

陽子弾性散乱同時計数法による花崗岩の水素分析

小松原哲郎*、笹公和、石井聡、大和良広、宮川一尚、佐藤健一郎

(筑波大学 研究基盤総合センター応用加速器部門)

黒澤正紀

(筑波大学 地球科学系)

広島原爆による中性子の放射線量は、現在でも放射性同位元素として残存する ^{152}Eu などの放射化物の測定により推定する事が可能である。爆心直下に位置する元安橋の花崗岩では ^{152}Eu の精密な放射線測定が報告された。80cm にわたって深さ分布が精密に測定され、欄干の中央部では放射化された ^{152}Eu の量が表面より少ない事が解明された^[1,2]。この ^{152}Eu の深度分布を再現し中性子線量を算出する為には、花崗岩中の元素の濃度を知り中性子の吸収を求める必要がある^[3]。特に水素は中性子を散乱吸収する効果が高く非常に重要であるが、測定が難しい元素の一つである。そこで、新たに陽子弾性散乱同時計数法 (Elastic Recoil Coincidence Spectrometry; ERCS) を開発し、元安橋の花崗岩の水素濃度を測定した。

元安橋の花崗岩は瀬戸内海の広島県安芸郡倉橋町から産出され、主な鉱物は石英、正長石、斜長石、黒雲母である。石英は透明な結晶でほとんど水素を含まない。また、正長石は顕微鏡下で白く濁って観察され、粘土鉱物など水素を含む鉱物がわずかに混在している。一方、黒雲母は結晶の組成に水素を含むので非常に水素濃度が高く、水に換算した質量比でおよそ 1.8 %w.t. (H_2O) 程度含んでいる。さらにこの黒雲母の一部は地中で変成を受け緑泥石に変質しているが、この緑泥石は黒雲母に比べ5倍程度の高い濃度で水素を含む事が可能である。つまり、花崗岩中の水素の分布は一様ではない。この点を考慮し、岩石の薄片上で無作為に測定点を選び多数回の測定を行い平均値を求めた。今回測定した花崗岩はU4-1のラベルがあり、南北に抜いたコアサンプルの北側から4番目、深さ6-8cm、上方の部分である。この花崗岩サンプルから厚さ0.2mmの薄片を11枚作成しこのうちの5枚を用いて測定を行った。

水素濃度の測定は筑波大学加速器センターにおいて行われ、12UDペレットロン加速器により加速された20MeVの陽子ビームを用いて弾性散乱同時計数法により測定した。岩石鉱物試料の主成分は SiO_2 であり、このなかに微量に含まれる水素を検出しなければならない。通常の弾性散乱法では主成分のSiやOなどによる弾性散乱、非弾性散乱により散乱陽子のスペクトルは非常に複雑になる。一方、今回新たに採用した同時計数法は、散乱された入射陽子とターゲットからの反跳陽子を同時に検出する為、検出条件を満足する水素だけが観測される画期的な手法である^[4]。

花崗岩の薄片は図1に示すターゲット支持台に2~3枚づつ装着し真空散乱槽内にセットした。ビームの大きさは、直径約2mmである。0.8nAのビームを約10分間照射して測定を行なった後、2.5mm間隔でターゲット支持台を上下させ、照射位置を移動させて測定を繰り返した。

同時計数の為の2つの検出器は図2の様に前方45度左右に配置した。散乱中心から61mmの位置に4mmのスリットを配置し立体角を3.4msrとした。エッジ散乱を減少させる為にスリットから66mm

* KOMATSUBARA Tetsuro, University of Tsukuba; komatsubara@tac.tsukuba.ac.jp



図1 ターゲット支持台に装着した
花崗岩サンプル



図2 45度に配置された2台の
荷電粒子検出器

の位置に 10mmのバッファを設置し、この後方に検出器を設置した。陽子同士の同時検出は TAC を用いて行い、同時測定の時分解能を 20nsec とした。

実験中、回路系の数え落としを補正する為約 2 Hz のパルサー信号を加えて測定した。この信号は同時測定されたスペクトルに取り込み、この数の数え落としから dead time を補正した。実験中、この dead time はおよそ 1.5 % であった。

実験結果の一例として、図3に2次元スペクトルを示す。この照射位置は水素濃度の高い測定箇所であるため、黒雲母であると推定される。図4(a)はこの2次元スペクトルを45度方向に射影して得た Sum spectrum である。この図の横軸は二つの散乱陽子のエネルギーの和に相当するが、散乱前後で陽子の阻止能が大きく変化する為、このスペクトルは水素の深度分布を反映している。また、ビーム入射側に近い位置で散乱された陽子は散乱後に透過するターゲットの厚みが厚い為、ターゲットによる自己吸収により散乱強度が指数関数的に減少する。この試料の自己吸収を補正する為に花崗岩試料の前面および後面に 5.7 μm マイラーを密着させて測定を行った。マイラー中の水素からの散乱ピークは図4(c)の様に分かれ、この2つのピーク面積 Y_{IN} と Y_{OUT} から自己吸収補正係数を得た。図4(b)はこの自己吸収の強度を補正したスペクトルであり、0.2mm の試料中でほぼ均等に水素が分布している例である。

測定箇所は花崗岩の薄片上で無作為に選び、44カ所について測定をおこなった。ビーム照射量を 500 nC に設定し散乱水素の測定を繰り返した。2次元スペクトルから45度方向の射影スペクトルを作成し、これを積分した。測定の結果は水素濃度の不均一を反映し、散乱陽子の個数は数百個から1万個まで大きく変動した。この測定結果の度数分布を図5に示す。低いカウント数に対応するピークは水素濃度のほとんどない石英に対応し、また、高いカウント数の測定値は緑泥石の可能性もある。

水素弾性散乱の測定感度を求める為に、図6に示した様に、30 μmのポリエチレンフィルム、0.9、2.5、5.7 μmのマイラーフィルム、及び水分を含んでいるガラスサンプル T-1030 (135 ppmw.t. (H₂O))^[5]を用いて検量線を導出した。陽子の散乱個数と水密度 (H₂O として換算した質量面密度) の関係は、ビーム照射量を 500 nC として水 (H₂O) 1 μg/cm²あたり 25.7 ± 2.3 カウントと測定された。

44回の測定の平均値は $Y = 1900 \pm 700$ である。ただし、この測定誤差は水素濃度の不均一性を考慮し標準偏差から導いた誤差の2倍の値 (2) とした。これに自己吸収係数 $f = 2.07 \pm 0.04$ および測定感度係数 $k = 25.7 \pm 2.3$ により水換算 (H₂O 換算) の水素量は $d = Y \times f / k$

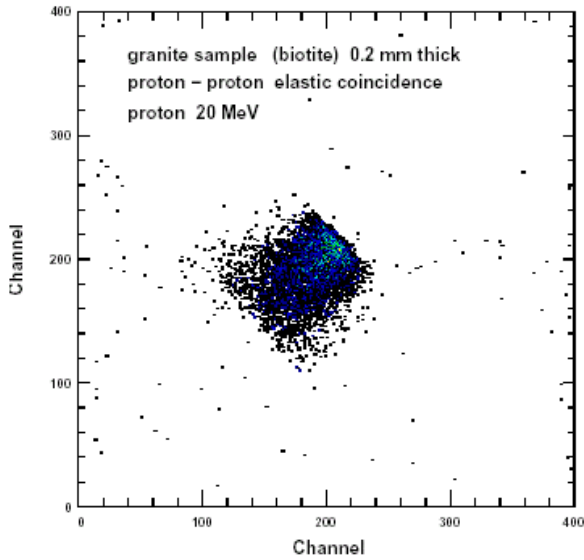


図3 花崗岩に20 MeV陽子ビームを照射して得られた散乱陽子の同時測定2次元スペクトル

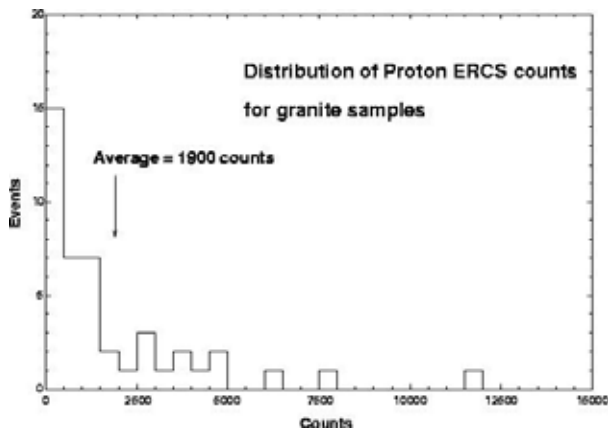


図5 弾性散乱陽子数の度数分布．花崗岩は照射位置により水素濃度が著しく異なる為、照射位置を変えて44回測定した．

= $153 \pm 58 \mu\text{g}/\text{cm}^2(\text{H}_2\text{O})$ と計算された。御影石の密度を $2.64 \text{ g}/\text{cm}^3$ [1] とし、水分量の質量比は $0.29 \pm 0.11 \text{ \% w.t.}(\text{H}_2\text{O})$ と求められた。(陽子弾性散乱同時計数法は水素のみに感度があるので、本来の測定結果は水素の質量比である。しかし、他の測定方法による結果と比較する為、水(H_2O)の質量比に換算して示した。)

Iwatani [1] は表1に示した様に、灼熱減量法およびカール・フィッシャー法により求めた水素濃度を「penetration water」、「adsorptive water (I)」、「adsorptive water (II)」、「bound water」の4項目に分類して示した。今回の測定では、これらのうちの、雨水や露による水分の浸透に由来する「penetration water」と粗粒吸着水「adsorptive water(I)」の一部または全部がサンプル作成の際に散失してしまったと考えられる。従って、比較すべき水分量は、 $0.33 \pm 0.01\%$ または $0.51 \pm 0.10\%$ であり、誤差範囲内で今回の測定と一致した。

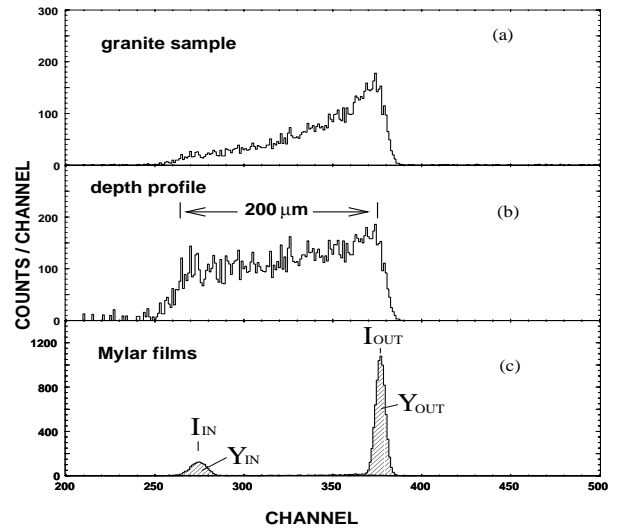


図4 同時測定した2個の陽子エネルギーのサムスペクトル(a). このスペクトルを指数関数で補正して得られた水素濃度分布(b). 花崗岩試料の前後に密着したマイラーからの散乱陽子(c).

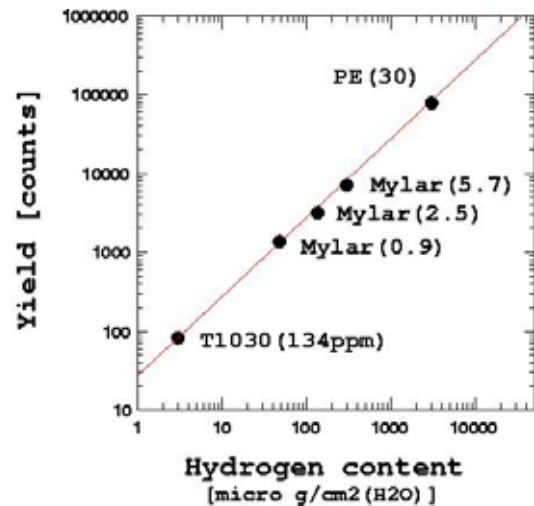


図6 水素面密度と散乱陽子数の関係

表 1 文献 1 の結果と陽子弾性散乱同時計数法との比較．数値は水分質量比であり、陽子弾性散乱同時計数法の結果は水素の収量を水に換算して示した．

分類 (文献[1])		水分量 (文献[1])	
Penetration water	雨水、霧などによる浸透水	0.08% (上限 0.16%, 下限 0%)	} 0.33 ± 0.01% } 0.51 ± 0.10%
Adsorptive water I	粗粒吸着水	0.18 ± 0.10%	
Adsorptive water II (H ₂ O ⁻)		0.13 ± 0.01%	
Combined water (H ₂ O ⁺)	結合水	0.20 ± 0.01%	
合計		0.59 ± 0.10% (上限 0.67%, 下限 0.51%)	
陽子弾性散乱同時計数法による結果			0.29 ± 0.11%

最近、我々はこの水素分析方法を発展させ地球科学分野の研究に応用するために、マイクロビーム照射装置に陽子弾性散乱同時計数装置を組み込んだ。図 7 に 1 2 UD タンデム加速器のビームコースに設置されたマイクロビーム照射システムを示す。このシステムのターゲット支持台は、図 8 に示した様な x y z 方向に移動可能なターゲット駆動機構になっている。この照射装置を用いて元安橋サンプルの再測定をテスト的に行いほぼ同じ結果がえられた。

文献

[1] H. Hasai, K. Iwatani, K. Shizuma, M. Hoshi, K. Yokoro, S. Sawada, T. Kosako, H. Morishima, Health Phys. 53 (1987) 227
 [2] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, T. Oka, Health Phys. 72 (1997) 848
 [3] S. Endo, K. Iwatani, T. Oka, M. Hoshi, K. Shizuma, T. Imanaka, J. Takada, S. Fujita, H. Hasai, J. Radiat. Res. 40 (1999) 169
 [4] B.L. Cohen, C.L. Fink, J.H. Degnan, J. Appl. Phys. 43 (1972) 19
 [5] H. Yurimoto, M. Kurosawa, S. Sueno, Geochim Cosmochim Acta 53 (1989) 751

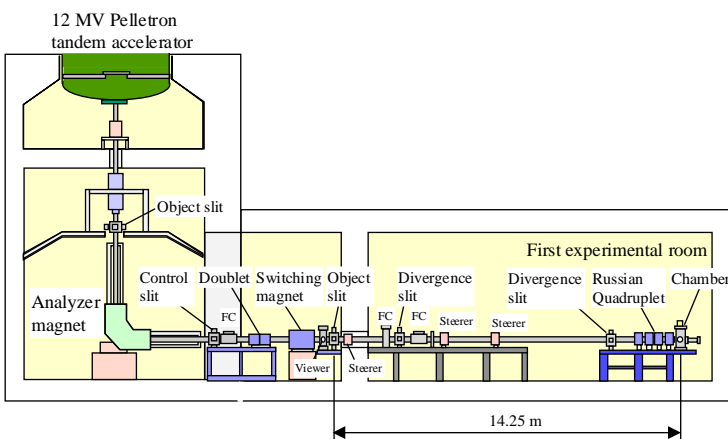


図 7 筑波大学 1 2 UD ペレトロン加速器に設置されたマイクロビーム照射コース

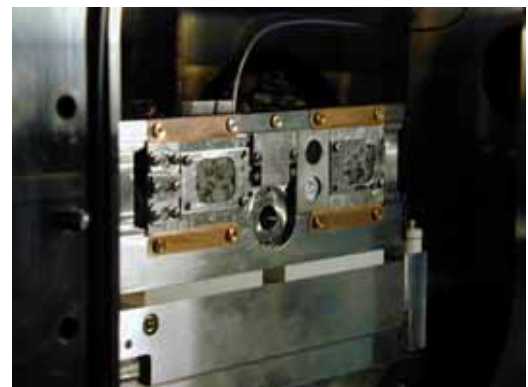


図 8 マイクロビーム照射コースに設置した花崗岩サンプル