1 (b)	1.015	_	5.360 (b)	6.685 (b)			
2	(n,elastic)	7.922 (b)	8.924 (b)	1.127	_	2.722 (b)	4.315 (b)			
4	(n,inelastic)	(E-thr = 77.75 keV)				461.6 (mb)	2.291 (b)			
16	(n,2n)	(E-thr = 8.114 MeV)				2.172 (b)	3.906 (mb)			
17	(n,3n)		(E-thr = 14	_	2.544 (µb)					
22	(n,na)	0.000 (b)	0.000 (b)	_	84.00 (nb)	31.42 (µb)	10.81 (nb)			
24	(n,2na)		(E-thr = 6.	627.5e-15 (b)	1.735e-12 (b)					
28	(n,np)		(E-thr = 5.	58.36 (μb)	22.12 (nb)					
32	(n,nd)		(E-thr = 11	401.1e-18 (b)	24.40e-12 (b)					
33	(n,nt)		(E-thr = 11	2.225e-18 (b)	1.512e-12 (b)					
41	(n,2np)	(E-thr = 13.77 MeV)				569.1e-27 (b)	587.3e-15 (b)			
102	(n,γ)	98.65 (b)	99.20 (b)	1.006	1.571 (kb)	1.179 (mb)	77.07 (mb)			
103	(n,p)	0.000 (b)	0.000 (b)	_	11.02 (μb)	1.738 (mb)	912.6 (nb)			
104	(n,d)		(E-thr = 3.	338.5 (µb)	74.87 (nb)					
105	(n,t)	(E-thr = 5.249 MeV)				1.492 (µb)	1.205 (nb)			
106	(n,He-3)	(E-thr = 6.343 MeV)				227.0e-18 (b)	3.382e-15 (b)			
107	(n,a)	7.457 (nb)	7.461 (nb)	1.001	4.836 (μb)	320.2 (μb)	351.9 (nb)			

These cross sections are calculated from JENDL-4.0 at 300K.

The background color of each cell noted a cross section means the order of the cross-section value.

The unit of cross section, (b), means barns, and SI prefixes are used as following.

$$(kb) \to 10^3 (b), \ (mb) \to 10^{-3} (b), \ (\mu b) \to 10^{-6} (b), \ (nb) \to 10^{-9} (b).$$

MT is a number that defines a reaction type. For the relation between MT and reaction type, please see here or refer to the manual of ENDF formats.

Maxwellian Average:

$$\sigma_{macs}(T) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\int_{E_L}^{E_U} \!\! \sigma(E,T) \cdot E \cdot \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \, dE}{\int_{E_L}^{E_U} \!\!\! E \cdot \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \, dE},$$

where T denotes the temperature, and k_B the Boltzmann constant. The upper and lower limits of integration, E_L and E_U are set to 10^{-5} eV and 10 eV, respectively.

Resonance Integral:

$$\sigma_{ri}(T) = \int_{E_L}^{E_U} \!\! \sigma(E,T) \cdot \frac{1}{E} \; dE \, , \label{eq:sigmarray}$$

with $E_T = 0.5 \text{ eV}$ and $E_{TT} = 10 \text{ MeV}$.

なぜ $\varphi No(1-\exp(-\lambda t))$ なのか

$$\frac{dA(t)}{dt} = -\lambda A(t) + \lambda \varphi N \sigma$$
 初期条件は $A(0) = 0$

- 右辺第一項:放射性崩壊による一秒当たりの 放射能の減衰
- 右辺第二項:放射捕獲による一秒当たりの 放射能の増加
- $\varphi N\sigma$: 飽和放射能

放射能の減衰

- 照射終了後の任意の時刻における試料の放射能: A(0)(1/s)
- そこから時間t₂(s)だけ経過したときの試料の放射
 能:A(0)exp(-λt₂)(1/s)

$$\frac{dA(t)}{dt} = -\lambda A(t)$$
 初期条件は $t = 0$ で $A(0)$