

JAERI-M

放射性同位体製造資料-1264

9552

複数の放射化検出器による
原子炉中性子モニタリング

1981年6月

松岡 弘充・関根 俊明

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、お申しこしてください。

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.

複数の放射化検出器による原子炉中性子モニタリング

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

松岡弘充・関根俊明

(1981年6月10日受理)

原子炉中性子による照射実験、RI製造のための照射において中性子束、熱外中性子インデックスを複数の放射化検出器によってモニタリングする手法を確立するために実験を行なった。日常の取扱いの便という観点から、放射化検出器として金属または合金ワイヤーを用い、化学分離することなくGe(Li)検出器によるガンマ線スペクトル測定によって生成放射能を決定する方法を検討した。

短時間(2時間)と長時間(264時間)照射実験の結果を既存の核データによって解析し、モニタリングに適切な放射化検出器を選定した。同時に、熱中性子温度のモニタリングに、 ^{181}Ta の二重中性子捕獲過程の応用の可能性を調べた。また、この過程による生成核 ^{183}Ta の半減期を決定した。

JAERI-M 9552

Reactor-Neutron Monitoring with Multiple Activation
Detectors

Hiromitsu MATSUOKA and Toshiaki SEKINE

Division of Radioisotope Production,
JAERI

(Received June 10, 1981)

A method of the reactor-neutron monitoring for irradiation experiments and radioisotope production has been studied by means of multiple activation detectors. For the convenience in routine works, wires of metal and alloy were used as the activation detectors, and the radioactivities of the products were determined by Ge(Li) γ -ray spectrometry without chemical separation.

Ten kinds of wire were irradiated for a short period (2 hr) and for a long period (264 hr) in order to assess the capability of each material. As a result several kinds of wire were recommended for the monitoring of the neutron flux and the epithermal index. The applicability of the double-neutron-capture of ^{181}Ta to the neutron-temperature monitoring was examined. In addition, the half-life of ^{183}Ta was determined experimentally.

Keywords : Activation Detector, Epithermal Index, Thermal Neutron,
 γ -ray Spectrometry

目 次

1. まえがき	1
2. 原 理	2
2.1 複数放射化検出器法による中性子モニタリング	2
2.2 二重中性子捕獲の応用	4
3. 実 験	5
3.1 ターゲット	5
3.2 照 射	5
3.3 放射能測定	5
4. 実験データの解析	6
4.1 照射終了時の生成量の算出	6
4.2 実効断面積に関するパラメーター	8
5. 結果と考察	10
5.1 各種ワイヤーの熱外中性子に対する感度	10
5.2 短時間(2 hr)照射のモニタリング	10
5.2.1 中性子束・熱外中性子インデックス・熱中性子温度の決定	10
5.2.2 熱外中性子インデックスのカドミウム比法による値との比較	11
5.3 長時間(264 hr)照射のモニタリング	12
5.3.1 ニオブ線中のタンタル含量	12
5.3.2 ^{183}Ta の半減期測定	12
5.3.3 中性子束・熱外中性子インデックス・熱中性子温度の決定	13
6. ま と め	15
謝 辞	15
文 献	16

Contents

1. Introduction	1
2. Principle	2
2.1. Neutron monitoring with multiple activation detectors ..	2
2.2. Application of double-neutron-capture process	4
3. Experimental	5
3.1. Target preparation	5
3.2. Neutron irradiation	5
3.3. Radioactivity measurement	5
4. Analysis of experimental data	6
4.1. Induced activities	6
4.2. Parameters for effective cross sections	8
5. Results and discussion	10
5.1. Sensitivity of activation-detector wires to the epithermal neutron	10
5.2. Neutron monitoring in a short-time(2 hr) irradiation ...	10
5.2.1. Neutron flux, epithermal index and thermal neutron temperature	10
5.2.2. Values of epithermal index obtained by the multiple activation detector method and by the cadmium ratio method	11
5.3. Neutron monitoring in a long-time(264 hr) irradiation ..	12
5.3.1. Contents of tantalum in the niobium wire	12
5.3.2. Half-life measurement of ^{183}Ta	12
5.3.3. Neutron flux, epithermal index and thermal neutron temperature	13
6. Summary	15
Acknowledgements	15
References	16

1. ま え が き

熱中性子炉を利用するラジオアイソトープ (RI) の製造もしくは放射化分析において利用される反応は、多くの場合その反応断面積が $\frac{1}{v}$ 法則に大体従う。このような反応には (n, γ) 反応の外にトリチウムの製造において重要な ${}^6\text{Li} (n, \alpha) {}^3\text{H}$ 反応がある。これらの場合に RI の生成量を決める中性子場の因子は、Westcott¹⁾ によれば中性子の密度 n と熱外中性子の割合を意味するパラメーター (熱外中性子インデックス) $r\sqrt{T/T_0}$ とである。 n の代わりに中性子束の次元をもつ nv_0 が普通使われる。ここで v_0 は $2200 \text{ m}\cdot\text{sec}^{-1}$ を意味する。中性子共鳴のピークが熱エネルギーの近傍にある場合には、熱中性子領域において $\frac{1}{v}$ 法則に従わないので、熱中性子温度 T を求めて補正する必要がある。よって、必要な中性子場の因子は、 nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の 3 個である。

$r\sqrt{T/T_0}$ を決定するためにこれまで最も多く用いられて来た方法はカドミウム比法²⁾ である。この方法は原子炉の特性を調べる目的には簡単で便利であるが、中性子照射によるカドミウムの発熱、カドミウムの強い熱中性子吸収による中性子場の攪乱が起こり、試料照射時のモニタリングには適当でない。カドミウム比法は 1 種類の放射化検出器を用い、カドミウムでそれをカバーすることによって熱中性子に対する感度を下げる方法である。これに対して、熱外中性子に対する感度の異なる複数の放射化検出器によってモニタリングする方法がある。^{3,4)} 本報告においてもこの方法を基本にする。

複数放射化検出器法に関するこれまでの報告^{3,4)} では、日常的な取扱いの簡便さや照射時間の長短に伴う問題についてはあまり考慮が払われて来なかった。本報告では、放射化検出器として現在入手が容易な金属単体または合金のワイヤーだけを用い、溶解等の化学的操作を必要としない方法の確立を目的とする。照射時間は 2 時間位の短時間の場合と 10 日間位の長時間の場合を考慮する。また、生成放射能の決定は Ge (Li) 検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリーによる。

短時間照射では多種の放射化検出器が使えるのに対し、長時間照射ではその選択の範囲は極めて限られる。これまで Ag ($\sim 0.1\%$) - Al 合金線の適用が報告されている。⁵⁾ この合金線は有望と考えられるが、今のところこの試料を入手し得ないので、本研究ではニオブ線中に含まれるタンタルを用いる。

二重中性子捕獲²⁾ によれば 1 個の放射化検出器から 2 つの (n, γ) 反応による生成物が検出される。例えば、タンタルを中性子照射したとき、 ${}^{181}\text{Ta} (n, \gamma) {}^{182}\text{Ta} (n, \gamma) {}^{183}\text{Ta}$ 過程による ${}^{182}\text{Ta}$ と ${}^{183}\text{Ta}$ の放射能が認められる。 ${}^{182}\text{Ta} (n, \gamma) {}^{183}\text{Ta}$ 反応は熱中性子温度のモニターとして使える可能性があることが示唆されている。⁶⁾ 本研究では、この二重中性子捕獲の応用の可能性を検討する。

ガンマ線スペクトロメトリーによって生成放射能を決定するために必要なガンマ線放出率、半減期のデータ及び生成放射能から nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T を決定するための断面積のデータは文献値をそのまま用いることとし、明らかに誤っている場合について変更を加える。

それぞれの放射化検出器において中性子の自己遮蔽は重要な因子である。熱中性子に対しては自己遮蔽係数をかなり正確に見積ることができるが、熱外中性子に対するそれはむずかしい。そこで、本研究においては自己遮蔽の影響も含んだ形で熱外中性子の感度をまず実験的に各検出器について定める。しかる後に、その値を用いてモニタリングの実験を行なって、各検出器の適用性を調べることにする。

2. 原 理

2.1 複数放射化検出器法による中性子モニタリング

Westcott らの表示法¹⁾を用いると、良く熱化された中性子による反応の実効断面積は次式によって与えられる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (g G_{th} + r \sqrt{T/T_0} s_0 G_{epi}) \quad (1)$$

ここで、 σ_0 は $2200 \text{ m} \cdot \text{sec}^{-1}$ の中性子の断面積、 $r \sqrt{T/T_0}$ は前述の熱外中性子の割合を表わすパラメーター（熱外中性子インデックス）、 g と s_0 はそれぞれ熱中性子領域と熱外中性子領域において断面積の $\frac{1}{v}$ 法則からのずれを表わすパラメーターである。 $\frac{1}{v}$ 法則が成立するときには $g = 1$ 、 $s_0 = 0$ となる。 $\frac{1}{v}$ 法則に従わない場合には、 g の値は熱中性子温度 T に依存し ($r \sqrt{T/T_0}$ の中の T_0 は 293.6°K)、 s_0 の値は $s_0 = (2/\sqrt{\pi}) \cdot I'_0 / \sigma_0$ で与えられる。ここで I'_0 は $\frac{1}{v}$ 成分を引き去った共鳴積分である。 G_{th} と G_{epi} とはそれぞれ熱中性子と熱外中性子に対する放射化検出器の自己遮蔽を補正する因子であって、自己遮蔽が全く無い場合には $G_{th} = G_{epi} = 1$ となる。なお、これまで添字記号として 0 を繰り返し用いたが、 σ_0 、 v_0 、 T_0 においては中性子の速度 $2200 \text{ m} \cdot \text{sec}^{-1}$ を表わし、 I'_0 と s_0 においては放射化検出器が無限に薄いことを意味している。

実効断面積を(1)式によって表わしたとき、1原子当りの反応率（反応速度） R は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} R &= n v_0 \hat{\sigma} \\ &= n v_0 \sigma_0 (g G_{th} + r \sqrt{T/T_0} s_0 G_{epi}) \end{aligned} \quad (2)$$

この式の両辺を $\sigma_0 g G_{th}$ で除すと

$$R / (\sigma_0 g G_{th}) = n v_0 + (n v_0 r \sqrt{T/T_0}) (s_0 G_{epi} / g G_{th}) \quad (3)$$

が得られる。この式は縦軸に $R / (\sigma_0 g G_{th})$ を、横軸に $s_0 G_{epi} / g G_{th}$ をとったとき、切片が $n v_0$ 、傾きが $n v_0 r \sqrt{T/T_0}$ の直線となる。よって、 σ_0 、 g 、 s_0 、 G_{th} 、 G_{epi} の値が既知の放射化検出器を2種類以上用いて、それぞれの R を求めれば(3)式の直線が定まり、切片と傾きとから $n v_0$ と $r \sqrt{T/T_0}$ とが求められる。

それぞれの放射化検出器において中性子の自己遮蔽は重要な因子である。熱中性子に対しては自己遮蔽係数をかなり正確に見積ることができるが、熱外中性子に対するそれはむずかしい。そこで、本研究においては自己遮蔽の影響も含んだ形で熱外中性子の感度をまず実験的に各検出器について定める。しかる後に、その値を用いてモニタリングの実験を行なって、各検出器の適用性を調べることにする。

2. 原 理

2.1 複数放射化検出器法による中性子モニタリング

Westcott らの表示法¹⁾を用いると、良く熱化された中性子による反応の実効断面積は次式によって与えられる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (gG_{th} + r\sqrt{T/T_0} s_0 G_{epi}) \quad (1)$$

ここで、 σ_0 は $2200 \text{ m}\cdot\text{sec}^{-1}$ の中性子の断面積、 $r\sqrt{T/T_0}$ は前述の熱外中性子の割合を表わすパラメーター（熱外中性子インデックス）、 g と s_0 はそれぞれ熱中性子領域と熱外中性子領域において断面積の $\frac{1}{v}$ 法則からのずれを表わすパラメーターである。 $\frac{1}{v}$ 法則が成立するときには $g = 1$ 、 $s_0 = 0$ となる。 $\frac{1}{v}$ 法則に従わない場合には、 g の値は熱中性子温度 T に依存し ($r\sqrt{T/T_0}$ の中の T_0 は 293.6°K)、 s_0 の値は $s_0 = (2/\sqrt{\pi}) \cdot I'_0 / \sigma_0$ で与えられる。ここで I'_0 は $\frac{1}{v}$ 成分を引き去った共鳴積分である。 G_{th} と G_{epi} とはそれぞれ熱中性子と熱外中性子に対する放射化検出器の自己遮蔽を補正する因子であって、自己遮蔽が全く無い場合には $G_{th} = G_{epi} = 1$ となる。なお、これまで添字記号として 0 を繰り返し用いたが、 σ_0 、 v_0 、 T_0 においては中性子の速度 $2200 \text{ m}\cdot\text{sec}^{-1}$ を表わし、 I'_0 と s_0 においては放射化検出器が無限に薄いことを意味している。

実効断面積を(1)式によって表わしたとき、1原子当りの反応率（反応速度） R は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} R &= n v_0 \hat{\sigma} \\ &= n v_0 \sigma_0 (gG_{th} + r\sqrt{T/T_0} s_0 G_{epi}) \end{aligned} \quad (2)$$

この式の両辺を $\sigma_0 gG_{th}$ で除すと

$$R/(\sigma_0 gG_{th}) = n v_0 + (n v_0 r \sqrt{T/T_0}) (s_0 G_{epi}/gG_{th}) \quad (3)$$

が得られる。この式は縦軸に $R/(\sigma_0 gG_{th})$ を、横軸に $s_0 G_{epi}/gG_{th}$ をとったとき、切片が $n v_0$ 、傾きが $n v_0 r \sqrt{T/T_0}$ の直線となる。よって、 σ_0 、 g 、 s_0 、 G_{th} 、 G_{epi} の値が既知の放射化検出器を2種類以上用いて、それぞれの R を求めれば(3)式の直線が定まり、切片と傾きとから $n v_0$ と $r\sqrt{T/T_0}$ とが求められる。

nv_0 と $r\sqrt{T/T_0}$ とが決定されて、放射化検出器に熱中性子温度に敏感な種類のものがあれば熱中性子温度 T を決定できる。それには、その検出器の R の値と既知のパラメーターから(2)式により g の値を求める。 g と T との関係は共鳴パラメーターのデータから計算されているので、 T を知ることができる。なお、後述するように s_0 の値は厳密には g の値に依存するが、その影響は極めて小さく無視しうる。

第1章で言及したように、本研究では熱外中性子に対する感度を表わす因子 $s_0 G_{epi}$ を実験的に定めるが、そのために必要な式をここで導いておく。実験は放射化検出器をカドミウム箱でカバーして照射したときの1原子当りの反応率 R' を求める。このとき R' は次式によって表わされる。¹⁾

$$R' = nv_0 r \sqrt{T/T_0} \sigma_0 \{ (g/K) + s_0 G_{epi} \} \quad (4)$$

(4)式を(2)式と比較すると判るが第1項は cadmium cut-off energy 以上の中性子エネルギーに対する $\frac{1}{V}$ 成分の寄与を表わしており、 K の値は文献¹⁾に与えられている。(4)式を $s_0 G_{epi}$ について解いた式

$$s_0 G_{epi} = R' / (nv_0 r \sqrt{T/T_0} \sigma_0) - (g/K) \quad (5)$$

を使って $s_0 G_{epi}$ が得られる。ここで $nv_0 r \sqrt{T/T_0}$ の値が必要であるが、これは標準となりうる放射化検出器によって求めることができる。

5.2.2においてカドミウム比法によって $r \sqrt{T/T_0}$ の値を求め、複数放射化検出器法の結果と比較する。カドミウム比 R_{Cd} は(2)式と(4)式とを用いて

$$R_{Cd} = \frac{R}{R'} = \frac{g G_{th} + r \sqrt{T/T_0} s_0 G_{epi}}{\{ (g/K) + s_0 G_{epi} \} r \sqrt{T/T_0}} \quad (6)$$

と書ける。これを $r \sqrt{T/T_0}$ について解くと

$$r \sqrt{T/T_0} = \frac{g G_{th}}{R_{Cd} [s_0 G_{epi} + (g/K)] - s_0 G_{epi}} \quad (7)$$

が得られる。

ここで、 R_{Cd} の誤差 ΔR_{Cd} による $r \sqrt{T/T_0}$ に生ずる誤差 $\Delta (r \sqrt{T/T_0})$ を考える。(7)式の R_{Cd} を $R_{Cd} \pm \Delta R_{Cd}$ に変えると、

$$\begin{aligned} r \sqrt{T/T_0} \pm \Delta (r \sqrt{T/T_0}) &= \frac{g G_{th}}{(R_{Cd} \pm \Delta R_{Cd}) [s_0 G_{epi} + (g/K)] - s_0 G_{epi}} \\ &= \frac{g G_{th}}{R_{Cd} [s_0 G_{epi} + (g/K)] - s_0 G_{epi} \pm \Delta R_{Cd} [s_0 G_{epi} + (g/K)]} \end{aligned}$$

$$\cong \frac{g G_{th}}{R_{Cd} [s_0 G_{epi} + (g/K)] - s_0 G_{epi}} \left\{ 1 \pm \frac{\Delta R_{Cd} [s_0 G_{epi} + (g/K)]}{R_{Cd} [s_0 G_{epi} + (g/K)] - s_0 G_{epi}} \right\}$$

と変形し得る。よって

$$\frac{\Delta(r\sqrt{T/T_0})}{r\sqrt{T/T_0}} = \frac{\Delta R_{Cd}}{R_{Cd}} \cdot \frac{1}{1 - \frac{1}{R_{Cd}} \cdot \frac{s_0 G_{epi}}{s_0 G_{epi} + (g/K)}} \quad (8)$$

となる。(8)式は $s_0 G_{epi} = 0$ の場合、 R_{Cd} の誤差による $r\sqrt{T/T_0}$ に与える誤差はその割合において変らぬことを意味している。この条件は $\frac{1}{V}$ 法則に従う放射化検出器について成立つが、普通用いられる $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$ ^{198}Au 反応などでは成立たない。このような場合、 $\Delta R_{Cd}/R_{Cd}$ が一定であるとすると R_{Cd} が小さくなるにつれて $r\sqrt{T/T_0}$ に与える誤差の割合が大きくなる。このことはカドミウム比法では、高い精度の必要な $r\sqrt{T/T_0}$ が大きい場合に、その不確定さが大きくなることを意味している。この点において、複数放射化検出器法はカドミウム比法より原理的に優れていると言える。

2.2 二重中性子捕獲の応用

二重中性子捕獲は、中性子の捕獲によって生成した放射性核が崩壊しないうちに更にもう1個捕獲する現象を言う。ターゲット核、中性子を1個捕獲した核、2個捕獲した核に関する量に付する添字をそれぞれ1, 2, 3とすると、中性子照射中の原子数について次の微分方程式が成り立つ。

$$\left. \begin{aligned} dN_1/dt &= -A_1 N_1 \\ dN_2/dt &= N_1 R_1 - A_2 N_2 \\ dN_3/dt &= N_2 R_2 - A_3 N_3 \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

ここで N_i は原子数、 R_i は1原子当りの反応率、 A_i は実効崩壊率、即ち

$$A_i = \lambda_i + R_i = \lambda_i + nv_0 \hat{\sigma}_i \quad (10)$$

で、 λ_i は崩壊定数である。照射開始時のターゲット核の原子数を N_1^0 と表わしたとき、照射終了時の放射能 $\lambda_2 N_2$ 、 $\lambda_3 N_3$ から反応率 R_i を求めるには、(9)式を解いて得られる次式による。

$$R_1 = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_2 N_1^0} \cdot \frac{A_2 - A_1}{e^{-A_1 t} - e^{-A_2 t}} \quad (11)$$

$$R_2 = \frac{\lambda_3 N_3}{\lambda_3 N_1^0 R_1} \cdot \frac{1}{\left[\frac{e^{-A_1 t} - e^{-A_3 t}}{(A_2 - A_1)(A_3 - A_1)} + \frac{e^{-A_2 t} - e^{-A_3 t}}{(A_1 - A_2)(A_3 - A_2)} \right]} \quad (12)$$

A_i は R_i の関数であるから、厳密な意味では解けていないが、 $R_i \ll \lambda_i$ または $R_i t \ll 1$ の

場合には、(11), (12)式の右辺は R_i に依存しなくなり、例えば R_1 の場合、良く知られた式

$$R_1 = \lambda_2 N_2 / [N_1^0 (1 - e^{-\lambda_2 t})] \quad (13)$$

に一致する。これらの条件が成立しない場合には、 nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の推定値を代入して R_i の近似値を得ることができる。この近似的な R_i の値と(3)式とから、より真の値に近い nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の値を得る。このような逐次近似によって目的の nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の値を得る。これら3個のパラメーターを全て決定するには3個の反応率のデータが必要であるが、二重中性子捕獲はそのうち2個のデータを供給できる。

3. 実 験

3.1 ターゲット

実験に供する放射化検出器用試料として米国 Reactor Experiments 社製の金属単体または合金ワイヤーを使用した。ワイヤーの半径および合金の場合の組成を Table 1 に示す。それぞれのワイヤー1~4 mg を厚さ 65 μm の高純度アルミニウム箔に包んだ。位置の差による誤差を避けるために、カプセル内の全てのワイヤーは $2 \times 5 \text{mm}^2$ の範囲におさめた。熱外中性子に対する感度を調べる実験では、ワイヤーを厚さ 0.5 mm のカドミウム箔で包んだのちアルミニウム箔に包んでターゲットとした。

3.2 照 射

短時間(2時間以下)照射の場合には JRR-4 原子炉 Tパイプ照射孔を使用した。ターゲットはアルミニウム製三点ネジ・カプセル(short-type)またはポリエチレン・カプセルに入れた。カプセルには数個の穴が開けてあって、軽水が流入する。Tパイプ照射孔にはこのカプセルが垂直方向に4個収容できるので2個照射の場合は最上段と最下段に、4個の時は全部入れ、同時に照射した。

長時間(264時間)照射の場合には JRR-2 原子炉, VT-4 照射孔の最上段と最下段を使用した。この照射孔では冷却は空気自然循環方式で行なわれる。ターゲットは石英管に常圧で封入し、アルミニウム製三点ネジ・カプセルに入れて照射した。短時間照射では Table 1 に示した全ての種類のワイヤーを照射したが、長時間照射の場合には生成量の点からの制限のために、Co-Al, Nb ワイヤーの2種のみ照射した。

3.3 放射能測定

照射後、適当な冷却期間をおいて開封し、それぞれの放射化検出器試料をマイラー膜を張ったアルミニウム製試料支持リング上にマウントし、スコッチテープで固定して、測定試料とした。

場合には、(11), (12)式の右辺は R_1 に依存しなくなり、例えば R_1 の場合、良く知られた式

$$R_1 = \lambda_2 N_2 / [N_1^0 (1 - e^{-\lambda_2 t})] \quad (13)$$

に一致する。これらの条件が成立しない場合には、 nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の推定値を代入して R_1 の近似値を得ることができる。この近似的な R_1 の値と(3)式とから、より真の値に近い nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の値を得る。このような逐次近似によって目的の nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T の値を得る。これら3個のパラメーターを全て決定するには3個の反応率のデータが必要であるが、二重中性子捕獲はそのうち2個のデータを供給できる。

3. 実 験

3.1 ターゲット

実験に供する放射化検出器用試料として米国 Reactor Experiments 社製の金属単体または合金ワイヤーを使用した。ワイヤーの半径および合金の場合の組成を Table 1 に示す。それぞれのワイヤー1~4 mg を厚さ 65 μm の高純度アルミニウム箔に包んだ。位置の差による誤差を避けるために、カプセル内の全てのワイヤーは $2 \times 5 \text{mm}^2$ の範囲におさめた。熱外中性子に対する感度を調べる実験では、ワイヤーを厚さ 0.5 mm のカドミウム箔で包んだのちアルミニウム箔に包んでターゲットとした。

3.2 照 射

短時間(2時間以下)照射の場合には JRR-4 原子炉 T パイプ照射孔を使用した。ターゲットはアルミニウム製三点ネジ・カプセル(short-type)またはポリエチレン・カプセルに入れた。カプセルには数個の穴が開けてあって、軽水が流入する。T パイプ照射孔にはこのカプセルが垂直方向に4個収容できるので2個照射の場合は最上段と最下段に、4個の時は全部入れ、同時に照射した。

長時間(264時間)照射の場合には JRR-2 原子炉, VT-4 照射孔の最上段と最下段を使用した。この照射孔では冷却は空気自然循環方式で行なわれる。ターゲットは石英管に常圧で封入し、アルミニウム製三点ネジ・カプセルに入れて照射した。短時間照射では Table 1 に示した全ての種類のワイヤーを照射したが、長時間照射の場合には生成量の点からの制限のために、Co-Al, Nb ワイヤーの2種のみ照射した。

3.3 放射能測定

照射後、適当な冷却期間をおいて開封し、それぞれの放射化検出器試料をマイラー膜を張ったアルミニウム製試料支持リング上にマウントし、スコッチテープで固定して、測定試料とした。

そして、同軸型Ge(Li)検出器(ORTEC社製)によってガンマ線スペクトルを測定した。用いた同軸型検出器(1.3 MeVのガンマ線でFWHM = 2.1 keV, 相対計数効率15%)には環状8"φ×8" NaI(Tl)検出器によるコンプトン抑制系が付属しており、 ^{183}Ta の半減期の測定において作動させた。これに関する詳細は5.3.2節で記述する。

スペクトルは1 keV/channelで波高分析し、カセット型磁気テープに集録した。そして、ガンマ線スペクトル解析プログラムBOB 73⁷⁾によって計算機処理し、ガンマ線ピークの面積を得た。なお、 ^{183}Ta のガンマ線は ^{182}Ta のガンマ線による高いコンプトン散乱に重なるので、 ^{183}Ta のピークが非常に弱い場合は計算コードによらず通常の光電ピーク法によって、ピーク面積を求めた。

試料と同軸型検出器表面との距離は非常に微弱な場合を除いてサム効果が無視できるように19 cm以上離れた。また、全計数率をモニターして、パルス・パイル・アップによる計数損失を補正した。ピーク計数効率の校正はLMRI, RCC製の点状標準線源によって行なった。 ^{64}Cu の場合は β^+ 線が線源の近くで消滅するように1 mm厚さのアルミニウム板ではさんだ。

4. 実験データの解析

4.1 照射終了時の生成量の算出

ガンマ線スペクトルの各ピークの面積Aから、それぞれのガンマ線放出核種の照射終了時における生成量 λN を次式によって求めた。

$$\lambda N = A / (T \cdot f_d \cdot f_p \cdot \epsilon_p \cdot I_\gamma) \quad (14)$$

T : 計数時間 (live time)

f_d : 照射終了時から測定時刻までのDecay補正係数。必要な半減期の値⁸⁾はTable Iに示した。

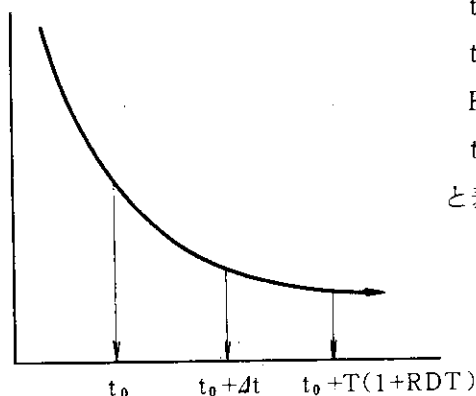
また、この補正のための測定時刻は次のようにとった。

t_0 = 測定開始時刻

$t_0 + T(1 + \text{RDT})$ = 測定終了時刻

RDT = Dead timeの割合

$t_0 + \Delta t = f_d$ の計算に用いる測定時刻と表わしたとき、



$$e^{-\lambda(t_0 + \Delta t)} \cdot T(1 + \text{RDT}) = \int_{t_0}^{t_0 + T(1 + \text{RDT})} e^{-\lambda t} dt$$

そして、同軸型Ge(Li)検出器(ORTEC社製)によってガンマ線スペクトルを測定した。用いた同軸型検出器(1.3 MeVのガンマ線でFWHM=2.1 keV, 相対計数効率15%)には環状8"φ×8" NaI(Tl)検出器によるコンプトン抑制系が付属しており、 ^{183}Ta の半減期の測定において作動させた。これに関する詳細は5.3.2節で記述する。

スペクトルは1 keV/channelで波高分析し、カセット型磁気テープに集録した。そして、ガンマ線スペクトル解析プログラムBOB 73⁷⁾によって計算機処理し、ガンマ線ピークの面積を得た。なお、 ^{183}Ta のガンマ線は ^{182}Ta のガンマ線による高いコンプトン散乱に重なるので、 ^{183}Ta のピークが非常に弱い場合は計算コードによらず通常の光電ピーク法によって、ピーク面積を求めた。

試料と同軸型検出器表面との距離は非常に微弱な場合を除いてサム効果が無視できるように19 cm以上離れた。また、全計数率をモニターして、パルス・パイル・アップによる計数損失を補正した。ピーク計数効率の校正はLMRI, RCC製の点状標準線源によって行なった。 ^{64}Cu の場合は β^+ 線が線源の近くで消滅するように1 mm厚さのアルミニウム板ではさんだ。

4. 実験データの解析

4.1 照射終了時の生成量の算出

ガンマ線スペクトルの各ピークの面積Aから、それぞれのガンマ線放出核種の照射終了時における生成量 λN を次式によって求めた。

$$\lambda N = A / (T \cdot f_d \cdot f_p \cdot \epsilon_p \cdot I_\gamma) \quad (14)$$

T : 計数時間 (live time)

f_d : 照射終了時から測定時刻までのDecay補正係数。必要な半減期の値⁸⁾はTable Iに示した。

また、この補正のための測定時刻は次のようにとった。

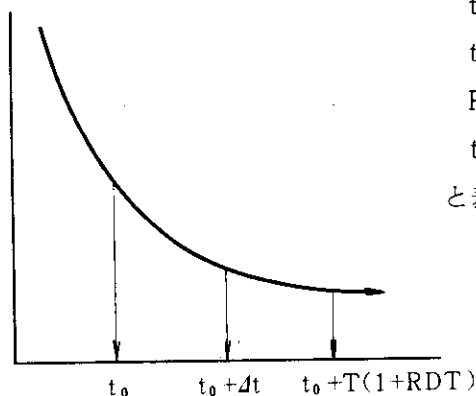
t_0 = 測定開始時刻

$t_0 + T(1 + \text{RDT})$ = 測定終了時刻

RDT = Dead timeの割合

$t_0 + \Delta t = f_d$ の計算に用いる測定時刻

と表わしたとき、



$$e^{-\lambda(t_0 + \Delta t)} \cdot T(1 + \text{RDT}) = \int_{t_0}^{t_0 + T(1 + \text{RDT})} e^{-\lambda t} dt$$

より,

$$\Delta t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln \frac{\lambda T (1 + RDT)}{1 - e^{-\lambda T (1 + RDT)}} \quad (15)$$

を得る。

f_p : パルス・パイル・アップの補正係数

Ge(Li) 検出器系におけるパルス・パイル・アップによる計数損失は Anders⁹⁾ と同様に JAERI 134 Pulse Generator からのパルス (50 cps) または、弱い ¹³⁷Cs 線源の 662 keV ガンマ線ピークの計数率の測定対象試料が無い時とある時での変化から求めた。

増巾器の shaping time 2.0 μ sec において次式を得て、この式により補正した。

$$f_p = 1 - 2.0 \times 10^{-6} \times N_{Ge}, \quad N_{Ge} : \text{全計数率 (cps)}$$

ϵ_p : 全エネルギーピーク計数効率

I_γ : ガンマ線放出率

文献⁸⁾の値を用いた。

G_γ : ガンマ線自己吸収係数

試料中でのガンマ線の自己吸収を補正するこの係数は Storm¹⁰⁾の与えている元素についての $(\mu/\rho)_{tot, i}$ の値と密度 ρ から線吸収係数 μ を求め、 $G_\gamma = e^{-\mu \bar{x}}$ なる式で計算した。ここで \bar{x} は r を半径としたときの平均距離で $(\pi/4) \cdot r$ とした。複数成分 (合金) のとき線吸収係数 μ は、成分 i の重量の割合、線吸収係数、密度をそれぞれ x_i , μ_i , ρ_i と表わしたとき、

$$\mu = \rho' \sum x_i \mu_i / \rho_i \quad (16)$$

によって計算した。ここで ρ' は複数成分の密度で、次式によって算出した。

$$\rho' = 1 / \sum (x_i / \rho_i) \quad (17)$$

なお、⁶⁴Cu の測定におけるアルミニウム板による 0.51 MeV ガンマ線の吸収に対する補正係数も同様に求めた。この場合 \bar{x} を厚さ (1mm) にとって計算し 0.977 を得た。

このようにして得られた λN の不確定さとしては、ピーク面積の不確定さのみを考慮し、(14) 式の分母の値の不確定さについては考慮しなかった。Table 1 に示したように、生成核種によっては複数のガンマ線から λN を求めた。このような場合、 i 本目のガンマ線からの λN の値を x_i , その標準偏差を ϵ_i としたとき、 λN の値の平均 \bar{x} として

$$\bar{x} = \sum_i^n x_i / n \quad (18)$$

をとった。ここで n はガンマ線の本数である。 \bar{x} の値の不確定さ $\Delta \bar{x}$ としては、

$$\Delta \bar{x}_{int} = \sqrt{\sum_i^n \epsilon_i^2} / n \quad (19)$$

と

$$\Delta \bar{x}_{\text{ext}} = \sqrt{\sum_i (x_i - \bar{x})^2 / n(n-1)} \quad (20)$$

のうち、大きい方の値をとった。

また、繰り返し測定を行った場合には、 i 回目の測定で得られた \bar{x} と $\Delta \bar{x}$ の値を、(18)~(20)式における x_i と ε_i と読み替えて、平均値と不確定さを求めた。

4.2 実効断面積に関するパラメーター

(1)式で与えられる実効断面積の計算に必要なパラメーターのうち、 $r\sqrt{T/T_0}$ は中性子モニタリングによって決定すべき未知量である。Fig. 1に示すように熱中性子温度に敏感な反応である $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ 、 $^{182}\text{Ta}(n, \gamma)^{183}\text{Ta}$ 反応においては g も未知量であるが、他の反応では予め決めることができる。 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応では文献⁽¹¹⁾から $g = 1.01$ 、他の反応では全て $g = 1$ とした。

σ_0 の値は文献⁽¹²⁾のデータを用いる。5.1節で述べるように、 $s_0 G_{\text{epi}}$ の値はほとんどのワイヤーについて実験的に決定することができたが、不可能であった場合には計算値を用いた。その際、 s_0 の計算に必要な I'_0 の値は文献⁽¹²⁾の共鳴積分 I_0 から

$$I'_0 = I_0 - 0.45 \sigma_0 \quad (21)$$

の式によって算出した。ここで、 $0.45 \sigma_0$ は共鳴積分への $\frac{1}{V}$ 成分の寄与(カドミウムによる effective cut-off energy を 0.5 eV と仮定した)である。

G_{th} の値は次のようにして算出した。まず、各元素の熱中性子に対する線吸収係数 $\mu = N_{\text{Av}} \cdot \rho \cdot \sigma / A$ を計算する。ここで、 N_{Av} はアボガドロの定数、 A は原子量、 ρ は密度、 σ は1原子当りの熱中性子吸収断面積である。合金の場合には(10)式の μ_i をここで得た値に置き換えれば良い。そして、半径 r との積 $\mu r = \tau$ を求める。そして、ワイヤーの長さ L が r より充分長いと仮定して、 $\tau \leq 0.04$ のときには⁽¹³⁾

$$G_{\text{th}} = 1 - \frac{4}{3} \tau \quad (22)$$

を用いて計算した。 $\tau > 0.04$ の場合には文献⁽¹³⁾の Table 6 中の値を内挿して求めた (Fig. 2 参照)。なお、放射化検出器の挿入に伴うパーターベーション因子は検出器が小さいので無視した。

G_{epi} の値は $s_0 G_{\text{epi}}$ の決定において基準とする $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 、 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ の両反応に関して文献⁽¹⁴⁾の方法によって計算した。計算には中性子が放射化検出器を通過する距離の平均値 \bar{x} が必要である。これは $L \gg r$ と仮定して $\bar{x} = 2r$ とした。⁽¹⁵⁾ Table 1 に示した Co-Al、Au-Al 合金について、 G_{epi} の値がそれぞれ 0.995、0.993 と得られた。

得られたデータを(3)式にあてはめて、最小自乗法により目的の $n v_0$ 、 $r\sqrt{T/T_0}$ を得る。ここで

$$y = a + bx \quad (23)$$

なる関係にあるデータ (x_i, y_i , 重み w_i , $i = 1, 2, \dots, n$) について

$$v^2 = \sum_i^n w_i (y_i - a - bx_i)^2 \quad (24)$$

を最小にする a と b を求めた時のそれぞれの標準偏差 $\sigma(a)$ および $\sigma(b)$ として

$$\sigma(a) = \sqrt{\frac{\sum x_i^2 w_i}{D} \cdot \frac{v^2}{n-2}} \quad (25)$$

ならびに

$$\sigma(b) = \sqrt{\frac{\sum w_i}{D} \cdot \frac{v^2}{n-2}} \quad (26)$$

を用いる。ただし

$$D = (\sum w_i)(\sum x_i^2 w_i) - (\sum x_i y_i)^2 \quad (27)$$

である。

5. 結果と考察

5.1 各種ワイヤーの熱外中性子に対する感度

基準とする $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ と $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 反応のカドミウムでカバーした場合の反応率 R' の値を用いると、(4)式から分かるように、実験に用いた照射位置での $nv_0 r \sqrt{T/T_0}$ の値が得られる。Fig. 3 には、 $g/K + s_0 G_{\text{epi}}$ を横軸に、 R'/σ_0 を縦軸にとってある。こうすると、直線の傾きが $nv_0 r \sqrt{T/T_0}$ に一致する。得られた $nv_0 r \sqrt{T/T_0}$ の値を用いて(5)式により、それぞれのワイヤーに対する $s_0 G_{\text{epi}}$ の値を決定した。なお、ここでは $K = 2.07(1)$ を用いる。

Table 2 に結果を示したが、点線は放射能を検出できなかったため、 $s_0 G_{\text{epi}}$ を決定できなかったものである。 $s_0 G_{\text{epi}}$ を決定できない場合には、 s_0 は文献のデータから計算した値を用い、 $G_{\text{epi}} = 1$ と仮定する。この仮定は今の場合、充分良い近似である。なお、 $^{182}\text{Ta}(n, \gamma)^{183}\text{Ta}$ 反応と $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ 反応との g の値は中性子温度 T によって変化するので、 $s_0 G_{\text{epi}}$ の値も若干変化する。ここでは、 $T = 30^\circ\text{C}$ での g の値を用いた。なお、これらの反応の $s_0 G_{\text{epi}}$ は絶対値が小さいので、 T の変化による $s_0 G_{\text{epi}}$ の変化は普通無視しうる。

5.2 短時間(2 hr)照射のモニタリング

5.2.1 中性子束・熱外中性子インデックス・熱中性子温度の決定

2時間照射の場合の結果の一例を Fig. 4 に示す。ここで、 ^{177}Lu と ^{183}Ta に対しては前もって g の値は知られていないので、 $g = 1$ と仮定してプロットした。データに付した誤差棒は(9)または(20)式の不確定さを意味する。

Fig. 4 において ^{177}Lu と ^{183}Ta のデータが直線から大きくはずれるのは当然であるが、 ^{64}Cu 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 $^{114\text{m}}\text{In}$ のデータは統計的不確定さ以上に直線からずれている。この中で $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は $\sigma_0 = 4.5$ バーンを 4.3 バーンとすれば直線上にのる。文献⁽¹²⁾によれば $\sigma_0 = 4.5 \pm 0.2$ バーンであるので、これは σ_0 の値の誤差の範囲内の変更となる。一方、 ^{64}Cu と $^{114\text{m}}\text{In}$ とのデータはこのような σ_0 の文献値の不確定さ以上に違いが大きい。 $^{114\text{m}}\text{In}$ では G_{th} の計算値の精度が疑われる。インジウム・ワイヤーは自己遮蔽の補正量が大きい上に柔らかくて、切断すると大きく変形し、短いワイヤーでは $L \gg r$ という仮定は必ずしも成立しない。 G_{th} を正確に計算できないことになり、インジウム・ワイヤーは今の目的には適当ではない。 ^{64}Cu の場合は、 $\sigma_0 = 4.0$ バーンを採用すれば直線上に乗る。この値は、よく用いられる文献値 4.4 ± 0.2 バーン⁽¹⁶⁾、 4.49 ± 0.04 バーン⁽¹⁷⁾ より10%以上小さい。これらの文献値は ^{64}Cu の放射能の決定を絶対測定法に依っているが本報告と同様に消滅ガンマ線測定に依った Pinoncelli ら⁽¹⁸⁾ は $\sigma_0 = 4.03 \pm 0.17$ バーンという我々の値に非常に近い値を報告している。なお、彼らは β^+ 崩壊の分岐比を我々が用いたとほとんど同じ 0.19 とした。それ故、 σ_0 の値の不一致は β^+ 崩壊の分岐比の値に関係して

いると言える。最近、河田¹⁹⁾はこの分岐比について精密な測定を行ない 0.1795 ± 0.004 を得た。この値を使えば、絶対測定法による値にかなり近い σ_0 を与える。

Fig. 4 に、 ^{59}Fe 、 ^{60}Co 、 ^{182}Ta (タンタル・ワイヤー)、 ^{198}Au 、 ^{99}Mo の値を使って決定した nv_0 、 $r\sqrt{T/T_0}$ の値を示した。これらの値は重みつき最小自乗法によって決定した。重み w_i としては、

$$w_i = \frac{1}{\left(\frac{R}{\sigma_0 g G_{\text{th}}}\right)^2 \text{の統計的不確定さ}^2 + \left(\frac{R}{\sigma_0 g G_{\text{th}}} \times 0.015\right)^2} \quad (28)$$

をとった。分母の第2項は、計数効率の決定における不確定さとして $\pm 1.5\%$ を考慮したものである。

nv_0 と $r\sqrt{T/T_0}$ の値を決定した後、 ^{183}Ta と ^{177}Lu の値とから T を決定した。 T の値に関しては後に考察する。

以上のようにして決定した JRR-4 原子炉の T パイプ照射孔における nv_0 、 $r\sqrt{T/T_0}$ 、 T の値の分布を Fig. 5 に示す。この中の T の分布で、白丸は ^{183}Ta から黒丸は ^{177}Lu からの値である。 nv_0 の不確定さは $\pm 1.3 \sim \pm 2.5\%$ 、 $r\sqrt{T/T_0}$ の不確定さは $\pm 4.4 \sim \pm 7.8\%$ であった。 $nv_0 \sim 2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ のとき、 ^{183}Ta の生成量から求めた T の不確定さが大きい。これは nv_0 が低いことに起因する。二重中性子捕獲による ^{183}Ta の生成量は $(nv_0)^2$ に比例するので、 nv_0 が小さい場合、統計的不確定さが大きくなる。

T の値は ^{183}Ta の生成量と ^{177}Lu の生成量とから求めた場合で約 13°C の差がある。この実験を行なったとき、冷却水の炉心入口での温度は 37°C 、出口では 44°C と測定されている。 T が冷却水温度より低下することはありえないので、 ^{183}Ta による T の値の方が ^{177}Lu による値より合理的な結果である。 ^{177}Lu の生成量から T を決定する場合に重要な因子となるのは、試料中の ^{176}Lu 原子数 N 、断面積 σ_0 、1 崩壊当りのガンマ線強度の値 I_γ である。 ^{177}Lu を用いる場合、 N に約 2% 、 σ_0 に約 4% 、 I_γ に約 10% [8] の不確定さがある。もし、 g の値に $+5\%$ の誤差があると T に $+13^\circ\text{C}$ の誤差を生ずる (Fig. 1 参照)。今の場合、 I_γ の不確定さが大きく、 T の決定には不適当であることが分かる。タンタル・ワイヤーを用いて $^{182}\text{Ta} \rightarrow ^{183}\text{Ta}$ 生成量から T を決定する場合には、 ^{182}Ta (n, γ) ^{183}Ta 反応の σ_0 と ^{182}Ta 、 ^{183}Ta のガンマ線放出率 I_γ の誤差が結果に影響する。この場合、 σ_0 に約 7% [12]、 ^{182}Ta と ^{183}Ta の I_γ にそれぞれ 1.5% と 10% [8] の不確定さがある。ここで用いた放射化検出器で T について信頼性の高い結果を得るには、 ^{177}Lu と ^{183}Ta の I_γ の精度を高めることが特に望まれる。

5.2.2 熱外中性子インデックスのカドミウム比法による値との比較

最もよく使われる ^{197}Au (n, γ) ^{198}Au 反応のカドミウム比から得られる $r\sqrt{T/T_0}$ の値と複数放射化検出器法による値とを比較した。実験では、Au-Aℓ、Co-Aℓ、Ta、Mo、Cu-Mn の各ワイヤーを含むセットと 0.5 mm 厚さのカドミウム管に封じた Au-Aℓ ワイヤーとを30分間ずつ交互に照射した。照射は JRR-4 原子炉の T パイプ照射孔で行なった。この場合、照射位置

の再現性は必ずしも良くないので、それぞれ5組の試料を照射し、平均値を比較した。生成量のバラツキは、カドミウムでカバーしたときの ^{198}Au の生成量について $\pm 3\%$ 、カバーしない場合 $\pm 2\%$ であった。

(7)式によってカドミウム比法で得られた値は $r\sqrt{T/T_0} = 0.0217 \pm 0.0011$ 、複数放射化検出器法による結果は $r\sqrt{T/T_0} = 0.0206 \pm 0.0005$ で、両者は良く一致していると言える。

5.3 長時間(264 hr)照射のモニタリング

Table 1 にあげた試料の多くは264時間の照射の後には、放射能が強すぎるために、Ge(Li)検出器での測定には適さない。この中では、Co-Al合金が $s_0 G_{epi}$ の小さい放射化検出器として使える。 $s_0 G_{epi}$ の大きい放射化検出器としてはニオブ線中に含まれるタンタルが使える可能性がある。この場合、 $^{181}\text{Ta}(n, \gamma)^{182}\text{Ta}$ 反応によって生成した ^{182}Ta が更に $^{182}\text{Ta}(n, \gamma)^{183}\text{Ta}$ 反応によってburn-upしてしまう効果は無視しえない。これは ^{183}Ta の放射能が測定できれば、補正は可能である。 ^{183}Ta の半減期の精度の高いデータは少ないので、本研究ではこの測定も行なった(5.3.2)。

ここではニオブ線中のタンタル含量を短時間の中性子照射によって決定した後、長時間照射への適用を試みる。

5.3.1 ニオブ線中のタンタルの含量

まず、タンタル含量のワイヤー中での均一性を調べた。1.5 mの長さのワイヤーの3箇所からそれぞれ2個の試料片をとった。それぞれ2~5 mgのワイヤーを $3.7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ の熱中子束のもとで照射し、 ^{182}Ta 放射能をGe(Li)検出器によって決定した。その結果、タンタルは充分均一に含まれており、その変動は1%を越えないことが確認された。

タンタルの含量は放射化分析によって次のようにして決定した。5.2.1で述べた実験においてニオブ線も同時に照射して、 nv_0 と $r\sqrt{T/T_0}$ を決定した。 $^{181}\text{Ta}(n, \gamma)^{182}\text{Ta}$ 反応の s_0 には計算値37.7を用いて、タンタルの含量は少ないので $G_{epi} = 1$ とすることにより、反応率 R_1 が(2)式によって計算できる。この R_1 の値と ^{182}Ta の生成量 $\lambda_2 N_2$ を(10)式に代入して、 N_1^0 について解くことにより、タンタル含量として $252 \pm 11 \text{ ppm}$ が得られた。

5.3.2 ^{183}Ta の半減期測定

測定試料は横沢化学工業製のタンタル粉末1.4 mgを石英管に封入し、JRR-4原子炉のSパイプ照射孔で2時間照射することによって調製した。照射後、石英管に封入したままGe(Li)検出器によってガンマ線スペクトルを測定した。タンタル試料中の放射能は大部分 ^{182}Ta であって、 ^{183}Ta のガンマ線ピークは ^{182}Ta のガンマ線のコンプトン散乱分布の上に乗る。このコンプトン散乱分布を減らすために、コンプトン抑制系を用いた。コンプトン抑制系はGe(Li)検出器をとり囲んでコンプトン散乱線を検出する8"φ×8"環状NaI(Tl)検出器と、タイミング・シングル・チャンネル・アナライザー等のパルス回路とからなる。この装置を使うことによって、コンプトン散乱分布は約 $\frac{1}{2}$ に減少した。なお、試料はGe(Li)検出器から37 cm離し、検出器と

試料の全体を厚さ10 cmの鉛でおおった。

^{183}Ta の崩壊に伴うガンマ線のうち、強度が大きく、シングル・ピークをなす 291.7 keV, 313.2 keV (313.0+313.3 keV), 354.0 keV の3本のガンマ線の減衰を追跡した。それぞれのピーク面積はBOB 73コード⁷⁾によるピーク・フィットによって求めた。

ピーク面積に影響する因子として、この場合偶然の同時計数によるピーク面積の減少を考慮しなければならない。なお、カスケード・ガンマ線とのサム・コインシデンスによるピーク面積の減少もあるが、これは試料と検出器との幾何学的な因子によって決まる。今の場合、試料と検出器との配置は測定期間中に変化させなかったので、一定であり半減期を決定するという今の目的には考慮の必要はない。偶然の同時計数損失には、コンプトン抑制系との偶然のコインシデンスのために逆同時計数回路が作動して計数損失が起きる場合と、Ge(Li)検出器系の中での、いわゆるパルス・パイル・アップによるものがある。

偶然の同時計数による損失が起らないときのピーク面積を A_0 、実際に観測されるピーク面積を A とすれば、次式が成り立つ。

$$A = A_0 e^{-\tau_1 N_1} \cdot e^{-\tau_2 N_2} \quad (29)$$

ここで、 τ_1 はコンプトン抑制系の分解時間、 N_1 は NaI(Tl) 検出器の全計数率、 τ_2 は Ge(Li) 検出器系の分解時間、 N_2 は Ge(Li) 検出器の全計数率である。今、 N_1 は N_2 に比例すると見せるので、 $N_2 = a N_1$ と置くと ($a = \text{定数}$)、(29) 式は

$$f(t) = A/A_0 = e^{-(\tau_1 + a\tau_2)N_1} = e^{-\tau N_1} \quad (30)$$

$$\tau = \tau_1 + a\tau_2$$

と書き直せる。 $f(t)$ は A/A_0 が時間 t と共に変化することを意味する。更に、我々の測定試料の放射能の大部分は ^{182}Ta であることを考慮して、 $N_1 = N_1^0 e^{-\lambda t}$ (λ は ^{182}Ta の崩壊定数) と置くと、必要な補正係数 $f(t)$ は次式によって容易に計算できる。

$$f(t) = \exp[-\tau N_1^0 \exp(-\lambda t)] \quad (31)$$

(31) 式の中で未知のパラメーターは τN_1^0 であるが、これはある時間 t での $f(t)$ が与えられれば直ちに算出される。 $f(t)$ の値は 4.1 節で述べたようにパルス・ジェネレーターからのパルスを用いて決定した。

タンタル試料の測定は約18日間続け、31個のスペクトルを得た。ガンマ線ピーク面積は前述の補正を行なってから、電子計算機に入力し、計算コードFRANTIC²⁰⁾によって解析した。それぞれのガンマ線から得られた半減期の値を Table 3 に示す。これらの値の重みつき平均値として $4.98 \pm 0.05 \text{ d}$ を得た。

これまでに報告されている値を Table 4 に示した。本研究の結果は DuMond らの値を除くと誤差の範囲内で良く一致している。

5.3.3 中性子束・熱外中性子インデックス・熱中性子温度の決定

Co-Al 線と前に述べたタンタル含量を有するニオブ線を長時間照射して得られた結果につ

いて述べる。2組の試料をJRR-2原子炉の垂直孔VT-4で照射した。1つのカプセルAは熱中性子束が最大となる位置で、今1つのカプセルBはそれから上方に29cm離れた位置に置いた。AとBにそれぞれ2組の試料を封じた。

得られた反応率から nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$, T を決定するため、Fig. 6のようにプロットした。ここで ^{182}Ta についての反応率は(10)と(11)式によって求めた。この場合、

$$A_1 = R_1$$

$$A_2 = \lambda_2 + R_2$$

$$A_3 = \lambda_3$$

とした。最初に(10), (11)式で R_1 , R_2 を計算するときには A_1 と A_2 の正確な値は知られていないので、 $A_1 = 0$, $A_2 = \lambda_2$ と置いた。数回の繰り返し計算によって十分な精度が得られた。

Fig. 6から、 $^{93}\text{Nb}(n, \gamma)^{94}\text{Nb}$ 反応による ^{94}Nb はその放射能が微弱なため、中性子モニターとしては適当でないことが分かる。そのため、 ^{60}Co と ^{183}Ta の放射能から nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$ を決定した。このとき(8)~(10)式の関係式を用いたが、 $n=2$ では(8)式の値が無限大になるので、ここでは $v^2/(n-2)=1$ と仮定した。なお解析にあたっては、タンタル含量の不確定さも考慮した。

得られた $r\sqrt{T/T_0}$, T の値をTable 5に示した。また、比較のために原子炉の特性試験における金箔のカドミウム比の値から推定した $r\sqrt{T/T_0}$ の値を示す。特性試験の場合と実際の照射とでは必ずしも直接比較できないが $r\sqrt{T/T_0}$ の実験値は特性試験のときの値にかなり近いと言えよう。ここで注目すべき点は、B-1, B-2の場合、 $r\sqrt{T/T_0}$ の実験値は、不確定さと同程度であることである。この不確定さは主にタンタル含量の不確定さから生じているので、タンタル含量をより正確に決定することによって不確定さを小さくすることは可能である。熱中性子温度 T については他に比較できるデータはないが、少なくとも不合理な値ではない。

6. ま と め

複数のワイヤーを放射化検出器として用い、生成放射能をガンマ線スペクトロメトリーによって決定することにより、試料照射時の中性子束、熱外中性子インデックス、熱中性子温度を求め得ることが確かめられた。

本研究によって、熱外中性子に高感度な放射化検出器として、短時間照射用にはモリブデン線が、長時間照射用にはタンタルを微量含むニオブ線が有用であることが明らかになった。

^{181}Ta の多重中性子捕獲過程による ^{182}Ta 、 ^{183}Ta を検出することによって、熱中性子温度を求め得ることが確かめられた。しかし、 ^{183}Ta のガンマ線放出率と $^{182}\text{Ta}(n, \gamma)^{183}\text{Ta}$ 反応の σ_0 のデータの不確定さを考慮すると、結果の信頼性は必ずしも高くない。今後、これらのデータの精度の向上が望まれる。

短時間と長時間の照射について、適当と考えられる放射化検出器用ワイヤーを下記の表に示す。

	s_0 の小さな 放射化検出器	s_0 の大きな 放射化検出器
短時間照射	Co-Al Fe Cu-Mn	Mo Au-Al 微量の Ta を含む Nb
長時間照射	Co-Al	微量の Ta を含む Nb

現在、著者らは本研究の結果を基にして、電子計算機による nv_0 、 $r\sqrt{T/T_0}$ 、T 計算法を開発しつつある。これによれば、ガンマ線スペクトル・データの出力、放射化検出器用ワイヤーの重さ等のわずかのデータのインプットによって直ちに結果が得られる。

謝 辞

本研究の遂行に当って、有益な示唆と激励をいただいた製造部 馬場 宏主任研究員に深く感謝します。

6. ま と め

複数のワイヤーを放射化検出器として用い、生成放射能をガンマ線スペクトロメトリーによって決定することにより、試料照射時の中性子束、熱外中性子インデックス、熱中性子温度を求め得ることが確かめられた。

本研究によって、熱外中性子に高感度な放射化検出器として、短時間照射用にはモリブデン線が、長時間照射用にはタンタルを微量含むニオブ線が有用であることが明らかになった。

^{181}Ta の多重中性子捕獲過程による ^{182}Ta 、 ^{183}Ta を検出することによって、熱中性子温度を求め得ることが確かめられた。しかし、 ^{183}Ta のガンマ線放出率と $^{182}\text{Ta}(n, \gamma)^{183}\text{Ta}$ 反応の σ_0 のデータの不確定さを考慮すると、結果の信頼性は必ずしも高くない。今後、これらのデータの精度の向上が望まれる。

短時間と長時間の照射について、適当と考えられる放射化検出器用ワイヤーを下記の表に示す。

	s_0 の小さな放射化検出器	s_0 の大きな放射化検出器
短時間照射	Co-Al Fe Cu-Mn	Mo Au-Al 微量の Ta を含む Nb
長時間照射	Co-Al	微量の Ta を含む Nb

現在、著者らは本研究の結果を基にして、電子計算機による nv_0 、 $r\sqrt{T/T_0}$ 、 T 計算法を開発しつつある。これによれば、ガンマ線スペクトル・データの出力、放射化検出器用ワイヤーの重さ等のわずかのデータのインプットによって直ちに結果が得られる。

謝 辞

本研究の遂行に当って、有益な示唆と激励をいただいた製造部 馬場 宏主任研究員に深く感謝します。

REFERENCES

- 1) Westcott C.H., Walker W.H. and Alexander T.K.:
"Proc. 2nd Int. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy,
Geneva", United Nations, New York, 16, 70 (1958)
- 2) Sekine T. and Baba H.: JAERI-1266 (1980)
- 3) Albert D. and Schumann P.: Kernenergie 10, 306 (1967)
- 4) Corte F.De, Speecke A. and Hoste J.: J.Radioanal.Chem.
3, 205 (1969)
- 5) Cabell M.J. and Wilkins M.: AERE-R5122 (1966)
- 6) Stokes G.E., Schuman R.P. and Simpson O.D.: Nucl.Sci.Eng.
31, 16 (1968)
- 7) Baba H., Sekine T., Baba S. and Okashita H.: JAERI-1227 (1973)
- 8) Lederer C.H. and Shirley V.S.: "Table of Isotopes", 7th Edn.,
John Wiley, New York (1978)
- 9) Anders O.U.: Nucl.Instr.Meth. 68, 205 (1969)
- 10) Storm E. and Israel H.I.: LA-3753 (1967)
- 11) Gryntakis E.M. and Kim J.I.: Radiochimica Acta 22, 128 (1975)
- 12) Mughabghab S.F. and Garber D.I.: BNL-325, 3rd Edn, Vol.1 (1973)
- 13) Aliev A.I., Drynkin V.I., Leipunskaya D.I. and Kasatkin V.A.:
"Handbook of Nuclear Data for Neutron Activation Analysis",
Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem (1970)
- 14) Sekine T. and Baba H.: J.Radioanal.Chem. 45, 155 (1978)
- 15) Nisle R.G.: Nucleonics 18, [3] 86 (1960)
- 16) Ryves T.B.: J.Nucl.Energy 24, 35 (1970)

- 17) Dilg W. and Mannhart W.: Z.Phys. 266, 157 (1974)
- 18) Pinoncelli B. and Fabry A.: EANDC(E) 76U (1967), p107.
- 19) Kawada T.: to be published
- 20) Rogers P.C.: NYO-2308 (1962)
- 21) Butement F.D.S.: Proc.Phys.Soc. (London) 64A, 395 (1951)
- 22) Moses A.J. and Martin D.S.: Phys.Rev. 84, 366 (1951)
- 23) DuMond J.W.M., Hoyt H.C., Marmier P.E. and Murray J.J.:
Phys.Rev. 92, 202 (1953)
- 24) Poë A.J.: Phil.Mag. 46, 611 (1955)
- 25) Sumbaev O.I.: Sov.Phys.JETP 5, 170 (1957)
- 26) Bashandy E., El-Nesr M.S. and El-Farrash A.H.: Physica 32,
837 (1966)

Table 1 Nuclear data⁸⁾ and self-absorption factor, G_γ , for the γ ray used for the determination of radioactivities

Material	Radius (mm)	Nuclide of interest	Half-life	Detected γ ray	
				Energy (keV) & Intensity (%)	G_γ
Fe	0.115	^{59}Fe	44.6 d	1099 (56.5)	0.996
				1292 (43.2)	0.996
Nb	0.255	^{94}Nb	2.0×10^4 y	703 (98)	0.988
				871 (100)	0.989
		^{95}Nb	35.0 d	766 (99.82)	0.988
		^{182}Ta	115 d	1121 (35.1)	0.991
1221 (27.5)	0.991				
Mo	0.255	^{99}Mo	66.02 h	244+245+246 (36.0)	0.971
				354 (11.7)	0.980
				141 (89.0)	0.908
				739 (12.6)	0.986
Ag	0.255	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	252 d	778 (4.4)	0.986
				658 (94.4)	0.984
				764 (22.3)	0.986
				885 (72.8)	0.987
In	0.38	$^{114\text{m}}\text{In}$	49.51 d	938 (34.3)	0.987
				558 (3.4)	0.981
				725 (3.3)	0.985
				1121 (35.1)	0.985
Ta	0.19	^{182}Ta	115 d	1221 (27.5)	0.986
				354 (11.7)	0.945
		^{183}Ta	4.98 d*	244+245+246 (36.0)	0.890
				354 (11.7)	0.945
Co (0.475%) -Al	0.38	^{60}Co	5.272 y	1173 (100)	0.995
				1332 (100)	0.996
Cu (19.8%) -Mn	0.38	^{64}Cu	12.70 h	511 (38.6)	0.982
Lu (2.2%) -Al	0.255	^{177}Lu	6.71 d	208 (11)	0.993
Au (0.061%) -Al	0.255	^{198}Au	2.696 d	412 (95.5)	0.995

* Present work.

Table 2 Data used for the calculation of effective cross section

Material	Nuclide of interest	σ_0^* (b)	g	G_{th}	s_0^{**}	$(s_0 G_{epi})_{exp}$
Fe	^{59}Fe	1.15	1.00	0.997	0.66	0.65±0.02
Nb	^{94}Nb	1.15	1.00	0.998	9.0	- - - -
	^{95}Nb	13.6	1.00		9.9	- - - -
	^{182}Ta	21.0	1.00		37.7	- - - -
	^{183}Ta	8200	—		-0.72	- - - -
Mo	^{99}Mo	0.130	1.00	0.994	53	45.0±0.6
Ag	^{110m}Ag	4.5	1.00	0.891	18.53 [§]	3.20±0.06
		4.3 ^{§§}				
In	^{114m}In	9.45	1.00	0.731	30	24.3±0.2
Ta	^{182}Ta	21.0	1.00	0.971	37.7	10.5±0.1
	^{183}Ta	8200	—		-0.72	- - - -
Co(0.475%) -Al	^{60}Co	37.2	1.00	0.999	1.83	Standard
Cu(19.8%) -Mn	^{64}Cu	4.5	1.00	0.953	0.7	0.51±0.01
		4.0 ^{§§}				
Lu(2.2%) -Al	^{177}Lu	1978 ^{§§§}	—	0.999	-0.18	-0.22±0.03
Au(0.061%) -Al	^{198}Au	98.8	1.01	0.999	17.02	Standard

* Ref. [12]. ** Calculated using the data of Ref. [12]. [§] Ref. [6].

^{§§} Recommended by the authors. ^{§§§} Calculated using the resonance parameters of Ref. [12].

Table 3 Data of the half-life of ^{183}Ta

γ -Ray energy (keV)	Obtained half-life (day)
291.7	4.93 \pm 0.12
313.2 (313.0+313.3)	4.98 \pm 0.07
354.0	5.01 \pm 0.08
Averaged	4.98 \pm 0.05

Table 4 Half-life of ^{183}Ta

Half-life (d)	Year	Reference
4.8	1951	Butement[21]
6.0	1951	Moses and Martin[22]
5.2 \pm 0.1	1953	DuMond <i>et al.</i> [23]
5.0 \pm 0.1	1955	Poë[24]
5.0 \pm 0.4	1957	Sumbaev[25]
5.0 \pm 0.4	1966	Bashandy <i>et al.</i> [26]
4.98 \pm 0.05	1981	Present work

Table 5 Results obtained from the long-time (264 h) irradiation in the VT-4 hole of the JRR-2 reactor, by using Co-Al and Nb (containing Ta) wires.

Sample	Observed			Estimated
	T ($^{\circ}\text{C}$)	$\frac{nv}{v_0}$ ($10^{13}\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$)	$\frac{r\sqrt{T/T_0}}$ (10^{-3})	$\frac{r\sqrt{T/T_0}}$ (10^{-3})
A-1	80 \pm 17	2.81 \pm 0.05	8.8 \pm 1.8	12 \pm 2
A-2	77 \pm 18	2.71 \pm 0.05	8.5 \pm 1.8	12 \pm 2
B-1	58 \pm 9	1.17 \pm 0.02	1.7 \pm 1.4	1.6 \pm 0.2
B-2	70 \pm 17	1.14 \pm 0.02	0.9 \pm 1.4	1.6 \pm 0.2

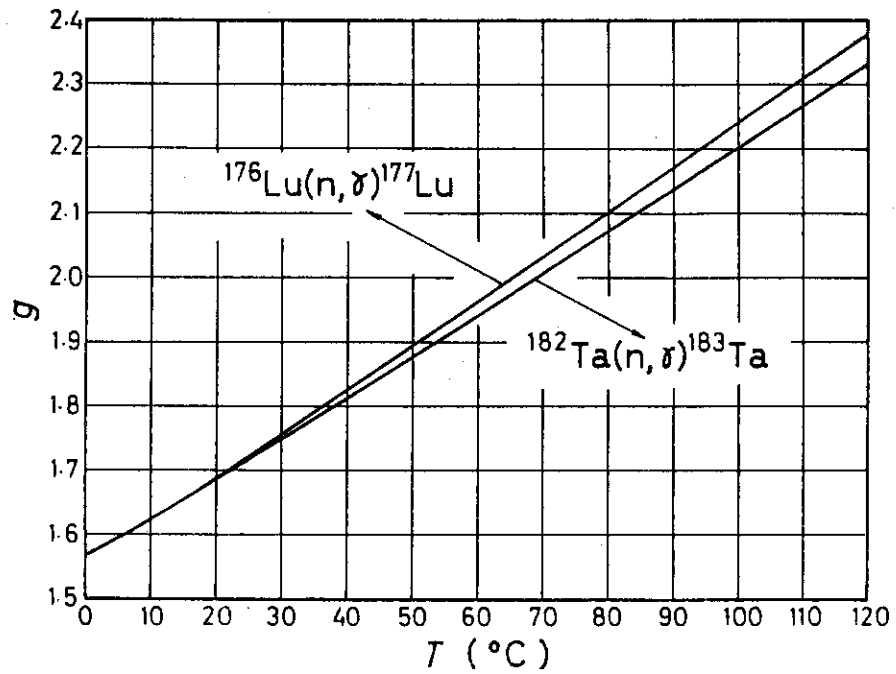


Fig.1 Westcott's g factors for $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ and $^{182}\text{Ta}(n, \gamma)^{183}\text{Ta}$ reactions. The data were taken from Ref. [11].

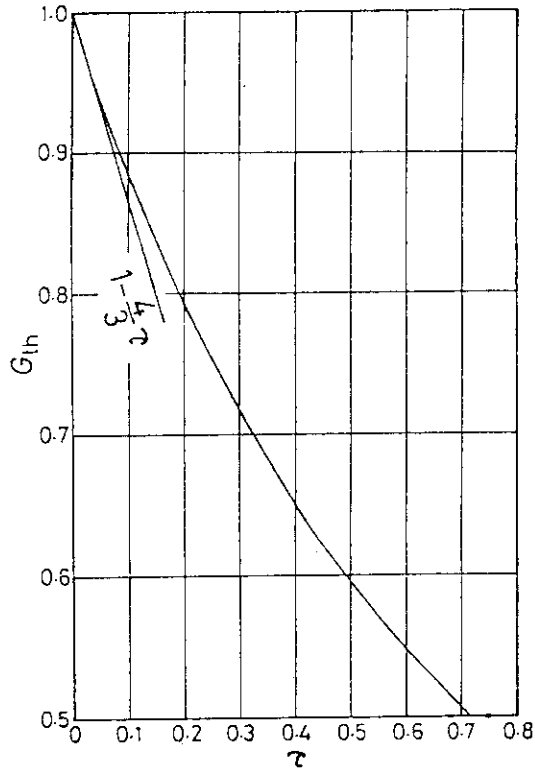


Fig.2 Thermal neutron self-shielding factor G_{th} for an infinite cylinder. τ is defined in the text. The data were taken from Ref. [13].

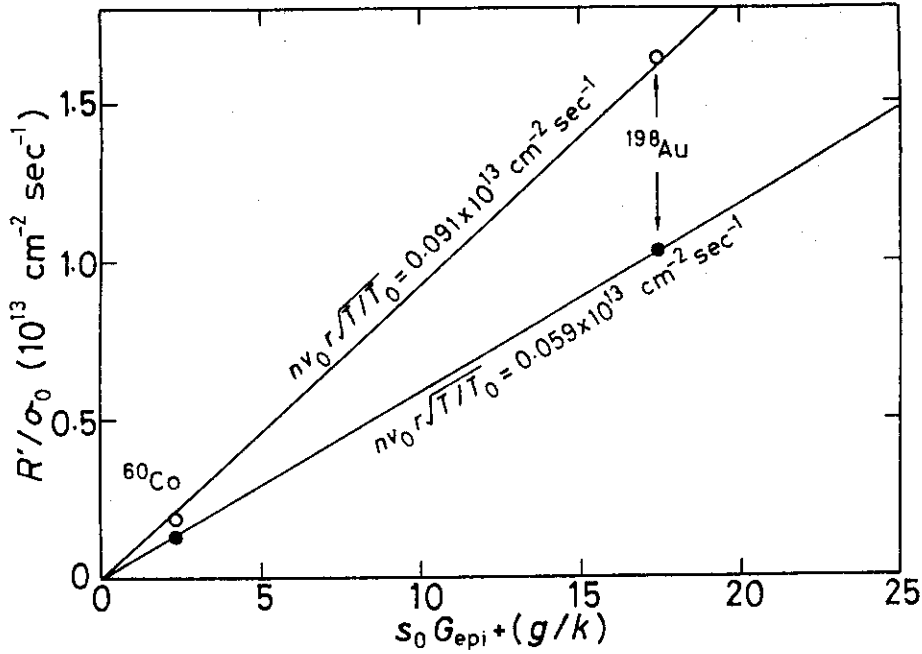


Fig.3 Determination of the values of $nv_0 r \sqrt{T/T_0}$ for two irradiating positions by using Co-Al and Au-Al wires.

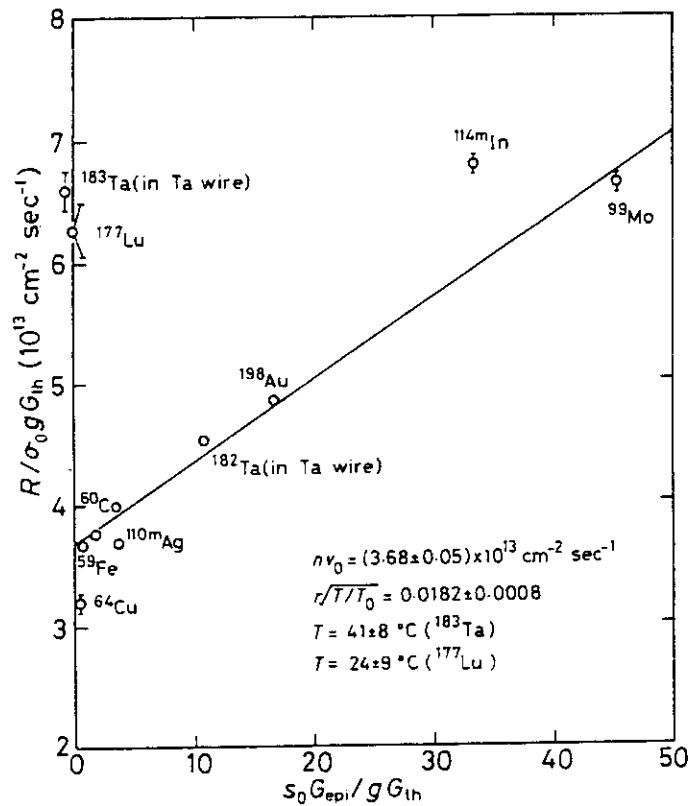


Fig.4 Determination of nv_0 , $r\sqrt{T/T_0}$ and T by using multiple activation detectors. The straight line was fitted by means of weighted least squares method to the data other than ^{177}Lu , ^{183}Ta , ^{64}Cu , ^{110m}Ag and ^{111m}In . For ^{177}Lu and ^{183}Ta the value of g is assumed to be unity.

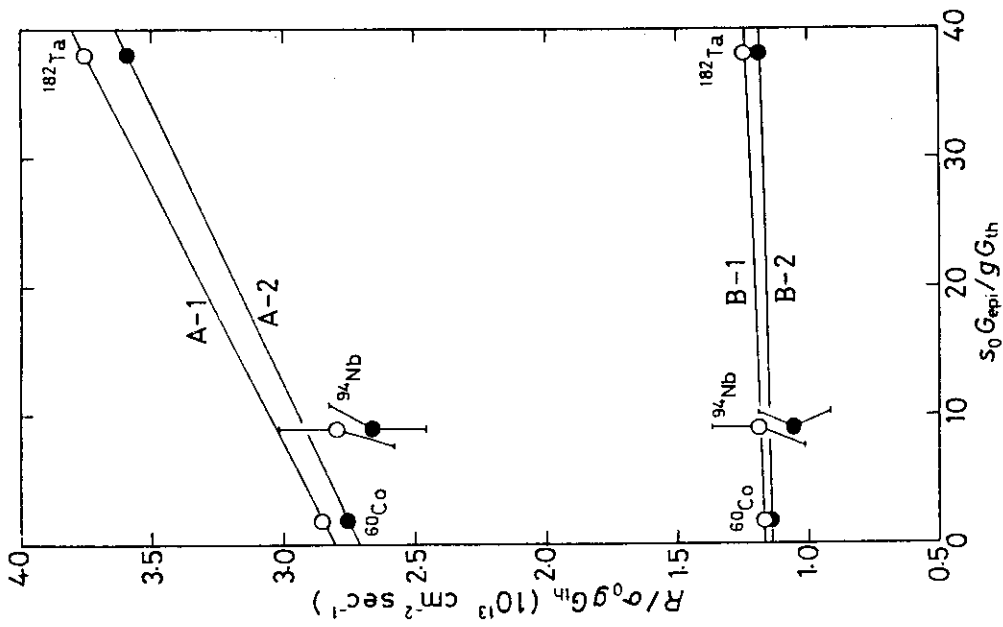


Fig. 6
 Determination of the values of \underline{nv}_0 , $\underline{L\sqrt{T/T_0}}$ and \underline{T} in the long irradiation (264 hr) by using the Co-Al alloy wire and the niobium wire containing tantalum. Data are plotted with four sets of samples.

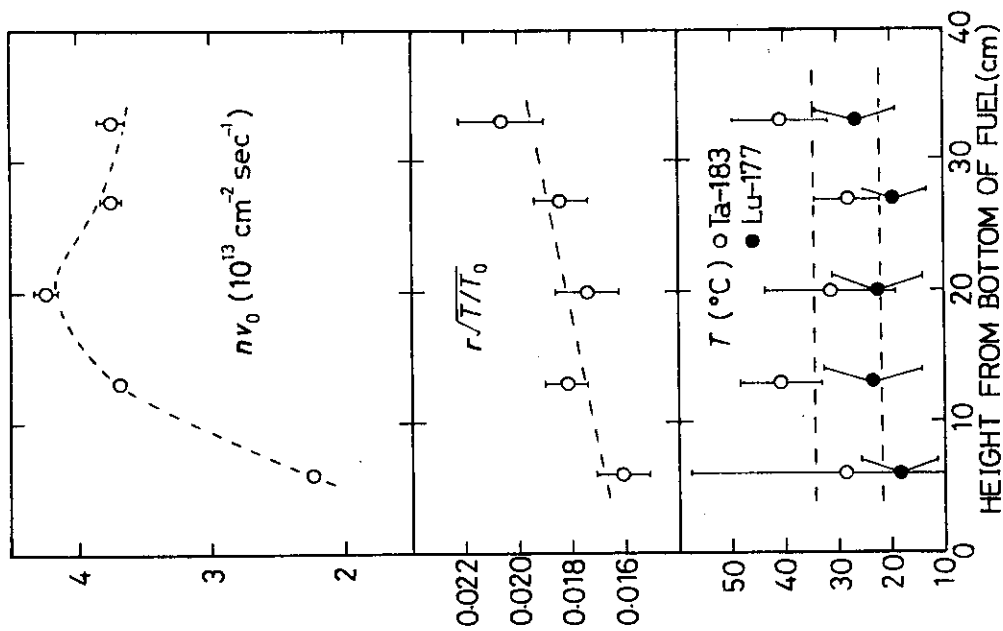


Fig. 5
 The values of \underline{nv}_0 , $\underline{L\sqrt{T/T_0}}$ and \underline{T} in T-pipe of the JRR-4 reactor as a function of height from the bottom of the fuels.