

JAERI-M

8791

中性子捕獲 γ 線実験装置

1980年3月

東條 隆夫・米沢伸四郎・小浦 茂*
荒井 清明*・小森 卓三

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

中性子捕獲 γ 線実験装置

日本原子力研究所ラジオアイソトープ・原子炉研修所

東條隆夫・米沢仲四郎⁺・小浦 茂^{*}
荒井清明^{*}・小森卓二⁺

(1980年2月15日受理)

JRR-3のH-6水平実験孔の中性子ビームを、炉外に導き出して試料を照射する中性子捕獲 γ 線実験装置を組立て、その特性を測定した。試料照射位置における熱中性子束としては $8.0 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ が、カドミウム比(金)としては21が得られた。7インチ径×8インチ長のガードNaI(Tl)検出器を用いたGe γ 線スペクトロメーターの特性を、シングル、コンプトン(エスケープ)抑制およびペアの3種のモードに対して、窒素、クロムなどの中性子捕獲 γ 線測定を通して検討し、次の結果を得た。(1)シングル・スペクトロメーター—全エネルギー吸収ピーク効率(線源距離66cm): 2.3×10^{-5} (1 MeV), 4.6×10^{-6} (5 MeV), 1.25×10^{-6} (10 MeV), (2)コンプトン(エスケープ)抑制スペクトロメーター—コンプトン・バックグラウンド抑制係数: 3.5 (1~2 MeV), 5.1 (3~5 MeV), 5.5 (6~8 MeV), エスケープ抑制係数: 2.57 ± 0.2 (シングル), 8.34 ± 1.2 (ダブル), (3)ペア・スペクトロメーター—検出効率: 4.5×10^{-7} (3 MeV), 6.5×10^{-7} (4 MeV), 7.1×10^{-7} (5 MeV), 7.3×10^{-7} (5.5~10 MeV)。即発 γ 線コンプトン抑制スペクトロメーターによるホウ素、カドミウムおよびガドリニウムに対する定量下限値(変動係数10%, 計測時間1000秒, 試料2g水溶液)を検討した結果, それぞれの元素に対して, $9.0 \mu\text{g}$ (B), $12.3 \mu\text{g}$ (Cd) および $2.9 \mu\text{g}$ (Gd) が得られた。

+) 東海研究所原子炉化学部分析センター

*) 日本原子力船開発事業団, 原子炉研修所第36回一般課程Aコースの研修生として派遣され, テーマ研修生として本実験に参加した。

A Neutron Capture Gamma-Ray Facility

Takao TOJO, Chushiro YONEZAWA⁺, Shigeru KOURA^{*},
Seimei ARAI^{*} and Takuji KOMORI⁺

Radioisotope and Nuclear Engineering School, JAERI

(Received February 15, 1980)

A neutron capture gamma-ray facility was constructed for prompt gamma-ray spectrometry, and its characteristics were measured. In the facility, a neutron beam is extracted from the H-6 horizontal experimental hole of Japan Research Reactor No.3, JAERI, and a target outside the reactor is irradiated by the beam. Thermal neutron flux at the target position was 8.0×10^7 n/cm²·s and the cadmium ratio(Au) was 21. Characteristics of a Ge gamma-ray spectrometer using a 7 in. diameter x 8 in. length guard NaI(Tl) detector were measured for 3 modes, single, Compton(escape) suppressed and pair, with neutron capture gamma-rays from nitrogen, chromium etc. Characteristics were : (1) in single spectrometer, full-energy peak efficiency 2.3×10^{-5} (1 MeV), 4.6×10^{-6} (5 MeV) and 1.25×10^{-6} (10 MeV) ; (2) in Compton (escape) suppressed spectrometer, Compton suppression factor 3.5(1-2 MeV), 5.1(3-5 MeV) and 5.5(6-8 MeV), and escape suppression factor 2.57 ± 0.2 (single) and 8.34 ± 1.2 (double); (3) in pair spectrometer, detection efficiency 4.5×10^{-7} (3 MeV), 6.5×10^{-7} (4 MeV), 7.1×10^{-7} (5 MeV) and 7.3×10^{-7} (5.5-10 MeV). Lower detection limits in determination of boron, cadmium and gadolinium by Compton suppressed spectrometry of prompt gamma-rays were evaluated on the basis of the experimental data. The limits under the conditions of 2 g aqueous solution, standard error 10 % and counting time 1000 s were 9.0 µg for B, 12.3 µg for Cd and 2.9 µg for Gd.

Keywords : Neutron Irradiation Facility, JRR-3 Reactor, Thermal Neutron Beam, Neutron Capture Gamma-Rays, Compton(escape) Suppressed Spectrometer, Pair Spectrometer, Activation Analysis, Lower Detection Limit, Boron, Cadmium

+ Division of Chemistry, Tokai, JAERI

* Student of Nuclear Engineering School, JAERI ; from Japan Nuclear ship Development Agency, Tokyo

目 次

1. はじめに	1
2. 中性子捕獲 γ 線実験装置	1
2.1 中性子ビーム照射装置	2
2.2 γ 線スペクトロメーター	3
2.2.1 検出器系	3
2.2.2 測定回路系	4
3. 中性子捕獲 γ 線実験装置の特性測定	5
3.1 中性子ビーム照射装置の特性	5
3.2 γ 線スペクトロメーターの特性	8
3.2.1 シングル・スペクトロメーター	8
3.2.2 コンプトン(エスケープ)抑制型スペクトロメーター	9
3.2.3 ペア・スペクトロメーター	10
4. ホウ素, カドミウムおよびガドリニウムに対する定量下限値の検討	11
5. 結 論	13
謝 辞	13
参考文献	14
付録図 I 中性子捕獲 γ 線のシングル・スペクトルとコンプトン(エスケープ)抑制スペクトル A: 炭素, B: クロム, C: 鉄, D: 窒素, E: 鉛	
付録図 II 中性子捕獲 γ 線のコンプトン(エスケープ)抑制スペクトル A: アルミニウム, B: 銅	
付録図 III 中性子捕獲 γ 線のペア・スペクトル A: アルミニウム, B: 炭素, C: 銅, D: クロム, E: 鉄, F: 窒素	
付録図 IV 高幾何学的効率下での試料を用いた場合と用いない場合の低エネルギー領域における バックグラウンド・パルス波高分布(試料: ポリスチレン製容器封入の 2 cm ³ の純水)	

Contents

Summary		
1	Introduction	1
2	Neutron capture gamma-ray facility	1
2.1	Neutron beam irradiation apparatus	2
2.2	Gamma-ray spectrometer	3
2.2.1	Detector system	3
2.2.2	Electronic system	4
3	Measurements of characteristics of the facility	5
3.1	Neutron beam irradiation apparatus	5
3.2	Gamma-ray spectrometer	8
3.2.1	Single spectrometer	8
3.2.2	Compton(escape) suppressed spectrometer	9
3.2.3	Pair spectrometer	10
4	Evaluations of lower detection limit for boron, cadmium and gadolinium	11
5	Conclusions	13
References	13
Acknowledgement	14
Appendix I	Neutron capture gamma-ray spectra with and without compton suppression A : carbon, B : chromium, C : iron, D : nitrogen, E : lead	
Appendix II	Neutron capture gamma-ray spectra with compton suppression A : aluminium, B : copper	
Appendix III	Neutron capture gamma-ray spectra with pair spectrometer A : aluminium, B : carbon, C : copper, D : chromium, E : iron, F : nitrogen	
Appendix IV	Background spectra of low energy region with and without sample (sample : 2 cm ³ H ₂ O in polystyrene vial)	

List of Tables

- Table 1 Experimental data used for evaluation of lower limits of detection in analysis of boron, cadmium and gadolinium
- Table 2 Lower limits of detection of boron, cadmium and gadolinium in the conditions of 2 g aqueous solution, standard error 10 % and counting time 1000 s, compton suppressed and single prompt gamma-ray spectrometry
- Table 3 Lower limits of detection of boron, cadmium and gadolinium by single-high geometry prompt gamma-ray spectrometry, and figure-of-merits for compton suppressed spectrometry and single-high geometry spectrometry

List of Figures

- Fig.1 Arrangement of reactor, neutron beam irradiation apparatus and detector system
- Fig.2 Arrangement of neutron beam irradiation apparatus and detector system
- Fig.3 Blockdiagram of the electronics of Ge spectrometer with guard NaI(Tl)
- Fig.4 Background spectra with and without compton suppression
- Fig.5 Partial compton suppressed background spectra with and without sample
- Fig.6 Background spectra of low energy region with and without beam shutter
- Fig.7 Compton suppressed background spectra without sample vial, with polystyrene sample vial and with teflon sample vial(low energy region)
- Fig.8 Compton suppressed background spectra without sample vial, with polystyrene sample vial and teflon sample vial(energy range : up to approx. 6.5 MeV)
- Fig.9 Absolute full-energy peak efficiency of the single Ge spectrometer (energy range : up to approx. 3.5 MeV)
- Fig. 10 Absolute full-energy peak efficiency of the single Ge spectrometer (energy range : up to approx. 11 MeV)
- Fig.11 Relative efficiencies of single and double escape peaks to full energy peak
- Fig.12 Relative double escape peak efficiency and Ratio R obtained from single spectra
- Fig.13 Absolute efficiency of the pair spectrometer obtained by measurements of capture gamma-rays from Fe and Cr
- Fig.14 Pulse height distribution of 478 keV gamma-ray peak resulted from neutron absorption by boron
- Fig.15 Pulse height distribution of neutron capture gamma-rays resulted from neutron absorption by cadmium
- Fig.16 Pulse height distribution of neutron capture gamma-rays resulted from neutron absorption by gadolinium

1. はじめに

中性子捕獲 γ 線の測定は原子核物理の分野において原子核のエネルギー準位の有力な研究手段としてはやくから用いられてきた。そのデータは、原子力工学の分野においては、原子炉の γ 線遮蔽設計などの基礎的データとして活用され、現在においても熱中性子による捕獲 γ 線のデータの信頼度の向上が強く望まれる状態にある。また、中速および高速中性子による捕獲 γ 線においては、データの蓄積そのものの必要性が指摘されているのが現状である。また、中性子捕獲 γ 線の測定は元素分析の有力な手段として注目され、とくに中性子照射によっても誘導放射能を帯びない、または帯びることが少いホウ素やカドミウムなどの分析にこの方法は有効なものとなっている。

中性子捕獲 γ 線のエネルギー・スペクトルは一般的に非常に複雑であるが、高エネルギー分解能の半導体検出器の普及によって、より詳細で信頼度の高いデータを得ることが比較的容易になり、応用面においては実用的な技術として定着できるようになった。

このように、中性子捕獲 γ 線を対象とする研究開発は基礎および応用の両面において今後とも重要な位置を占めるものと思われる。

中性子捕獲 γ 線測定を原子炉材料の不純物元素分析に中性子毒物効果の観点から応用する場合、この分析手法は分析の必要性和完全に合致した最適な方法となる。このため、原子炉材料において顕著な中性子毒物効果を示すホウ素を分析することを当面の目的として、原子炉熱中性子ビームを利用した中性子捕獲 γ 線実験装置を組立てた。本報においては、この実験装置の概要と特性測定の結果を報告する。

2. 中性子捕獲 γ 線実験装置

中性子捕獲 γ 線に用いる中性子源としては、高速中性子の場合、直線加速器¹⁾やバンデグラーフ加速器²⁾が、共鳴領域中性子の場合、高速チョッパ³⁾や結晶回折モノクロメーター⁴⁾を用いた原子炉が、熱中性子の場合には原子炉^{5~6)}が用いられている。

熱中性子捕獲 γ 線の測定方法は、原子炉内に置いた試料からの γ 線を炉外に置いた検出器を用いて測定する方法⁵⁾と、炉外に導き出した中性子ビームで試料を照射して測定する方法⁶⁾に大別できる。

一方、中性子捕獲 γ 線のスペクトロスコピーを行うための検出器としては、今日では殆んどの場合、半導体検出器が用いられている。また、スペクトロメーターの方式としては、非常に複雑な捕獲 γ 線スペクトルをより明確な、あるいはより単純なパルス波高分布として測定するために、大型NaI(Tl)検出器をガード検出器として用いることによって反同時スペクトルを測定するエスケープ抑制型スペクトロメーター^{7~9)}(escape suppressed spectrometer)や同時スペクトルを測定するペア・スペクトロメーター^{7),10~12)}(pair spectrometer)が用いられている。

1. はじめに

中性子捕獲 γ 線の測定は原子核物理の分野において原子核のエネルギー準位の有力な研究手段としてはやくから用いられてきた。そのデータは、原子力工学の分野においては、原子炉の γ 線遮蔽設計などの基礎的データとして活用され、現在においても熱中性子による捕獲 γ 線のデータの信頼度の向上が強く望まれる状態にある。また、中速および高速中性子による捕獲 γ 線においては、データの蓄積そのものの必要性が指摘されているのが現状である。また、中性子捕獲 γ 線の測定は元素分析の有力な手段として注目され、とくに中性子照射によっても誘導放射能を帯びない、または帯びることが少いホウ素やカドミウムなどの分析にこの方法は有効なものとなっている。

中性子捕獲 γ 線のエネルギー・スペクトルは一般的に非常に複雑であるが、高エネルギー分解能の半導体検出器の普及によって、より詳細で信頼度の高いデータを得ることが比較的容易になり、応用面においては実用的な技術として定着できるようになった。

このように、中性子捕獲 γ 線を対象とする研究開発は基礎および応用の両面において今後とも重要な位置を占めるものと思われる。

中性子捕獲 γ 線測定を原子炉材料の不純物元素分析に中性子毒物効果の観点から応用する場合、この分析手法は分析の必要性和完全に合致した最適な方法となる。このため、原子炉材料において顕著な中性子毒物効果を示すホウ素を分析することを当面の目的として、原子炉熱中性子ビームを利用した中性子捕獲 γ 線実験装置を組立てた。本報においては、この実験装置の概要と特性測定の結果を報告する。

2. 中性子捕獲 γ 線実験装置

中性子捕獲 γ 線に用いる中性子源としては、高速中性子の場合、直線加速器¹⁾やバンデグラーフ加速器²⁾が、共鳴領域中性子の場合、高速チョッパ³⁾や結晶回折モノクロメーター⁴⁾を用いた原子炉が、熱中性子の場合には原子炉^{5~6)}が用いられている。

熱中性子捕獲 γ 線の測定方法は、原子炉内に置いた試料からの γ 線を炉外に置いた検出器を用いて測定する方法⁵⁾と、炉外に導き出した中性子ビームで試料を照射して測定する方法⁶⁾に大別できる。

一方、中性子捕獲 γ 線のスペクトロスコピーを行うための検出器としては、今日では殆んどの場合、半導体検出器が用いられている。また、スペクトロメーターの方式としては、非常に複雑な捕獲 γ 線スペクトルをより明確な、あるいはより単純なパルス波高分布として測定するために、大型NaI(Tl)検出器をガード検出器として用いることによって反同時スペクトルを測定するエスケープ抑制型スペクトロメーター^{7~9)}(escape suppressed spectrometer)や同時スペクトルを測定するペア・スペクトロメーター^{7),10~12)}(pair spectrometer)が用いられている。

本報においては、日本原子力研究所のJRR-3原子炉*の水平実験孔からの中性子ビームを炉外に導き出して試料を照射し、サイドホール付ウエル型NaI(Tl)でガードされたGe検出器を用いてスペクトロスコピーを行う方法を用いた。

2.1 中性子ビーム照射装置

原子炉とその実験孔、中性子ビーム照射装置(中性子・ γ 線遮蔽体)およびGe-NaI(Tl)検出器系の配置図をFig.1に示す。

実験孔はH-6と呼ばれている水平実験孔で、炉心を取り囲む黒鉛反射体中に挿入され、その径は約80mmである。実験孔は γ 線バックグラウンドを低下させるため炉心を直接みないように設置されたtangential holeであり、その先端部には中性子散乱体として黒鉛が挿入されている。

実験孔開口部、中性子ビーム照射装置および検出器系の配置図をFig.2に示す。

実験孔開口部付近には、適当な拡がりの中性子ビームを得るために、リチウムとポリエチレンの混合物**で作った内径40mm、長さ20cmの中性子コリメーターおよび炉外へ漏れる γ 線量の低減化のための鉛製のコリメーター(寸法は中性子用と同じ)が挿入されている。コリメーターの前後には鉛製の γ 線用シャッター(厚さ:10cm)およびホウ素とポリエチレンの混合物***で作った中性子用のシャッターが用いられている。

中性子照射によって試料から発生した γ 線はビームと90°の角度をもって配置されたGe検出器によって検出される。

試料からGe検出器に至る道程には、少い γ 線の吸収で試料による散乱中性子を効果的に吸収させるために⁶Liが96%に濃縮された⁶LiF中性子吸収体(直径:80mm,⁶LiFの厚さ:0.5g/cm²)が γ 線入射孔とNaI(Tl)サイドホール開孔部に用いられている。

試料による散乱中性子の吸収に伴って発生する捕獲 γ 線に起因する γ 線バックグラウンドの低減化を図ることを目的として、試料周辺は30cm×30cm×30cmのLiFタイル(厚さ:10mm)およびLiF粉末などのLi含有中性子吸収体****で囲まれている。この吸収体はLi含有のポリエチレンで作った架台上に置かれている。

試料付近の検出器側遮蔽体は、散乱中性子による捕獲 γ 線の発生を防止し、試料中で発生した注目外の捕獲 γ 線およびビーム中に存在する γ 線の試料による散乱 γ 線に起因するバックグラウンドの低減化を図るため、コンクリートのほかにLi含有ポリエチレン(厚さ:50mm)および鉛

* 低濃縮ウラン-重水減速型黒鉛反射体付原子炉、

定格出力:10MW、

燃料体領域(VR-1~3実験孔)の熱中性子束: 3.5×10^{13} nv

黒鉛反射体領域(HP-3気送管)の熱中性子束; 2.1×10^{11} nv

** Reactor Experiments 社カタログ番号209, Liの含有率:12.7%, 熱中性子遮蔽効果:5cmの厚さで約1/130

*** Reactor Experiments 社カタログ番号201, Bの含有率:5%, 熱中性子遮蔽効果:5cmの厚さで約1/2000

****アクリル樹脂製の中空の2重壁の箱であり、中空部にLiF粉末が充填され、その内壁にLiFタイルが張られている。

(厚さ ; 50mm)を用いて遮蔽した。

試料によって吸収および散乱されなかった中性子はビームキャッチャーに達する。ビームキャッチャーには中性子および γ 線に対する遮蔽がホウ素含有パラフィンおよび鉛を用いてなされている。ホウ素による中性子吸収では、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ $^7\text{Li} \rightarrow ^7\text{Li} + \gamma$ 線(478keV)によって γ 線が放出され、 γ 線バックグラウンドが増加する。このため、中性子ビームが到達するキャッチャーの内面はLiFタイルおよび容器に封入したLiF粉末の吸収体で内張した。

ビームキャッチャーからの散乱中性子、ビーム中に存在している γ 線のキャッチャーによる散乱 γ 線およびキャッチャーで発生した捕獲 γ 線によるバックグラウンドを低下させるため、キャッチャー開口部付近の遮蔽体は5cm厚のホウ素含有ポリエチレンおよび鉛を用いて強化した。

Ge検出器は、その結晶の軸が中性子ビームと平行で、試料と結晶の軸間距離が66cmになる位置に配置された。Ge検出器はNaI(Tl)蛍光体の井戸部に挿入された。

Ge-NaI(Tl)検出器系は10cm厚の鉛で覆い、これによってバックグラウンドを低下させた。検出器系の後方にはパラフィンブロックや鉛などを積み、周辺の実験施設からの中性子および γ 線の寄与を少くした。

試料で発生した γ 線は遮蔽体開口部に設けられた ^6LiF 中性子吸収体を通過して検出器系の鉛製コリメータ(入射側の径:20mm, 検出器側の径:32mm, 長さ:100mm)に入射し、NaI(Tl)のサイド・ホール開口部に設けられた ^6LiF 吸収体を経てGe検出器で検出される。

中性子ビームはFig.2に示すごとく、底面および側面が主としてコンクリートで構成された遮蔽体内の空洞を通過するが、上面部は10cm厚のパラフィンおよび5cm厚の鉛で遮蔽した。

試料は、上面遮蔽体に設けられた試料挿入孔および試料を囲む中性子遮蔽体の試料挿入孔を経て所定の位置に、吊り下げる形で挿入される。

中性子束のモニター用検出器(^{10}B カウンター)がビーム・キャッチャー開口部に設けられ、散乱中性子を利用して中性子束レベルがモニターできるようになっている。

2.2 γ 線スペクトロメーター

コンプトン・バックグラウンドのほかシングルおよびダブル・エスケープ・ピークを抑制できるエスケープ抑制(コンプトン抑制)型Ge γ 線スペクトロメーターをNaI(Tl)ガード検出器を用いて組み立て、その特性を測定した。この方式のスペクトロメーターでは同時・反同時回路を同時モードで使用することによってペア・スペクトロメーターとして使用することも容易である。

2.2.1 検出器系

エネルギー・スペクトル測定用としてGe検出器が用いられ、これを覆うガード検出器としてはサイド・ホール付ウエル型NaI(Tl)検出器が用いられた。これらは同軸状に配置され、10cm厚の鉛で遮蔽された。

検出器系の仕様を以下に示す。

A) Ge検出器

PGT社製イントリンシックGe検出器

検出器の型式：一端開放同軸型 (IGC-13, Na511)

結晶寸法：49mm(直径)×43mm(長さ), 81cm³

検出器窓厚：0.56mm(アルミニウム)

検出器窓-結晶前面間距離：< 5mm

作動電圧：+3500V

漏洩電流(+3500Vにおいて)：250pA

FWFM：986eV(122keV, ⁵⁷Co), 2.04keV(1332keV, ⁶⁰Co)

FWTM：3.91keV(1332keV, ⁶⁰Co)

相対効率：14.9% (3インチ径×3インチ長のNaI(Tl)に対して)

B) NaI(Tl)検出器

Harshaw社製サイドホール付ウエル型NaI(Tl)検出器

型式：28MBW/5B-X

NaI(Tl)結晶寸法：7インチ径×8インチ長

ウエル寸法：3インチ径×5インチ深(内径)

サイドホール寸法：2.64インチ径×5インチ深(内径)

光電子増倍管：RCA8055

外部磁気シールド付属, 低バックグラウンド・チューブ・ベース付属

ハウジング材質：アルミニウム

2.2.2 測定回路系

スペクトロメーターのブロックダイアグラムをFig. 3に示す。

Ge検出器系のリニア・パルスを多重波高分析器で分析する通常の測定法(シングル・モード)の場合には, 主増幅器出力パルスをLive Time Correctorに供給し, この回路で多重波高分析器のlive timeコントロール・パルスを発生させるとともにパルス波形を整形し, その出力パルスを波高分析する方法を用いた。

エスケープ(コンプトン)抑制型スペクトロメーターにおいては, 同時回路の出力パルスをLive Time Correctorの反同時ゲート入力に供給し, その出力パルスの発生を禁止した。この場合, NaI(Tl)系のシングル・チャンネル・アナライザー(SCA)は積分モードで使用した。

ペア・スペクトロメーターにおいては同時回路の出力パルスをLive Time Correctorの同時ゲート入力に供給し, その出力パルスの発生を制御し, 同時性を有するリニア・パルスのみを発生させた。この場合, NaI(Tl)系のSCAは微分モードで用い, 消滅光子のサム・ピーク(1.02MeV)領域のパルスを選別できるように下限および上限のディスクリミネーター・レベルを設定した。

3. 中性子捕獲 γ 線実験装置の特性測定

3.1 中性子ビーム照射装置の特性

中性子ビーム照射装置の特性としては、試料照射位置における中性子束の値、作業の安全に係る空間線量の値および測定精度に係るスペクトロメーターのバックグラウンドの値が主要なものと考えられる。

A) 熱中性子束およびカドミウム比の測定

定格出力10 MW時の試料照射位置における熱中性子束を測定した。その結果、熱中性子束としては、 $8.0 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s} \pm 0.6\%$ (統計誤差)が、カドミウム比としては $21 \pm 2.2\%$ が得られた。この測定においては、一定量の金を含む溶液 2 cm^3 をポリスチレン製の円筒状容器^{*}に入れて照射し、その放射能を校正されたGe(Li) γ 線スペクトロメーターで定量する方法が用いられた。参考のため、実験孔開口部における熱中性子束を10mm径で30mgの質量を有する金箔と1mm厚のカドミウム・カバーを用いて、炉出力100kWにおいて測定した。その結果、熱中性子束として、 $1.37 \times 10^6 \pm 0.8$ (10MW時換算値 1.37×10^8) $\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 、カドミウム比として $10.2 \pm 1.3\%$ を得た。

実験孔開口部の熱中性子束が試料照射位置のそれより約40%大きい値となった理由として、炉出力計の非直線性を別として、放射化検出器自身の中性子吸収・散乱が少ないことのほか、開口部においては方向が揃っていないかなりの散乱中性子が存在することが挙げられる。

B) スペクトロメーターのバックグラウンドの測定

定格炉出力において試料を用いず、単に中性子ビームをキャッチャーで受け止める状態で測定したスペクトロメーターのバックグラウンド・スペクトルをFig. 4に示す。

同図には主としてコンクリート遮蔽体に起因する水素の中性子捕獲 γ 線、空気中の窒素やアルゴンの捕獲 γ 線および検出器系において発生するナトリウムやゲルマニウムの捕獲 γ 線が明確なピークとして測定されている。

Fig. 4に示されたシングルおよびコンプトン(エスケープ)抑制型スペクトルの比較においては、コンプトン抑制方式によってコンプトン・バックグラウンドが、約1 MeV以上のエネルギー領域においては、 $1/5 \sim 1/6$ 程度に低減され、この結果コンプトン抑制スペクトル中のそれぞれの全エネルギー吸収ピークは一層明確になることが明らかになっている。一方、低エネルギー領域においてはコンプトン・バックグラウンド抑制係数(=シングルスペクトルの計数率/コンプトン抑制スペクトルの計数率)が2~3程度の小さい値となり、約0.5 MeV以下のエネルギー領域においては、エネルギーの低下に伴って顕著にバックグラウンドが増加する傾向が示され

* 外径14mm、高さ25mm、肉厚1mm(底部は2mm)で、その重さは1.75gである。蓋をしたときの蓋部の外径は16mmである。

ている。この傾向は、ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムなど大きい毒物効果を示す元素分析においてそれぞれ注目する478keV、558keV および182keV γ 線ピーク計数率の測定精度の低下をもたらす。このため、低エネルギー領域において著しい増加傾向を示すバックグラウンドの原因を明らかにするための実験を行った。

Fig.5に示した低エネルギー領域のバックグラウンド・スペクトルは、コンプトン抑制型スペクトロメーターで測定した試料（ポリスチレン製の容器に2 cm³の純水を封入したもの）を用いた場合と用いない場合のものである。両者の連続スペクトル部分の比較から、両者はほぼ同様な傾向の分布を示し、試料を用いた場合のバックグラウンドの約90%は、ビーム中の γ 線の試料による散乱 γ 線に起因し、ビームキャッチャーからの γ 線の寄与は小さいことが明らかになっている*。スペクトル中に見られる255.5keVの幾分幅が広がったピークはビーム中に存在する消滅光子が90°方向に散乱され、その散乱光子がGe検出器において全エネルギー吸収を受けた結果発生したものである。このピークの存在によって、実験孔内で多数回の散乱を受けてエネルギーが低下し、連続スペクトルを示すようになった γ 線の試料による散乱効果が、低エネルギー領域における著しいバックグラウンド増加の大きな要因となっていることが示唆されている。また、NaやGeの捕獲 γ 線の存在によって、試料によって散乱された熱中性子もバックグラウンド源として無視できない要因であることも示されている。

実験孔開口部の中性子および γ 線シャッターを開閉することによって測定した低エネルギー領域のバックグラウンド・スペクトルをFig.6に示す。同図は試料を用いて測定されたコンプトン抑制スペクトルである。Fig.6の結果から次の事項が明らかになっている。

- (i) (中性子シャッター閉— γ 線シャッター開)のスペクトルBから、ビーム中の γ 線のエネルギー・スペクトルの最大値は数100keVであり、中性子ビームがほぼ完全に遮蔽されているため、検出器系の中性子捕獲に伴う γ 線は測定されていない。(中性子シャッター開— γ 線シャッター開)のスペクトルAと同様な傾向のバックグラウンド・スペクトルを有し、その強度はスペクトルAの数分の1である。このことから、バックグラウンド源はビーム中の γ 線であることが明らかになっている。また、スペクトルBのバックグラウンドがAの数分の1に低下した原因は中性子シャッターによる γ 線の吸収に起因すると考えられる。
- (ii) (中性子シャッター開— γ 線シャッター閉)のスペクトルCから、 γ 線ビームの遮蔽によってバックグラウンドが激減し、消滅光子の90°散乱ピークも発生していない。このことから、中性子ビーム**の捕捉によるキャッチャーからの γ 線はバックグラウンドに大きく寄与していないことが明らかになっている。
- (iii) (中性子シャッター閉— γ 線シャッター閉)のスペクトルDから、中性子ビームの遮蔽によっては、バックグラウンドは大幅に低下せず、このことによっても、バックグラウンドの大部分

* 試料を用いたスペクトルにおける数100keV以上のほぼ平坦な分布を示すバックグラウンドの大部分は水素の捕獲 γ 線のコンプトン・バックグラウンドである

** γ 線シャッターによって、熱中性子ビームの強度は約1/10に低下する。

はビーム中に存在する γ 線の寄与によるものであることが明らかになっている。

以上の結果から明かなように、低エネルギー領域におけるバックグラウンドの大部分は、ビーム中に存在する γ 線の散乱 γ 線がGe検出器中で全エネルギー吸収を受けたものであり、このためこの領域のコンプトン抑制係数はFig.4に示されているように、小さくなるものと考えられる。

一方、水素含有の材料を用いて製作した試料容器を使用した場合の数100keVから2.2MeVのエネルギー領域におけるバックグラウンドの多くは水素^{*}の捕獲 γ 線のコンプトン・バックグラウンドであるため、試料の性質によっては、黒鉛^{*}やテフロン^{*}など小さい中性子捕獲断面積を有する容器を使用することによって、バックグラウンドの低減化を図ることが必要である。この点に関する測定例をFig.7および8に示す。

Fig.7は上段から下段に向って、試料容器を用いない場合、ポリスチレン製容器を用いた場合およびテフロン製容器を用いた場合のコンプトン抑制スペクトルである。

同図は、試料容器を用いることによって、バックグラウンドが約10倍に増加し、中でもポリスチレン製容器を用いた場合、バックグラウンド・スペクトルは単純になるが、水素の捕獲 γ 線によってコンプトン・バックグラウンドが最も強くなることを示している。テフロン製容器の場合、コンプトン・バックグラウンドは比較的低い、フッ素の多種のエネルギーの捕獲 γ 線ピークが発生する。このため、これらピークによる妨害の有無を考慮してこの試料容器を使用することが重要である。

Fig.8は測定エネルギー範囲を約6.5MeVにまで拡大して測定したFig.7と同様な測定例である。

黒鉛製容器の場合、付録図Iに示すように、そのスペクトルが単純で、中性子捕獲断面積も水素の1/100と小さいため、試料の性質によっては望ましいものと考えられる。

C) 中性子ビーム照射装置周辺の線量率

照射装置遮蔽体の検出側の側面表面線量率は0.3~0.4mR/hであり、上面遮蔽体の試料挿入孔付近の表面線量率は1mR/h程度であった。これらの測定はGMサーベイメーターを用いて行った。

パラフィン・モデレーター付のBF₃サーベイメーターを用いた測定では検出器側遮蔽体側面における熱および高速中性子束はそれぞれ3.8n/cm²・sおよび6.3n/cm²・sであった。また、試料挿入孔周辺の上面遮蔽体の表面における熱および高速中性子束はそれぞれ250n/cm²・sおよび53n/cm²・sであった。

ビーム・キャッチャー後面の中央部の表面における γ 線量率、熱および高速中性子束はそれぞれ約1mR/h、3.2n/cm²・sおよび3.8n/cm²・sであった。

ビーム・キャッチャー後方約4mの位置に設置されたモニターによる測定では、照射装置運転時の γ 線量率および中性子線量率はそれぞれ0.11~0.12mR/hおよび0.1mrem/hであった。

* 天然元素の中性子捕獲断面積(b)：水素0.335，炭素：0.0034，フッ素0.0098

3.2 γ 線スペクトロメーターの特性

シングル、コンプトン(エスケープ)抑制およびペア・スペクトロメーターとしての特性測定を、種々な元素に対する中性子捕獲 γ 線を測定することによって行った。

シングルおよびコンプトン抑制スペクトルの両者を測定し、それらを比較しながら示した炭素、クロム、鉄、窒素および鉛の中性子捕獲 γ 線スペクトルを付録 I に Fig. IA ~ IE として示す。また、コンプトン抑制スペクトルのみを測定したアルミニウムおよび銅の中性子捕獲 γ 線スペクトルを付録図の Fig. II A および II B に示す。

3.2.1 シングル・スペクトロメーター

標準溶液線源としての ^{56}Co および ^{152}Eu を用いて測定したスペクトロメーターの絶対全エネルギー吸収ピーク効率を Fig. 9 に示す。同図にはシングルおよびコンプトン抑制の両方式のスペクトロメーターに対する効率が示されている。両者の効率曲線は誤差の範囲内ではほぼ一致し、コンプトン抑制方式における多重(カスケード) γ 線効果による検出効率の低下は、低幾何学的効率および γ 線コリメーターの使用によって殆んど観測されていない。

中性子捕獲 γ 線の利用によって 10 MeV を超えるエネルギー領域にわたって求めた絶対全エネルギー吸収ピーク効率を Fig. 10 に示す。同図は付録図の Fig. I に示した測定結果のうち、主として窒素およびクロムの捕獲 γ 線に注目することによって得たそれぞれの相対効率曲線を合成し、この合成曲線を Fig. 9 の曲線に規格化することによって求めた。相対効率を求めるに際して必要な捕獲 γ 線の放出率としては文献(13)~(17)のデータを用いた。絶対全エネルギー吸収ピーク効率としては、Fig. 10 に示されているように、1 MeV、5 MeV および 10 MeV の γ 線に対してそれぞれ、 2.3×10^{-5} 、 4.6×10^{-6} および 1.25×10^{-6} が得られている。

シングル・スペクトルにおけるシングル・エスケープ・ピーク面積(SE)およびダブル・エスケープ・ピーク面積(DE)の全エネルギー吸収ピーク面積(FE)に対する比を γ 線エネルギーの関数として求め、その結果を Fig. 11 に示す。同図においては、ピーク面積の比SE/FEは白丸で、DE/FEは黒丸で示され、両者の曲線は γ 線エネルギーとともに増加し、その比の値は測定誤差の範囲内で一致しているように見える。この点を明らかにするため、DEのSEに対する比Rおよび相対的ダブル・エスケープ・ピーク検出効率を γ 線エネルギーの関係において求め、その結果を Fig. 12 に示す。

同図の比Rは、 γ 線エネルギーに依存せず、その平均値は 1.03 ± 0.06 であることが明らかになっている。この比Rの一定性は、消滅光子がGe結晶外へ1回も相互作用を起さずに逃れる確率 P_{ℓ} のみに依存する結果である。すなわち、比Rは次のように表わすことができる。

$$R = \frac{DE}{SE} = \frac{Npa \cdot P_{\ell}^2}{2Npa \cdot P_{\ell}(1 - P_{\ell})}$$

$$= \frac{P_{\ell}}{2(1-P_{\ell})} \dots\dots\dots (1)^{*}, (2)$$

ただし、Npaは Ge 結晶中で発生する電子対生成の事象数である。

式(1)と比Rの実測値から確率 P_{ℓ} を求めることができ、 P_{ℓ} として 0.673 ± 0.013 が得られた。この値は、本 Ge 検出器に対して ^{56}Co および ^{228}Th など放射性核種からの γ 線を主として用いて測定した $0.694 \pm 0.021^{(12)}$ と測定誤差の範囲内で一致している。

一方、ダブル・エスケープ・ピークの相対的な検出効率、6～7 MeV 領域にピークをもつ上に凸の曲線で示される傾向をもっていることが Fig. 12 に示唆されているが、測定誤差を考慮すれば、この曲線は統計的に十分な意味をもつ程には至っていないと思われる。

3.2.2 コンプトン(エスケープ)抑制型スペクトロメーター

付録図の Fig. 1A～1E に示した種々な元素に対するコンプトン(エスケープ)抑制スペクトルから本スペクトロメーターの特性を検討した。

コンプトン・バックグラウンドの低減化については、核種によって異なるが、(シングル・スペクトルにおけるコンプトン・バックグラウンドの計数率) / (コンプトン抑制スペクトルにおけるコンプトン・バックグラウンドの計数率) で表わしたコンプトン・バックグラウンド抑制係数としては、それぞれのエネルギー領域における平均的な値として、3.5(1～2 MeV)、5.1(3～5 MeV) および 5.5(6～8 MeV) が得られている。この結果、コンプトン抑制スペクトルにおいては、全エネルギー吸収ピークが一層明確なものとして観測できる。

また、シングル・スペクトル中のエスケープ・ピーク面積 (SE)_S のコンプトン(エスケープ)抑制スペクトル中のエスケープ・ピーク面積 (SE)_E に対する比としてエスケープ抑制係数 S_f を求めた。この結果、シングル・エスケープ・ピーク抑制係数 $(S_f)_{SE}$ の平均値として、 2.57 ± 0.201 が得られた。その結果から、次の関係を用いてガード NaI(Tl) 検出器の Ge 結晶から逃れた消滅光子に対する全検出効率 ϵ_T を求めた。

$$\begin{aligned} (S_f)_{SE} &= \frac{(SE)_S}{(SE)_E} \\ &= \frac{2Npa \cdot P_{\ell}(1-P_{\ell})}{2Npa \cdot P_{\ell}(1-P_{\ell})(1-\epsilon_T)} \\ &= \frac{1}{1-\epsilon_T} \dots\dots\dots (2)^{(12)} \end{aligned}$$

* DE = 1.03SE の関係から、
 $Npa \cdot P_{\ell}^2 = 1.03[2Npa \cdot P_{\ell}(1-P_{\ell})]$
 $3.06P_{\ell}^2 - 2.06P_{\ell} = 0$, が得られ
 $P_{\ell} = 0.673$, を求めることもできる。

この結果、 ϵ_T としては、 0.611 ± 0.048 が得られた。

エスケープ抑制スペクトルにおけるダブル・エスケープ・ピークに対する抑制係数 $(S_f)_{DE}$ と ϵ_T の関係は次式によって与えられるので、得られた ϵ_T の値を用いて $(S_f)_{DE}$ を求めた。

$$(S_f)_{DE} = \frac{1}{(1 - \epsilon_T)^2} \dots \dots \dots (3)^{12)}$$

この結果、 $(S_f)_{DE}$ として、 6.61 ± 1.7 が得られた。この値は実際のスペクトルから求めた実測値、 8.34 ± 1.21 と誤差の範囲内で一致している。

3.2.3 ペア・スペクトロメーター

ガードNaI(Tl)検出器系の1.022MeVの γ 線ピーク領域のパルスをシングル・チャンネル波高分析器で選別し、この出力パルスと同時性を有するGe検出器系のパルスを分析・記録する方法で、ペア・スペクトルをアルミニウム、炭素、銅、クロム、鉄および窒素（いずれも天然元素）など6種類の元素について測定した。それらの結果を付録図のFig. IIIA ~ IIIFに示す。

Fig.10に示された全エネルギー吸収ピーク効率に比べて、ダブル・エスケープ・ピーク検出効率はFig.12に示したように極めて小さい γ 線エネルギー依存性しか示さない。また、シングル・スペクトルにおけるように、低エネルギー領域ほどコンプトン・バックグラウンドが増加するような傾向もあまり示さないため、これらペア・スペクトルの縦軸には直線目盛が用いられている。付録図のFig. IIIに示された各スペクトルにはダブル・エスケープ・ピークが、その面積が γ 線放出率にほぼ比例する形で明確に測定されている。これら各スペクトルにおけるバックグラウンドは、既報のスペクトル^{7), 12)}に比べて幾分強く測定されているが、これはガードNaI(Tl)検出器がサイドホール付ウエル型のために試料からの γ 線が直接NaI(Tl)に入射することに起因すると考えられる。

ペア・スペクトロメーターの絶対検出効率 $(\epsilon_{ab})_{pair}$ をFig. 13に示す。この効率はFig. III D および III E に示したクロムおよび鉄の測定結果から求めた合成された相対効率曲線を規格化することによって得られた。規格化にあたっては次の関係を用いた。

$$(\epsilon_{ab})_{pair} = \frac{(DE)_{pair}}{(FE)_s} \times (\epsilon_{ab})_{FE}$$

ただし、 $(DE)_{pair}$ および $(FE)_s$ はそれぞれ、同一条件下で測定したペア・スペクトルにおけるダブル・エスケープ・ピーク面積およびシングル・スペクトルにおける全エネルギー吸収ピーク面積である。また、 $(\epsilon_{ab})_{FE}$ はシングル・スペクトロメーターにおける絶対全エネルギー吸収ピーク効率であり、Fig. 10に示した効率を用いた。効率 $(\epsilon_{ab})_{pair}$ の曲線は、エネルギー依存性を殆んど示さない5920~9298keV領域の鉄に対するものをFig. ICおよびIII E のデータを用いてそれぞれ求め、その平均効率に対して規格化することによって求めた。

Fig.12に示したシングル・スペクトルにおけるダブル・エスケープ・ピークの相対効率*に

* 平均効率の標準偏差： $\pm 7.0\%$

において、エネルギー依存性の傾向は明確ではなかったが、Fig.13においてはベア・スペクトロメーターの低バックグラウンドの故に、この依存性が比較的明確なものとして得られている。

4. ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムに対する定量下限値の検討

中性子捕獲 γ 線実験装置を用いた即発 γ 線スペクトロメトリーによって、著しい中性子毒物効果を示すホウ素、カドミウムおよびガドリニウムを分析する際の定量下限値の検討を、実験データに基づいて行った。

分析試料としては、その調製の容易さから、一定量の試料元素の水溶液 2 cm^3 をポリスチレン製の容器に封入したものを用いた。試料元素の含有量はそれぞれの元素に対して、 2 mg , $200\mu\text{g}$, $20\mu\text{g}$ および $2\mu\text{g}$ とした。

定量下限値 W (μg) は、次に示す G. V. Walford¹⁸⁾ および J. A. Cooper¹⁹⁾ による評価式を用い、定量誤差 (変動係数) 10%, 計測時間 1000 秒の条件下で検討した。

$$W = \frac{1}{2C^2 \cdot \epsilon \cdot t} \left[1 + \left\{ 1 + 8C^2 \cdot b \cdot R(E) \cdot n_B \cdot t \right\}^{1/2} \right]$$

ただし、 ϵ は実験装置の感度 ($\text{counts/s} \cdot \mu\text{g}$)、 t は計測時間 (s)、 C は変動係数である。また、 b はピーク積分領域の幅を定める定数、 $R(E)$ は注目したピークに対するエネルギー分解能 (FWHM, keV)、 n_B はピーク領域のバックグラウンド計数率 ($\text{counts/s} \cdot \text{keV}$) である。

ここでは、 $t = 1000$ (s)、 $C = 0.1$ 、 $b = 2$ として検討した。ただし、ホウ素の 478keV γ 線はドップラー効果によって、そのピークが著しく広がるため、ホウ素に対しては実験結果に基づいて $b = 9$ とした。感度 ϵ およびバックグラウンド計数率 n_B の値は実験的に求め、それらの値をエネルギー分解能 $R(E)$ の値とともに Table 1 に示す。また、ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムのパルス波高分布の測定結果の一例を Fig.14 ~ Fig.16 に示す。

3種の元素に対して評価した定量下限値を Table 2 に示す。同表の結果は、コンプトン抑制型スペクトロメーターを用いた場合、ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムの定量下限値としてそれぞれ $9.0\mu\text{g}$ 、 $12.3\mu\text{g}$ 、および $2.9\mu\text{g}$ を示している。また、コンプトン・バックグラウンド抑制効果は、通常の測定法に比べてホウ素で 26%、カドミウムで 29%、ガドリニウムで 33% の下限値の低下をもたらすことを示している。さらに、実験装置自身が含有しているホウ素によるバックグラウンドの増加は、 $1\mu\text{g}$ の下限値の増加をもたらすことが明らかになっている。

以上の検討の後、幾何学的効率の増加によって定量下限値を低下させることを試みた。このためには、ガード NaI(Tl) 検出器を除去し、Ge 検出器の前面を検出器系に用いられていた鉛製コリメーターに密着させ、そのコリメーターを中性子ビーム照射装置のコンクリート遮蔽体の外側に密着させるように配置した。この結果、試料 - Ge 検出器窓間距離は 40cm になった。このような検出器配置において測定した低エネルギー領域のバックグラウンド・パルス波高分布を付

において、エネルギー依存性の傾向は明確ではなかったが、Fig.13においてはペア・スペクトロメーターの低バックグラウンドの故に、この依存性が比較的明確なものとして得られている。

4. ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムに 対する定量下限値の検討

中性子捕獲 γ 線実験装置を用いた即発 γ 線スペクトロメトリーによって、著しい中性子毒物効果を示すホウ素、カドミウムおよびガドリニウムを分析する際の定量下限値の検討を、実験データに基づいて行った。

分析試料としては、その調製の容易さから、一定量の試料元素の水溶液 2cm^3 をポリスチレン製の容器に封入したものを用いた。試料元素の含有量はそれぞれの元素に対して、 2mg , $200\mu\text{g}$, $20\mu\text{g}$ および $2\mu\text{g}$ とした。

定量下限値 W (μg)は、次に示すG. V. Walford¹⁸⁾ および、J. A. Cooper¹⁹⁾による評価式を用い、定量誤差(変動係数)10%, 計測時間1000秒の条件下で検討した。

$$W = \frac{1}{2C^2 \cdot \epsilon \cdot t} \left[1 + \left\{ 1 + 8C^2 \cdot b \cdot R(E) \cdot n_B \cdot t \right\}^{1/2} \right]$$

ただし、 ϵ は実験装置の感度(counts/s $\cdot\mu\text{g}$)、 t は計測時間(s)、 C は変動係数である。また、 b はピーク積分領域の幅を定める定数、 $R(E)$ は注目したピークに対するエネルギー分解能(FWHM, keV)、 n_B はピーク領域のバックグラウンド計数率(counts/s $\cdot\text{keV}$)である。

ここでは、 $t = 1000$ (s)、 $C = 0.1$ 、 $b = 2$ として検討した。ただし、ホウ素の478keV γ 線はドップラー効果によって、そのピークが著しく広がるため、ホウ素に対しては実験結果に基づいて $b = 9$ とした。感度 ϵ およびバックグラウンド計数率 n_B の値は実験的に求め、それらの値をエネルギー分解能 $R(E)$ の値とともにTable 1に示す。また、ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムのパルス波高分布の測定結果の一例をFig.14~Fig.16に示す。

3種の元素に対して評価した定量下限値をTable 2に示す。同表の結果は、コンプトン抑制型スペクトロメーターを用いた場合、ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムの定量下限値としてそれぞれ $9.0\mu\text{g}$ 、 $1.23\mu\text{g}$ 、および $2.9\mu\text{g}$ を示している。また、コンプトン・バックグラウンド抑制効果は、通常の測定法に比べてホウ素で26%、カドミウムで29%、ガドリニウムで33%の下限値の低下をもたらすことを示している。さらに、実験装置自身が含有しているホウ素によるバックグラウンドの増加は、 $1\mu\text{g}$ の下限値の増加をもたらすことが明らかになっている。

以上の検討の後、幾何学的効率の増加によって定量下限値を低下させることを試みた。このためには、ガードNaI(Tl)検出器を除去し、Ge検出器の前面を検出器系に用いられていた鉛製コリメーターに密着させ、そのコリメーターを中性子ビーム照射装置のコンクリート遮蔽体の外側に密着させるように配置した。この結果、試料-Ge検出器窓間距離は40cmになった。このような検出器配置において測定した低エネルギー領域のバックグラウンド・パルス波高分布を付

録図としてFig. IVに示す。

Fig. IVは試料(ポリスチレン製容器封入の2 cm³の純水)を用いた場合と用いない場合のものである。両スペクトルの比較から、試料を用いた場合のホウ素478keVピーク領域のコンプトン・バックグラウンドは、用いないときの数倍になっていることが明らかになっている。また、⁶LiF中性子吸収体を用いたにもかかわらず、検出器の中性子捕獲 γ 線によるピークが明確に測定されている。

以上のような高幾何学的効率下での測定および検討結果をTable 3に示す。同表は、検出感度 ϵ については、Table 1に比べて2.3倍であるが、バックグラウンド計数率の著しい増加によって、定量下限値はTable 1の結果におよばないことを示している。この点を明らかにするため、次のように定義した性能指数 (figure-of-merit) FOMを求めた。

$$FOM = \epsilon / [n_B \cdot b \cdot R(E)]^{1/2}$$

この結果はTable 3に合わせて示されている。同表のFOMの添字HGは高幾何学的条件下でのシングル・スペクトロメーターを示し、CSはTable 1に示したコンプトン抑制スペクトロメーターを示す。Table 1はコンプトン抑制スペクトロメーターの方が何れの試料に対しても大きなFOMをもつ高感度な測定法であることを示している。

5. 結 論

JRR-3のH-6水平実験孔の中性子ビームを炉外に導き出して試料を照射する中性子捕獲 γ 線実験装置を組立て、その特性を測定した。

試料照射位置における中性子束としては、 8.0×10^7 n/cm²・sが、カドミウム比(金)としては21が得られた。

7インチ径×8インチ長のガードNaI(Tl)検出器を用いたGe γ 線スペクトロメーターの特性は、シングル、コンプトン(エスケープ)抑制およびペアの3種のモードについて測定した。

シングル・スペクトロメーターの全エネルギー吸収ピーク効率を窒素およびクロムなどの中性子捕獲 γ 線測定を通して求めた結果、試料-Ge検出器間距離66cmの通常の測定条件下において、それぞれの γ 線エネルギーに対して、 2.3×10^5 (1MeV)、 4.6×10^6 (5MeV)および 1.25×10^6 (10MeV)が得られた。

コンプトン(エスケープ)抑制型スペクトロメーターのコンプトン・バックグラウンド抑制係数は、試料元素の種類によって異なるが、窒素、鉄、クロムなど数種の元素の捕獲 γ 線測定結果の平均値として、それぞれのエネルギー領域に対して、3.5(1~2MeV)、5.1(3~5MeV)および5.5(6~8MeV)が得られた。また、シングルおよびダブル・エスケープ・ピーク抑制係数としてはそれぞれ、 2.57 ± 0.2 および 8.34 ± 1.2 が得られた。実測した抑制係数を用いて、Ge結晶から逃れた消滅光子に対するガードNaI(Tl)検出器の全検出効率を 0.611 ± 0.048 と求めた。

ペア・スペクトロメーターでは、5.5MeV以上のエネルギー領域において、その効率が殆んど γ 線エネルギー依存性を示さず、その値は 7.3×10^7 であり、5MeV、4MeVおよび3MeV γ 線に対してはそれぞれ、 7.1×10^7 、 6.5×10^7 および 4.5×10^7 であることが明らかになった。

著しい中性子毒物効果を示すホウ素、カドミウムおよびガドリニウムに対する即発 γ 線スペクトロメトリーによる定量下限値を、この実験装置の感度やバックグラウンド計数率などの実測データに基づき2cm³水溶液試料、変動係数10%、計測時間1000秒の条件下で評価した。この結果、コンプトン抑制スペクトロメトリーによる下限値として9.0 μ g(B)、12.3 μ g(Cd)、2.9 μ g(Gd)が得られ、この測定法によってシングル・スペクトロメトリーより約30%の下限値の低下をみることができた。

今後の問題点としては、低エネルギー領域におけるバックグラウンドの低減化による定量下限値の低下、試料装荷機構の整備、中性子 \cdot γ 線シャッターおよび中性子ビーム照射装置の上面遮蔽体の強化による安全性の一層の向上、ならびに上面遮蔽体の脱着機構の改良による多種供試体の簡便な装荷を可能にすることによる実験装置の多目的利用化などを挙げる事ができる。

謝 辞

本実験を遂行するに際し、原研・研究炉管理部JRR-3管理課の桜井裕博士ならびに白井英次氏から有益な助言と御協力を載しましたので、深く感謝致します。さらに、JRR-3運転班ならびに放射線管理課の諸兄の御協力に対し、深く感謝の意を表します。

5. 結 論

JRR-3のH-6水平実験孔の中性子ビームを炉外に導き出して試料を照射する中性子捕獲 γ 線実験装置を組立て、その特性を測定した。

試料照射位置における中性子束としては、 8.0×10^7 n/cm²・sが、カドミウム比(金)としては21が得られた。

7インチ径×8インチ長のガードNaI(Tl)検出器を用いたGe γ 線スペクトロメーターの特性は、シングル、コンプトン(エスケープ)抑制およびペアの3種のモードについて測定した。

シングル・スペクトロメーターの全エネルギー吸収ピーク効率を窒素およびクロムなどの中性子捕獲 γ 線測定を通して求めた結果、試料-Ge検出器間距離66cmの通常の測定条件下において、それぞれの γ 線エネルギーに対して、 2.3×10^5 (1 MeV)、 4.6×10^6 (5 MeV)および 1.25×10^6 (10 MeV)が得られた。

コンプトン(エスケープ)抑制型スペクトロメーターのコンプトン・バックグラウンド抑制係数は、試料元素の種類によって異なるが、窒素、鉄、クロムなど数種の元素の捕獲 γ 線測定結果の平均値として、それぞれのエネルギー領域に対して、3.5(1~2 MeV)、5.1(3~5 MeV)および5.5(6~8 MeV)が得られた。また、シングルおよびダブル・エスケープ・ピーク抑制係数としてはそれぞれ、 2.57 ± 0.2 および 8.34 ± 1.2 が得られた。実測した抑制係数を用いて、Ge結晶から逃れた消滅光子に対するガードNaI(Tl)検出器の全検出効率を 0.611 ± 0.048 と求めた。

ペア・スペクトロメーターでは、5.5 MeV以上のエネルギー領域において、その効率が殆んど γ 線エネルギー依存性を示さず、その値は 7.3×10^7 であり、5 MeV、4 MeVおよび3 MeV γ 線に対してはそれぞれ、 7.1×10^7 、 6.5×10^7 および 4.5×10^7 であることが明らかになった。

著しい中性子毒物効果を示すホウ素、カドミウムおよびガドリニウムに対する即発 γ 線スペクトロメトリーによる定量下限値を、この実験装置の感度やバックグラウンド計数率などの実測データに基づき2 cm³水溶液試料、変動係数10%、計測時間1000秒の条件下で評価した。この結果、コンプトン抑制スペクトロメトリーによる下限値として9.0 μ g(B)、12.3 μ g(Cd)、2.9 μ g(Gd)が得られ、この測定法によってシングル・スペクトロメトリーより約30%の下限値の低下をみることができた。

今後の問題点としては、低エネルギー領域におけるバックグラウンドの低減化による定量下限値の低下、試料装荷機構の整備、中性子・ γ 線シャッターおよび中性子ビーム照射装置の上面遮蔽体の強化による安全性の一層の向上、ならびに上面遮蔽体の脱着機構の改良による多種供試体の簡便な装荷を可能にすることによる実験装置の多目的利用化などを挙げることができる。

謝 辞

本実験を遂行するに際し、原研・研究炉管理部JRR-3管理課の桜井裕博士ならびに白井英次氏から有益な助言と御協力を載しましたので、深く感謝致します。さらに、JRR-3運転班ならびに放射線管理課の諸兄の御協力に対し、深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Dickens J. K., Morgan G. L., Chapman G. T. et al. : Nucl. Sci. Eng., 62, 515 (1977).
- 2) Drake D. M., Hopkins J. C. and Young C. S. : Nucl. Sci. Eng., 40, 294 (1970).
- 3) Chrien P. E. : " Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy " (Proc. Intern. Symposium on Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy, Studsvik, 1969), IAEA, Vienna, p 627.
- 4) Kane W. R. et al. : " Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy " (Proc. Intern. Symposium on Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy, Studsvik, 1969), IAEA, Vienna, p 105.
- 5) Journey E. T., Motz H. T. and Vegors S. H., Jr. : Nucl. Phys., A, 94, 351 (1967).
- 6) Henkelmann R. and Born H. -J. : J. Radioanalytical Chem., 16, 473 (1973).
- 7) Auble R. L., Beery D. B., Berzin G. et al. : Nucl. Instr. and Meth., 51, 61 (1967).
- 8) 東條隆夫・近藤 真 : JAERI-M 6555 (1976).
- 9) Beetz R., Posthumus W. L. et al. : Nucl. Instr. and Meth., 145, 353 (1977).
- 10) Heske M. : EUR 4831 e (1972).
- 11) Suominen P. and Kantele J. : Nucl. Instr. and Meth., 58, 229 (1968).
- 12) 東條隆夫・近藤 真 : JAERI-M 7919 (1978).
- 13) Thomas G. E., Batchley D. E. and Bollinger L. M. : Nucl. Instr. and Meth., 56, 325 (1967).
- 14) Loper G. D. and Thomas G. E. : Nucl. Instr. and Meth., 105, 453 (1972).
- 15) Bartholomew G. A., Doveika A., Eastwood K. M. et al. : Nucl. Data, A3, 367-650 (1967).
- 16) Groshev L. V., Demidov A. M., Pelekhov V. I. et al. : Nucl. Data Tables, A5, 1-242 (1968).
- 17) Groshev L. V., Demidov A. M., Pelekhov V. I. et al. : Nucl. Data Tables, A5, 243-431 (1969).
- 18) Walford G. V. and Gilboy W. B. : ERDA-conf-720805-P1 (1972).
- 19) Cooper J. A. : Nucl. Instr. and Meth., 82, 273 (1970).

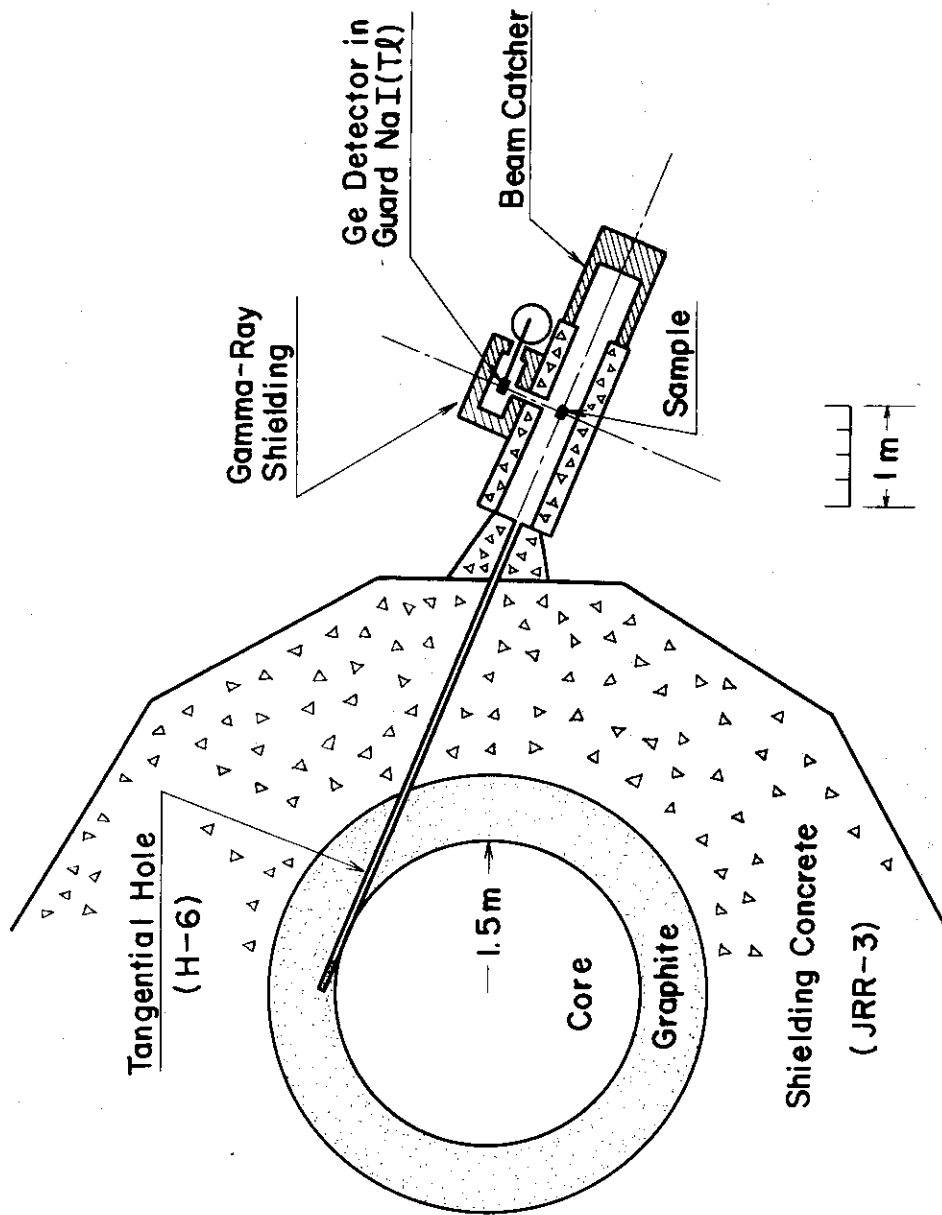


Fig.1 Arrangement of reactor, neutron beam irradiation apparatus and detector system

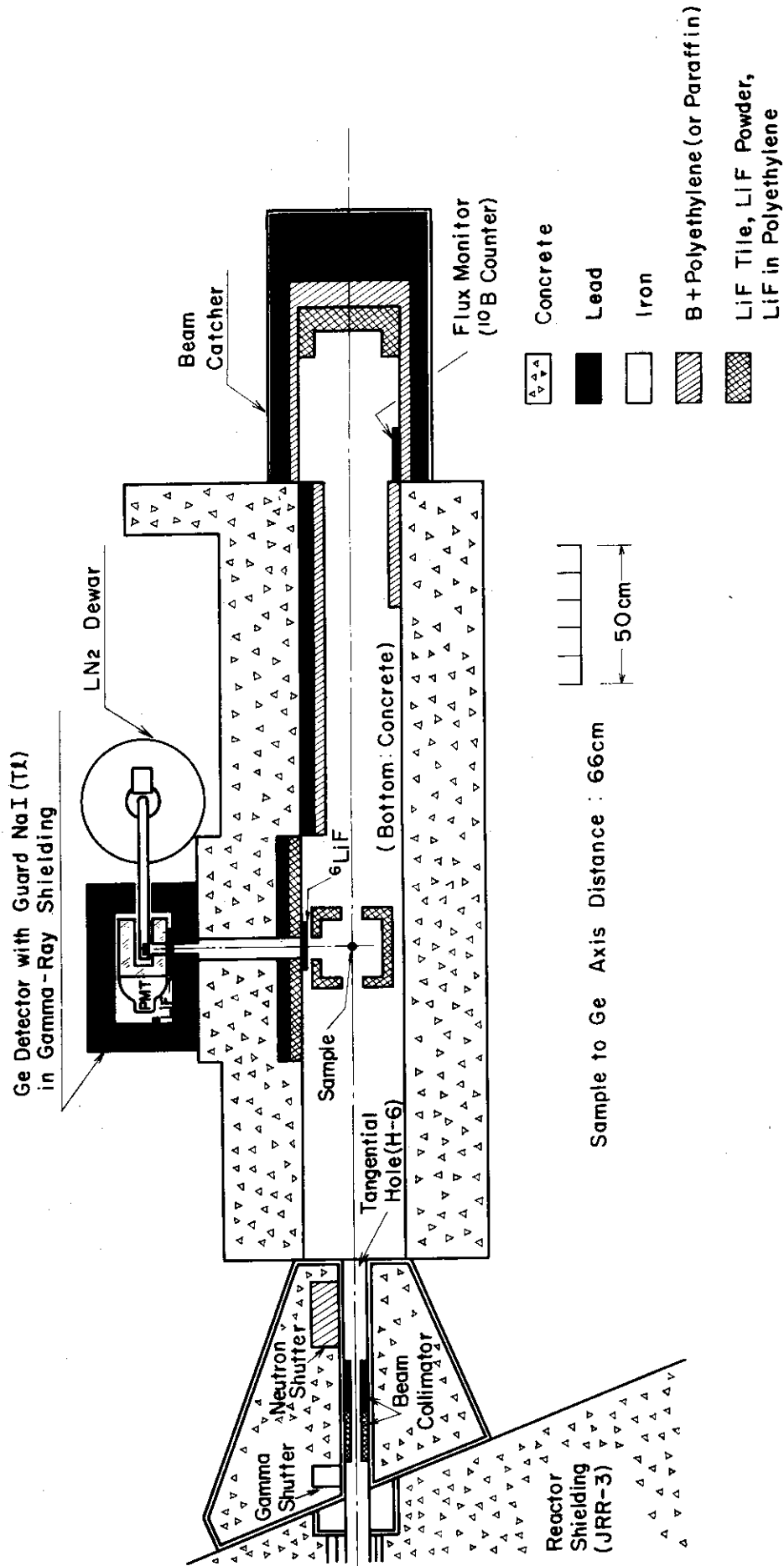
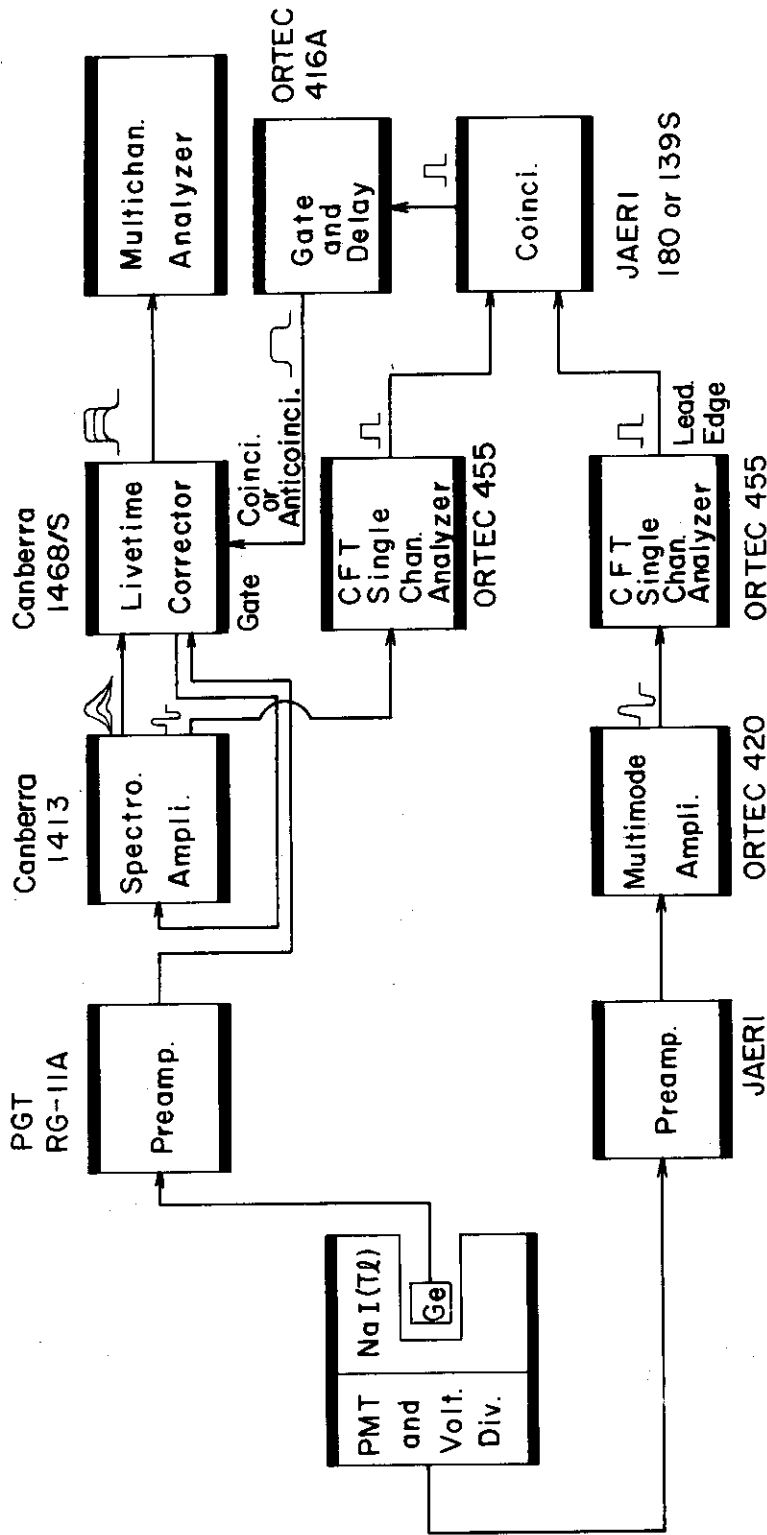


Fig.2 Arrangement of neutron beam irradiation apparatus and detector system



Ge : PGT, IGC-13, No.511

NaI(Tl) : Harshaw,
28 MBW/5B-X

H.V. Power Supply : John Fluke 415 B

Bias Power Supply : Power Design Pacific
AEC-5000 B

Multichan. Analyzer :

ND 2200 with Digital Printer

or
ORTEC 6240 with Paper Tape Puncher

Fig.3 Blockdiagram of the electronics of Ge spectrometer with guard NaI(Tl)

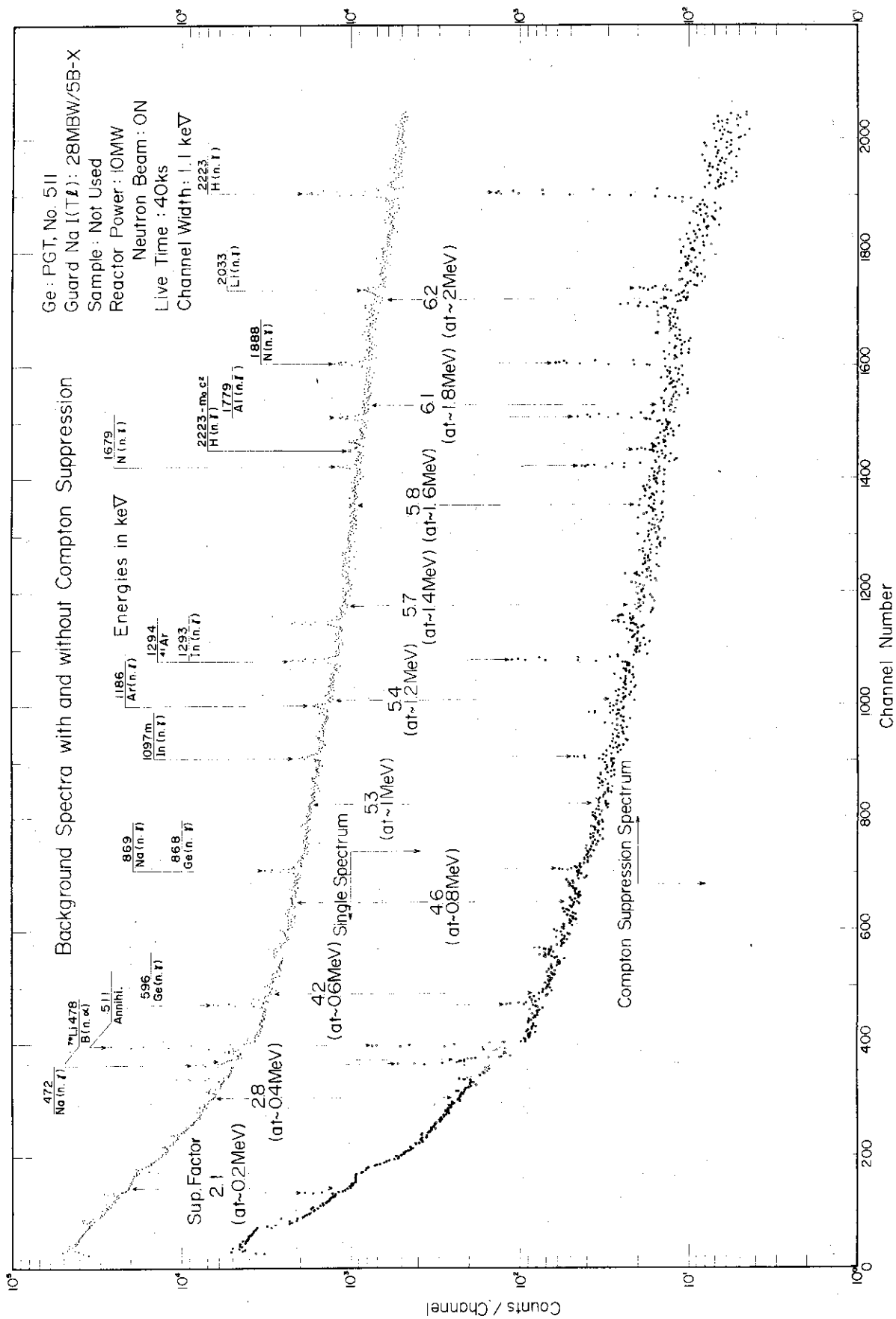


Fig.4 Background spectra with and without compton suppression

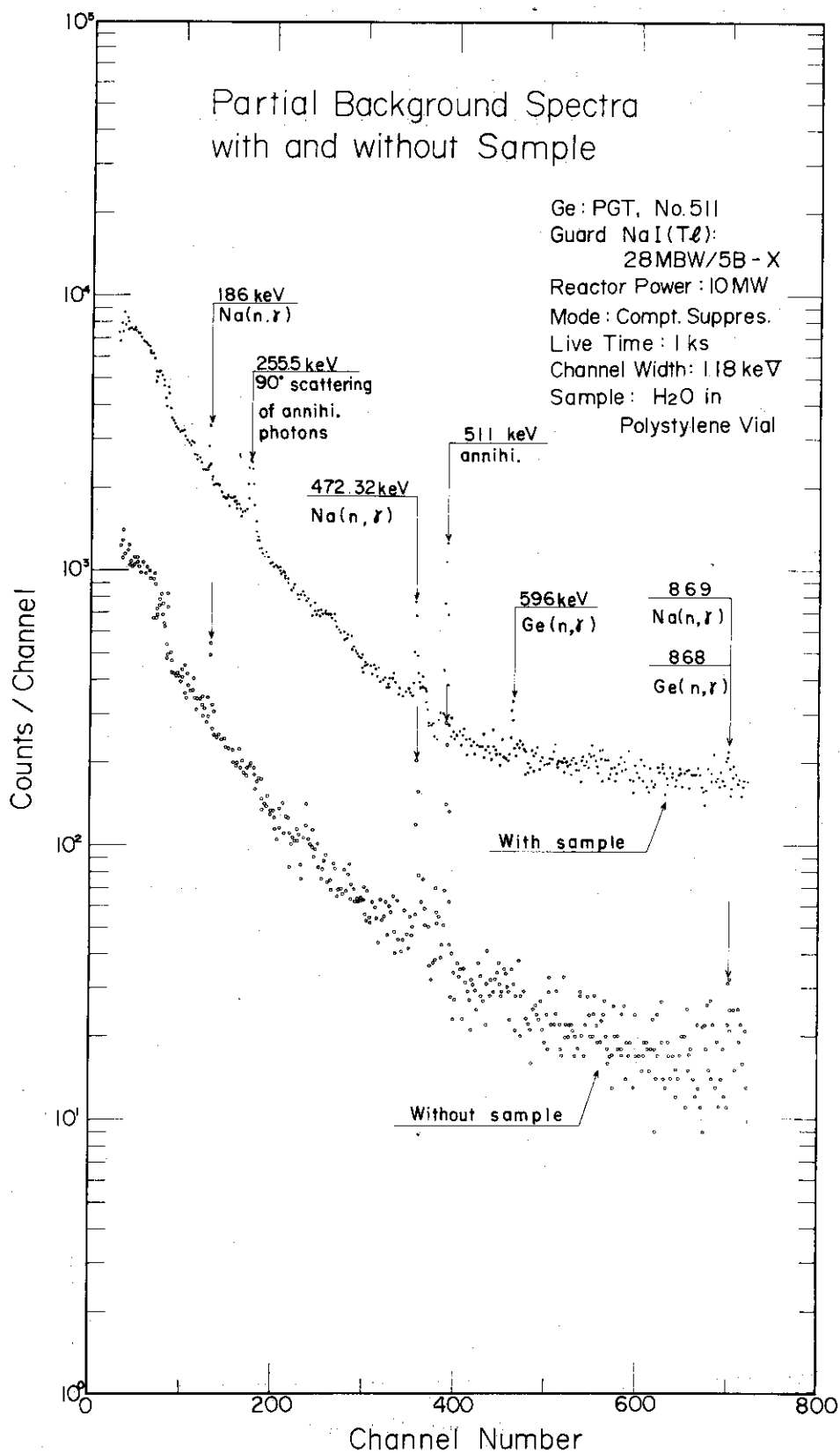


Fig.5 Partial compton suppressed background spectra with and without sample

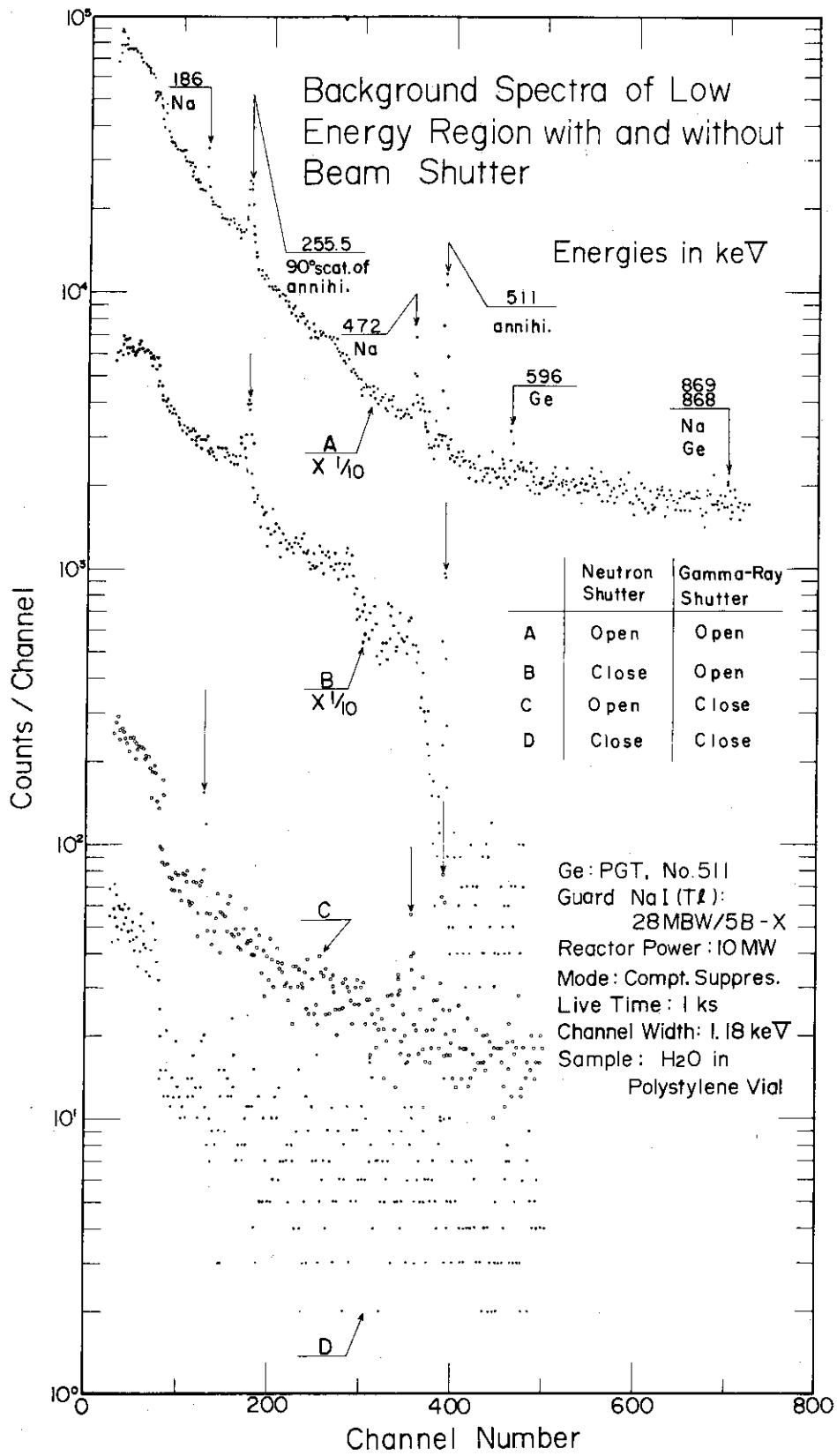


Fig.6 Background spectra of low energy region with and without beam shutter

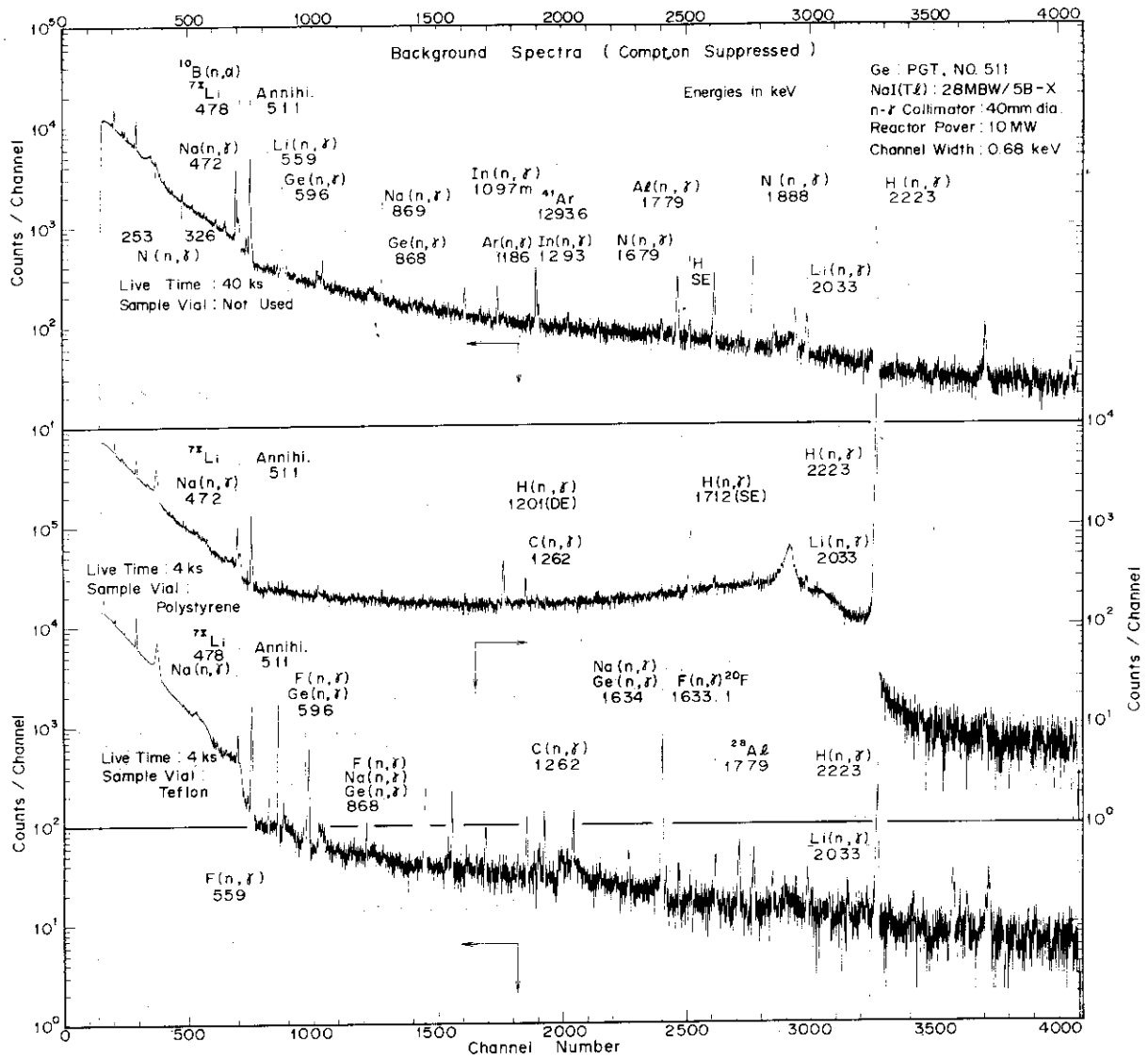


Fig.7 Compton suppressed background spectra without sample vial, with polystyrene sample vial and with teflon sample vial (low energy region)

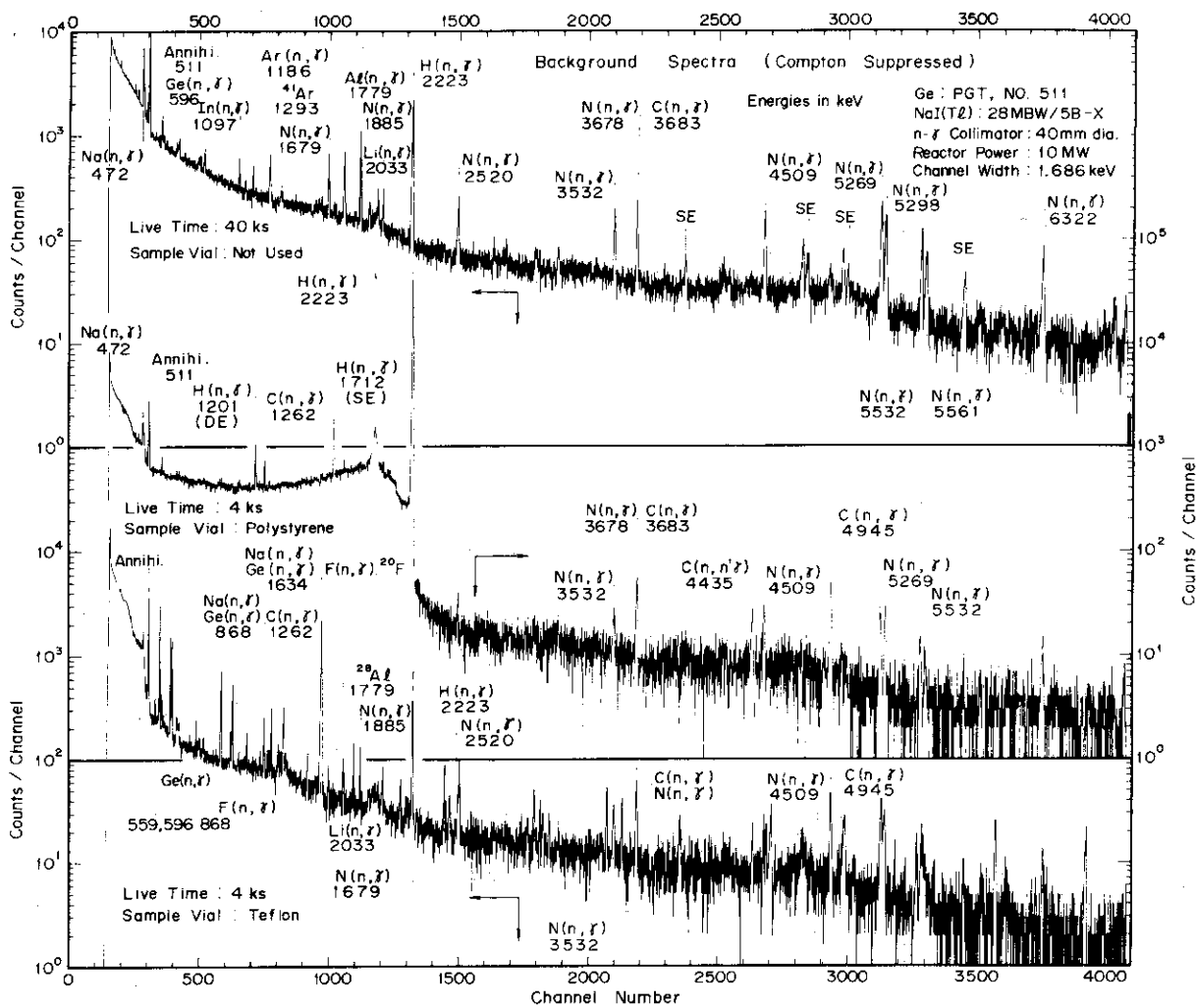


Fig.8 Compton suppressed background spectra without sample vial, with polystyrene sample vial and teflon sample vial(energy range : up to approx. 6.5 MeV)

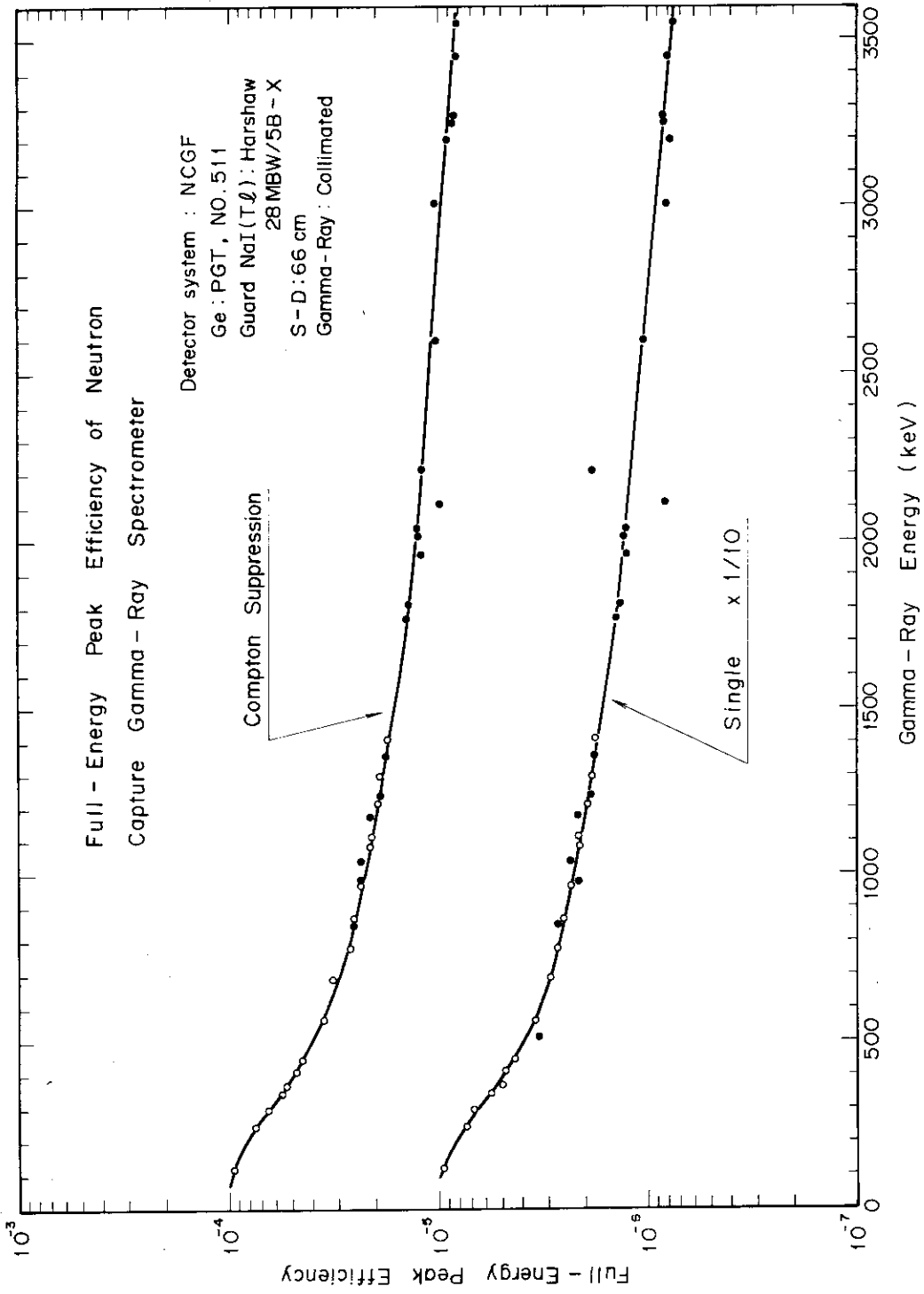


Fig.9 Absolute full-energy peak efficiency of the single Ge spectrometer
(energy range : up to approx. 3.5 MeV)

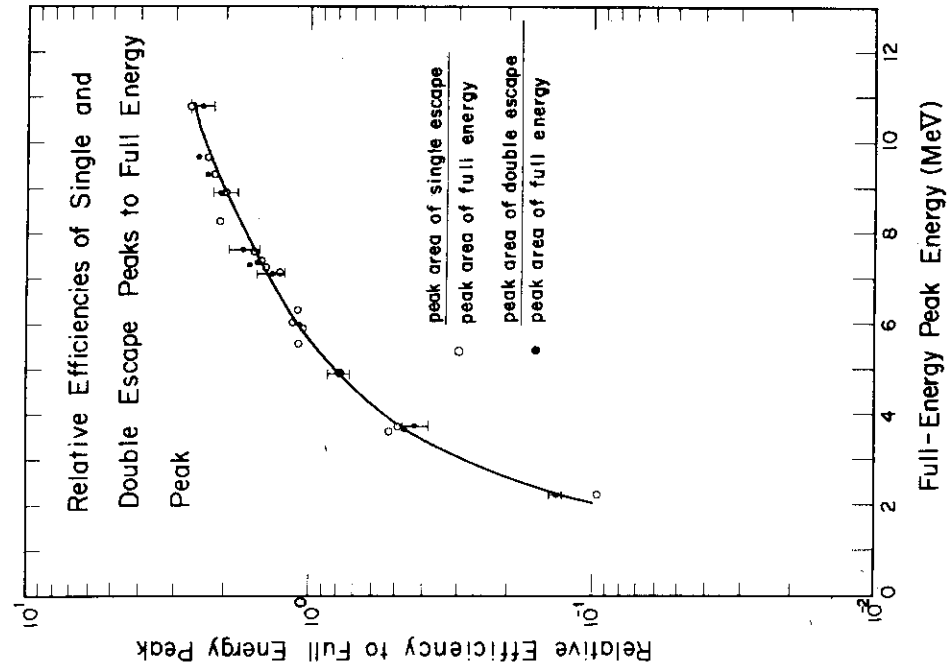


Fig.11 Relative efficiencies of single and double escape peaks to full energy peak

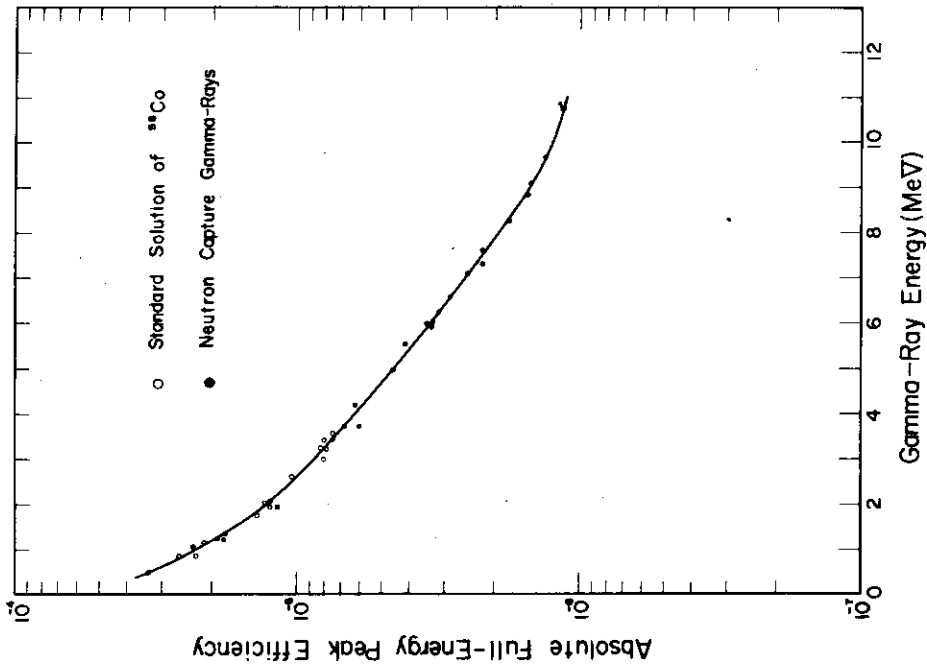


Fig. 10 Absolute full-energy peak efficiency of the single Ge spectrometer (energy range : up to approx. 11 MeV)

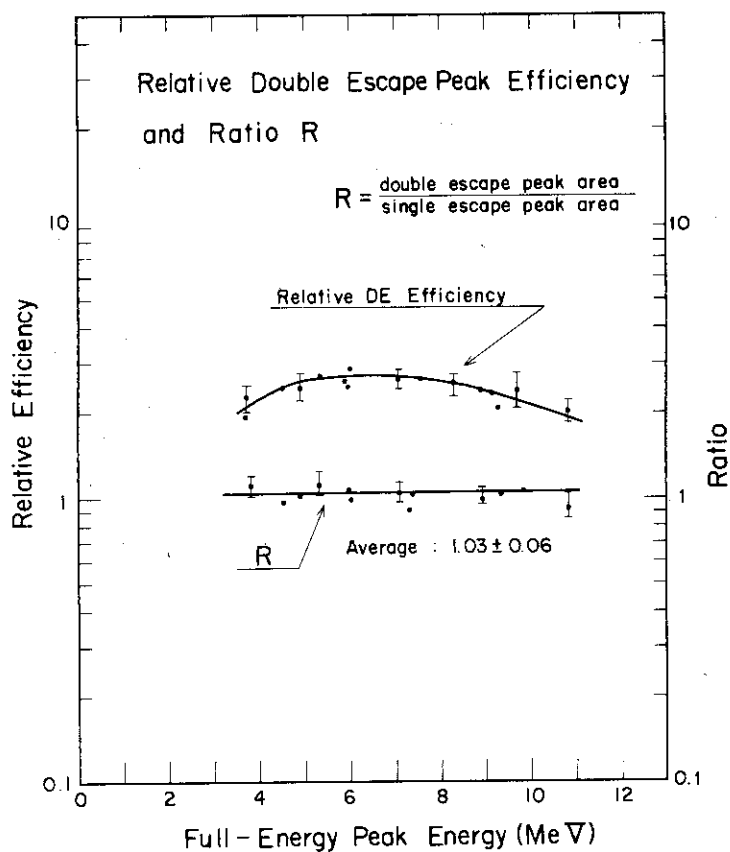


Fig.12 Relative double escape peak efficiency and Ratio R obtained from single spectra

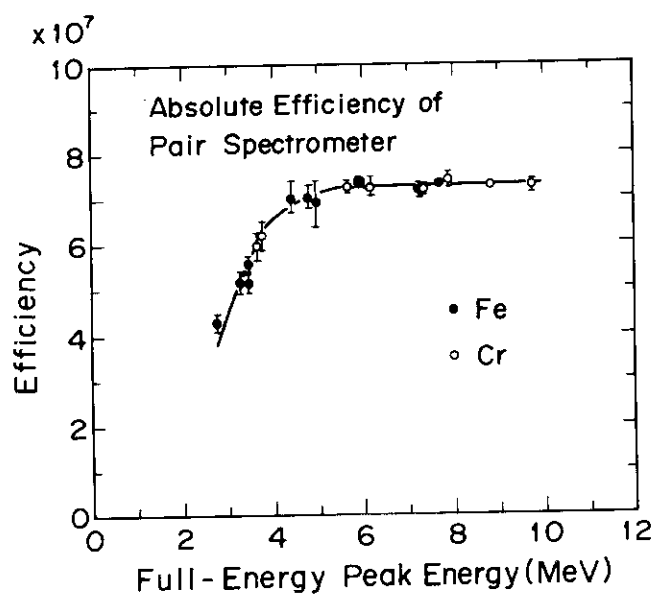


Fig.13 Absolute efficiency of the pair spectrometer obtained by measurements of capture gamma-rays from Fe and Cr

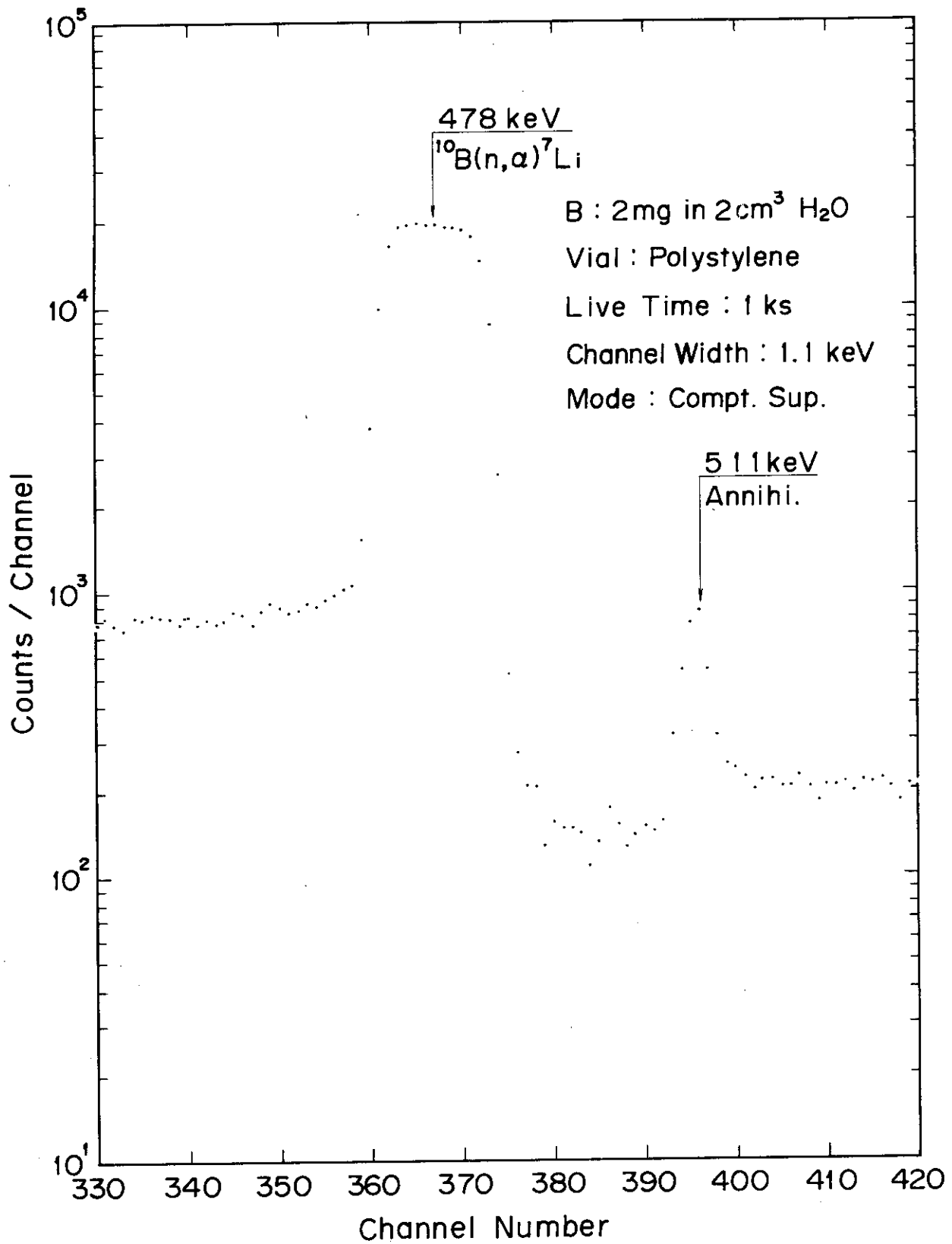


Fig.14 Pulse height distribution of 478 keV gamma-ray peak resulted from neutron absorption by boron

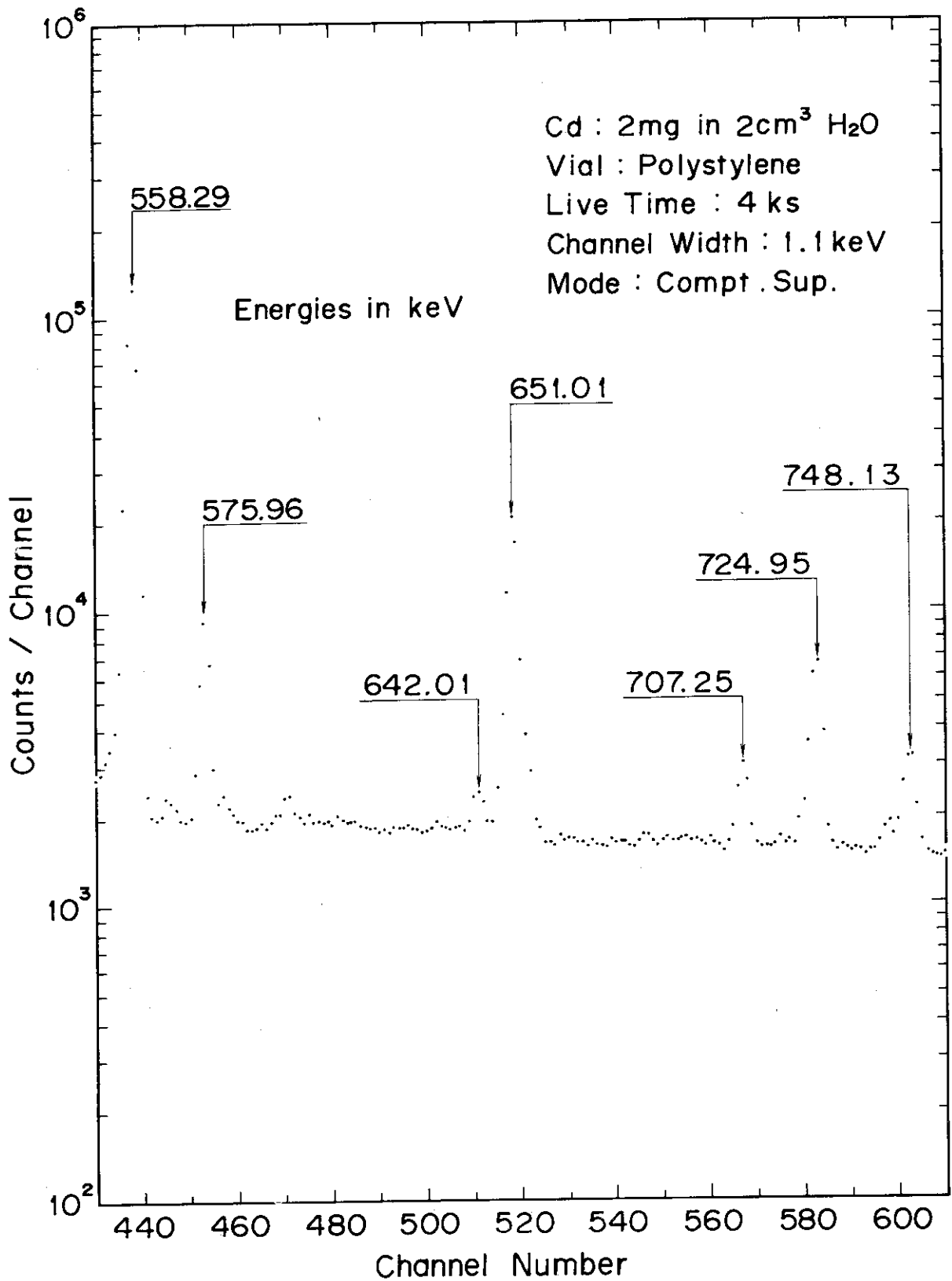


Fig.15 Pulse height distribution of neutron capture gamma-rays resulted from neutron absorption by cadmium

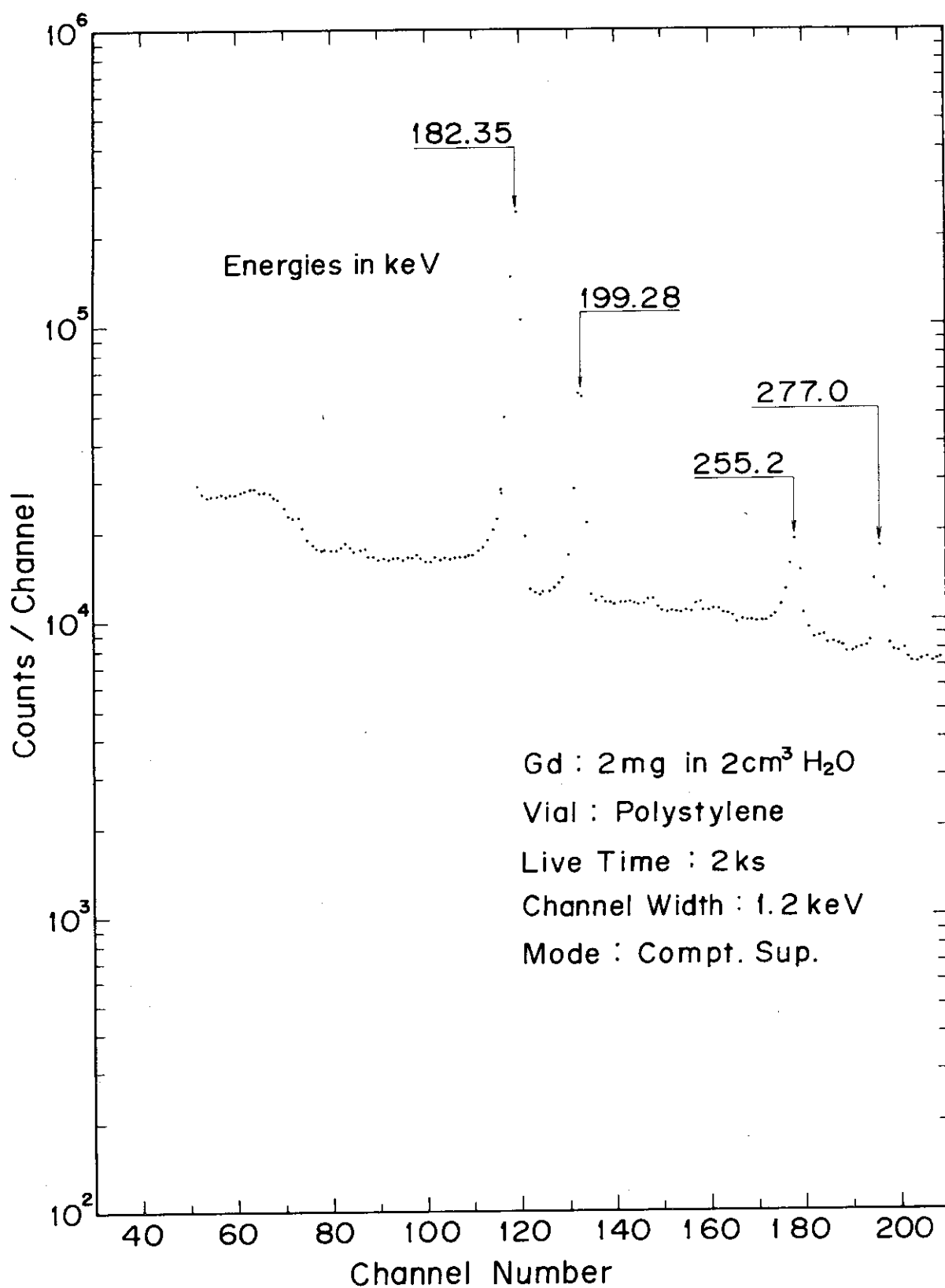


Fig.16 Pulse height distribution of neutron capture gamma-rays resulted from neutron absorption by gadolinium

Table 1 定量下限値の検討に用いた各因子の測定値

元素	測定法	注目したピークのエネルギー(keV)	ϵ^* (cps/ μ g)	R(E) FWHM(keV)	n_B (cps/keV)
ホウ素	コンプトン抑制型 スペクトロメーター	478	0.107	1.5	0.307 ^{**} 0.242 ^{***}
	シングル・スペク トロメーター				0.571 ^{**} 0.485 ^{***}
カドミウム	コンプトン抑制型	558	0.031	1.6	0.167
	シングル				0.368
ガドリニウム	コンプトン抑制型	182	0.299	1.2	1.42
	シングル				3.14

- * 測定法の相異による明確な有意の差が認め難いので、両測定法による結果の平均値を用いた。
- ** 実験装置に起因する478keV r 線のバックグラウンドを含む。
- *** ホウ素に起因するバックグラウンドを内挿法によって除去したものの。

Table 2 ホウ素、カドミウムおよびガドリニウムの定量下限値
(変動係数: 10%, 計測時間: 1000秒, 試料: 2 cm³水溶液)

	測定法	定量下限値 (μ g)
ホウ素	コンプトン抑制型スペクトロ メーター	9.0 [*] 8.0 ^{**}
	シングル・スペクトロ メーター	12.1 [*] 11.2 ^{**}
カドミウム	コンプトン抑制型	12.3
	シングル	17.4
ガドリニウム	コンプトン抑制型	2.9
	シングル	4.3

- * バックグラウンドに実験装置に起因する478keV r 線のバックグラウンドを含めた実際の定量下限値
- ** 478keV r 線バックグラウンドを内挿法によって除去した場合の定量下限値

Table 3 高幾何学的効率下におけるシングル・スペクトロメトリー
による定量下限値*および性能指数

元 素	ϵ (counts/ μg)	n_B (counts/s \cdot keV)	定量下限値 (μg)	性能指数 $\times 100$	
				(FOM) _{HG}	(FOM) _{CS}
ホウ素	0.25	3.67	12.8	3.6	5.3
カドミウム	0.072	2.72	19.0	2.4	4.2
ガドリニウム	0.69	13.7	3.8	12.0	16.2

* 変動係数：10%，計測時間：1000秒，試料：2 cm³水溶液

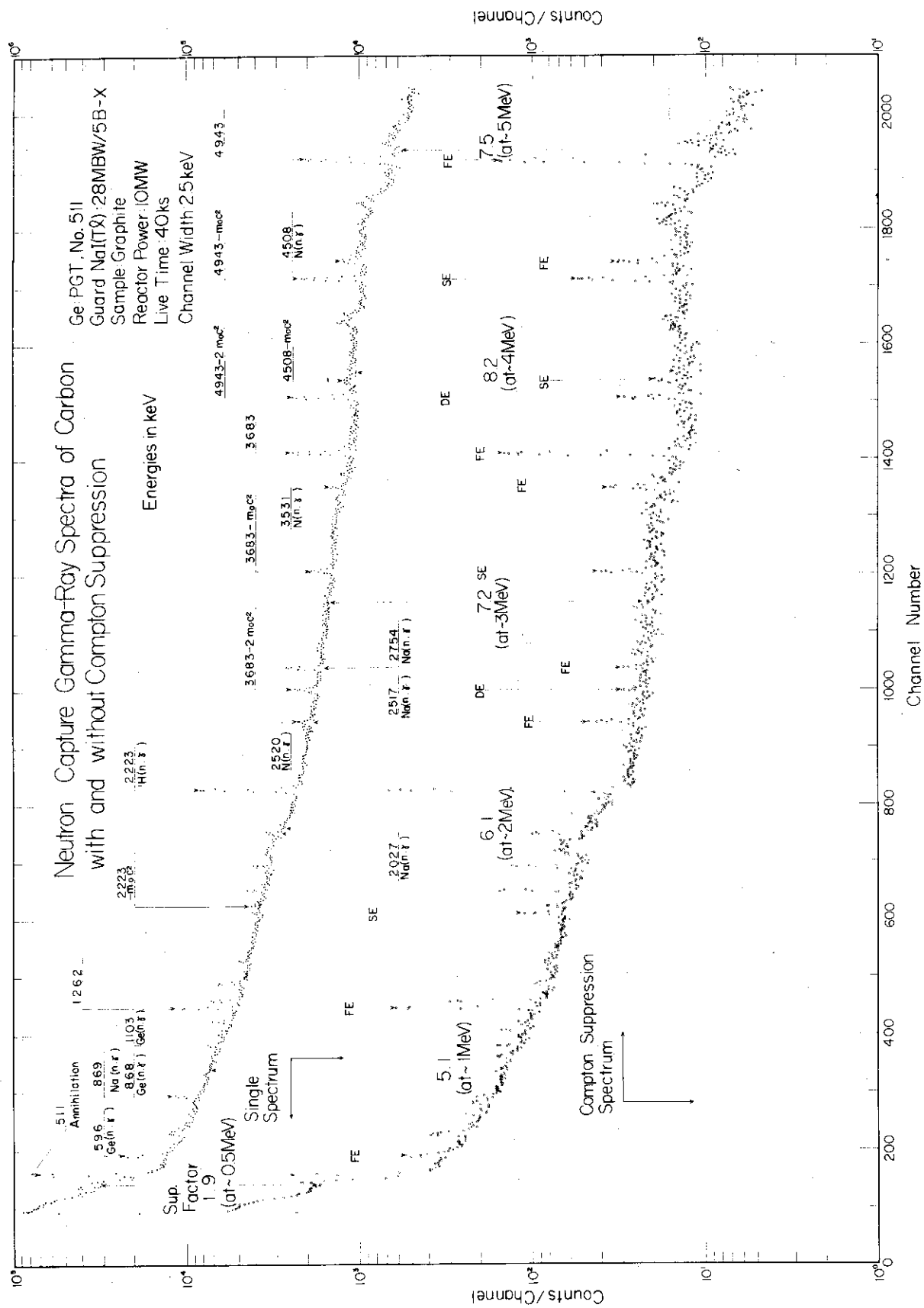


Fig. IA Neutron capture gamma-ray spectra of carbon with and without
compton suppression

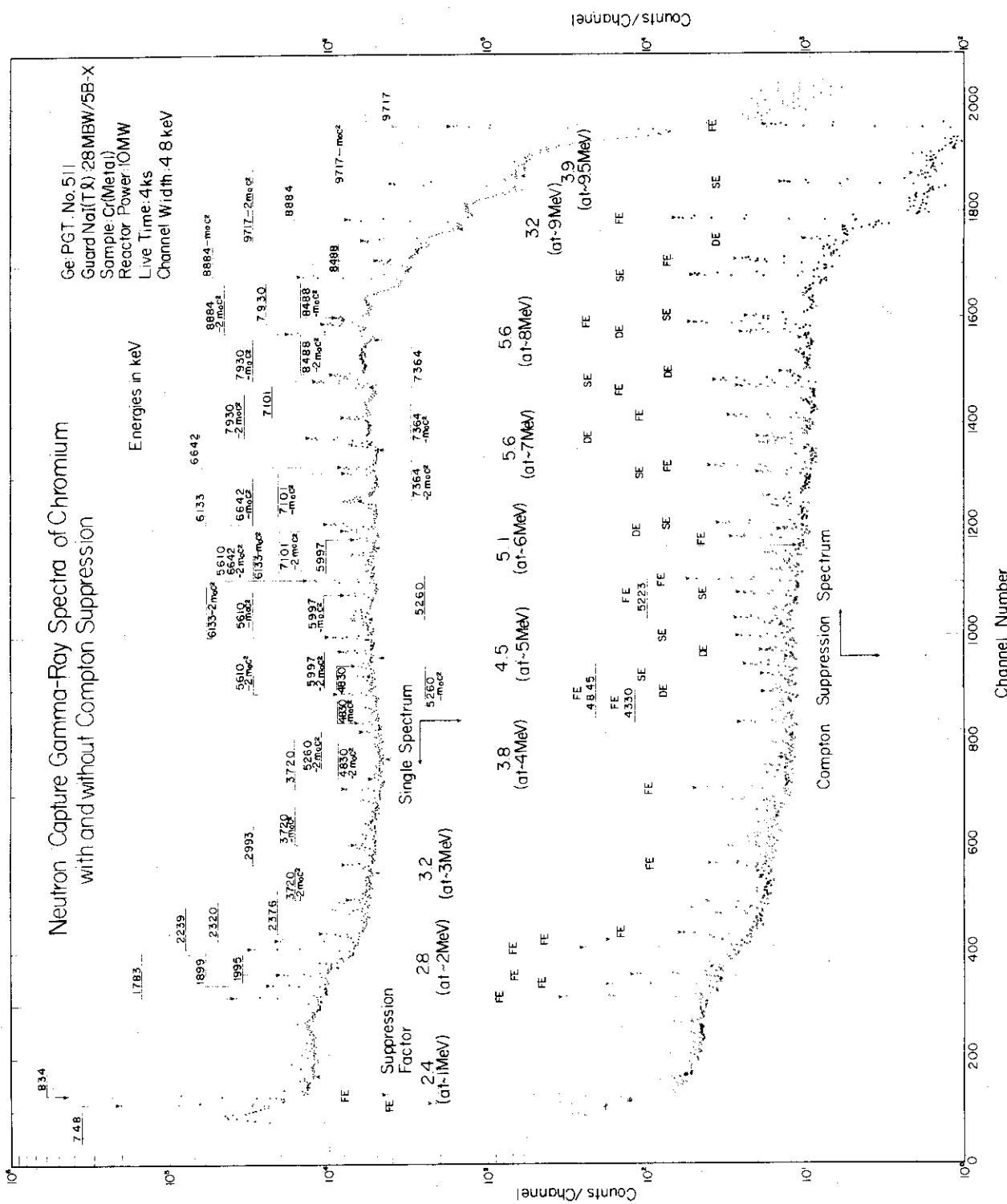


Fig. 1B Neutron capture gamma-ray spectra of chromium with and without Compton suppression

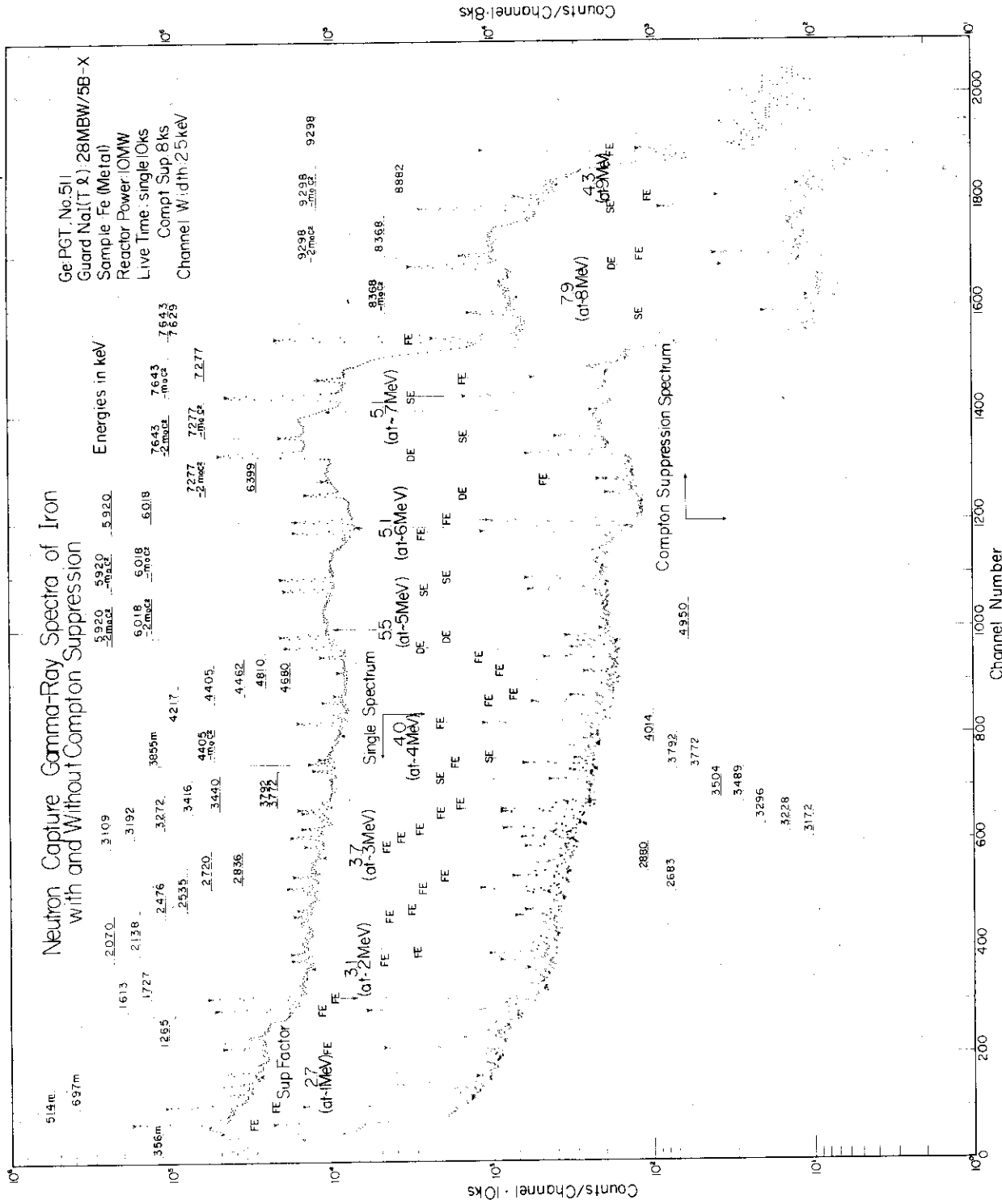


Fig. IC Neutron capture gamma-ray spectra of iron with and without
compton suppression

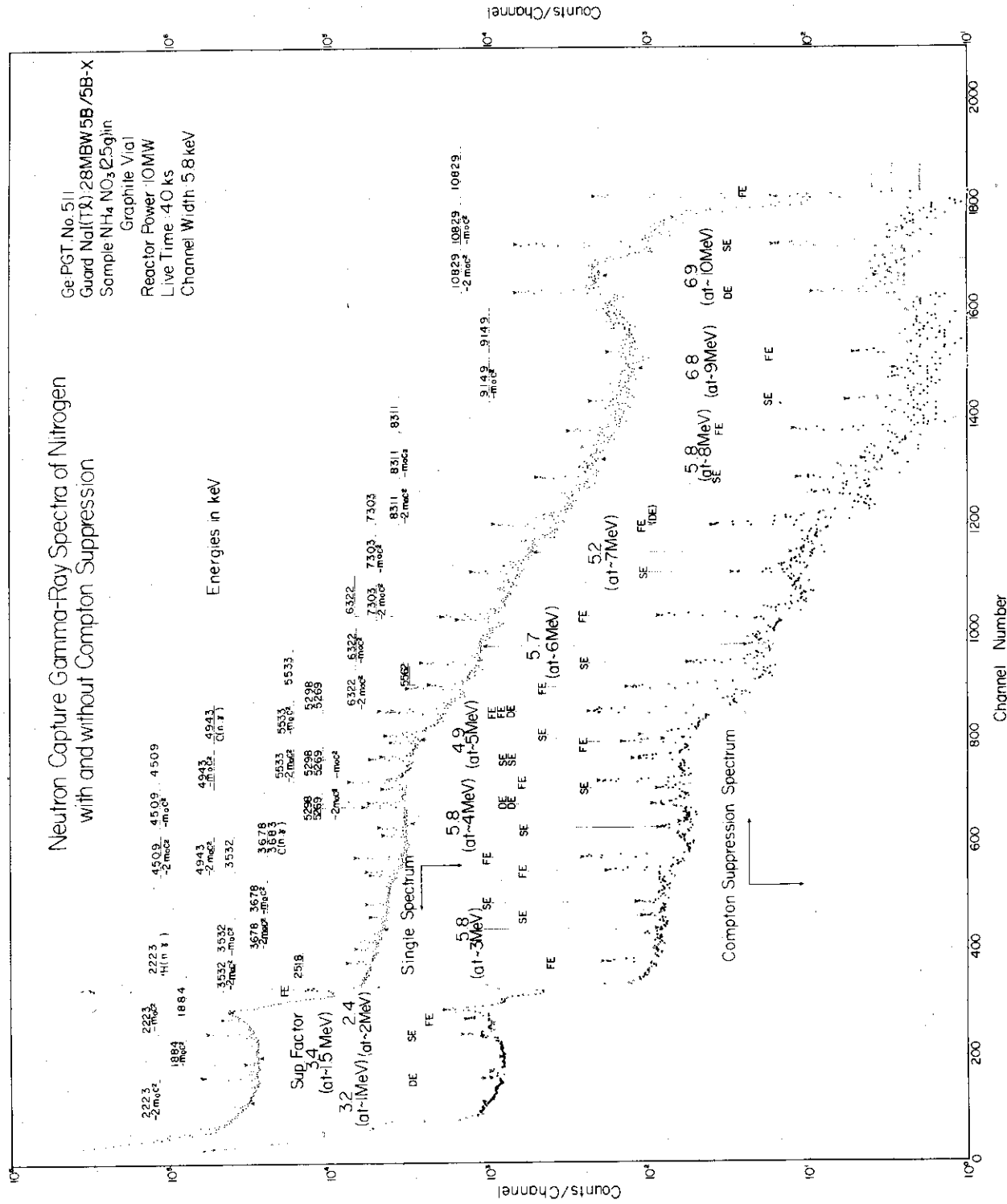


Fig. ID Neutron capture gamma-ray spectra of nitrogen with and without compton suppression

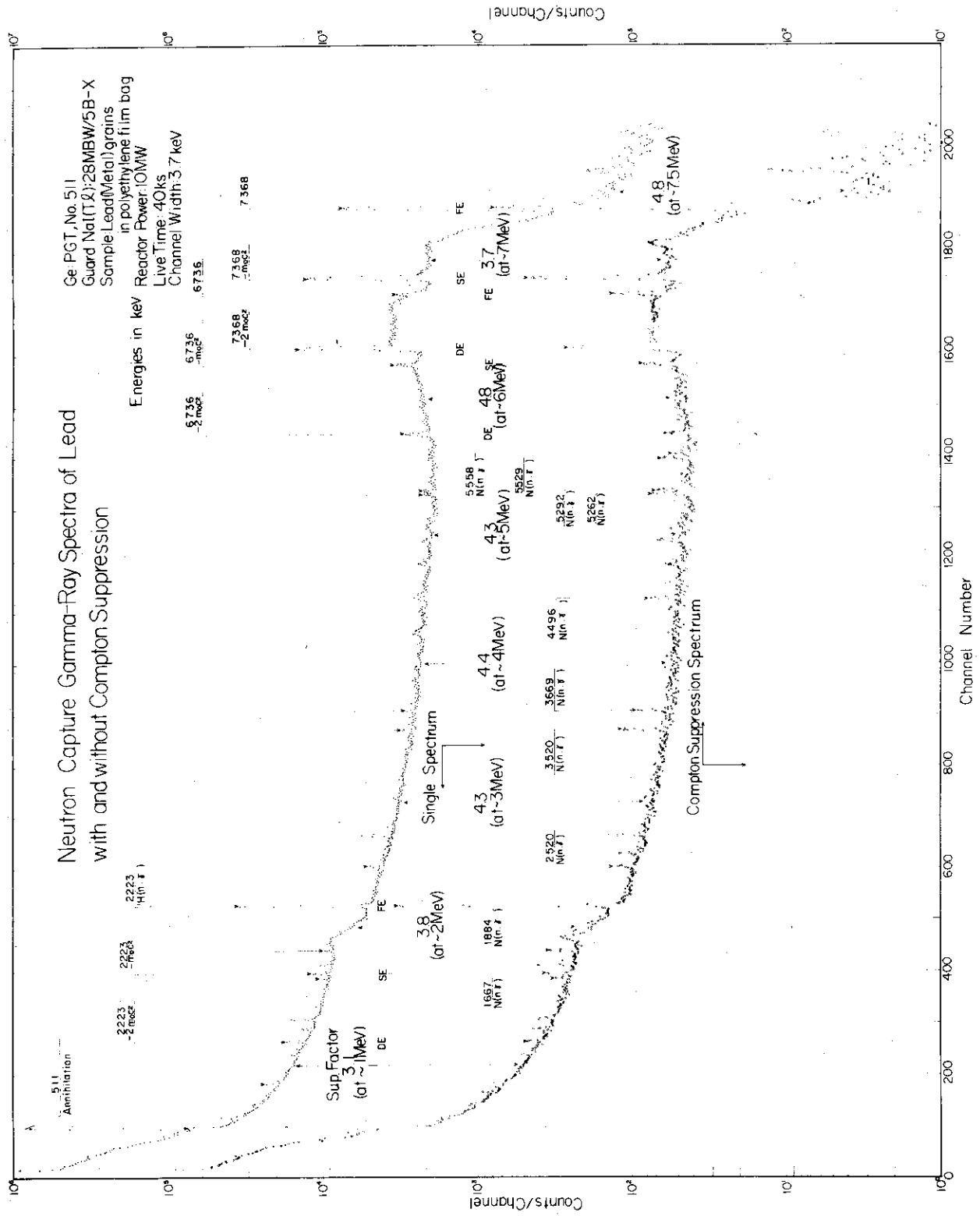


Fig. 1E Neutron capture gamma-ray spectra of lead with and without
compton suppression

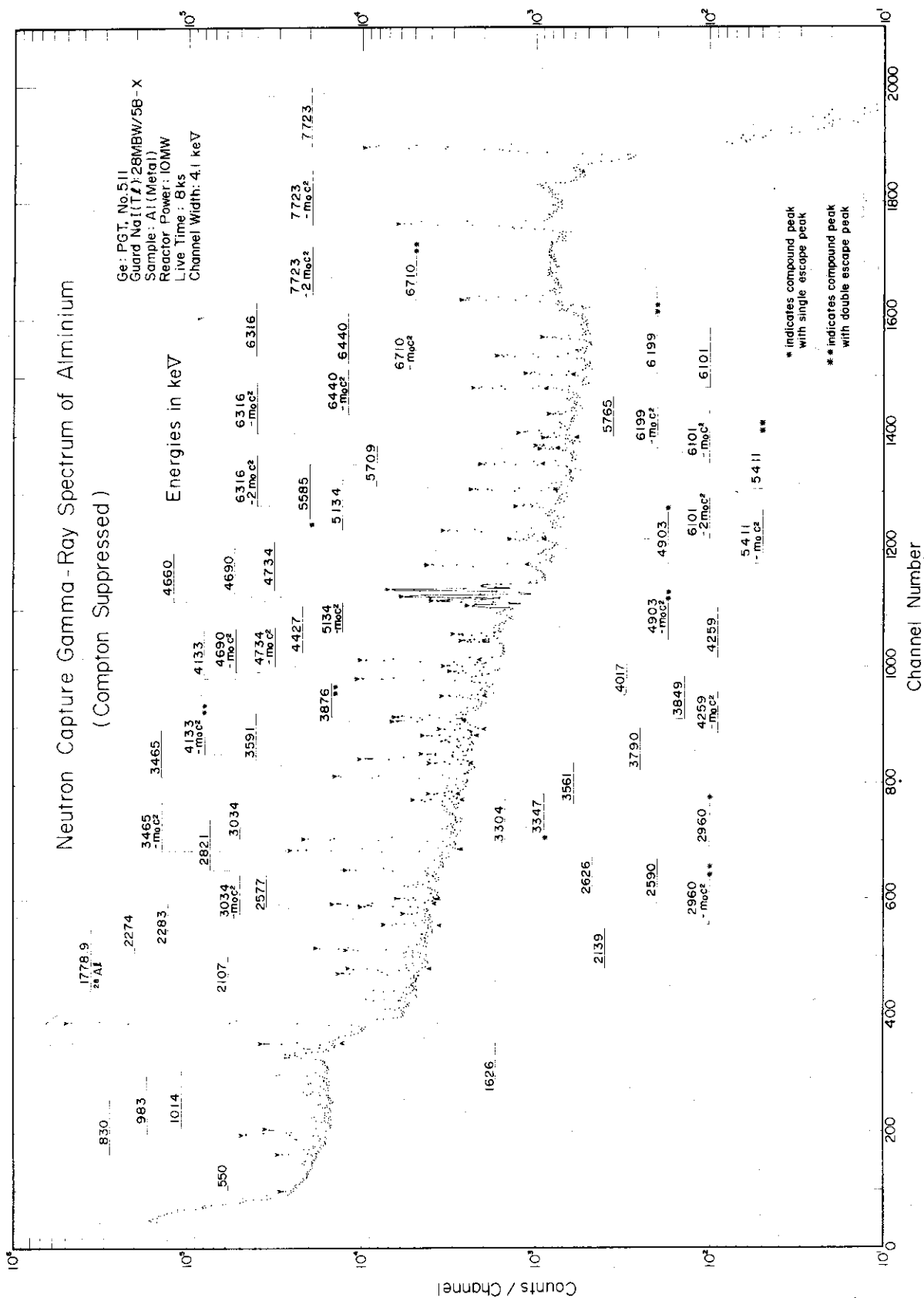


Fig. IIA Compton suppressed neutron capture gamma-ray spectrum of aluminium

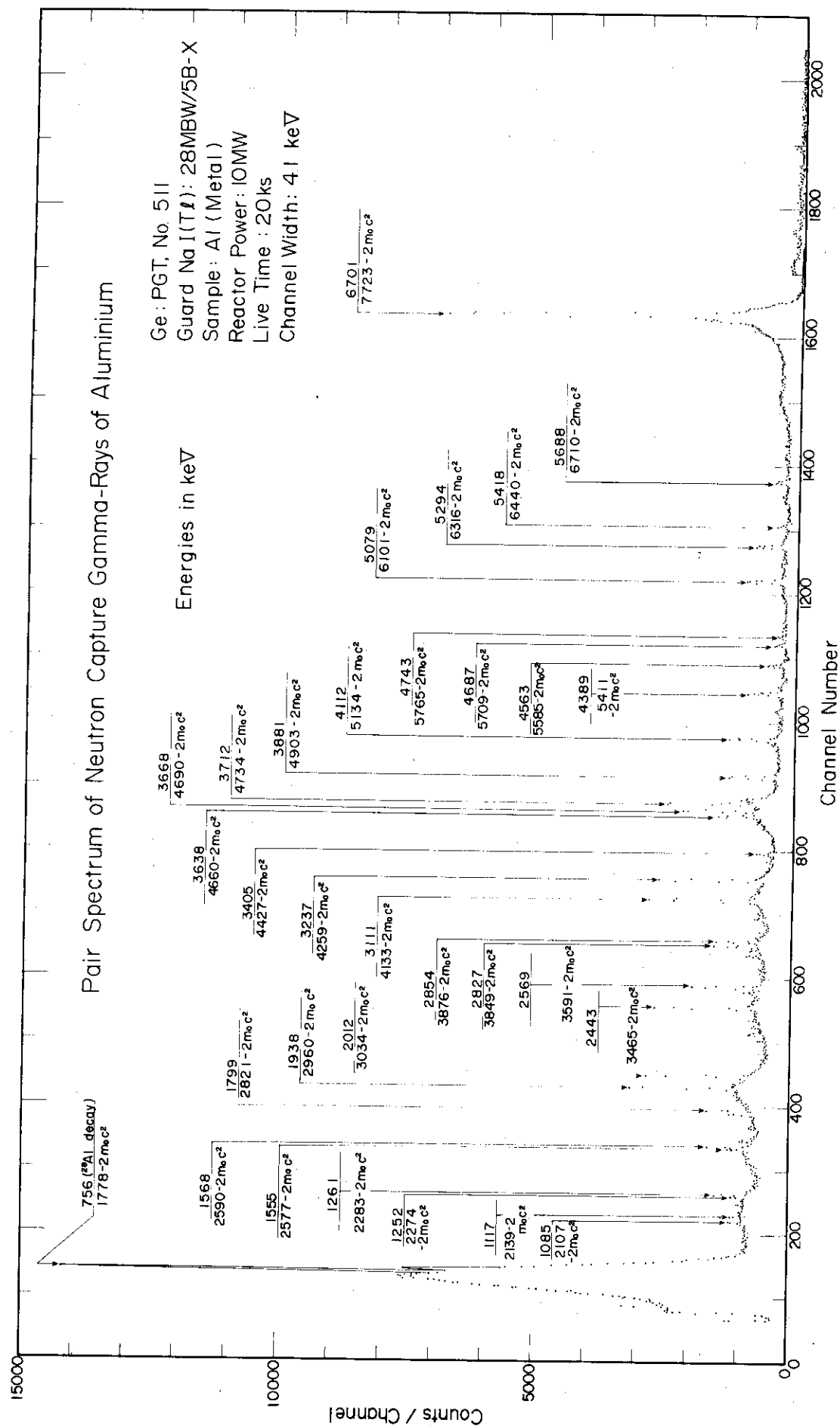


Fig.IIIA Pair spectrum of neutron capture gamma-rays of aluminium

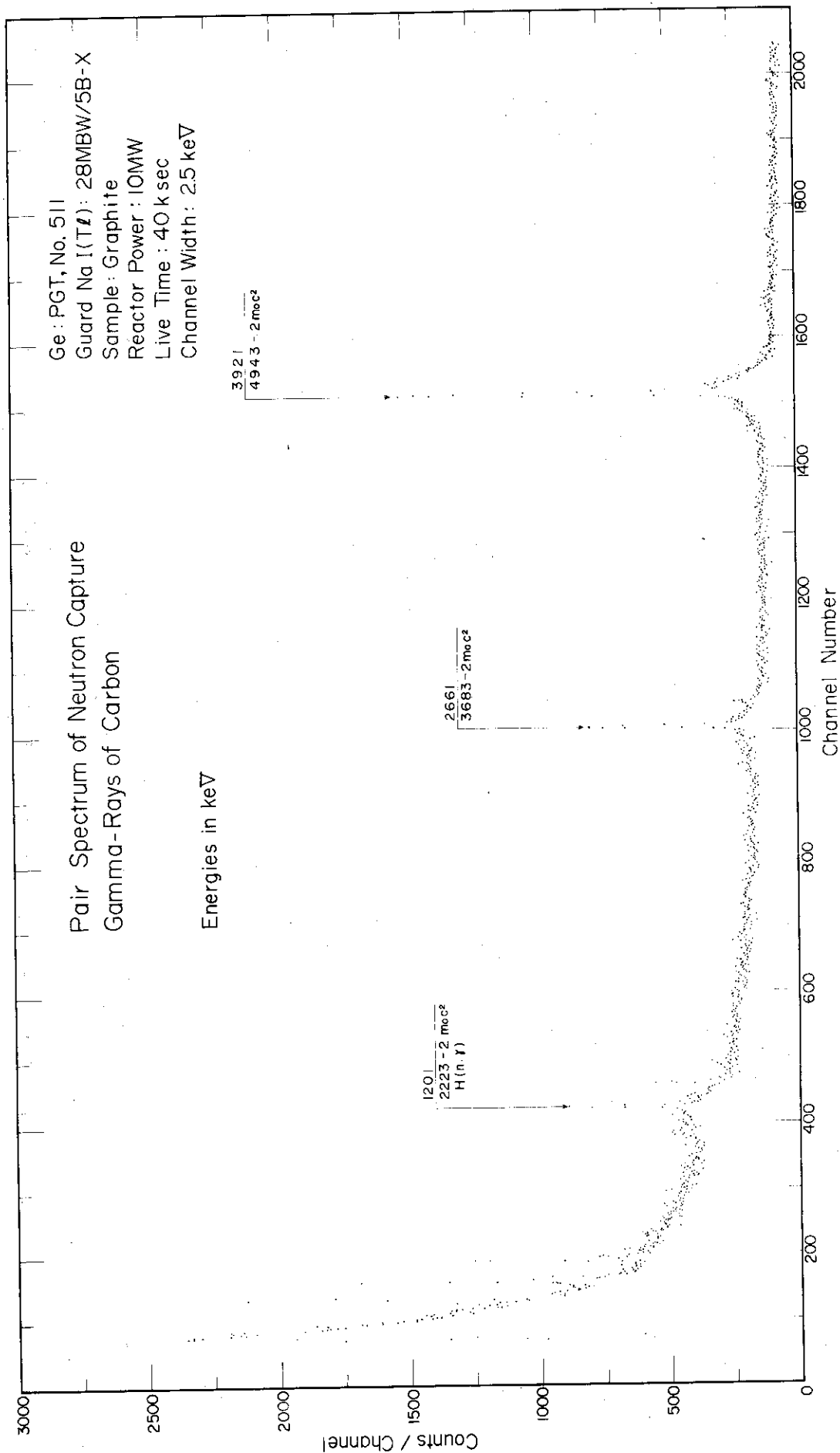


Fig.IIIB Pair spectrum of neutron capture gamma-rays of carbon

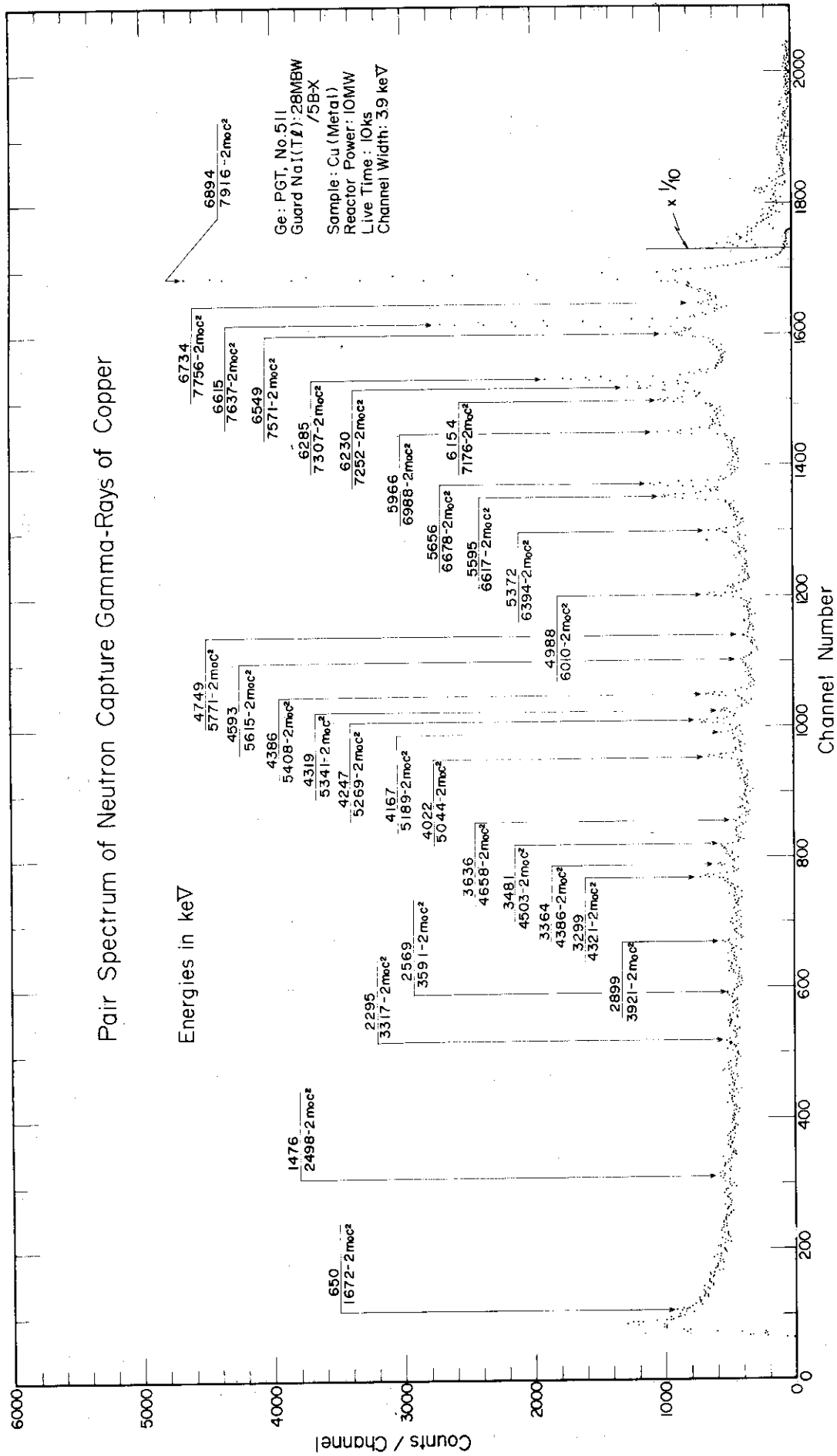


Fig.IIIC Pair spectrum of neutron capture gamma-rays of copper

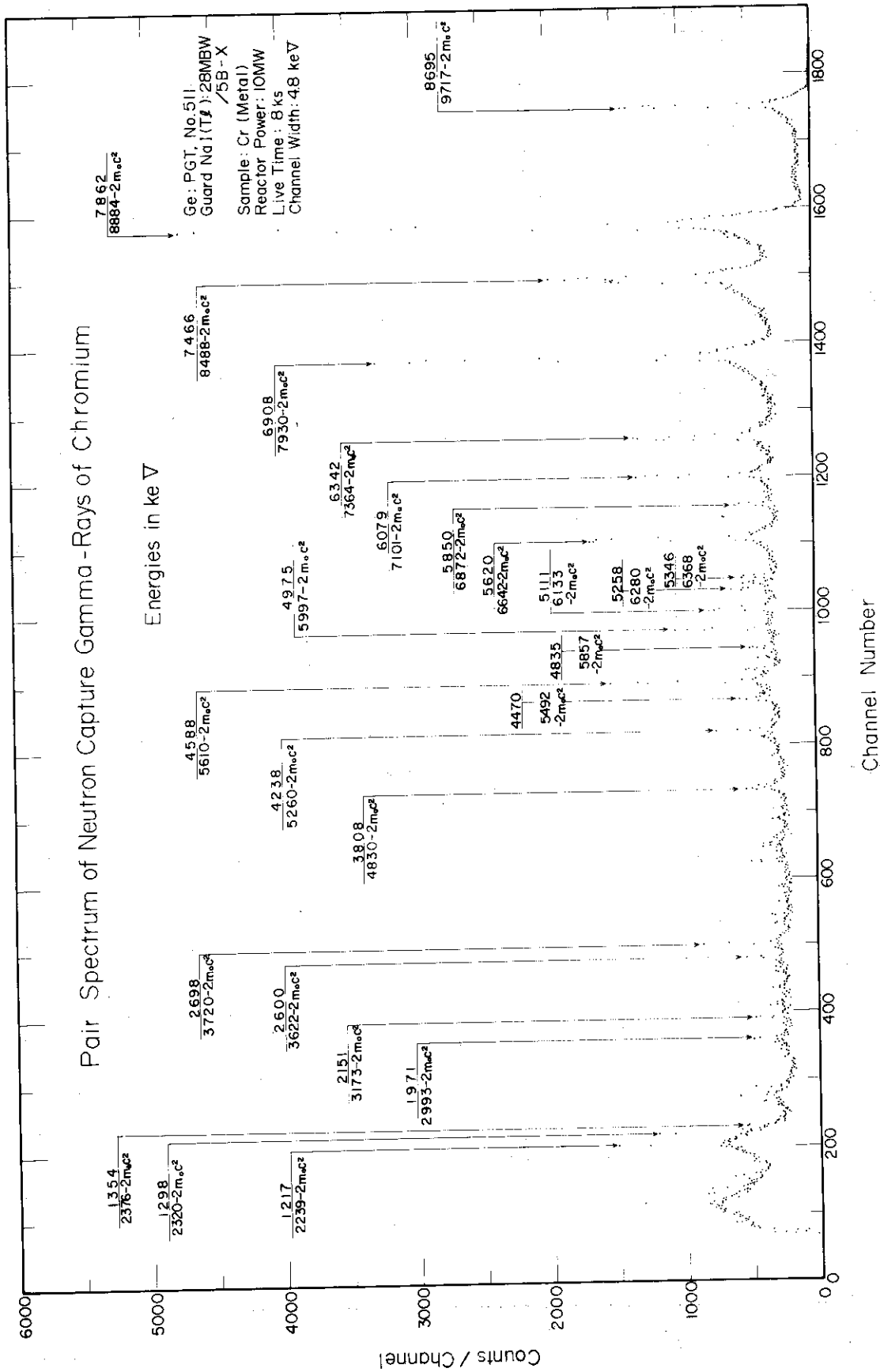


Fig. I.IID Pair spectrum of neutron capture gamma-rays of chromium

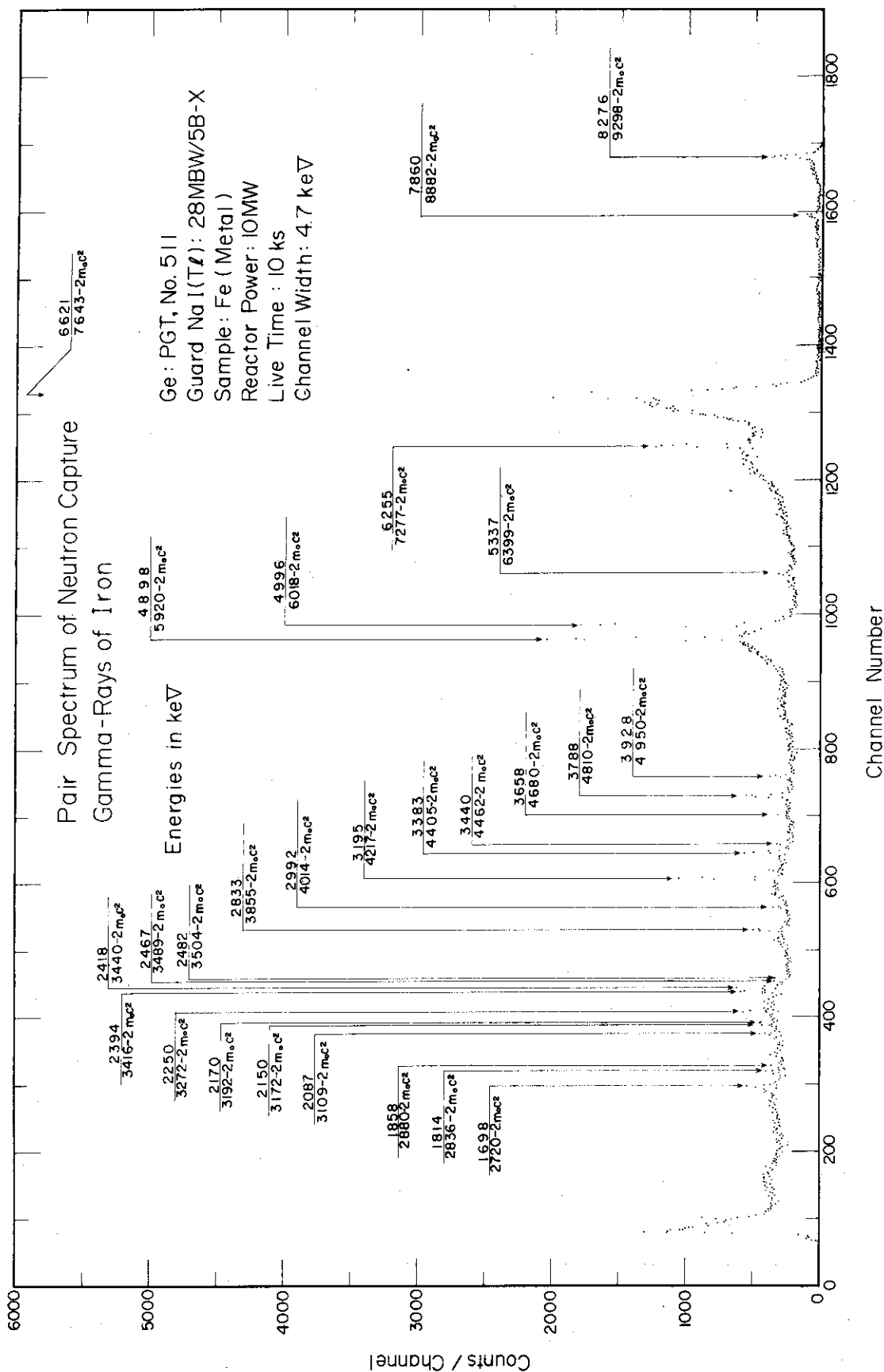


Fig.IIIE Pair spectrum of neutron capture gamma-rays of iron

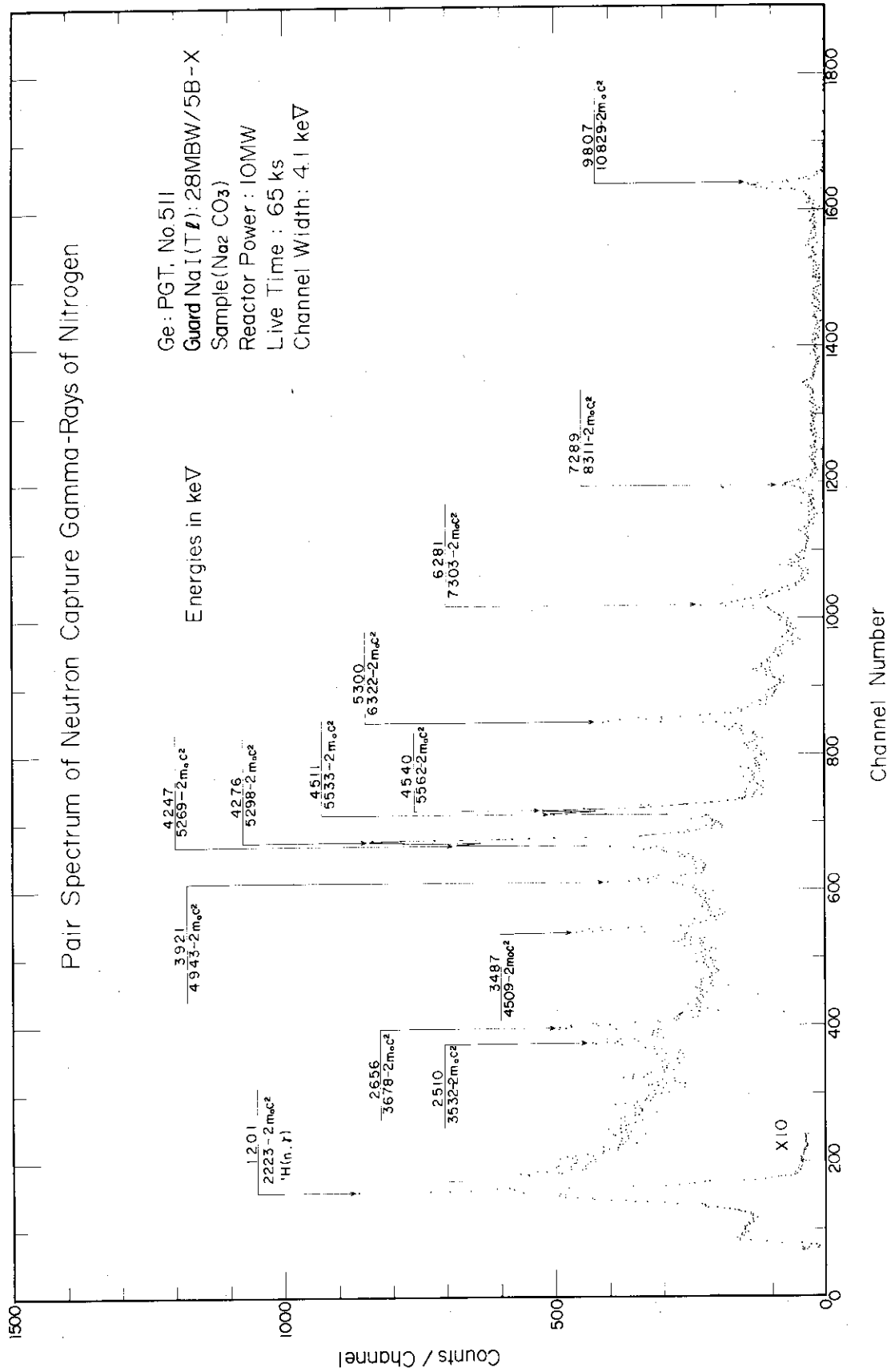


Fig.IIIF Pair spectrum of neutron capture gamma-rays of nitrogen

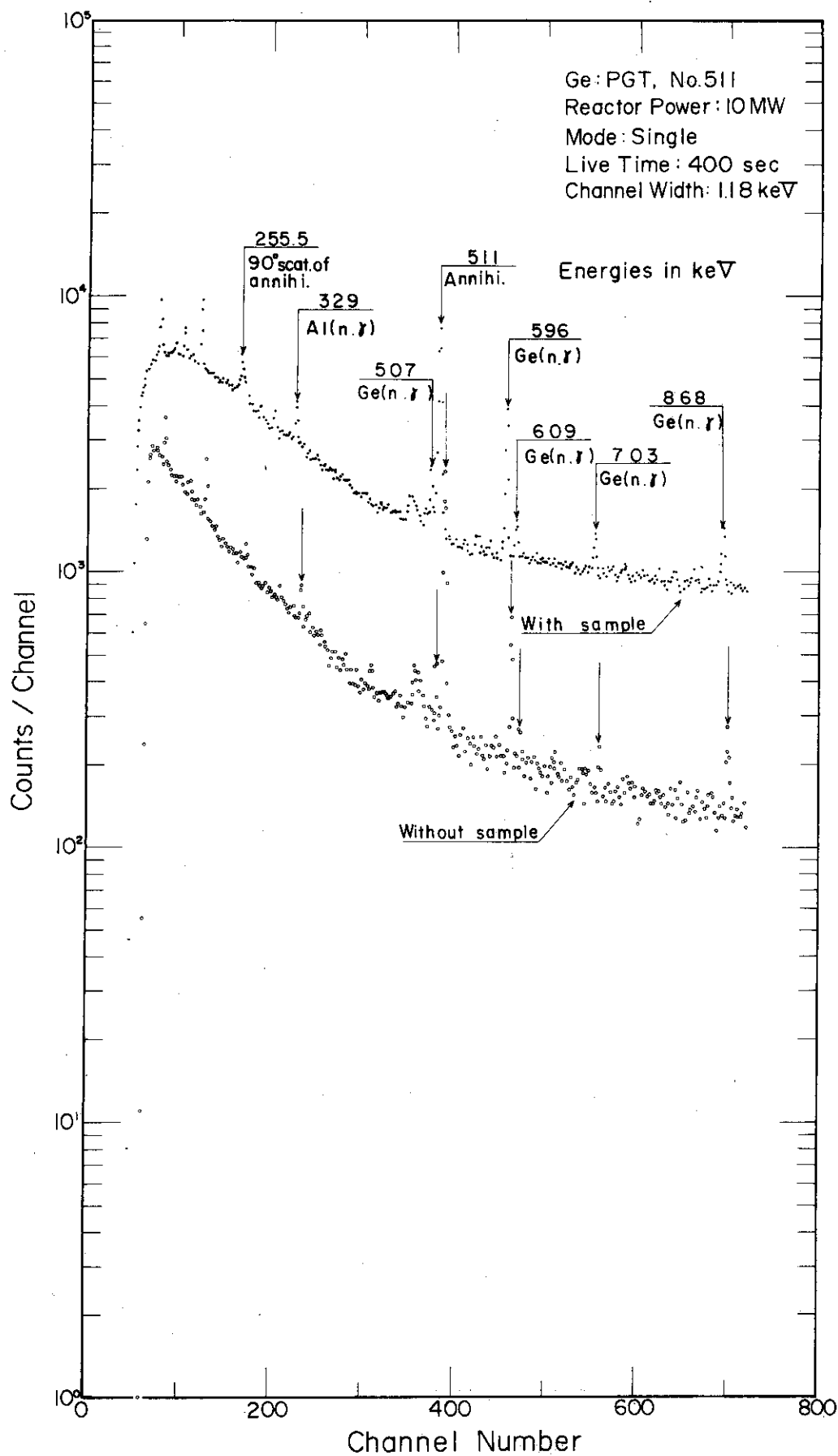


Fig.IV Background spectra of low energy region with and without sample
 (sample : 2 cm³ H₂O in polystyrene vial)