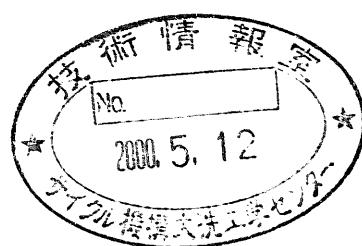


分量

# Tc-99の中性子捕獲断面積測定

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2000年 2月



東京工業大学

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒 319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 4 9  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :  
Technical Cooperation Section.  
Technology Management Division.  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2000

JNC TJ9400 2000-008  
2000年2月

# Tc-99の中性子捕獲断面積測定

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

井頭政之\*

## 要旨

高速炉を用いた長寿命核分裂生成物（LLFP）の核変換処理研究のためには、核変換性能等の炉心特性を詳細に検討する必要があり、従って、LLFPの精度良い中性子核反応断面積データが必要となる。そこで本研究では、精度良い中性子核反応断面積データを得るために、重要なLLFP核種であるTc-99についてkeV中性子捕獲反応断面積の測定を行なった。測定はAuの捕獲反応断面積を標準とした相対測定とし、ペレトロン加速器を利用したnsパルス中性子源及び大型コンプトン抑止型NaI(Tl)ガンマ線検出器を用いた中性子飛行時間法で行なった。その結果、入射中性子エネルギー10~600keVの範囲で、Tc-99の捕獲断面積を誤差約5%の精度で得た。今回の測定値とこれまでの測定値及びJENDL-3.2の評価値との比較を行なった結果、JENDL-3.2は15~20%過小評価を行っていることが明らかになった。

---

本報告書は、東京工業大学が核燃料サイクル開発機構の委託により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室： 大洗工学センター  
システム技術開発部炉心技術開発グループ

\*： 東京工業大学原子炉工学研究所

JNC TJ9400 2000-008  
FEBRUARY.2000

## Measurement of Neutron Capture Cross Sections of Tc-99

Masayuki Igashira \*

### Abstract

For studies on nuclear transmutation of long-lived fission products(LLFPs) in a fast reactor, detailed characteristics of reactor core such as transmutation performance have to be investigated, so accurate neutron cross section data of LLFPs become necessary. Therefore, the keV-neutron capture cross sections of Tc-99, which is one of important LLFPs, were measured in the present study to obtain the accurate data. The measurement was relative to the standard capture cross sections of Au-197. A neutron time-of-flight method was adopted with a ns-pulsed neutron source by a Pelletron accelerator and a large anti-Compton NaI(Tl) gamma-ray detector. As a result, the capture cross sections of Tc-99 were obtained with the error of about 5 % in the incident neutron energy region of 10 to 600 keV. The present data were compared with other experimental data and the evaluated values of JENDL-3.2, and it was found that the evaluations of JENDL-3.2 were 15-20 % smaller than the present measurements.

---

Work performed by Tokyo Institute of Technology under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute

J N C Liaison : Reactor Physics Research Group, System Engineering Technology Division,  
O-arai Engineering Center, JNC  
\* : Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology

## 目 次

1.はじめに	1
2.実験装置及び実験方法	3
2.1 実験の概要	3
2.2 パルス中性子源	5
2.3 ガンマ線検出器の遮蔽体	9
2.4 ガンマ線検出器とその特性	11
2.4.1 ガンマ線検出器の構成と動作原理	11
2.4.2 応答行列	14
(1) 全エネルギー・ピーク	17
(2) シングル・エスケープ・ピーク	23
(3) コンプトン部分	23
2.5 測定回路系	24
2.5.1 ガンマ線検出器用測定回路系	24
(1) 波高測定回路	24
(2) 波高-TOF二次元測定回路	29
2.5.2 中性子検出器用測定回路系	30
2.6 測定用試料	30
2.7 測定	31
3.データ処理	34
3.1 入射中性子エネルギー分布	34
3.2 捕獲ガンマ線波高分布	34
3.3 捕獲イールド	50
3.3.1 波高重み法	50
3.4 入射中性子数	51
3.5 捕獲断面積	52
3.6 補正係数	52
3.6.1 C <sub>n s</sub>	52
3.6.2 C <sub>n m</sub>	53
3.6.3 C <sub>g g</sub>	53
3.6.4 C <sub>g a</sub>	54
3.7 誤差評価	54
4.結果及び考察	56
5.結論	59
参考文献	60
付録	61

## 表リスト

表 1 ガンマ線検出器応答関数の測定に用いたガンマ線源 (1) . . . . .	1 6
表 2 ガンマ線検出器応答関数の測定に用いたガンマ線源 (2) . . . . .	1 6
表 3 試料に関するデータ . . . . .	3 2
表 4 $^{99}\text{Tc}$ の捕獲ガンマ線スペクトルを測定した際の条件 . . . . .	3 3
表 5 中性子補正係数とその内訳 . . . . .	5 5
表 6 本研究で得られた $^{99}\text{Tc}$ の中性子捕獲反応断面積 . . . . .	5 7

## 図リスト

図1	中性子捕獲ガンマ線スペクトル測定実験の際の各装置の配置略図	4
図2	ペレトロン加速器に搭載されているパルス化装置の概念図	6
図3	中性子ターゲット系の略図	8
図4	実験に用いたコンプトン抑止型NaI(Tl)ガンマ線検出器	12
図5	主NaI(Tl)検出器の出力波高分布の略図	13
図6	宇宙線バックグラウンドに注目して測定したバックグラウンド波高分布	15
図7	$^{19}\text{F}(\text{p}, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$ 反応から発生するガンマ線を測定して得られた波高分布	18
図8	$^{27}\text{Al}(\text{p}, \gamma)^{28}\text{Si}$ 反応から発生するガンマ線を測定して得られた波高分布	19
図9	応答関数の分解の概念図	20
図10	ガンマ線検出器の全エネルギー・ピーク分解能	22
図11	ガンマ線検出器の応答関数の例	25
図12	ガンマ線波高分布をアンフォールディングした例	26
図13	ガンマ線検出器の測定回路	27
図14	中性子検出器の測定回路	28
図15	中性子T OFスペクトル	35
図16	小型 $^6\text{Li}$ ガラス検出器の中性子検出効率	36
図17	中性子エネルギー10~100keVの実験の際の入射中性子エネルギー・スペクトル	37
図18	ガンマ線検出器で測定されたT OFスペクトル (Tc-run)	38
図19	ガンマ線検出器で測定されたT OFスペクトル (Au-run)	39
図20	ガンマ線検出器で測定されたT OFスペクトル (Al-run)	40
図21	ガンマ線検出器で測定されたT OFスペクトル (Blank-run)	41
図22	ガンマ線検出器で測定されたフォアとバックの波高スペクトル (DW1)	43
図23	ガンマ線検出器で測定されたフォアとバックの波高スペクトル (DW2)	44
図24	ガンマ線検出器で測定されたフォアとバックの波高スペクトル (DW3)	45
図25	ガンマ線検出器で測定されたTcの正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル (DW1)	46
図26	ガンマ線検出器で測定されたTcの正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル (DW2)	47
図27	ガンマ線検出器で測定されたTcの正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル (DW3)	48
図28	ガンマ線検出器で測定されたAuの正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル (DW2)	49
図29	$^{99}\text{Tc}$ の中性子捕獲反応断面積	58

## 1 はじめに

中性子核反応断面積は原子力開発に必要不可欠なデータであり、これまでに非常に多数の研究者が膨大な時間を費やしてこのデータベースの整備を行ってきた。その集大成が我国の J E N D L - 3 . 2 (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) であり、米国の E N D F / B - VI (Evaluated Nuclear Data File) 等である。これまでの軽水炉の実用化及び高速増殖炉の開発に限れば、異論もあるが、これらのデータベースに格納されている核種の種類及びデータの精度は充分と考えられる。

しかし、格納されているデータの精度が全て良いわけではなく、一般に、測定が容易でない断面積に対する格納データの精度は悪い。測定が容易でない断面積とは、

(1) 小さい断面積、

(2) 天然同位体存在比の小さい核種の断面積、

(3) 放射性核種の断面積、

等である。(2)は化学的及び同位体的に純度の良い試料の調達が難しいことに原因がある。(3)については、(2)の原因とともに、測定用試料からの放射線バックグラウンドに原因があり、最も測定が難しいと言える。精度の悪かった極端な例としては、核分裂生成物 (F P) で半減期 2 8 . 8 年の放射性核種<sup>90</sup>S r の熱中性子捕獲断面積がある。J E N D L - 3 . 1 では 1 9 6 0 年代の測定値  $0 . 9 \pm 0 . 5 \text{ b}^{11}$  を採用していたが、1 9 9 4 年春に公開された J E N D L - 3 . 2 では、近年の測定結果<sup>2, 3)</sup>を採用し、 $0 . 0 1 5 \text{ b}$  と修正された。実に  $1 / 6 0$  の値である。

現在、長寿命核分裂生成物 (L L F P) 及びマイナー・アクチニド (M A) を使用済み核燃料から分離し、現在開発中の高速増殖炉あるいは新しい概念の専焼高速炉の炉心に戻し、その核変換処理を図る研究が活発に行なわれている。この際、対象とする高速炉の L L F P · M A 核変換性能及び炉心特性を評価するためには、L L F P の中性子捕獲反応断面積及び M A の核分裂反応断面積並びに中性子捕獲反応断面積が重要となる。従って、k e V 中性子領域における L L F P 及び M A のこれらの反応断面積の精度良いデータが必要となる。

しかし、L L F P 及び M A は全て放射性核種であり、前述のように、これらの核反応断面積測定は容易ではない。従って、J E N D L - 3 . 2 あるいは E N D F / B - VI 等のデータ・ライブラリに格納されている L L F P 及び M A に関するデータの精度は良くないと考えられる。このことから、L L F P 及び M A に関するこれらの核反応断面積を精度良く測定することは、L L F P 及び M A の核変換処理研究に必要不可欠な高精度核データ・ベースの構築のために非常に重要である。

k e V 領域における M A の核分裂反応断面積と L L F P 及び M A の捕獲反応断面積の測定データを比較すると、実効しきいエネルギー以下の核分裂反応断面積が非常に小さい領域を除い

て、核分裂反応断面積データの方が精度が良いと考えられる。これは、核分裂反応実験においては、

- (a) 必要な測定用試料の量が 1 mg 以下（捕獲実験の場合の 1 / 1 0 0 0 以下）であり、純度の良い試料を比較的調達し易く、
- (b) 測定しようとする核分裂事象を、放射性試料の自然崩壊から放出される放射線バックグラウンドから弁別し易い、

からである。また、実効しきいエネルギー以下の核分裂反応断面積が小さい領域では、捕獲反応が主たる核変換反応である。従って、LLFP 及び MA の核変換処理研究においては、核分裂反応断面積データの精度向上にも増して、中性子捕獲反応断面積データの精度向上が非常に重要と言える。

我々は 10 年間以上にわたって keV 中性子捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルの測定を行なっている。この間、中性子源及びガンマ線検出器等の実験装置の改良を重ねてきた。その結果、現在の我々の実験装置は、FP 及び MA 領域の核種の keV 中性子捕獲反応断面積については、0.2 b · g 程度の感度を有している。即ち、例えば 1 b 程度の捕獲反応断面積を有する LLFP 及び MA 核種については 0.2 g 程度の測定用試料で測定可能である。勿論、もっと充分な試料（数倍程度）が用意できれば、より精度の良い測定結果を得ることができる。

本研究の対象核種である  $^{99}\text{Tc}$  は核分裂生成物として原子炉内で生成され、その累積核分裂収率が大きく ( $^{235}\text{U}$  の熱中性子核分裂で 6.11%<sup>4)</sup>、 $^{233}\text{Pu}$  の高速中性子核分裂で 5.98%<sup>4)</sup> )、また、半減期が 21 万年と長いので、LLFP 核変換処理研究の中で最も重要な核種の一つであり、中性子捕獲反応断面積の精度良い測定が望まれている。

本研究では、我々の実験装置を用いて、 $^{99}\text{Tc}$  の中性子捕獲反応断面積を入射中性子エネルギー 10 ~ 600 keV の領域で精度良く測定することを目的とした。

## 2 実験装置及び実験方法

### 2. 1 実験の概要

ここでは、本研究で行なわれた実験のあらまし及び以後に述べられる各実験装置の役割と関連について述べる。

実験は全て東京工業大学原子炉工学研究所に設置されている広領域線質放射線照射実験室で行なわれた。中性子捕獲ガンマ線測定の際の実験配置略図を図1に示す。当実験室に設置されている3UH-HC型ペレトロン粒子加速装置（ペレトロンと略す）によって加速されたパルス陽子ビーム（パルス幅：約1.5ns、繰り返し周波数：2あるいは4MHz）は、真空排気されたビーム延長管中を飛行し、キャパシティブ・ピックオフ（capacitive pick off）を通過し（パルス陽子ビームが通過するときに電気信号を発生し、この信号がパルス実験の時間基準となる）、延長管終端に取りつけられているリチウムターゲット（Li-target）に入射する。そして、リチウムターゲット内で、このパルス陽子ビームによる $'Li(p, n)'Be$ 反応によって、パルス化された中性子が発生する。中性子は、リチウムターゲットの下流（陽子ビームの流れに対して）11.8あるいは19.8cmに置かれた測定用試料に入射し、試料中の原子核と（n, n）反応や（n,  $\gamma$ ）反応等を起こす。（n,  $\gamma$ ）反応から発生したガンマ線は、入射中性子に対して125°方向、試料から87cmに置かれた15.2cm $\phi$  × 20.3cmのNaI(Tl)検出器で測定される。この検出器は、周りをコンプトン除去用大型環状NaI(Tl)検出器で囲われており、anti-Compton spectrometerとして使用される。又、この検出器は、ホウ酸入りパラフィン、ホウ酸入りポリエチレン、カドミウム、鉛、及び $'LiH$ で構成されている重遮蔽体内に設置されており、実験室中の中性子及びガンマ線のバック・グランドから遮蔽されている。尚、試料に入射する中性子の数及びエネルギー・スペクトルは、陽子ビームに対して3.6°方向でリチウムターゲットから約30cmあるいは約4.6mの位置に置かれた $'Li$ -ガラス・シンチレーション検出器でモニターされた。

上で述べたように、今回の実験では、捕獲ガンマ線の測定は125°方向で行なったが、これは以下の理由による。

捕獲ガンマ線は主にE1あるいはM1遷移によると考えられる。ところで、E1あるいはM1ガンマ線強度の角分布はLegendre多項式の $P_0$ と $P_2$ だけで表現できる（E1とM1が干渉しない場合）。ここで、 $P_0$ は定数であり、又、 $P_2$ は55°と125°でゼロとなり、更に、角度積分もゼロである。従って、このいずれかの角度で捕獲ガンマ線の二重微分断面積（ガンマ線エネルギーと立体角について）を測定すれば、測定値に $4\pi$ を掛けることにより、精度良くエネルギー・スペクトルを得ることができる。実験上、125°の方がSN比が良いので、この角度を選択した。

一般に、高速中性子実験ではパルス実験がしばしば行なわれるが、本実験でもこれを採用した。 $keV$ 領域の中性子捕獲ガンマ線スペクトル測定において一番問題になるのは、バック・グランドを如何に差し引くかである。リチウムターゲット中性子源から発生した $keV$ 中性子は、床、壁、天井等で散乱されて減速し、実験室内は熱中性子の「海」となる。中性子捕獲

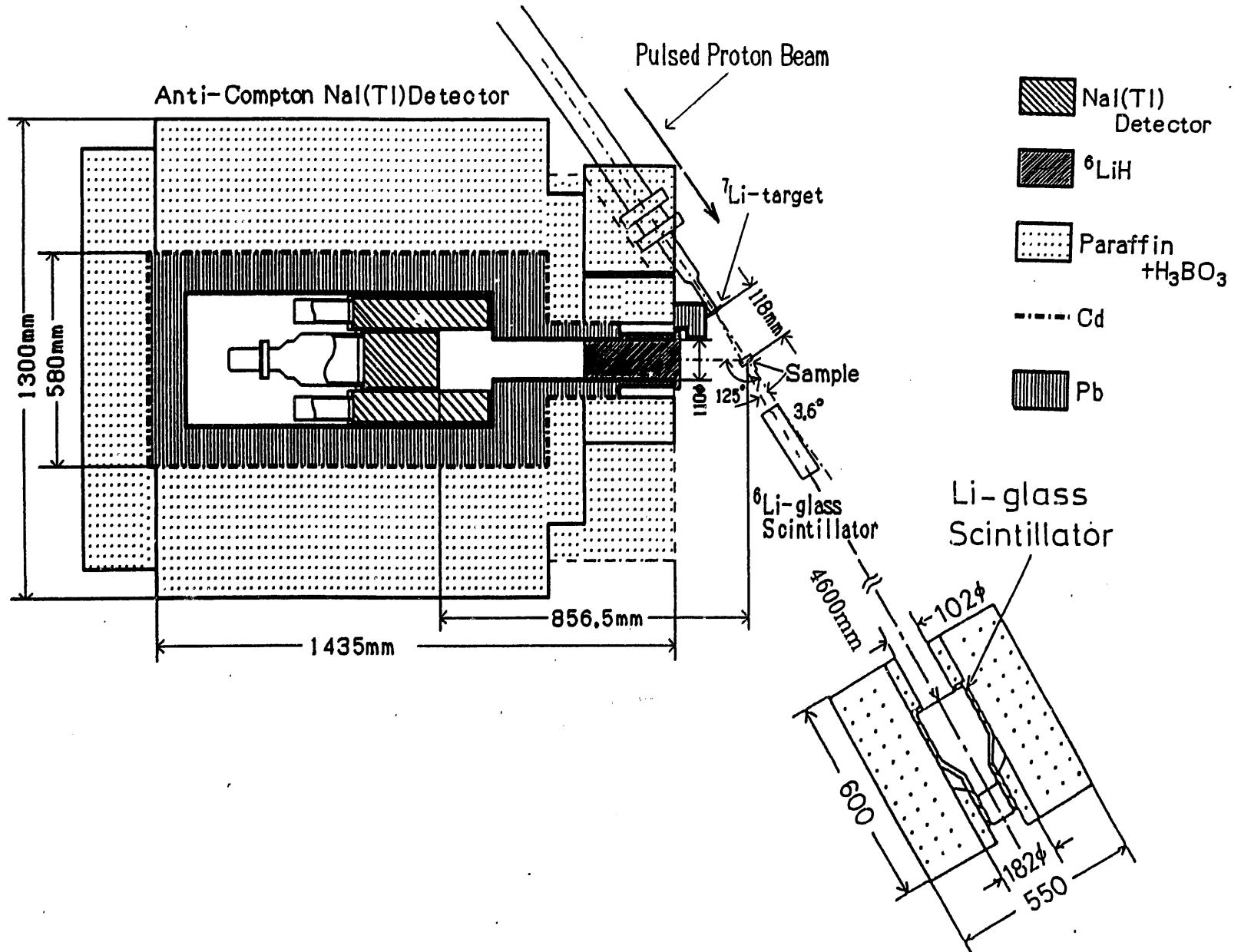


図. 1 中性子捕獲ガンマ線スペクトル測定実験の各装置の配置略図。

断面積は  $k\text{ eV}$  墓域よりも熱墓域の方が桁違いに大きいので、図 1 に示したような重遮蔽体を用いて如何にうまく遮蔽を行なっても、試料や実験室の構造物による熱中性子捕獲ガムマ線を完全に除去することはできない。又、ガムマ線検出器に入射するバック・グランド中性子も完全には除去できない（バック・グランド中性子が  $\text{NaI}(\text{Tl})$  検出器に入射すると、主に、 $^{127}\text{I}(n, \gamma) ^{128}\text{I}$  反応によるガムマ線及び生成された  $^{128}\text{I}$ （半減期 25 分）から放出されるベータ線によるバック・グランドが生じる）。しかし、熱中性子によるバック・グランド事象は、短い時間内ではランダムに起こると考えられるので、 $k\text{ eV}$  中性子をパルス状に発生させれば、主として試料内で  $k\text{ eV}$  中性子捕獲反応が起こる時間領域とバック・グランド事象だけが起こる時間領域を分けることができる。そして、これら両方の時間領域内でガムマ線波高分布を測定し、前者の領域で得られた波高分布から後者の波高分布を差し引けば、試料による  $k\text{ eV}$  中性子捕獲ガムマ線波高分布を得ることができる。又、パルス実験の場合、中性子源から発生した中性子のエネルギーとエネルギー幅を容易に測定することができる。即ち、中性子が一定の距離を飛行する時間及びその飛行時間分布の幅を測定すれば、各々の値を得ることができる。この様にして中性子のエネルギーと幅等を測定する方法を、飛行時間法 (time-of-flight method) と呼ぶ（上記のバック・グランドの決定の際にも、具体的には、中性子源から試料までの中性子飛行時間を情報として用いるので、一種の飛行時間法を用いていると言える）。本実験でもこの方法で発生中性子のエネルギーと幅の測定を行なった。

## 2. 2 パルス中性子源

パルス陽子ビームの加速には、米国 nec 社 (national electrostatic coporation) 製の 3UH-HC ベレトロン加速器を用いた。ベレトロンは Van de Graaff 型加速器で、電荷の運搬に、ゴム・ベルトの代わりに、ステンレス製のペレットをナイロンでつなげたチェーンを用いている。加速管はチタン製電極とセラミックス（アルミナ製）の絶縁体から成っており、その接合には有機物が用いられていない。従ってアウト・ガスが少ないので、加速管内に高真真空が得られ易く、重イオンの加速も容易に行なうことができる。イオン源としては、nec 社製のデュオ・プラズマトロン (duoplasmatron) を我々で改良したものを用いている。イオン源と加速管の間には、図 2 に示す様に、エインツェル・レンズ (einzel lens)、パルス化装置、速度弁別器、 $2\text{ mm}$   $\phi$  アバーチャー及びドリフト管 (drift tube) 等が設けられている。パルス化装置は、スウィープ (sweep)、DC バイアス (DC bias)、ポップ (pop)、及びバンチャー (buncher) の各ユニットから成り、クライストロン・バンチング (klystron bunching) 法によりパルス化が行なわれている。バンチャー・カップを通過した  $\text{H}^+$  ビームは、レンズ作用の殆どないドリフト管によって約  $60\text{ keV}$  まで加速された後、加速管に入射する。 $\text{H}^+$  ビームがバンチャー・カップを通過してからビーム延長管の終端に取りつけられているリチウムターゲットに到達するまでの時間の約 7割がドリフト管内で消費されるので、 $2\text{ mm}$   $\phi$  アバーチャーでショップされたビームのバンチング (bunching) の殆どはドリフト管内で行なわれるが、最終的にリチウムターゲット上では  $\text{H}^+$  ビームは約  $1.5\text{ ns}$  (FWHM) にバンチ

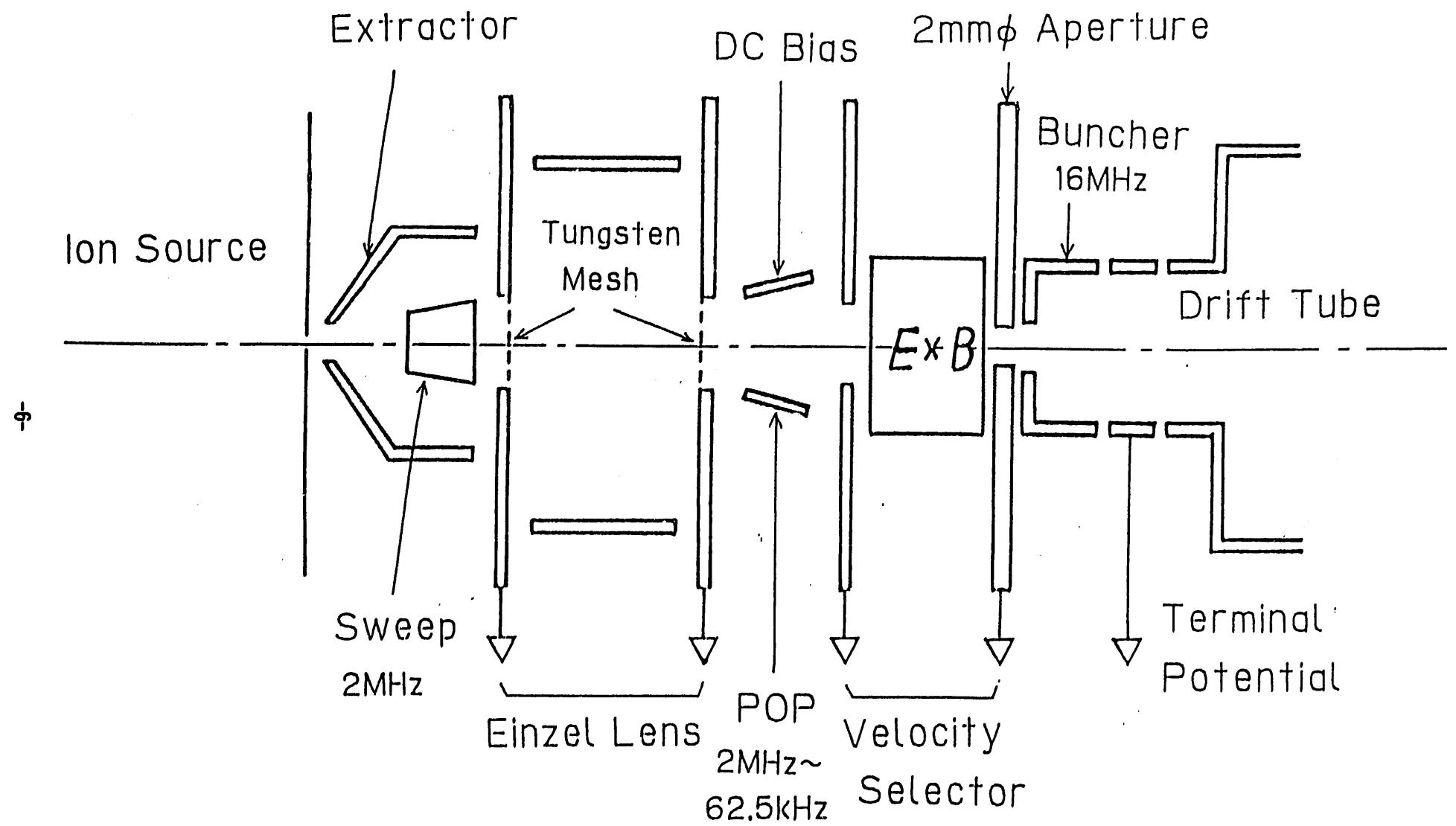


図.2 ベレトロン加速器に搭載されているパルス化装置の概念図。

ングされる。

加速管を出てからリチウムターゲットまでの約20mの間はビーム延長管でつながっており、ビーム延長管内は、三台の軸流分子ポンプと二台のチタン・ゲッター・ポンプによって、高真空に保たれている。又、この間、レンズとして二台の四重極電磁石、ビームの軌道修正用の四台のステアリング (steering) 電磁石、ビームのエネルギー分析のための電磁石が設けられており、これらを制御することによって、ビームを終端のリチウムターゲットまで導くことができる。尚、ビーム延長管の途中には、ビームの形状を測定するビーム・プロファイル・モニター (beam profile monitor) 、ビーム電流を測定するリムーバブル・ファラデー・カップ (removable Faraday cup) 、ビームの径を制限するスリット (slit) 等も幾つか設けられている。リチウムターゲットに入射するパルス陽子ビーム平均電流は約6~12μAであった。

中性子ターゲット系はリチウムターゲットとターゲット・ホールダー (target holder) から構成されるが、その様子を図3に示す。ターゲット系は絶縁フランジによってビーム延長管から電気的に浮いている。又、絶縁フランジの上流側には7mmφのタンタル製アーチャーが取りつけられて、リチウムターゲットに入射する陽子ビームの幾何学的範囲が制限されている。全体として良いファラデー・カップとなっており、電流計に接続され、リチウムターゲットに入射するパルス陽子ビーム電流は常にモニターされている。散乱中性子の発生を極力防ぐため、ターゲット・ホールダーの主要部分は1mm厚のステンレス・スチールで製作した。又、構造材の全体の量を減らすためと、リチウムターゲットからタンタル製スリット板を見る立体角を小さくするために（エレクトロン・サブレーション電圧をかけなくても良いファラデー・カップであるために）、ホールダーの直径を極力小さくした。

リチウムターゲットは、金属リチウムを0.4mm厚の銅板バッキングに真空蒸着したものである。金属リチウムの真空蒸着は実験室の試料作成室中にある真空蒸着装置を用いて行ない、蒸着後は真空のままで十分冷やし、その後、乾燥窒素ガスで蒸着装置の真空を破り、乾燥窒素ガス雰囲気のまま素早くリチウムターゲットを運び、そして、ターゲット・ホールダーに装着しながら素早くターゲット系を真空に引く。この様にすると、リチウムターゲットの厚さを入射陽子のエネルギー損失 (keV) で計った場合（このエネルギー損失が発生中性子のエネルギー幅におよそ比例する）、同じ厚さのターゲットで比較して、最も単位面積当たりのリチウム原子核数が多く、結局中性子発生量が最も多くなる。例えば、リチウムターゲットを空気中に暫く晒すと、リチウムは酸化リチウムあるいは水酸化リチウムにすぐに変化し、ターゲットの厚さは数倍に増してしまい、発生中性子のエネルギー幅も数倍になる。

リチウムターゲットの冷却は、水の流れを銅バッキングの大気側に作ることによって行った。陽子ビーム電流15μA程度では、この冷却方法によってリチウムターゲットの劣化がかなり抑えられる事が確認されている。

$'Li(p, n)'Be$ 反応のしきいエネルギーは1.881MeVであり、又、残留核である $'Be$ が第一励起状態 (478keV) に励起する $'Li(p, n)'Be*$ 反応のしきいエネルギーは2.378MeVである。ここで、前者の反応から発生する中性子を $n_1$ 、後者の反応からのものを $n_2$ と呼ぶことにする。入射陽子エネルギーが1.881MeVのとき、簡単な運動学から分かるが、エネルギー30keVの $n_1$ が陽子ビームに対して0°方向のみに発

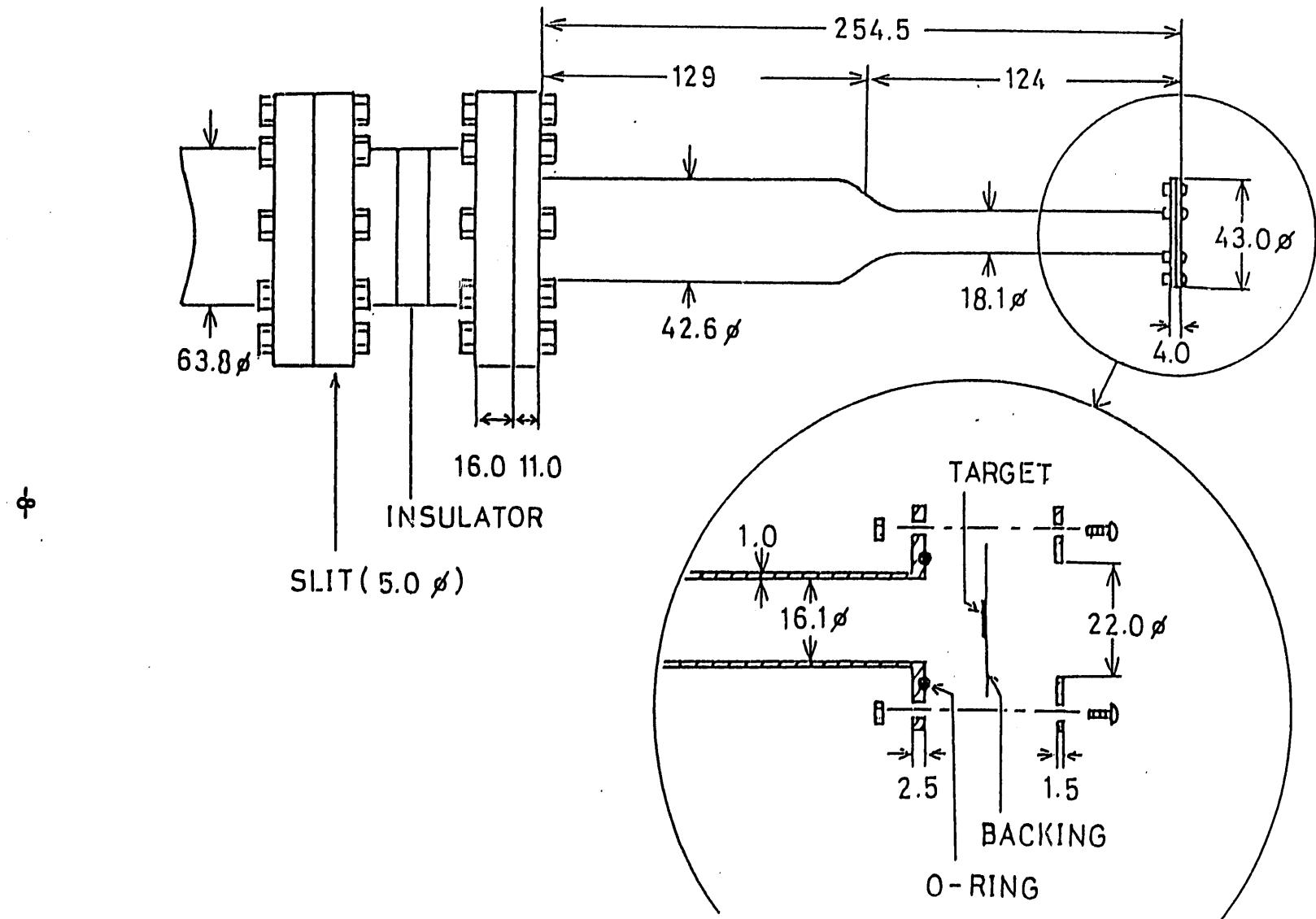


図.3 中性子ターゲット系の略図。ターゲット系は絶縁フランジによって電  
気的に浮いており、全体で良いファラデー・カップに成っている。

生する。入射陽子エネルギーを上げていくと、 $n_0$  は  $0^\circ$  軸を中心軸としたコーン (cone) 内に発生するようになり、陽子エネルギーの増加と共にコーンの頂角は広がってゆく。リチウムターゲットが無限に薄い場合は、このコーン内の任意の角度方向 ( $\theta$ ) には二種のエネルギー（夫々を  $E_{\alpha 1}$  と  $E_{\alpha 2}$ 、但し  $E_{\alpha 1} > E_{\alpha 2}$  とする）の  $n_0$  が発生する。リチウムターゲットが厚い場合は、ターゲット内で陽子エネルギーが連続的に減少するので、 $\theta$  方向にはエネルギー分布が  $E_{\alpha 1} \sim E_{\alpha 2}$  で連続的な  $n_0$  が発生する。陽子エネルギーが  $1.921 \text{ MeV}$  になると、 $n_0$  は全角度に発生するようになり、エネルギーは角度によって定まったものになる。従って、陽子エネルギーが  $1.921 \sim 2.378 \text{ MeV}$  の範囲では、リチウムターゲットの厚さを適切に選ぶことにより、任意の角度方向に単色エネルギーの中性子を発生させることができる。このときの中性子エネルギー幅は、勿論、リチウムターゲットの厚さによって決まる。この陽子エネルギー範囲は、 $0^\circ$  方向の中性子エネルギーでは  $120 \sim 650 \text{ keV}$  の範囲に対応する。更に陽子エネルギーを上げていくと、上記の  ${}^7\text{Be}^*$  ( $478 \text{ keV}$ ) を残留核とする反応のチャネル (channel) が開き、 $n_1$  が発生するようになる。 $n_1$  の空間及びエネルギー分布も、 $n_0$  について上で述べたのと同様な状況をたどる。従って、例えば、入射陽子エネルギーが  $2.5 \text{ MeV}$  でリチウムターゲットが薄いとき、 $0^\circ$  方向には  $786 \text{ keV}$  の  $n_0$  と  $260 \text{ keV}$  の  $n_1$  が発生する。

## 2. 3 ガンマ線検出器の遮蔽体

前に述べたように、高速中性子実験では、ガンマ線検出器のバック・グランド信号を低減させるため、実験室内に充满している散乱中性子や中性子源から直接ガンマ線検出器に入射する中性子を十分に遮蔽する必要がある。又、自然バック・グランドのガンマ線や構造材の散乱中性子捕獲ガンマ線も遮蔽する必要がある。

バック・グランド中性子に対する遮蔽材の適切な選択は、実験に用いられる中性子のエネルギー範囲に依存するが、経済的理由によって、水素化合物を含んだ遮蔽材（含水素遮蔽材と略す）がしばしば用いられている。含水素遮蔽材中では、中性子は水素の原子核である陽子と衝突を繰り返して減速し、そして、遮蔽材にまぜられている吸収材によって吸収される。

この中性子吸収材としてリチウム化合物がよく用いられるが、これは、ガンマ線を発生しない  ${}^7\text{Li} (n, \alpha) {}^3\text{H}$  反応によって、リチウム原子核は熱中性子を吸収するからである。しかし、リチウム化合物を含んだ含水素遮蔽材は水素原子数密度が小さいので、検出器を高速中性子から十分に遮蔽するためには多量の遮蔽材が必要となる。水素原子数密度が小さくなるのは、 ${}^7\text{Li}$  の天然存在比が  $7.5\%$  と小さく、又、熱中性子に対する  ${}^7\text{Li} (n_{\gamma}, \alpha) {}^3\text{H}$  反応断面積が  $940 \text{ b}$  と小さいので、効果的に熱中性子を吸収するためには多量のリチウム化合物を遮蔽材にまぜる必要があり、その結果、遮蔽材の水素原子数密度が低下することによる。

一方、熱中性子吸収反応として工業的によく用いられる  ${}^{10}\text{B} (n_{\gamma}, \alpha) {}^7\text{Li}$  反応を考えてみると、断面積は約  $3800 \text{ b}$  で  ${}^7\text{Li} (n, \alpha) {}^3\text{H}$  反応断面積の約 4 倍大きく、又、 ${}^{10}\text{B}$  の天然存在比も  $20\%$  と  ${}^7\text{Li}$  の存在比より約 3 倍大きい。従って、同じ熱中性子吸収効果を得る

ためには、遮蔽材中の原子数密度で比較して、ボロンはリチウムの約1/10の量を遮蔽材に加えればよいことになる。そうすると、ボロン化合物を含む含水素遮蔽材の水素原子数密度は大きくなり、高速中性子の遮蔽能力は増す。

ボロンを含んだ遮蔽材の唯一の欠点は、 $^{10}\text{B}$  ( $n, \alpha$ )  $^7\text{Li}$  反応から  $0.48\text{ MeV}$  ガンマ線が発生することである。この欠点が、ボロンを含んだ遮蔽材が、ガンマ線検出器の主遮蔽材として、これまで用いられなかつた理由である。しかし、含水素遮蔽材を用いる限り、 $^1\text{H}$  ( $n, \gamma$ ) D 反応から発生する  $2.2\text{ MeV}$  ガンマ線が遮蔽材中に常に存在し、このガンマ線を鉛等の遮蔽材で遮蔽する必要がある。これら二種類のガンマ線の鉛による減衰を考えると、 $10\text{ cm}$  厚の鉛によって、 $0.48\text{ MeV}$  ガンマ線は  $10^{-6}$  のオーダーに減衰するが、 $2.2\text{ MeV}$  ガンマ線は  $10^{-2}$  のオーダーにしか減衰しない。従つて、もし  $10\text{ cm}$  厚程度の鉛遮蔽材が用いられるならば、 $0.48\text{ MeV}$  ガンマ線によるバック・グランド・レベルは  $2.2\text{ MeV}$  ガンマ線によるものよりも低くなることが予想される。

このような状況を踏まえて、我々の研究室では、高速中性子実験に用いる中性子遮蔽材としてオルト・ホウ酸 ( $\text{H}_3\text{BO}_3$ ) 入りパラフィン ( $\text{CH}_3$ ) を選び、一次元の中性子-ガンマ線結合輸送計算によって遮蔽効果の定量的検討を重ね、最適な遮蔽体の設計及び制作を行つた<sup>6)</sup>。本実験においても、この遮蔽体を用いた。

遮蔽体は大型ゴニオメータ (goniometer) の動径方向台車の上に設置されており、この台車は更にゴニオメータの角度方向台車の上に置かれている。角度方向台車は、測定用試料の位置を軸として（図1参照）、試料に入射する中性子の方向に対して  $-45^\circ \sim 160^\circ$  の範囲で動かすことができ、又、動径方向台車は角度方向台車の上を直線的に約  $4\text{ m}$  の範囲を前後させることができる。このゴニオメータによって、ガンマ線検出器の測定角度及び位置の設定が容易に行なうことができる。

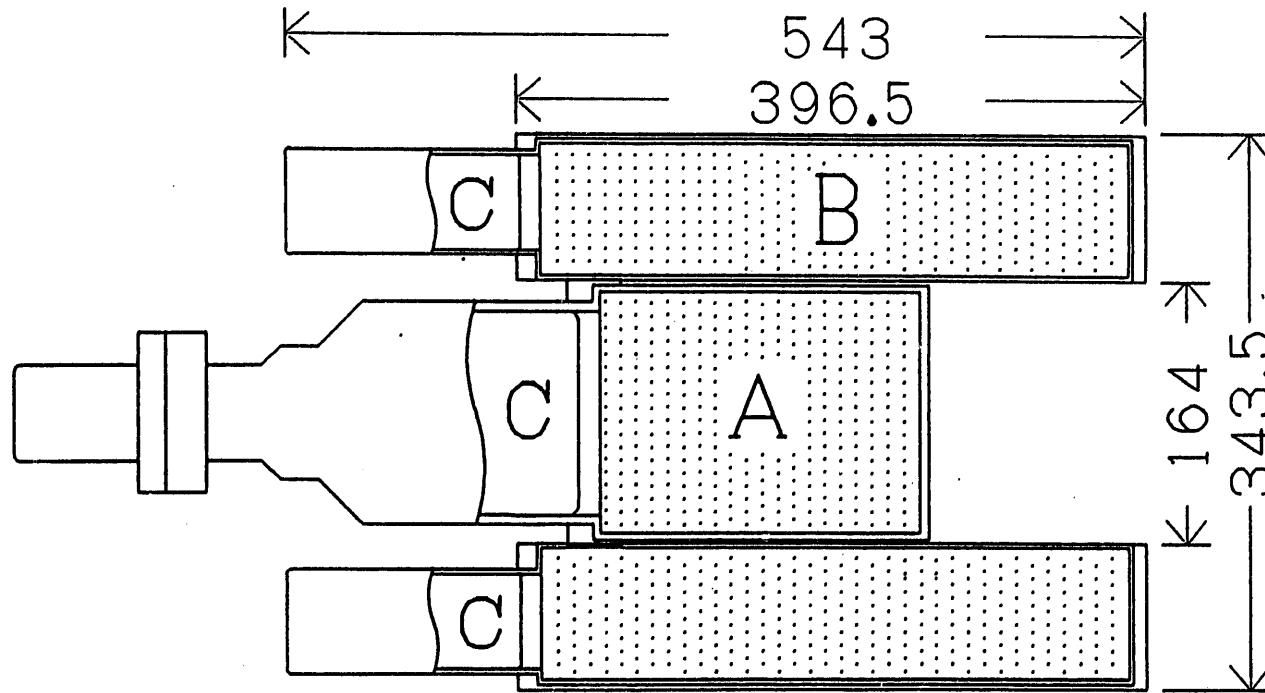
ガンマ線検出器のバック・グランドの他の主因の一つは、測定用試料によって散乱されて検出器方向に向かう中性子がある。この中性子を遮蔽するためには、ガンマ線用コリメータ内に中性子遮蔽材を挿入する必要がある。しかし、一般に、中性子遮蔽材はガンマ線も遮蔽するので、コリメータ内に挿入する遮蔽材としては、中性子を非常に良く遮蔽してガンマ線をあまり遮蔽しないものを選ぶ必要がある。更に、この遮蔽材は中性子を吸収した際にガンマ線を殆ど放出しないものでなければならぬ。この様な遮蔽材としては  $^6\text{LiH}$  がある。本遮蔽体にも、この  $^6\text{LiH}$  遮蔽材が用いられている。 $^6\text{LiH}$  は米国オークリッジ研究所から購入したもので、 $^6\text{Li}$  が  $93\%$  に濃縮されている。約  $1,200\text{ g}$  の  $^6\text{LiH}$  を、内側をラッカーで塗られているアルミニウム製容器に密閉した状態で使用している。（ $^6\text{LiH}$  は生体に対して非常に有害である。）

## 2. 4 ガンマ線検出器とその特性

### 2. 4. 1 ガンマ線検出器の構成と動作原理

本実験では、ガンマ線検出器としてコンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器を用いたが、この略図を図4に示す。図から分かる様に、本検出器は主検出器(A)及び大型環状検出器(B)の2台のNaI(Tl) 検出器から構成されている。主検出器は、 $15.2\text{ cm}\phi \times 20.3\text{ cm}$  の円柱形結晶を5インチ光電子増倍管に直接接合したインテグラル型であり、良いエネルギー分解能が得られる様になっている。又、検出器ケースの結晶の周りの部分は $0.8\text{ mm}$ 厚のアルミニウムからできており、結晶から逃れたコンプトン散乱線や $0.511\text{ MeV}$ 消滅ガンマ線（これらのガンマ線をコンプトン除去用検出器で検出することになる）がなるべく周りの検出器構造材で吸収されない様に工夫されている。大型環状検出器の結晶は、外径 $33.0\text{ cm}$ 、内径 $17.2\text{ cm}$ 、長さ $35.6\text{ cm}$ の円筒形をしており、十個の2インチ光電子増倍管が取り付けられてある。検出器ケースの内側円筒面部分は $0.8\text{ mm}$ 厚のアルミニウムからできており、主検出器から逃れたコンプトン散乱線等を検出器構造材で極力吸収しないように設計されている。

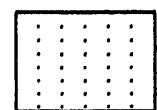
良く知られている様に、ガンマ線と物質の相互作用過程としては、光電効果、コンプトン散乱、及び電子対生成（しきいエネルギーは $1.02\text{ MeV}$ ）の三種類がある。前述の主検出器のNaI(Tl) 結晶中でもこの三種類の相互作用が起こり、その結果、主検出器の出力波高分布は図5(a)あるいは図5(b)の実線で示した様な複雑なものになる。図5(a)は入射ガンマ線エネルギー約 $1\text{ MeV}$ のときの出力波高分布の略図であり、光電効果による全エネルギー・ピーク (full energy peak) とコンプトン散乱によって生じた部分からなっている。図5(b)は入射ガンマ線エネルギー約 $4\text{ MeV}$ のときの波高分布の略図であり、主に電子対生成による全エネルギー・ピーク、 $0.511\text{ MeV}$ 消滅ガンマ線が一つ逃れて生じたシングル・エスケープ・ピーク (single escape peak)、 $0.511\text{ MeV}$ 消滅ガンマ線が二つ逃れて生じたダブル・エスケープ・ピーク (double escape peak)、及びコンプトン部分からなっている。ところで、全エネルギー・ピークを形成しない事象では、コンプトン散乱線あるいは $0.511\text{ MeV}$ 消滅ガンマ線が必ず主検出器の結晶から外側に逃れ出てくる。従って逆に、これらのガンマ線が周りのコンプトン除去用検出器で検出された場合、主検出器の出力信号は全エネルギー・ピークを形成しない信号である。そこで、コンプトン除去用検出器から出力信号が生じた場合は主検出器からの出力信号を捨てることにすると（非同時計数）、理想的には、全エネルギー・ピークを形成する信号のみが残り、非常に単純な波高分布となる。この様な工夫がなされたガンマ線検出器をコンプトン抑止型検出器と呼ぶ。実際には、コンプトン除去用検出器のガンマ線検出効率が $100\%$ ではないので（立体角も含めて）、全エネルギー・ピークのみにはならないが、図5中の点線で示した様な全エネルギー・ピークが強調された単純な形の波高分布となる。尚、図5(b)でダブル・エスケープ・ピークが極端に抑えられているのは、 $0.511\text{ MeV}$ 消滅ガンマ線が二つ共コンプトン除去用検出器で検出されない確率は非常に小さいからである。



A 152φ×203 NaI(Tl)Detector

B Large annular NaI(Tl)Detector

C Photo multiplier



NaI crystal

図.4 実験に用いたコンプトン抑止型NaI(Tl)ガンマ線検出器

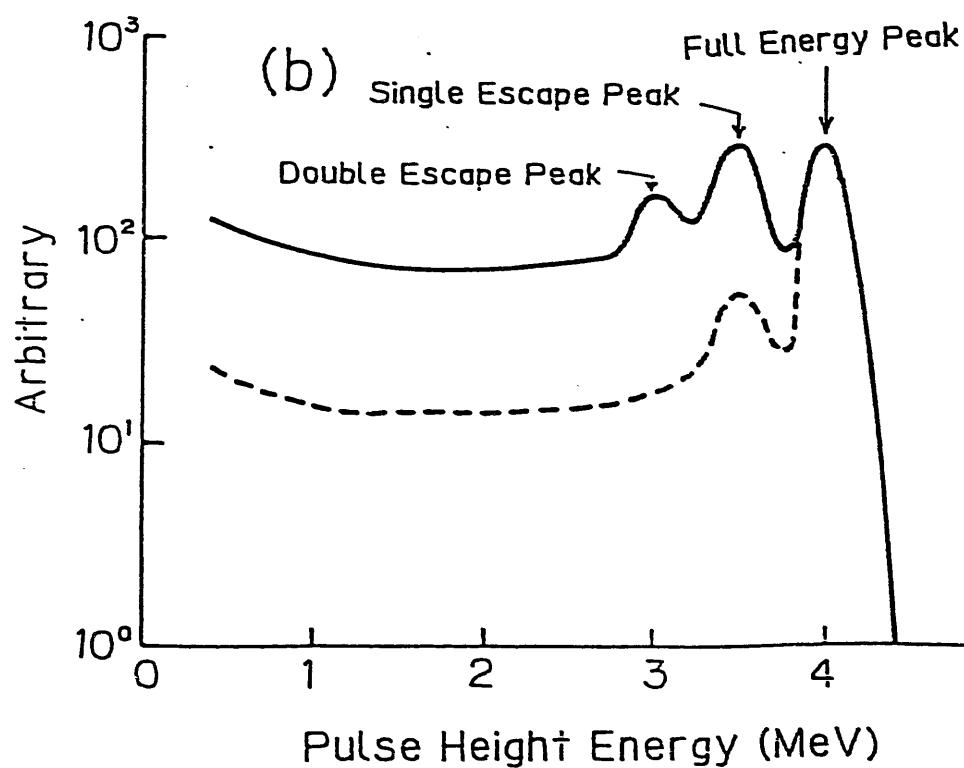
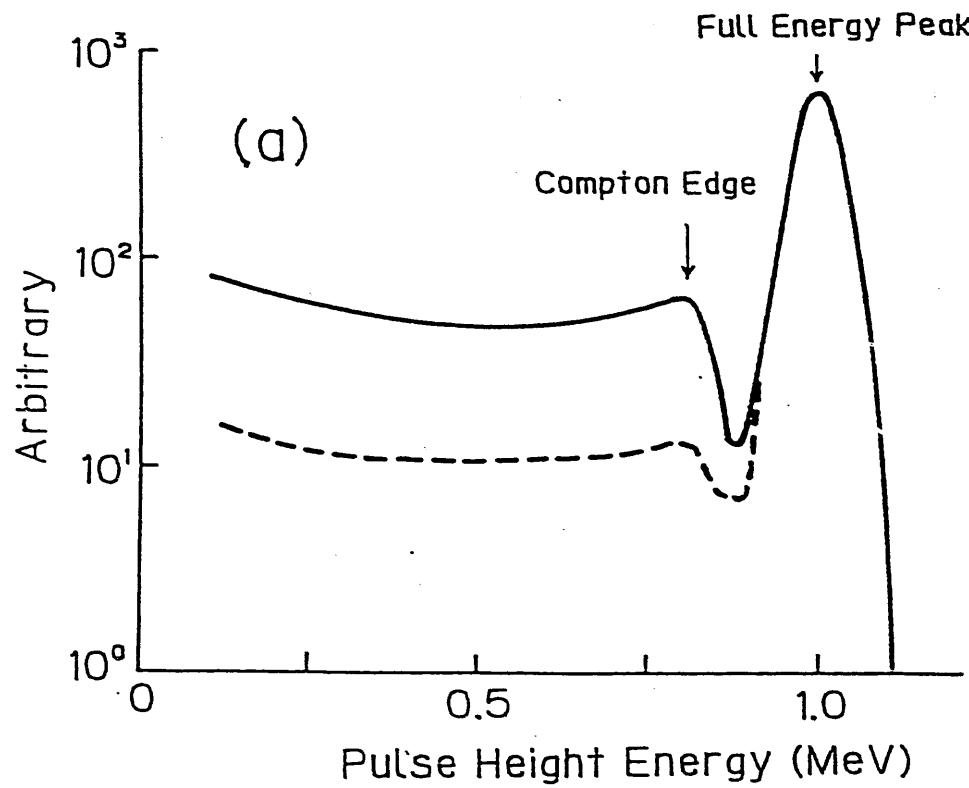


図. 5 主NaI(Tl)検出器の出力波高分布の略図(実線)。(a) $E_T \approx 1$  MeVの  
ガンマ線が入射した場合、(b) $E_T \approx 4$  MeVのガンマ線が入射した場合。コンプトン  
抑止型検出器として用いると点線の様な波高分布となる。

更に、コンプトン除去用検出器は、宇宙線バック・グランドを低減させる働きもする。図6は、宇宙線に注目して、主検出器の光電子増倍管の印加電圧を通常より下げて、約100MeVまでの波高分布を観測したものである。地表に到達する宇宙線の多くは、GeV領域の $\mu$ 粒子である。荷電粒子である $\mu$ 粒子は、物質中を通過する時には必ずエネルギーを損失するので、主NaI(T1)検出器の $\mu$ 粒子検出効率は約100%である。又、天頂方向からやって来る1GeVの $\mu$ 粒子が主NaI(T1)検出器内で失うエネルギーは、 $\mu$ 粒子の平均通過距離を12cmとして計算すると、約60MeVである。図6のコンプトン除去を行なわない場合の波高分布中には、この損失エネルギーに対応した所に $\mu$ 粒子によるピークが観測されている。コンプトン抑制型検出器として作動させると、図から分かる様に、殆どの $\mu$ 粒子は天頂方向から来るので、主検出器を通過する $\mu$ 粒子はコンプトン除去用検出器にも検出され、主検出器の $\mu$ 粒子に対応した信号は捨てられることになる。非常に長時間に及ぶ(50~100時間)捕獲ガンマ線スペクトル測定においては、この宇宙線バック・グランドの低減は非常に有益である。

## 2. 4. 2 応答行列

一般に、ガンマ線検出器に単色ガンマ線(エネルギー $E_g$ )が入射した時に得られる出力波高分布 $R(E_g, J)$ ( $J$ は波高で、波高分析器のチャネルと考えて良い)を、その検出器の応答関数と呼ぶ。 $J$ 番目の成分が $R(E_g, J)$ であるベクトル $R_{Eg}$ を定義すると、応答関数はこのベクトルで表現されることになる。ガンマ線エネルギー $E_g$ を離散化して $I$ と書き改めると、ベクトルは $R_I$ となり、その成分は $R(I, J)$ となる。次に、 $I$ 行 $J$ 列番目の成分が $R(I, J)$ である行列 $R$ を定義すると、 $R$ はベクトル $R_I$ (応答関数)の集まったものと解釈でき、これを応答行列と呼ぶ。

応答行列は、各行についての和が1となる様に規格化しても、厳密には、検出器固有なものではなく、ガンマ線源と検出器の幾何学的位置関係に依存する。即ち、線源と検出器の位置関係が定まったときに応答行列が定義される。又、このとき、(立体角も含めた)ガンマ線検出効率で規格化された応答行列も定義することができる。今回は、この検出効率も含めた応答行列をデータ処理で用いることにした。各応答関数が分かれれば応答行列は容易に求めることができるが、各応答関数は、実験あるいは計算によって求める必要がある。本研究では、幾つかのガンマ線エネルギー点で応答関数を実験的に求め、これらを内挿することにより各応答関数を求めた。以下、これらの事について述べる。

幾つかの入射ガンマ線エネルギー点での応答関数を実験的に求めるため、表1及び表2に示したガンマ線源を用いて波高分布を測定した。表1中の $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{22}\text{Na}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、及び $^{88}\text{Y}$ の各線源は、放射能強度の分かっている標準線源である。Am-Beは、通常は中性子源として用いられるが、今回は $^9\text{Be}(\alpha, n\gamma)^{12}\text{C}$ 反応からの4.45MeVガンマ線源として用いた。 $^{24}\text{Na}$ (半減期が15.0時間と短い)は $\text{NaCl}$ を中性子で放射化して我々で製造したものである。表2に示したガンマ線発生用共鳴反応は、表に示した各ターゲットをペレトロン加速器からの直流陽子ビームで照射することにより起こさせた。各ターゲットの厚

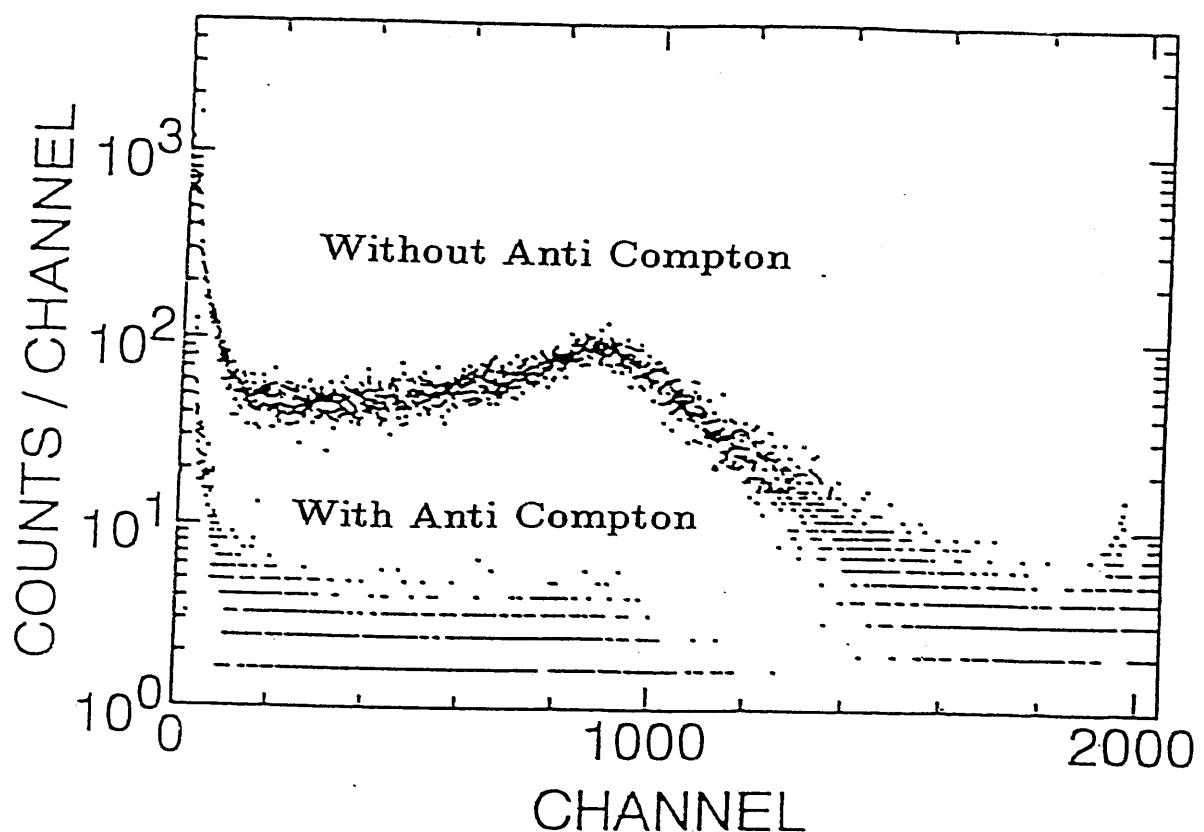


図. 6 宇宙線バックグラウンドに注目して、主NaI(Tl)検出器の光電子増倍管印加電圧を通常より下げて、約100MeVまでの波高分布を測定したもの。コンプトン抑止を行なった場合と行なわなかった場合の両方が示されている。

表1 ガンマ線検出器応答関数の測定に用いたガンマ線源(1)。Am-Beと<sup>24</sup>Na以外は、強度が既知の標準線源である。非常に強度の弱いガンマ線は表に載せていない。

線源	ガンマ線エネルギー(MeV)	発生量(1崩壊当り)
<sup>137</sup> Cs	0.662	0.851
<sup>54</sup> Mn	0.835	1.00
<sup>22</sup> Na	0.511	1.81
	1.275	0.9995
<sup>60</sup> Co	1.173	0.9986
	1.333	0.9998
<sup>88</sup> Y	0.898	0.932
	1.836	0.994
<sup>24</sup> Na	1.369	1.00
	2.754	1.00
Am-Be	4.45	—

表2 ガンマ線検出器応答関数の測定に用いたガンマ線源(2)。強度の弱いガンマ線は表に載せていない。表中、\*が付いているものは複数のガンマ線によって形成されている。

Reactions	Resonance energies (keV)	Target	Gamma-ray energies(MeV) (Relative intensities)
<sup>9</sup> Be(p, γ) <sup>10</sup> B a)	990	Be	7.48 (100), 5.33 (4)
<sup>19</sup> F(p, α γ) <sup>16</sup> O b)	935	CaF <sub>2</sub>	6.13 (76), 7.11 (21)
<sup>27</sup> Al(p, γ) <sup>28</sup> Si c)	992	Al	1.779 (91.5±1.5) 2.84 (5.66±0.40)* 4.7 (18.1±0.5)* 7.93 (7.85±0.56)* 10.76 (75.6±1.6)

a) ref.7) b) ref.8) c) ref.9)

さは、共鳴幅と近傍の共鳴を考慮して決定した。

中性子捕獲ガンマ線スペクトル測定の場合と同じ条件で応答関数を測定するため、検出器を遮蔽体内に納め、検出器とガンマ線源の距離も捕獲ガンマ線測定の時と同じにした。（共鳴反応からのガンマ線を測定する際には、検出器を陽子ビームに対して $0^\circ$ 方向に回わして行なった。）測定回路系も、後で述べる捕獲ガンマ線測定用回路系をそのまま用いた。但し、応答関数測定実験はパルス実験でないので、タイミング信号系は外された。

測定例として、 $^{19}\text{F}$  ( $p, \alpha\gamma$ )  $^{16}\text{O}$  反応と  $^{27}\text{Al}$  ( $p, \gamma$ )  $^{28}\text{Si}$  反応によって得られたガンマ線波高分布を図7及び図8に夫々示す。図7には、コンプトン抑止を行なった場合と行なわなかった場合の両方のスペクトルが示されており、 $^{19}\text{F}$  ( $p, \alpha\gamma$ )  $^{16}\text{O}$  反応から発生する  $6, 13\text{ MeV}$  及び  $7, 11\text{ MeV}$  ガンマ線が観測されている。図8中には多数のピークが観測されているが、この内、 $10, 763\text{ MeV}$  ガンマ線による波高分布が高エネルギー・ガンマ線用応答関数の作成のために直接的に用いられた。他のガンマ線によるピークは、応答関数の全エネルギー・ピークの相対検出効率を決定するために用いられた。ここで、強いピークを形成している  $1, 779\text{ MeV}$  ガンマ線は標準線源のエネルギー領域に入っているので、このガンマ線の全エネルギー・ピーク検出効率の絶対値は内挿によって求めることができる。従って、 $1, 779\text{ MeV}$  ガンマ線に対する検出効率を絶対値化することによって、高エネルギー領域の相対検出効率も絶対値化することができる。

応答行列を求めるためには、先ず、上記の測定した波高分布から目的のエネルギーの応答関数を求め、次に、これらの応答関数を内挿して各エネルギー点における応答関数を求める必要がある。しかし、図7あるいは図8及び表1、2から分かる様に、測定で得られる波高分布中には目的の応答関数を求めるのに邪魔になるガンマ線による波高分布が混ざっていることがあるし、又、測定によって求められる応答関数は限定されたエネルギー点についてのみである。従って、波高分布からの応答関数の抽出や応答関数の内挿を適切に行なうためには、図9に示す様に、応答関数を全エネルギー・ピーク、シングル・エスケープ・ピーク及びコンプトン部分の三部分に分けて、夫々の面積（検出効率）及び形状のガンマ線エネルギー依存性を見いだして解析した方が有利と考えられる。（前に述べた様に、ダブル・エスケープ・ピークは殆ど完全に除去されるので、解析には含めなかった。）以下、各部分の解析について順に述べてゆく。

### (1) 全エネルギー・ピーク

全エネルギー・ピークの形は近似的にガウス関数形で表現される。特に、ピークの高エネルギー側はガウス関数と非常に良く一致する。しかし、低エネルギー側では、NaI(Tl)シンチレータの発光に寄与しない電子のエネルギー損失過程が存在するため、ガウス関数から離れて尾を引く形となる。そこで、この部分を全エネルギー・ピークの非対称部分として別に考慮することにして、先ず、全エネルギー・ピークの高エネルギー側だけでガウス関数をフィットした。

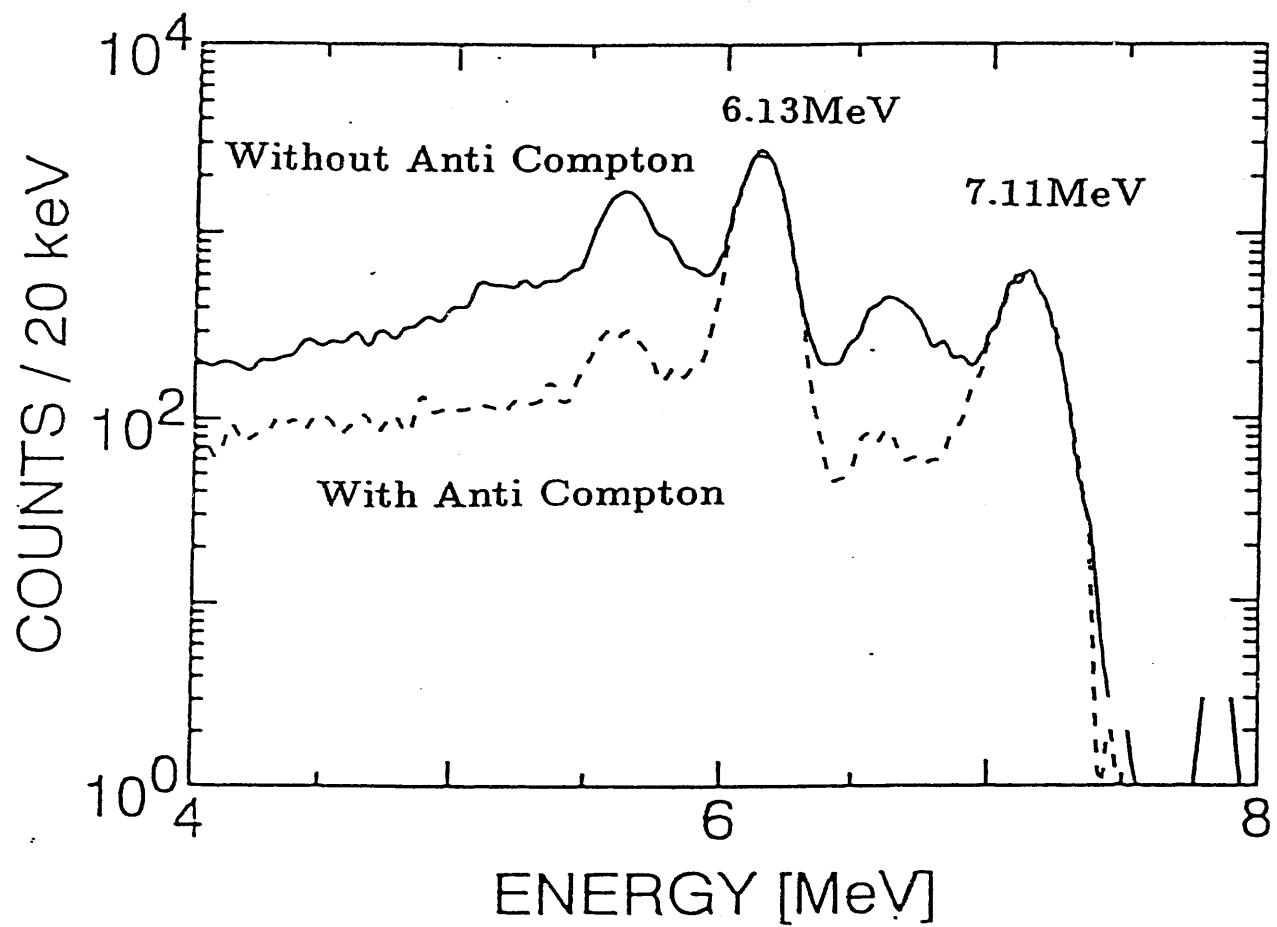


図. 7  $^{19}\text{F}(\text{p}, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$  反応 ( $E_{\text{p}}=935\text{keV}$ ) から発生するガンマ線を測定して得られた波高分布。高エネルギー部分のみを示しており、コンプトン抑止を行なった場合と行なわなかつた場合の両方が示されている。

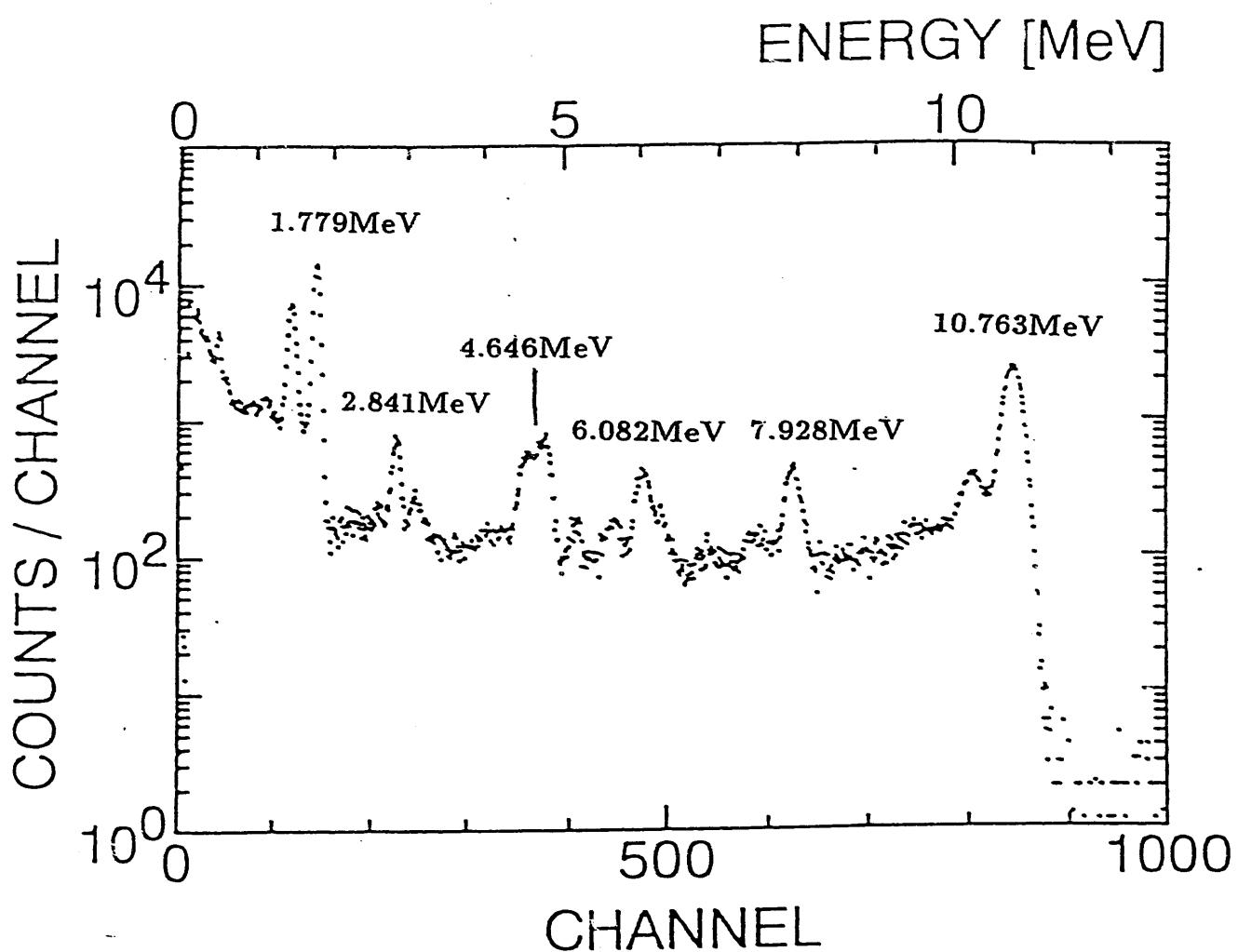


図.8  $^{27}\text{Al}(\text{p},\gamma)^{26}\text{Si}$ 反応 ( $E_{\text{p}}=992\text{keV}$ ) から発生するガンマ線を測定して得られた $\gamma$ 線波高分布。コンプトン抑止を行なった場合の波高分布。

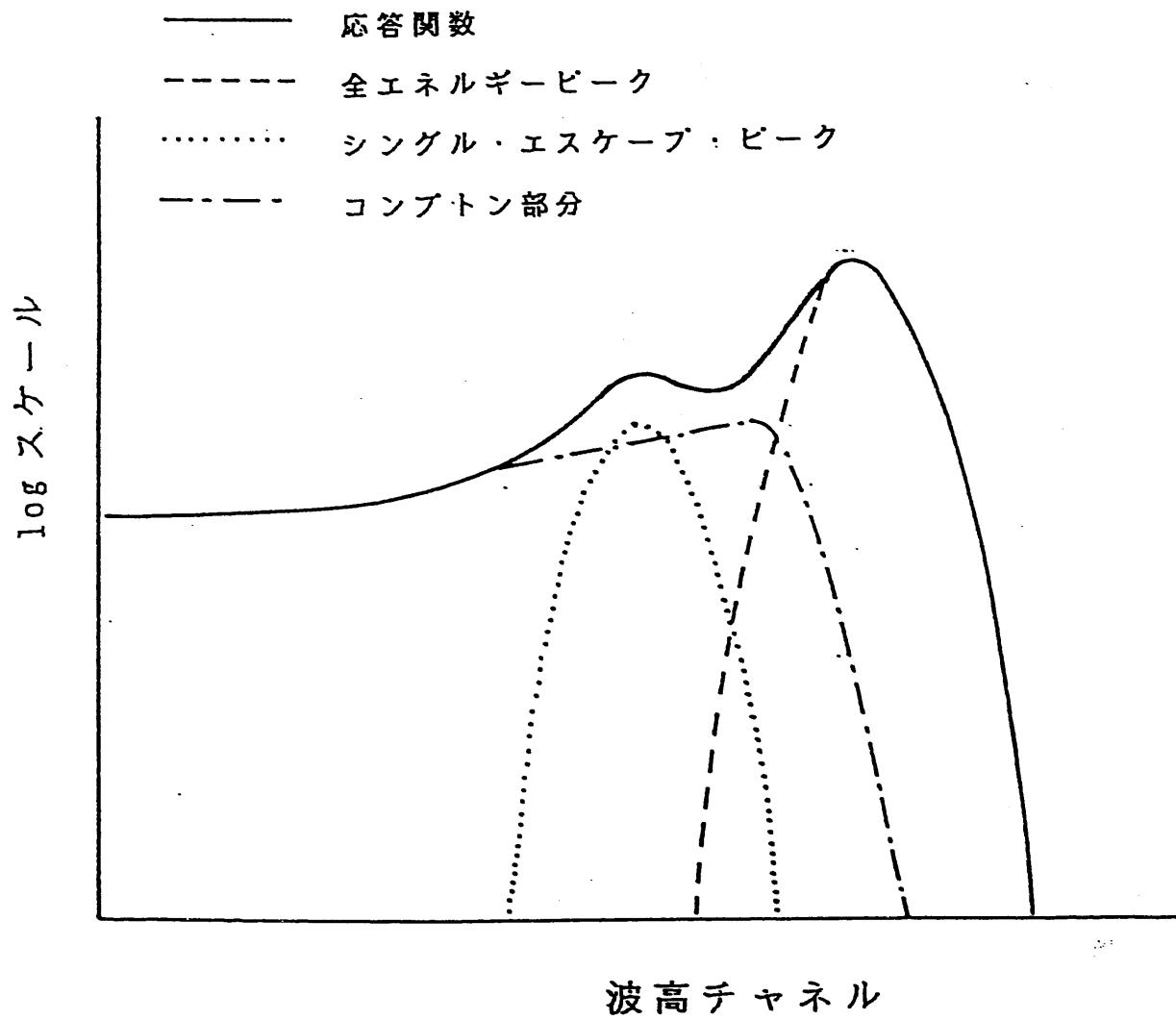


図.9 応答関数の分解の概念図。高エネルギー・ガンマ線に対する応答関数の高波高エネルギー部分のみを示してある。

次に、全エネルギー・ピーク検出効率  $\epsilon_F$  を、

$$\epsilon_F = \frac{S}{Ig \cdot t} \quad (2-1)$$

で定義する。ここで、 $Ig$  は線源のガンマ線放出強度、 $t$  は測定時間である。 $S$  は、最小二乗法でフィットして得られたガウス関数の、低エネルギー側も含む面積である。但し、図 8 の  $^{21}\text{Al}$  ( $p, \gamma$ )  $^{22}\text{Si}$  反応の波高分布中に観測される  $4.65\text{ MeV}$ 、 $6.08\text{ MeV}$ 、及び  $7.93\text{ MeV}$  の全エネルギー・ピークについては、夫々、幾つかのガンマ線が集まってピークを形成しているので、ガウス関数によるフィットは行なわず、各ピークの下のコンプトン部分を引き去ったピーク面積を全エネルギー・ピーク面積  $S$  とした。

ガンマ線放出強度が分かっている  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{22}\text{Na}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、及び  $^{90}\text{Y}$  線源の測定で得られた上記の検出効率から、ガンマ線エネルギー  $1.84\text{ MeV}$  以下の領域における絶対検出効率曲線を求めた。又、 $^{21}\text{Al}$  ( $p, \gamma$ )  $^{22}\text{Si}$  反応の波高分布から、ガンマ線エネルギー  $1.78\text{ MeV}$  以上の相対検出効率曲線を求めた。そして、両者を  $1.78 \sim 1.84\text{ MeV}$  の重複した領域で比較することにより、 $1.78\text{ MeV}$  以上の領域の相対検出効率曲線を絶対値化し、次式で与えられる全ガンマ線エネルギー領域の全エネルギー・ピーク検出効率曲線を得た。

$$\epsilon_F(Eg) = \exp(4.99 \times 10^{-3} Eg^2 - 0.122Eg - 7.59) - \exp(-2.93Eg - 7.44) \quad (2-2)$$

ここで、 $Eg$  は  $\text{MeV}$  単位である。

更に、全エネルギー・ピーク分解能を、フィットしたガウス関数の半値幅 (FWHM : full width at half maximum) で定義した。この分解能の測定値を図 10 に示す。ところで、全エネルギー・ピークの幅は、主に、 $\text{Na I}$  (T1) 結晶及び光電子増倍管での光子数と電子数の統計的ゆらぎによって生じる。したがって、分解能は光子の発生数に強く依存し、近似的に  $(Eg)^{1/2}$  に比例する。そこで、全エネルギー・ピーク分解能曲線として  $a(Eg)^b$  の形の関数を仮定し、これを測定値に最小二乗フィットすることにより、

$$\text{FWHM} = 64.2Eg^{0.599} \quad (\text{keV}) \quad (2-3)$$

を得た。ここで、 $Eg$  は  $\text{MeV}$  単位である。

波高分布からシングル・エスケープ・ピークとコンプトン部分を引き去り、残った全エネルギー・ピークと前述のフィットしたガウス関数との比を波高 (チャネル) 每にとり、この比で全エネルギー・ピークの非対称部分を表わした。前に述べた様に、ピークの高エネルギー側はガウス形に非常に近いので、この非対称部分はピークの低エネルギー側のみ考慮した。そして、非対称を表す上記の比を  $Eg$  と波高の関数で表現して内挿を行った。

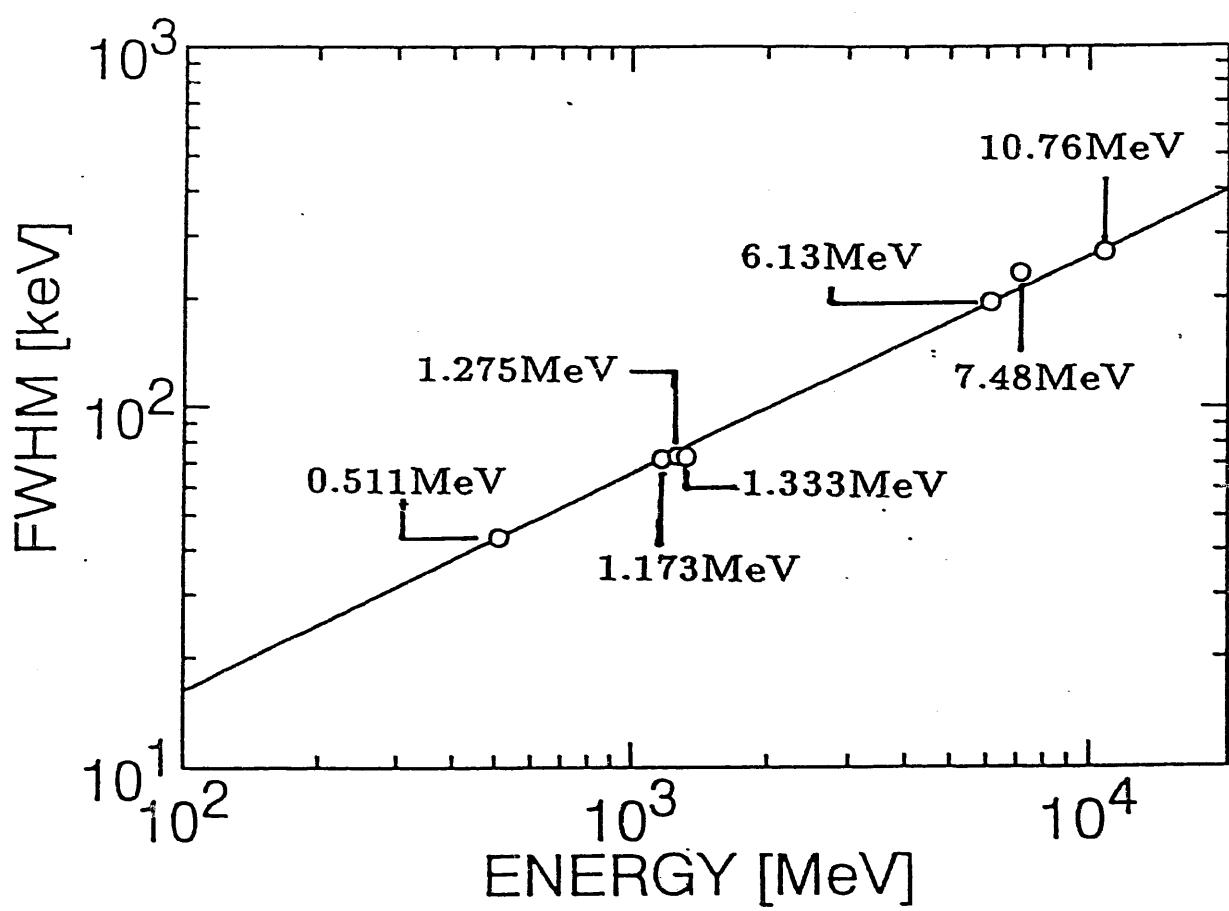


図.10 ガンマ線検出器の全エネルギー・ピーク分解能 (FWHM) の測定値と (2-3) 式によるフィット。

## (2) シングル・エスケープ・ピーク

シングル・エスケープ・ピークを、そのエネルギーに於ける全エネルギー・ピークと同じ幅のガウス関数で近似した。シングル・エスケープ・ピークは全エネルギー・ピークに比べて強度が弱いので、このピークの非対称性は考慮しなかった。シングル・エスケープ・ピークと全エネルギー・ピークの面積の比のデータをフィットすることにより、シングル・エスケープ・ピーク検出効率

$$\varepsilon_s(Eg) = 0.192 \cdot \varepsilon_r(Eg) \cdot \exp\left(-\frac{7.45}{Eg + 0.185}\right) \quad Eg > 1.4 \text{ MeV} \quad (2-4)$$

を得た。ここで、 $Eg$ はMeV単位である。

## (3) コンプトン部分

コンプトン部分は、波高分布からシングル・エスケープ・ピークを引き去り、検出器のエネルギー分解能を考慮して、コンプトン端以上をコンプトン端をピーク位置とするガウス関数で外挿することによって得られた。この際、ガウス関数の幅は、そのエネルギー位置の全エネルギー・ピークの幅と同じにした。ガンマ線が単色でない  $^{19}\text{F}$  ( $p, \alpha \gamma$ )  $^{16}\text{O}$  反応の場合は、6. 13 MeV ガンマ線と 7. 11 MeV ガンマ線の強度の比でコンプトン部分を分割し、6. 13 MeV ガンマ線に対するコンプトン部分の形を得た。又、 $^{21}\text{Al}$  ( $p, \gamma$ )  $^{22}\text{Si}$  反応の 10. 76 MeV ガンマ線のコンプトン部分の 8 MeV 以下の部分は、6. 13 MeV ガンマ線のコンプトン部分を 10. 76 MeV に引き伸ばしたもの 8 MeV 以下の部分で代用した。

先ず、コンプトン部分の面積のデータをフィットすることにより、コンプトン検出効率

$$\begin{aligned} \varepsilon_c(Eg) = & \varepsilon_r(Eg) \cdot \exp(7.387 \times 10^{-3} Eg^2 - 7.002 \times 10^{-2} Eg - 0.1051 \\ & - 2.408 Eg^{-1}) \end{aligned} \quad (2-5)$$

を得た。但し、 $Eg$ はMeV単位である。

次に、コンプトン部分の形の内挿法について説明する。先ず、内挿エネルギーより高いエネルギーの実験で得られたコンプトン部分をチャネル方向に圧縮して内挿エネルギーのコンプトン端に合わせる。又、同様に、内挿エネルギーより低いエネルギーの実験で求めたコンプトン部分を引き伸ばして内挿エネルギーのコンプトン端に合わせる。次に、これらのコンプトン部分の面積を内挿エネルギーでのコンプトン検出効率  $\varepsilon_c$  に規格化する。そして、チャネル毎にガンマ線エネルギーで直線内挿することにより、内挿エネルギー点に於けるコンプトン部分の形を求めた。

以上の様にして求められる全エネルギー・ピーク、シングル・エスケープ・ピーク、及びコ

ンプトン部分を合成することによって、各内挿エネルギー一点での応答関数を得ることができる。この様にして、ガンマ線エネルギー 12.8 MeVまで、50 keVおきに、256 個の応答関数を作成し、この組を応答行列とした。その一部を図 11 に示す。図から、今回用いたコンプトン抑止型 Na I (Tl) 検出器の応答関数は、前にも述べたが、全エネルギー・ピークが非常に強調された単純な形をしていることが分かる。言い替えれば、応答行列の対角要素が非常に大きく、非対角要素に比べて 1~2 衍大きくなっている。得られた応答行列の良否を検討するため、図 8 の  $^{21}\text{Al}$  ( $p, \gamma$ )  $^{22}\text{Si}$  反応の波高分布に対して、得られた応答行列を用いて、計算コード FERDOR<sup>10)</sup>でアンフォールディングを行なった。(アンフォールディングについては、付録で述べられる。) 図 12 にその結果を示す。図から、 $^{21}\text{Al}$  ( $p, \gamma$ )  $^{22}\text{Si}$  反応からのガンマ線スペクトルは殆ど離散的なガンマ線のみから形成されていることが分かる。又、非常に強いピークの裾付近に負の解が得られているが(物理的には負の解は生じないはずであるが、FERDOR では多少の負の解を許している)、その絶対値はピークの値と比べて二桁程度小さいことが分かる。この図の様な離散的スペクトルを解とするアンフォールディングは、その解に最も振動が生じやすく、なかなか容易でないのが普通である。従って、図 12 の結果は非常に良好であり、アンフォールディングに用いた応答行列は現実の検出器の応答行列に非常に近いものであると言える。尚、図 12 中の各ピークの相対強度を求めて表 2 中の文献値と比較したところ、両者は誤差の範囲内で一致した。

## 2.5 測定回路系

本実験で用いたガンマ線検出器用測定回路系を図 13 に、中性子検出器用測定回路系を図 14 に示す。図から分かる様に、本実験では複数の検出器を用いたパルス実験を行なっているので、その回路系はかなり複雑である。以下、ガンマ線検出器用と中性子検出器用と分けて、各回路系について説明する。

### 2.5.1 ガンマ線検出器用測定回路系

本実験では、波高-TOF の二次元測定を行なった。まず波高測定回路について説明し、その後で二次元測定回路について述べる。

#### (1) 波高測定回路

図 13 において、主検出器からのダイノード信号が波高測定に用いられるが、このダイノード信号はプリ・アンプ (Pre-Amplifier) 及びリニア・アンプ (Linear Amplifier) を通過した後二つに分けられ、ディレイ・アンプ (Delay Amplifier) とタイミング・シングル・チャネル・アナライザー (Timing Single Channel Analyzer) に入る。タイミング・シングル・チャネル・アナライザーの出力論理信号はユニバーサル・コインシデンス (Universal Coincidenc

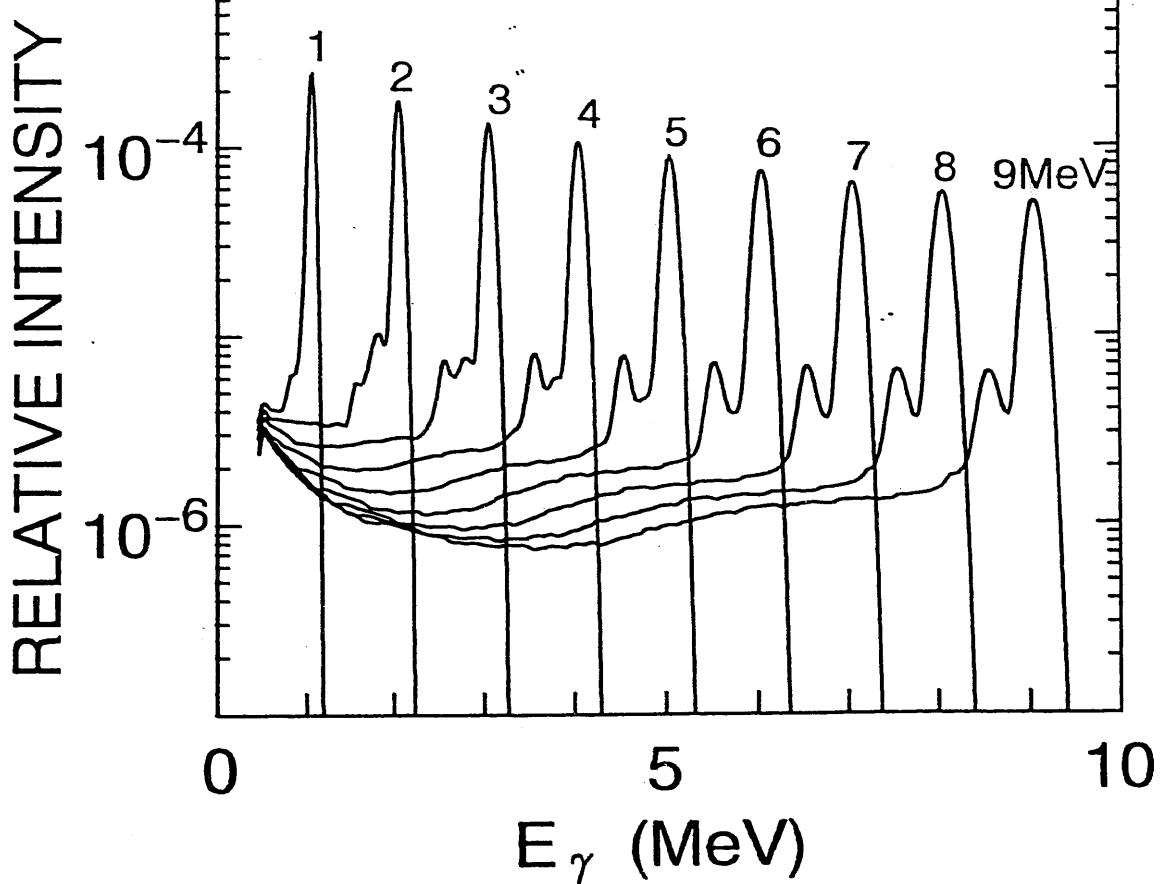


図. 1 1 ガンマ線検出器の応答関数の例。

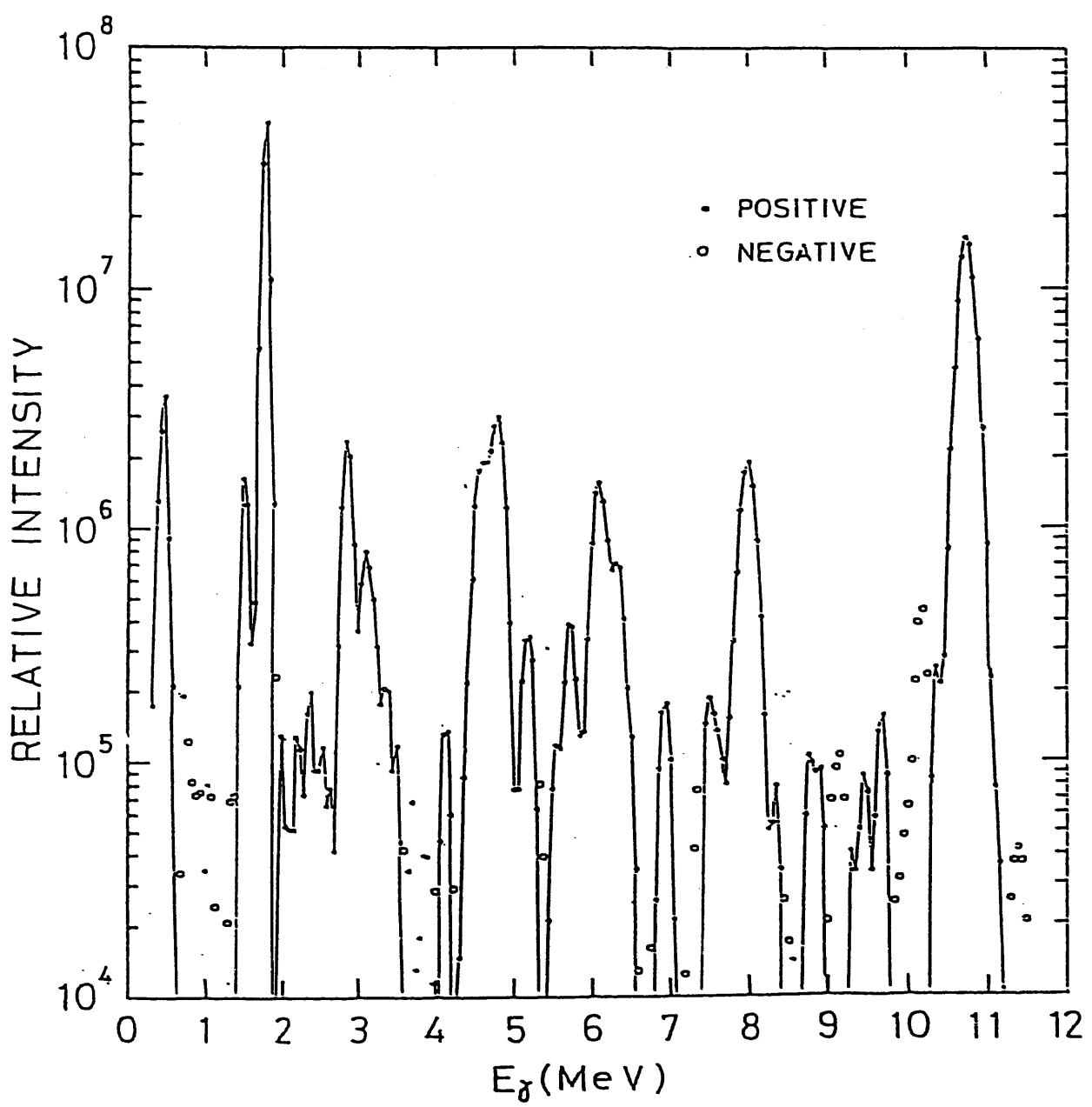


図. 1 2  $^{27}\text{Al}(\text{p}, \gamma)^{28}\text{Si}$  反応から発生するガンマ線を測定して得られた波高分布(図. 8)を、検出器の応答行列を用いてアンフォールディングした結果。即ち、近似的に、この反応から発生するガンマ線のスペクトルを示す。(検出器の分解能で広げられている。) 負の値は物理的な意味を持たず、単に解スペクトルの振動から生じた。本文中の説明を参照されたし。

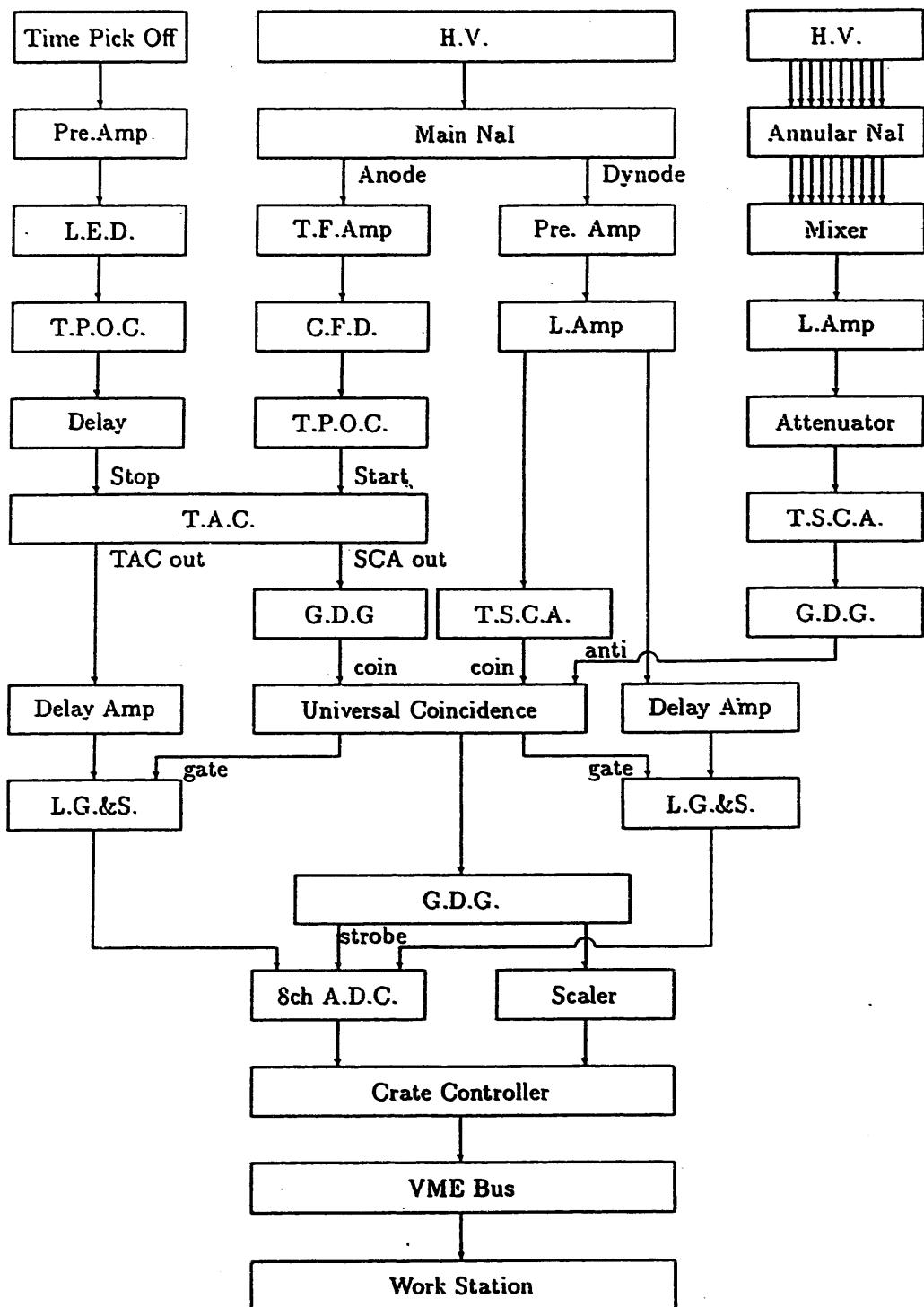


図.13 ガンマ線検出器の測定回路系

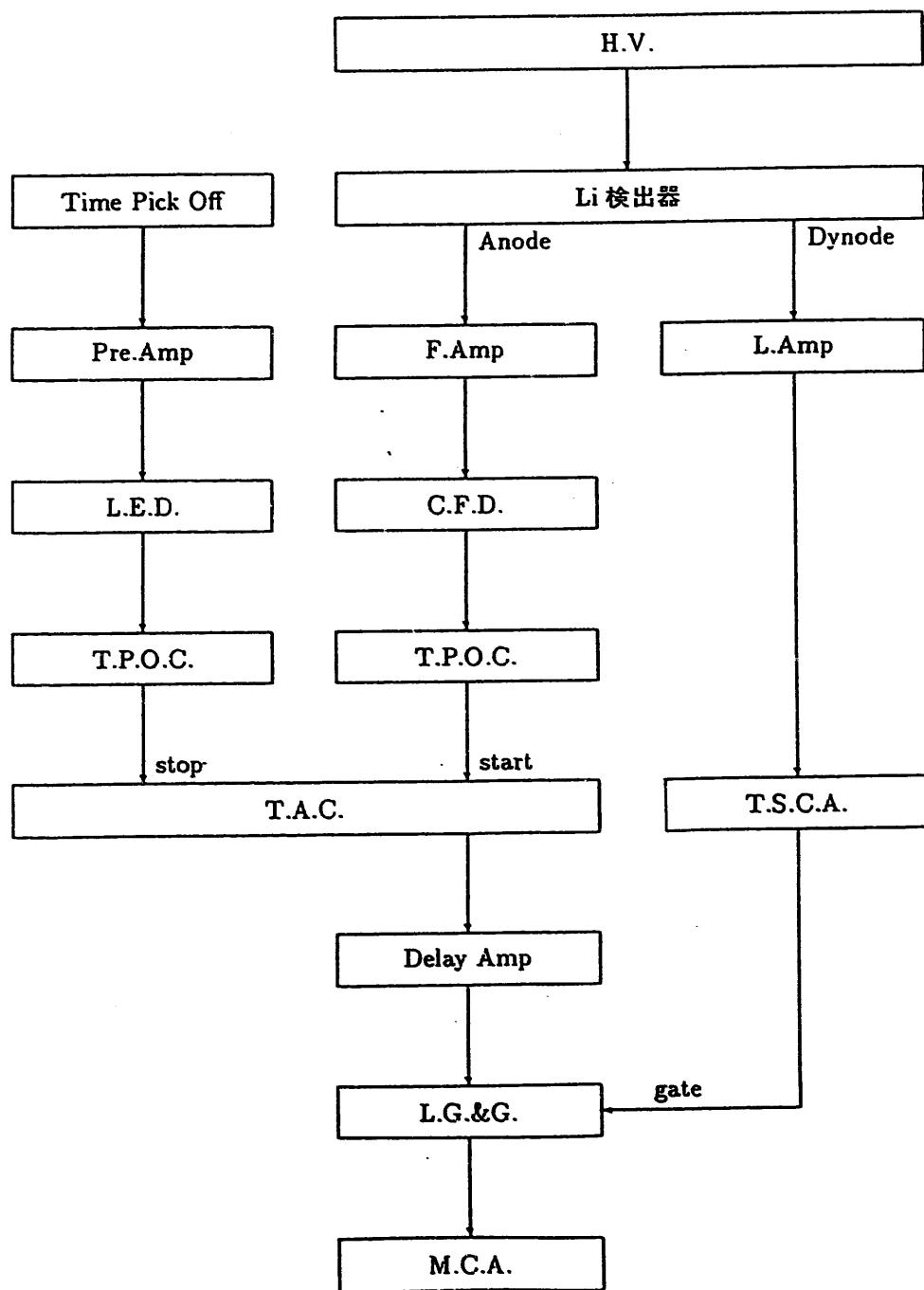


図.14 中性子検出器の測定回路系

e) 回路に送られる。又、ディレイ・アンプでタイミング (Timing) 調整された波高信号はリニア・ゲート・アンド・ストレッチャー (Linear Gate and Stretcher) に送られる。

一方、大型環状検出器の十の出力は、各光電子増倍管の印加電圧を調整することによって波高が揃えられた後に、ミキサー (Mixer) で合成される。そして、リニア・アンプ及びアッテニュエーター (Attenuator) を通過した後にタイミング・シングル・チャネル・アナライザに入り、ここでコンプトン除去用信号の論理信号に変換される。この信号のタイミングとパルス幅の調整をゲート・ディレイ発生器 (Gate and Delay Generator) で行ない、前述のユニバーサル・コインシデンス回路に入力する。ユニバーサル・コインシデンス回路では、コンプトン除去用信号をベトウ (Veto) 信号として、主検出器からの論理信号とコンプトン除去用信号との非同時出力信号が作られ、この出力信号は前述のリニア・ゲート・アンド・ストレッチャーのゲート入力に送られる。

リニア・ゲート・アンド・ストレッチャーのゲート信号によって選別された波高信号は、C A M A C システムとワークステーションによって制御されているアナログ・デジタル変換器 (Analogue to Digital Converter) に送られ、2048チャネルの波高データに変換される。

## (2) 波高-T O F 二次元測定回路

図13において、主検出器のアノード (Anode) 信号がT O F測定用時間信号として用いられる。T O Fスペクトルは、主検出器の時間信号とビーム延長管中のキャパシティ・ピック・オフからの信号（パルス陽子ビームが通過した時に出力信号が発生する）の時間差を時間-波高変換器 (Time to Amplitude Coverter) を用いて波高に変換することによって得られる。主検出器のアノード信号はタイミング・フィルター・アンプ (Timing Filter Amplifier) で速い波形整形された後、コンスタント・フラクション・ディスクリ (Constant Fraction Discriminator) で時間信号に変換される。そして、中性子実験室と制御室（ここに多くの回路系を置いている）間の電気信号の減衰をタイム・ピック・オフ・コントロール (Time Pick Off Control) で補ってから、主検出器の時間信号を時間-波高変換器のスタートに入力する。一方、キャパシティ・ピック・オフの出力は高速のプリ・アンプで増幅された後、リーディング・エッジ・ディスクリ (Leading Edge Discriminator) で時間信号に変換される。この信号は、減衰を補うためのタイム・ピック・オフ・コントロール及び主検出器からの時間信号とタイミングを合わせるためのディレイ (Delay) を経た後、時間-波高変換器のストップに入力される。ここで、パルス陽子ビーム信号をストップに入力したのは、スタートに2あるいは4MHzのビーム信号を入力すると時間-波高変換器が飽和するからである。このため、T O Fスペクトル上の時間軸の方向はチャネルのそれと逆向きとなっている。時間-波高変換器のT A C出力はディレイ・アンプに入力し、ディレイ・アンプの出力は、波高信号の場合と同様に、リニア・ゲート・アンド・ストレッチャーを経てアナログ・デジタル変換器に送られる。時間-波高変換器のS C A出力はゲート・ディレイ発生器でタイミングとパルス幅の調整が行なわれた後、前述のユニバーサル・コインシデンスに入力する。

波高とT O Fの二次元測定なので、一つの測定事象には波高とT O Fの両方の情報が揃って

いなければならない。このため、波高信号とT OF信号が一対一対応するように、前述のユニバーサル・コインシデンスでそれらの同時計数だけを選び、その出力を波高信号用及びT OF信号用の両方のリニア・ゲート・アンド・ストレッチャーのゲート入力信号にした。

ガンマ線波高分布とT OFスペクトルの二次元データについては、波高及びT OF共に2048チャネルのイベント・レコーディング(Event Recording)を行い、データをディスクに書き込んだ。波高は約10 keV/ch、T OFは約0.3 ns/chで測定した。

## 2.5.2 中性子検出器用測定回路系

前に述べた様に、中性子モニターとして、中性子源から約30 cmあるいは4.6 mの距離に設置した<sup>6</sup>Li-ガラス・シンチレーション検出器を用いた。<sup>(<sup>6</sup>Li-ガラス・シンチレータは5 mmφ×5 mmあるいは102 mmφ×6.4 mm)</sup>

図14から分かる様に、光電子増倍管のダイノード出力は、リニア・アンプで増幅され、タイミング・シングル・チャネル・アナライザーに送られる。ここで、波高による中性子とガンマ線の弁別が行なわれ、中性子による信号が入力した時のみに出力論理信号が発生する。この出力信号は、次に述べる時間一波高変換器の出力信号に対するゲート信号として用いられる。一方、アノード出力は高速アンプ(Fast Amplifier)で増幅され、コンスタント・フラクション・タイミング・ディスクリに送られて時間信号に変換された後、時間一波高変換器のスタートに送られる。時間一波高変換器のトップには、ガンマ線検出器用回路でも用いたキャバシティップ・ピック・オフからの信号を、中性子飛行時間分だけ遅らせて入力した。時間一波高変換器の出力はディレイ・アンプを通過した後、リニア・ゲート・アンド・ストレッチャーでガンマ線による信号の大部分が取り除かれ、マルチ・チャネル・アナライザー(Multi-channel Analyzer)でT OFスペクトルに変換される。

## 2.6 測定用試料

"Tc試料としては純度99.4%の酸化物(TcO<sub>2</sub>)粉末を1.027 g (Tcの量)用いた。粉末試料は(中性子捕獲断面積の比較的小さい)アルミニウム製の円盤状容器に封入したが、容器の両底面の厚さは各々0.4 mm、側面の厚さは5 mmと極力薄くした。容器の内径は20 mmであり、内部の厚さは3.1 mmである。この試料の諸元を表3に示す。

標準試料として20 mmφ×1 mmの金(Au)試料を用いた。この標準Au試料の諸元も表3に示す。

尚、アルミニウム容器からのバックグランドを測定するために、"Tc試料の入っていない空のアルミニウム容器を用意した。更に、アルミニウムからのバックグランド・ガンマ線波高スペクトルを精度良く測定するために、90 mmφ×5 mmの大型アルミニウム(Al)試料も用意した。

## 2. 7 測定

$^{90}\text{Tc}$ について、中性子エネルギー  $10 \sim 100\text{ keV}$  の範囲及び約  $550\text{ keV}$  で測定を行った。 $10 \sim 100\text{ keV}$  の範囲の測定では、①  $15 \sim 27\text{ keV}$  (平均  $22\text{ keV}$ )、②  $27 \sim 41\text{ keV}$  (平均  $34\text{ keV}$ )、及び③  $41 \sim 96\text{ keV}$  (平均  $59\text{ keV}$ ) の 3箇所のエネルギー領域で解析を行った。尚、 $550\text{ keV}$  の測定に関しては、現在、データ解析中である。

測定は標準 Au 試料との相対測定とした。上述の各エネルギー領域の測定において、試料の測定 (Tc-run)、標準 Au 試料の測定 (Au-run)、 $^{90}\text{Tc}$  試料の入っていない空のアルミニウム容器の測定 (Dummy-run)、大型 Al 試料の測定 (Al-run)、および試料を置かない測定 (Blank-run) の 5種類の測定を行った。Tc-run で  $^{90}\text{Tc}$  試料からの中性子捕獲ガンマ線を測定し、Au-run から  $^{90}\text{Tc}$  試料に入射した中性子数を導出し、Blank-run から試料に入射した中性子のエネルギースペクトルを求め、Dummy-run 及び Al-run からアルミニウム容器からのバックグラウンドの量及び波高スペクトルを求めた。実験条件の変動を緩和するため、Tc-run、Au-run、Dummy-run、および Blank-run を周期的に繰り返して行った。Al-run については、実験の最後に集中して行った。これらの測定条件を表 4 に示す。

表 3 試料に関するデータ

<sup>90</sup>Tc 試料 (Bn=6.764MeV)

化学形	酸化物 : TcO <sub>2</sub>
化学的純度	99.4%
同位体組成	99(100%)
物理形状	2.0cm φ × 0.31cm
質量 ( <sup>90</sup> Tc の量 : g)	1.027
厚さ ( <sup>90</sup> Tc atoms/b)	0.001981

Au 試料 (Bn=6.513MeV) 10-100keV測定用 550keV測定用

化学形	金属 : Au	金属 : Au
化学的純度	99.99%以上	99.99%以上
同位体組成	197(100%)	197(100%)
物理形状	2.0cm φ × 0.1cm	2.0cm φ × 0.2cm
質量 (g)	6.01	12.02
厚さ ( <sup>197</sup> Au atoms/b)	0.00585	0.0117

表4  $^{90}\text{Tc}$  の捕獲ガンマ線スペクトルを測定した際の条件

En=10~100keVの測定	
中性子源と試料中心距離 (cm)	11.8
陽子ビーム周波数 (MHz)	2
平均ビーム電流 ( $\mu\text{A}$ )	5.5
測定時間 (h)	
Tc-run	41.5
Au-run	14.0
Dummy-run	11.5
Blank-run	6.0
Al-run	4.0

### 3 データ処理

#### 3. 1 入射中性子エネルギー分布

実験の際の入射中性子T OFスペクトルを図15に示す。図15は<sup>30</sup>Tc試料の中性子エネルギー10～100keVの実験の際のもので、中性子源から約30cmの位置に置かれた小型<sup>6</sup>Li検出器を用いて、blank-runで測定されたものである。図15において、左側の幅の広い大きなピークが中性子によるピークであり、右側の細い小さなピークはリチウムターゲット中で起こる<sup>7</sup>Li(p,γ)<sup>8</sup>Be反応からのガンマ線によるピークである。(前述の様に、波高弁別によってガンマ線をカットしているが、完全でないために小さなピークとして残っている。) 中性子ピークの各チャネルとガンマ線ピークチャネルからの時間差(+中性子源と<sup>6</sup>Li検出器間のガンマ線の飛行時間: 約1ns)が、そのチャネルに計測された中性子が中性子源から<sup>6</sup>Li検出器までの距離約30cmを飛行した時間である。

中性子飛行時間t(ns)と中性子エネルギーEn(MeV)との間には、

$$E_n = (72.3L/t)^2 \quad (3-1)$$

の関係式が成り立つ。ここで、L(m)は中性子源と中性子検出器の距離である。測定されたTOFスペクトルからバックグラウンドを引去り、正味の中性子TOFスペクトルを得、これを上式を用いてエネルギースペクトルに変換し、更に中性子検出器の検出効率で割り、最終的にエネルギー積分が1に成るように規格化すると、中性子エネルギー分布関数η(En)が得られる。参考のため、小型<sup>6</sup>Li検出器の相対検出効率を図16に示す。図に示した相対検出効率は、検出器中の<sup>6</sup>Li、O、Si、Al等の各成分比及び同位体の存在比と核データファイルENDF/B-I V中の各々の核の中性子断面積を用いてモンテカルロ法によって計算されたものである。最終的に得られた中性子分布関数η(En)を図17に示す。図17は図15に対応し、<sup>30</sup>Tc試料の中性子エネルギー10～100keVの実験の際のものである。

#### 3. 2 捕獲ガンマ線波高分布

中性子エネルギー範囲10～100keVの実験で、<sup>30</sup>Tc試料、標準Au試料、大型Al試料、及びBlankの測定を行って得られたガンマ線検出器のTOFスペクトルを図18～図21に各々示す。各図において、940チャネル付近の鋭いピークはリチウムターゲット中で起こる<sup>7</sup>Li(p,γ)<sup>8</sup>Be反応から発生するガンマ線によるピークである。この左側のピークが中性子捕獲ガンマ線によるピークであり、940チャネル・ピークに対するその相対強度は捕獲断面積と試料の量の積にはほぼ比例する。図20の大型Al試料の場合には、Alの捕獲断面積の共鳴構造がはっきりと観測されている。図21で示したBlankの場合には、当然ではあるが、捕獲ガンマ線は観測されていない。

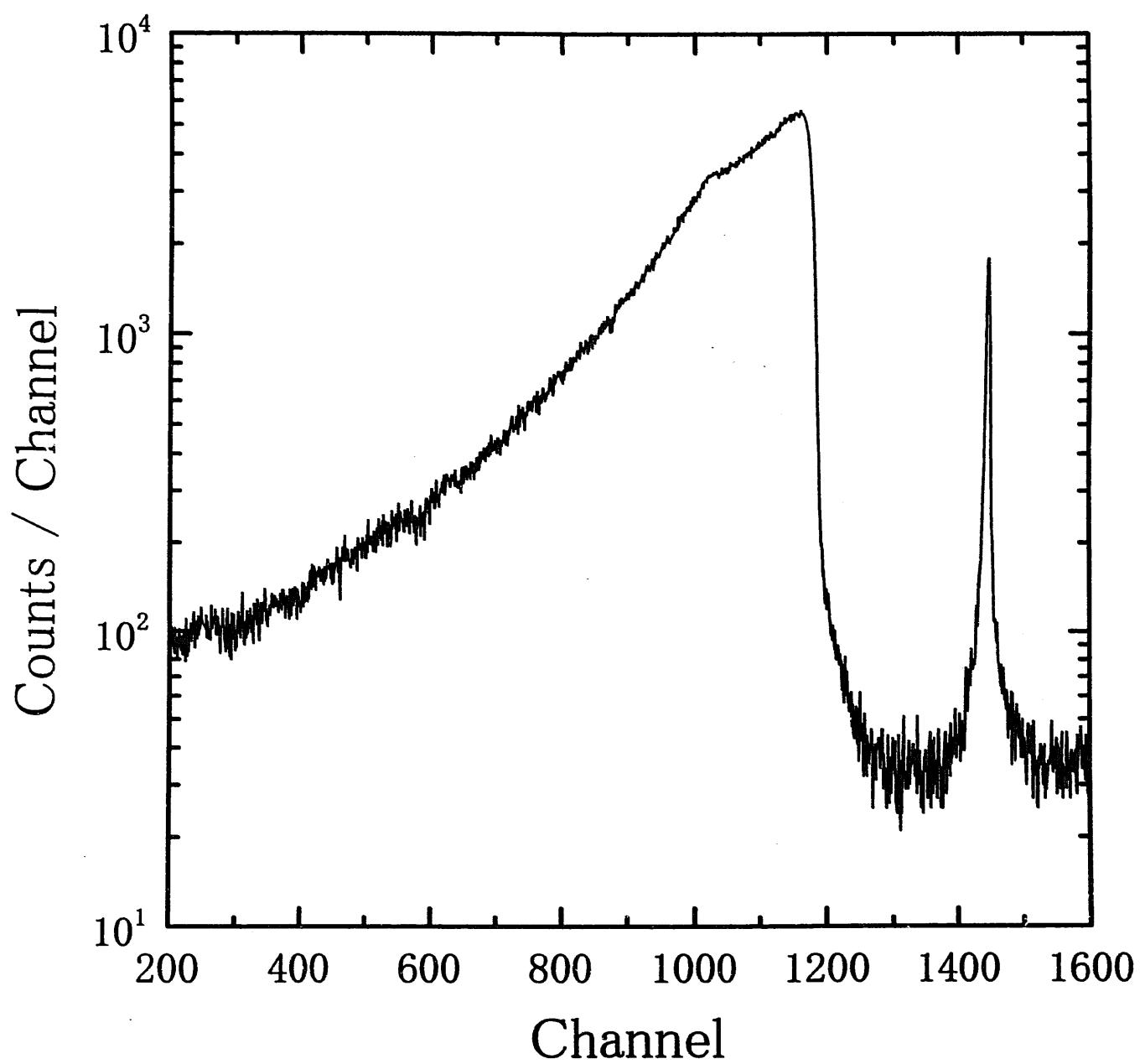


図 15 中性子 T O F スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験の際のもので、中性子源から約  $30 \text{ cm}$  の位置に置かれた小型  ${}^6\text{Li}$  ガラス検出器で blank-run で測定したもの。

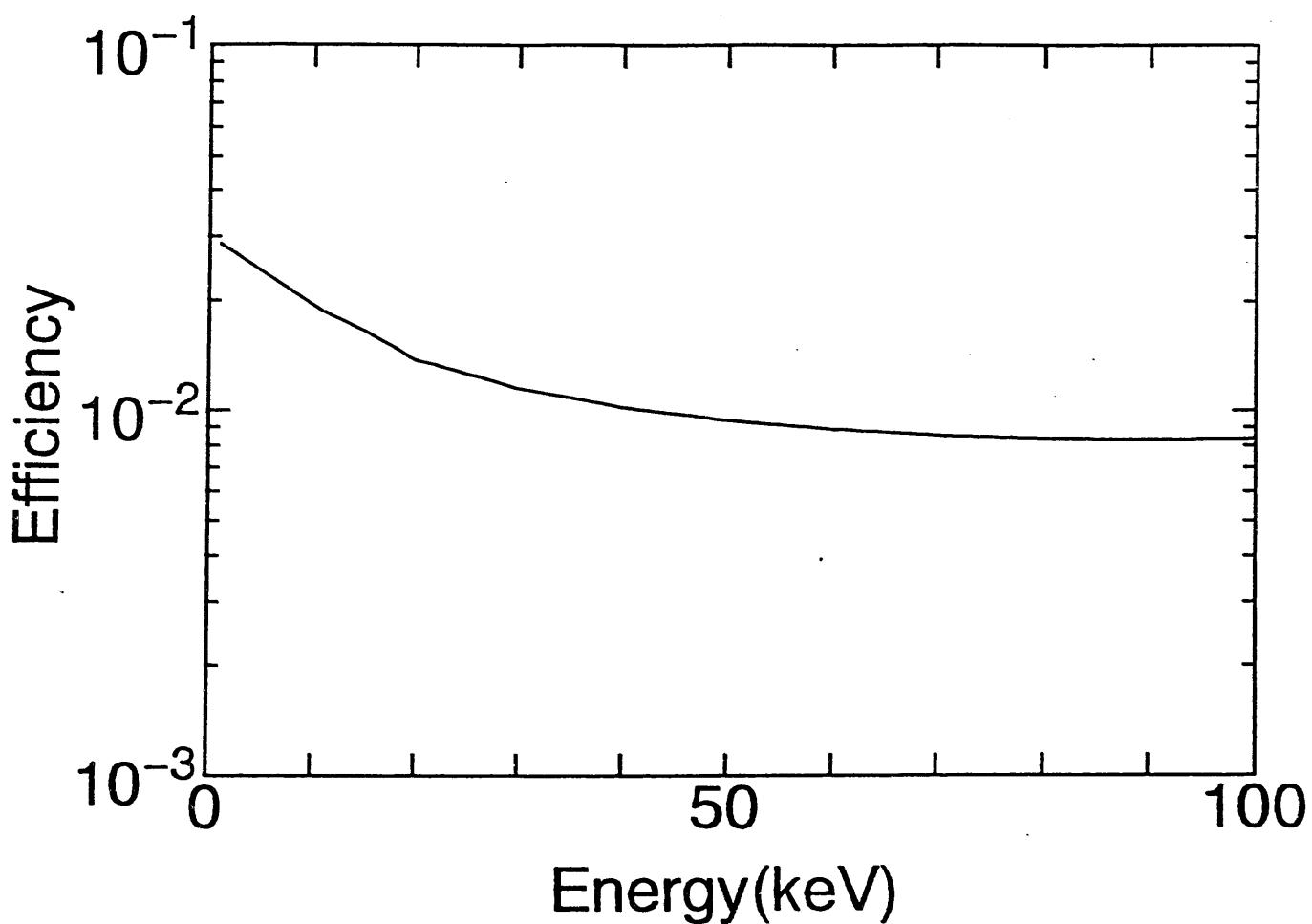


図16 小型 ${}^6\text{Li}$ ガラス検出器の中性子検出効率。

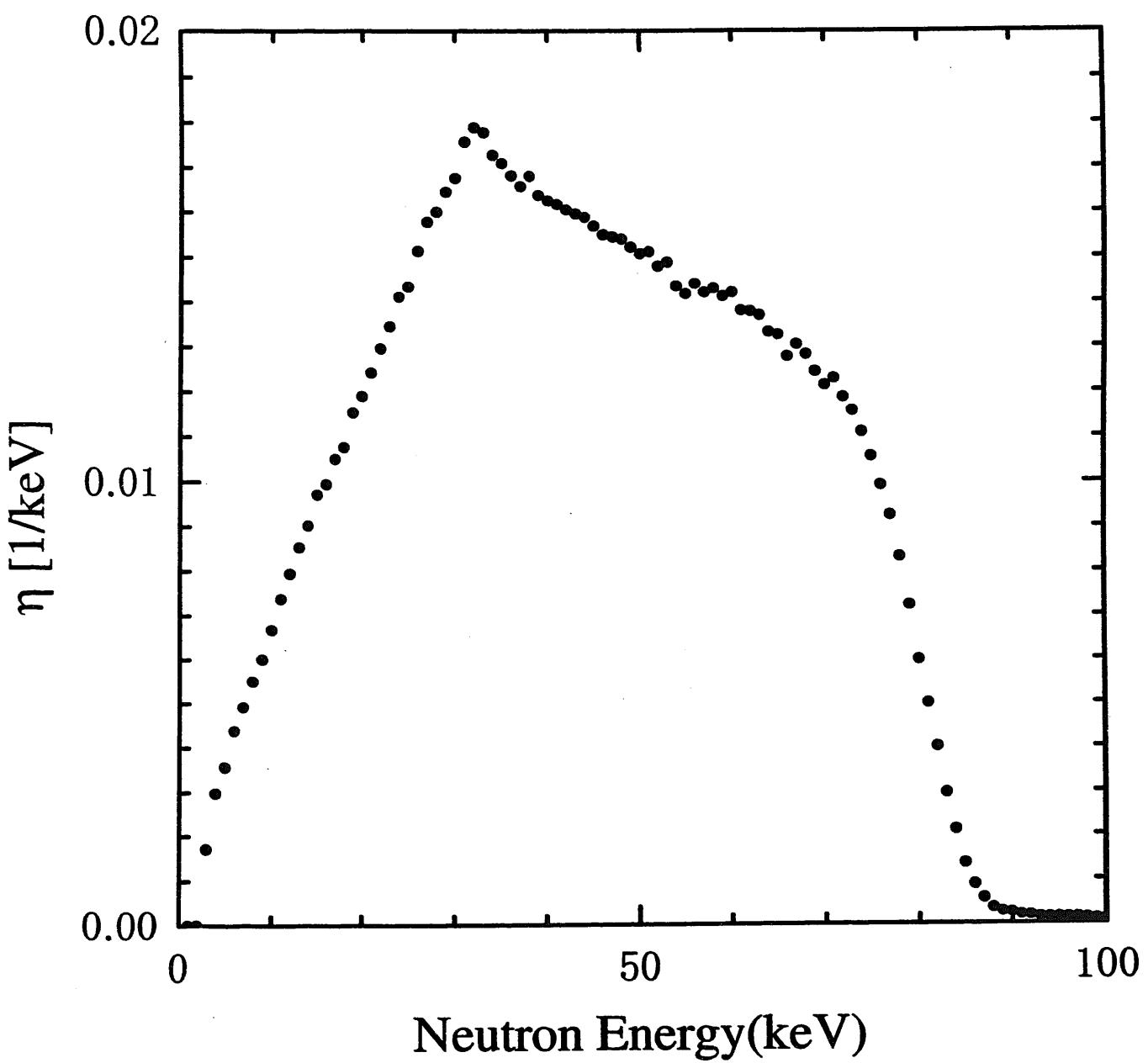


図17 中性子エネルギー 10～100 keV の実験の際の、入射中性子エネルギー・スペクトル。

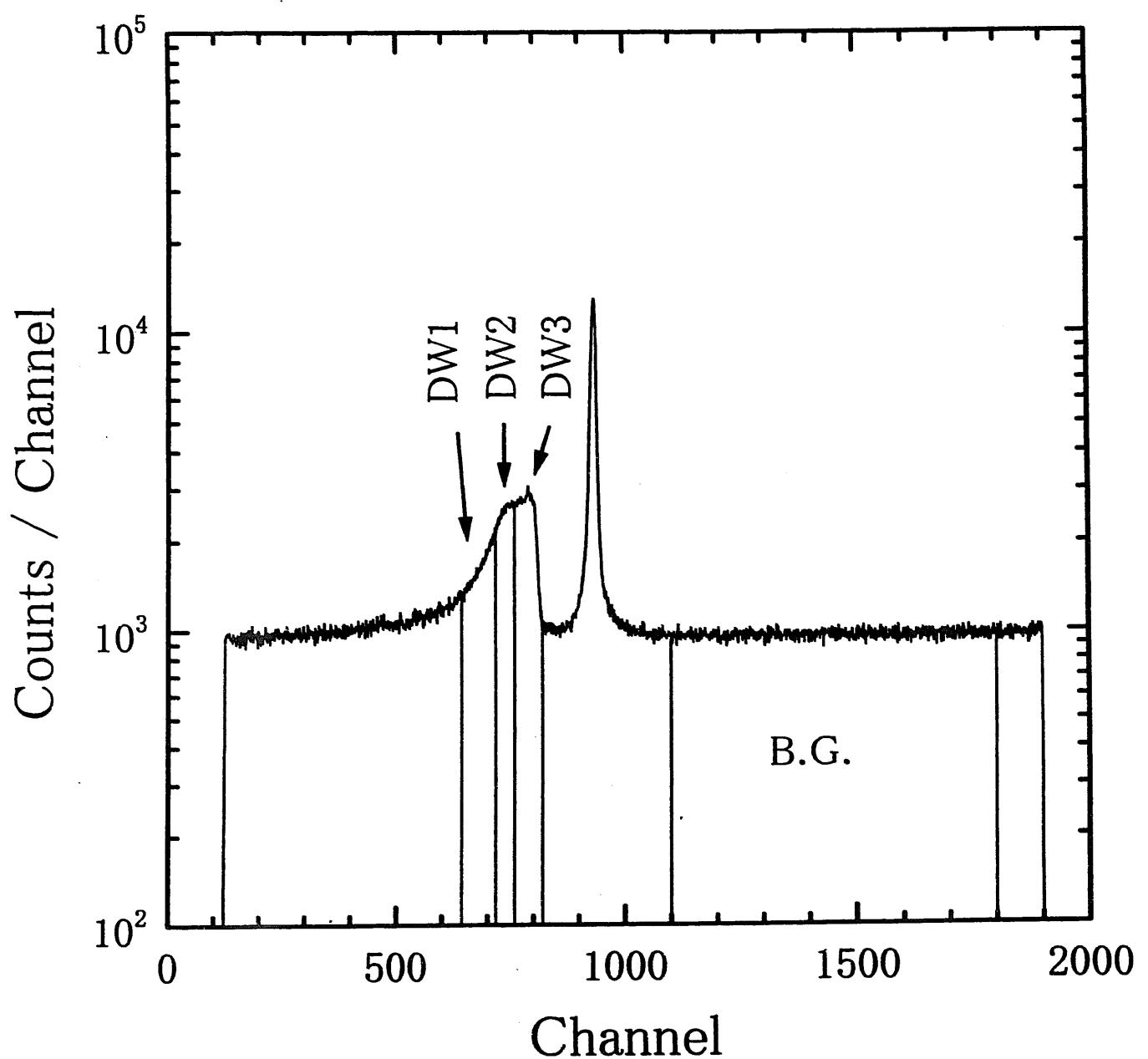


図 18 ガンマ線検出器で測定された T O F スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験で、試料は " $\text{Tc}$ "。図中の DW1 ~ 3 は入射中性子エネルギー領域①~③に対応。

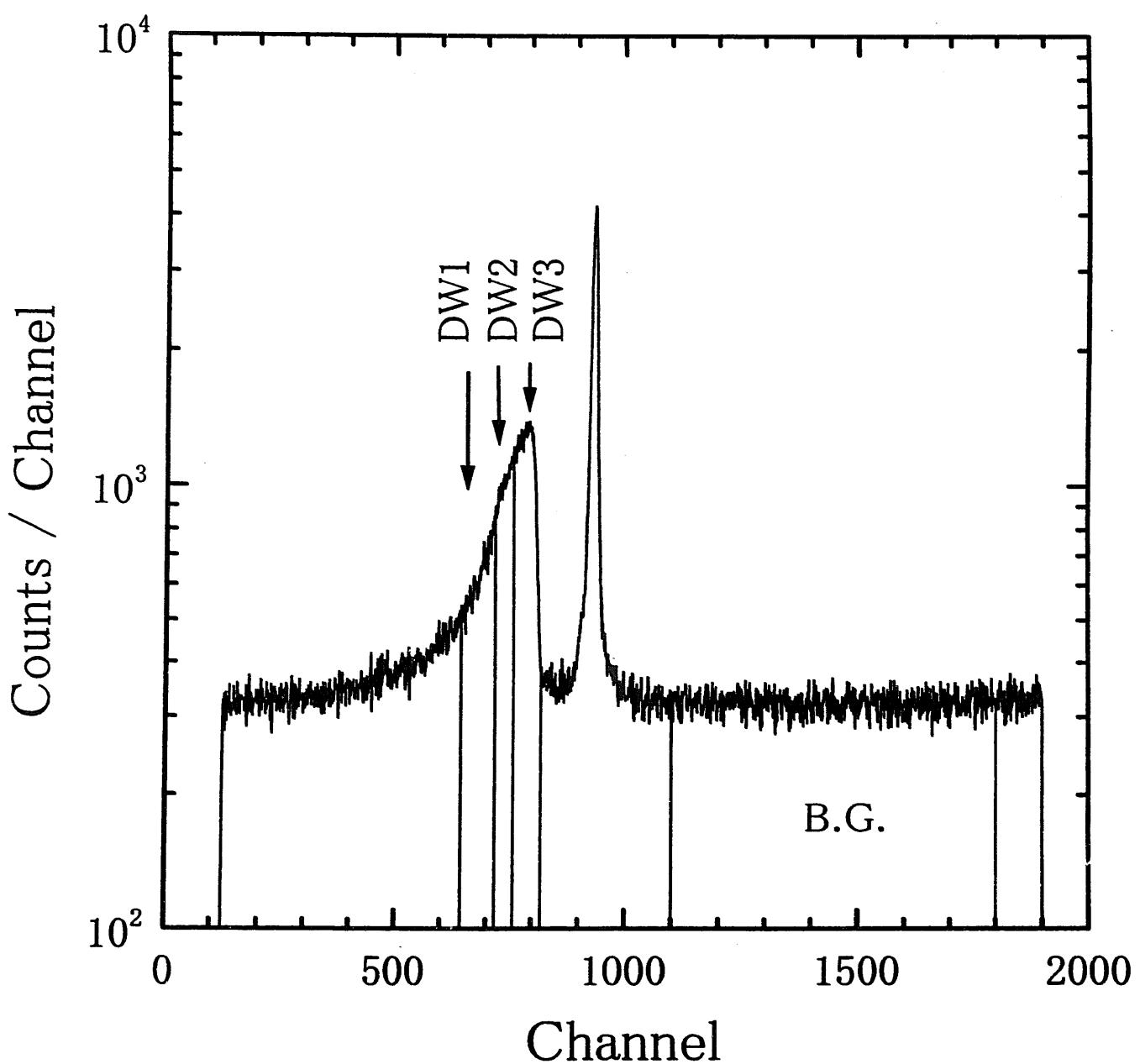


図19 ガンマ線検出器で測定されたT O Fスペクトル。中性子エネルギー10  
~100 keVの実験で、試料は標準Au試料。図中のDW1~3は入射中性子  
エネルギー領域①~③に対応。

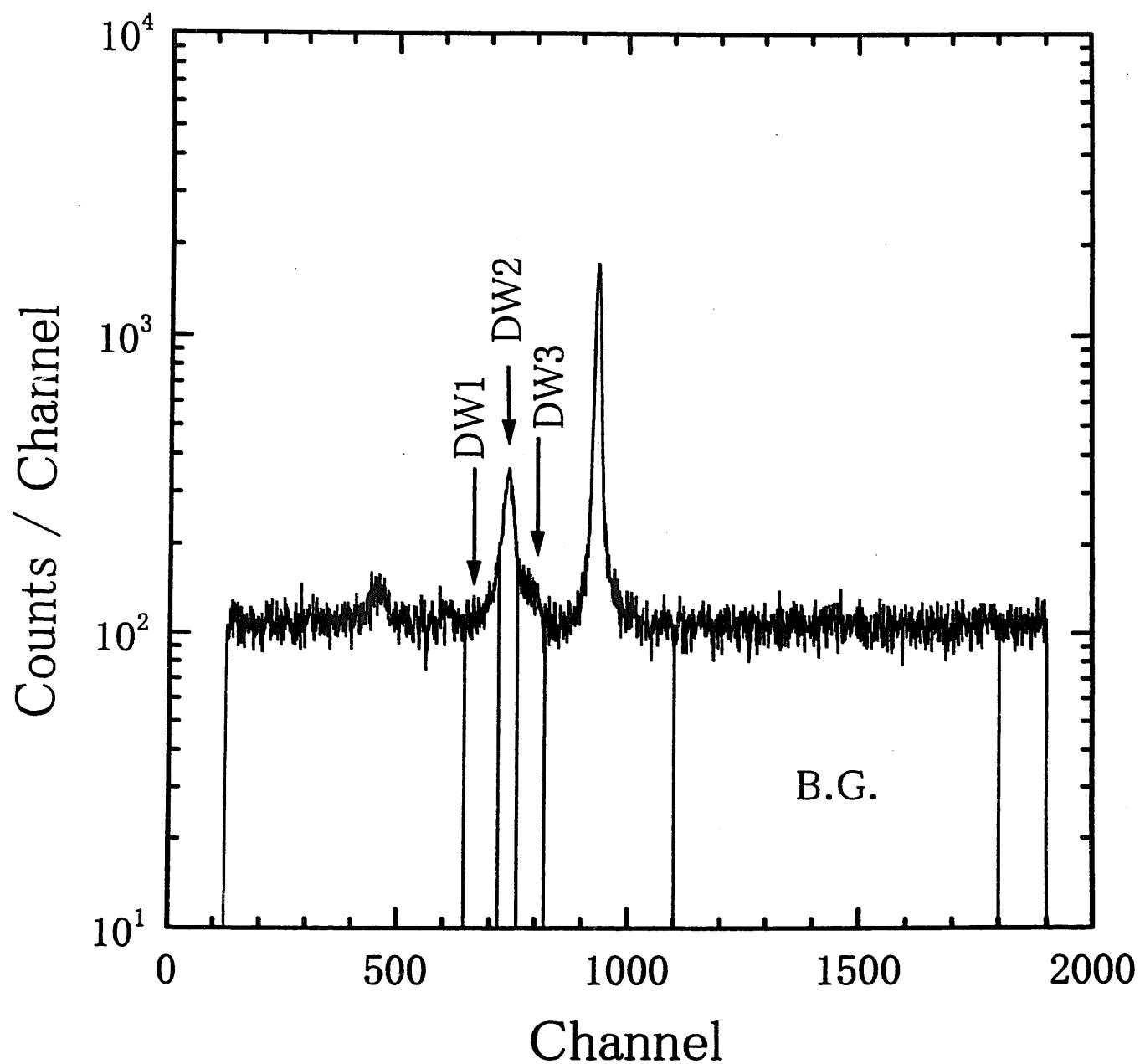


図 20 ガンマ線検出器で測定された T O F スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験で、試料は大型アルミニウム試料。図中の DW1 ~ 3 は入射中性子エネルギー領域①~③に対応。

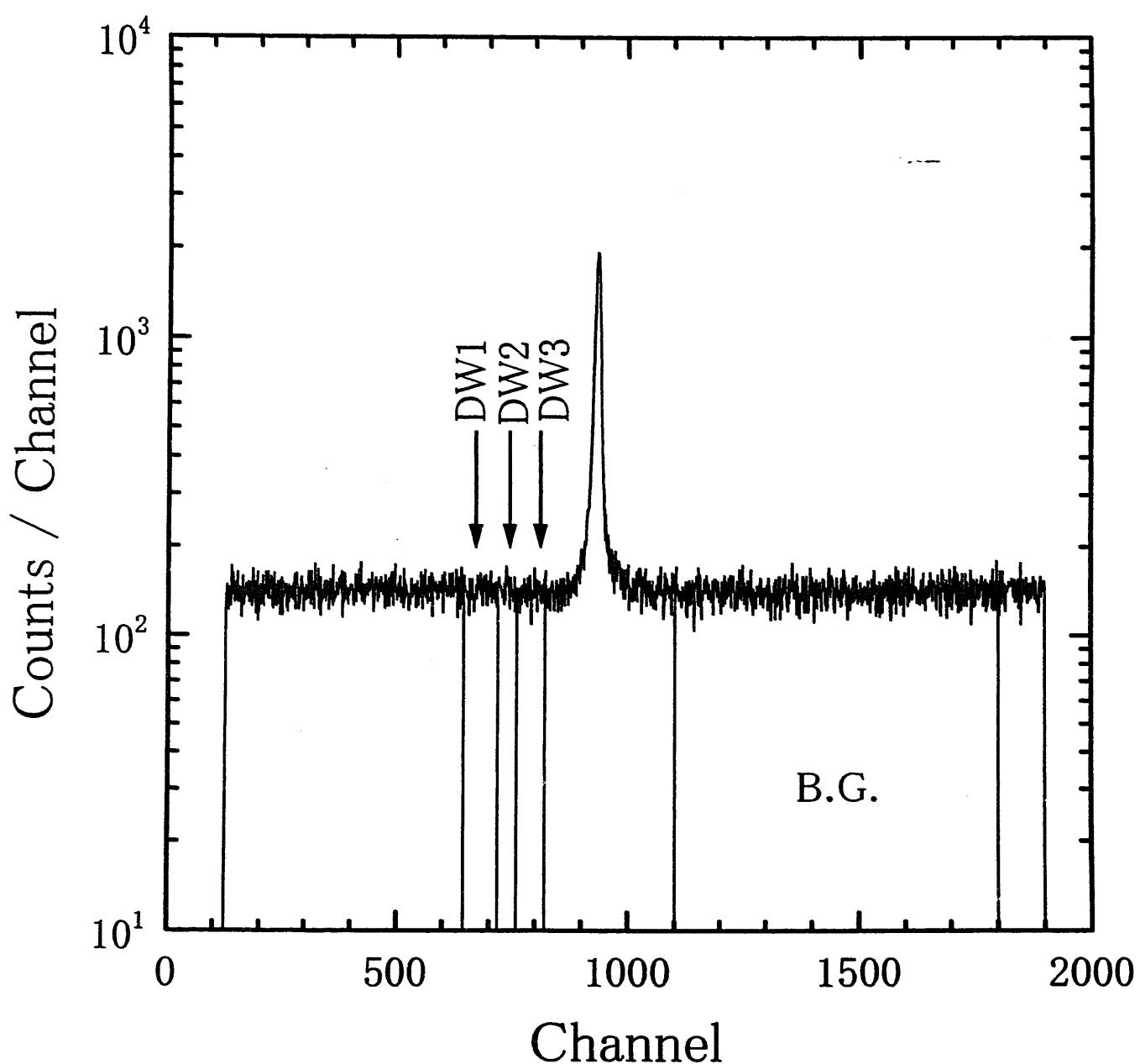


図 21 ガンマ線検出器で測定された T O F スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験で、試料として何も置かない場合。図中の DW1 ~ 3 は入射中性子エネルギー領域 ① ~ ③ に対応。

10～100 keV領域の実験のデータ解析においては、図18～図21のTOFスペクトル中のフォア・グランド部分に、2.7で述べた入射中性子エネルギー領域①～③に対応する3個のデジタル・ウインドウ(DW1～3)を設け、時間に殆ど依存しないバック・グランド領域に1個のDWを設けた。図22～図24に、10～100 keV領域の<sup>3</sup>Tc測定の際の①～③の入射中性子エネルギー領域に対するフォア・グランドの波高スペクトルと時間にあまり依存しないバック・グランドの波高スペクトルを各々示す。図中のフォア・グランドにおいて、7.7 MeV付近のピークは、アルミニウム容器からの捕獲ガンマ線及び検出器系の構造材である鉄の捕獲ガンマ線から構成されている。鉄の捕獲ガンマ線は時間にあまり依存しないので、バック・グランドの波高スペクトル中にも同程度観測されている。DWの幅で規格化してフォア・グランドの波高スペクトルから時間にあまり依存しないバック・グランドの波高スペクトルを引き去り、更に、アルミニウム容器からの捕獲ガンマ線波高スペクトルを適切に引き去ると、ほぼ正味の<sup>3</sup>Tc(n,γ)反応からのガンマ線波高スペクトルを得ることができる。このようにして得られた<sup>3</sup>Tcの、①～③のエネルギー領域に対する正味の捕獲ガンマ線波高スペクトルを図25～図27に各々示す。また、標準Au試料の、②のエネルギー領域に対する正味の捕獲ガンマ線波高スペクトルを図28に示す。

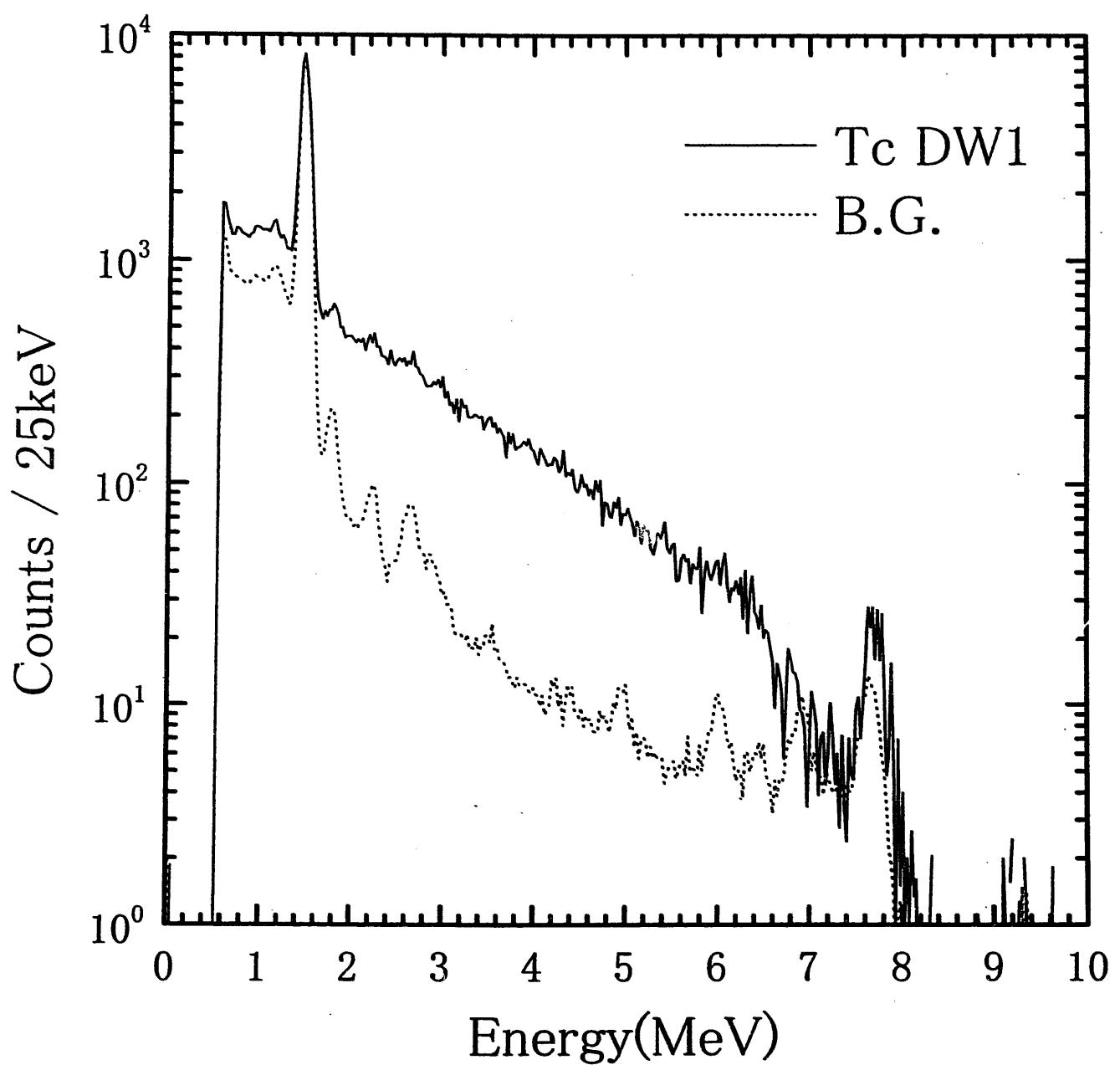


図 2 2 ガンマ線検出器で測定されたフォア・グランド（実線）及びバック・グランド（点線）の波高スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験における、"Tc の DW1 のスペクトル。バック・グランドは、DW1 の時間幅に規格化したもの

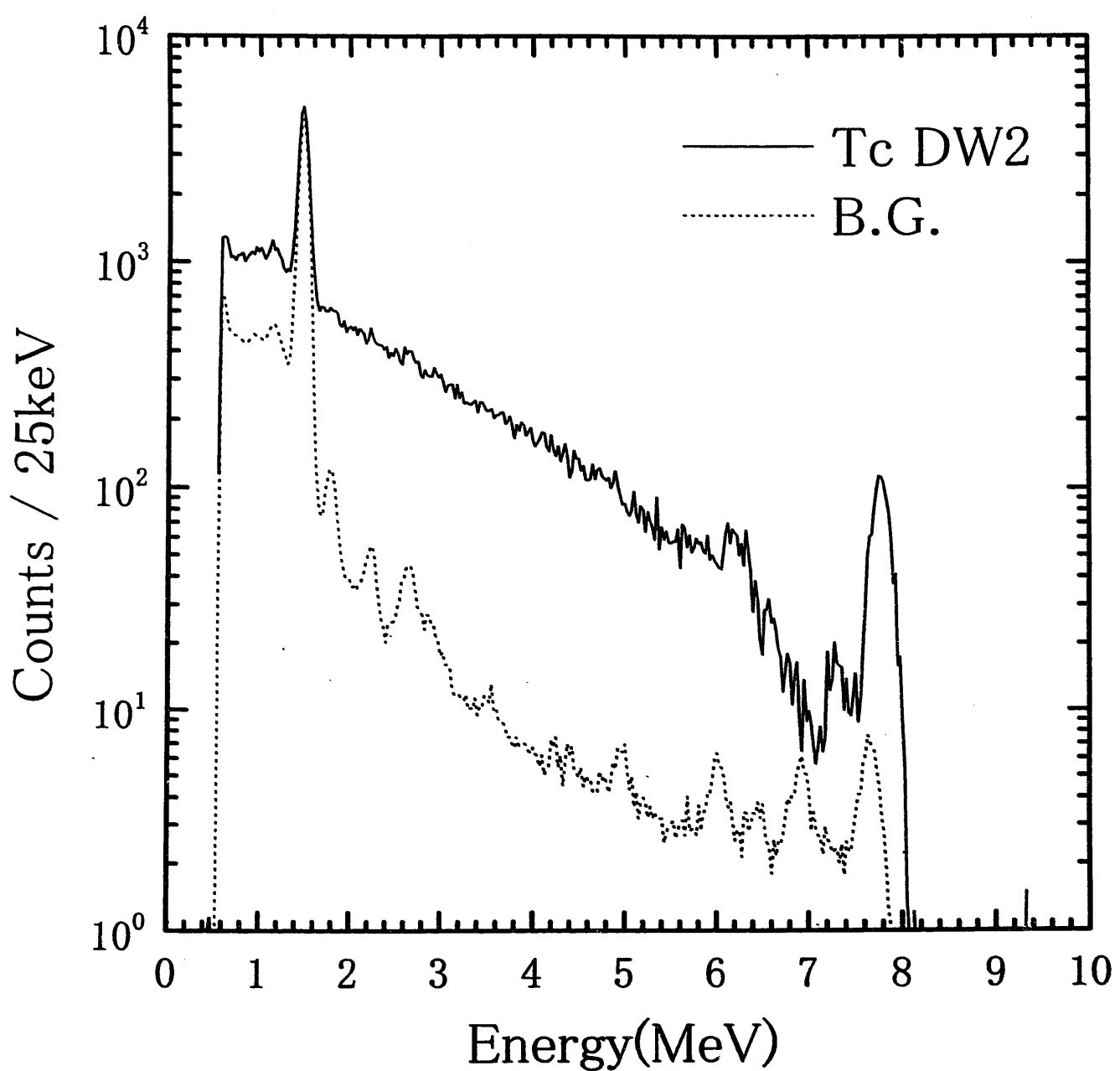


図 23 ガンマ線検出器で測定されたフォア・グランド（実線）及びバック・グランド（点線）の波高スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験における、 ${}^{33}\text{Tc}$  の DW2 のスペクトル。バック・グランドは、DW2 の時間幅に規格化したものと示している。

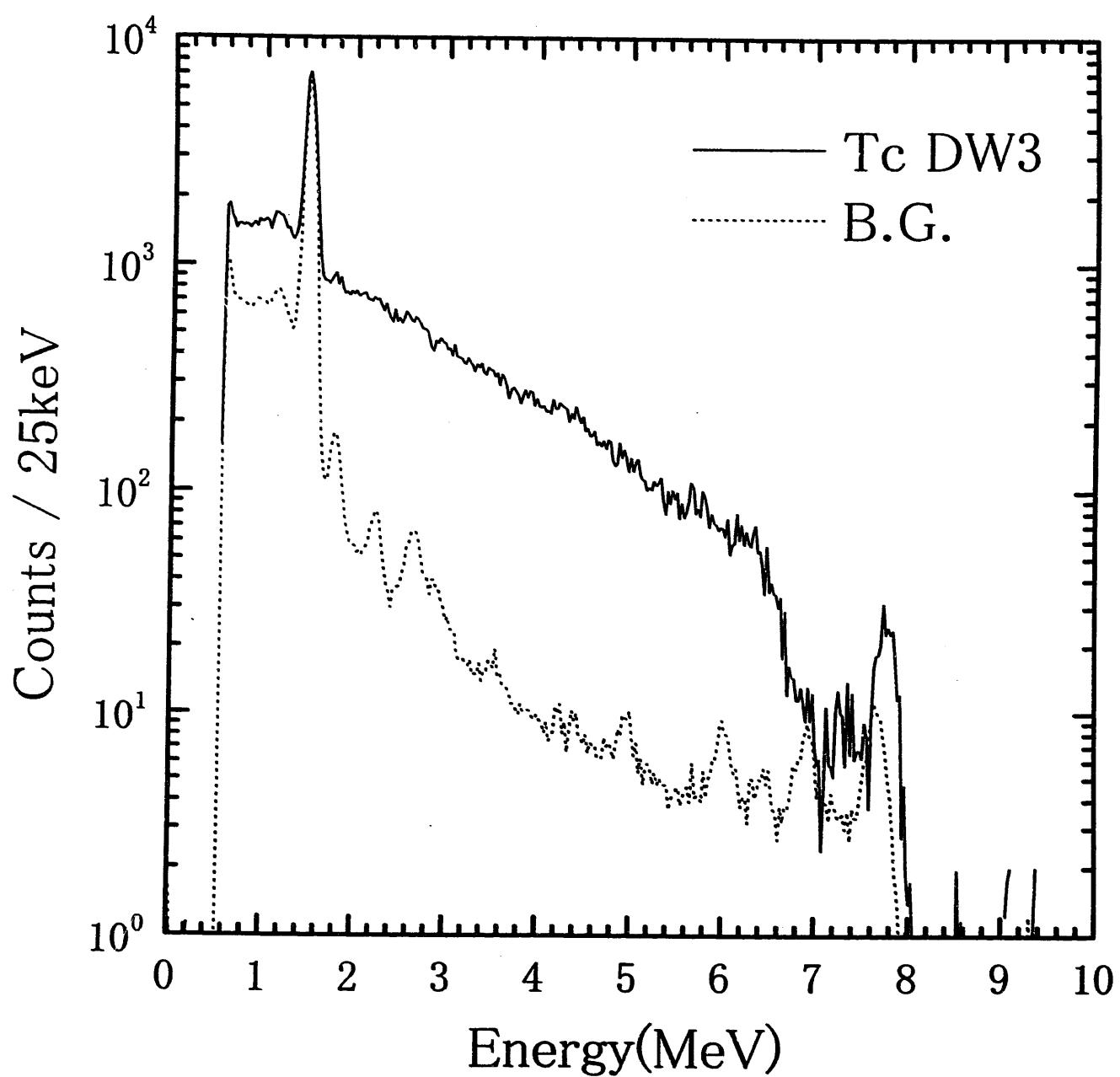


図24 ガンマ線検出器で測定されたフォア・グランド（実線）及びバック・グランド（点線）の波高スペクトル。中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験における、"Tc の DW3 のスペクトル。バック・グランドは、DW3 の時間幅に規格化したものを見ている。

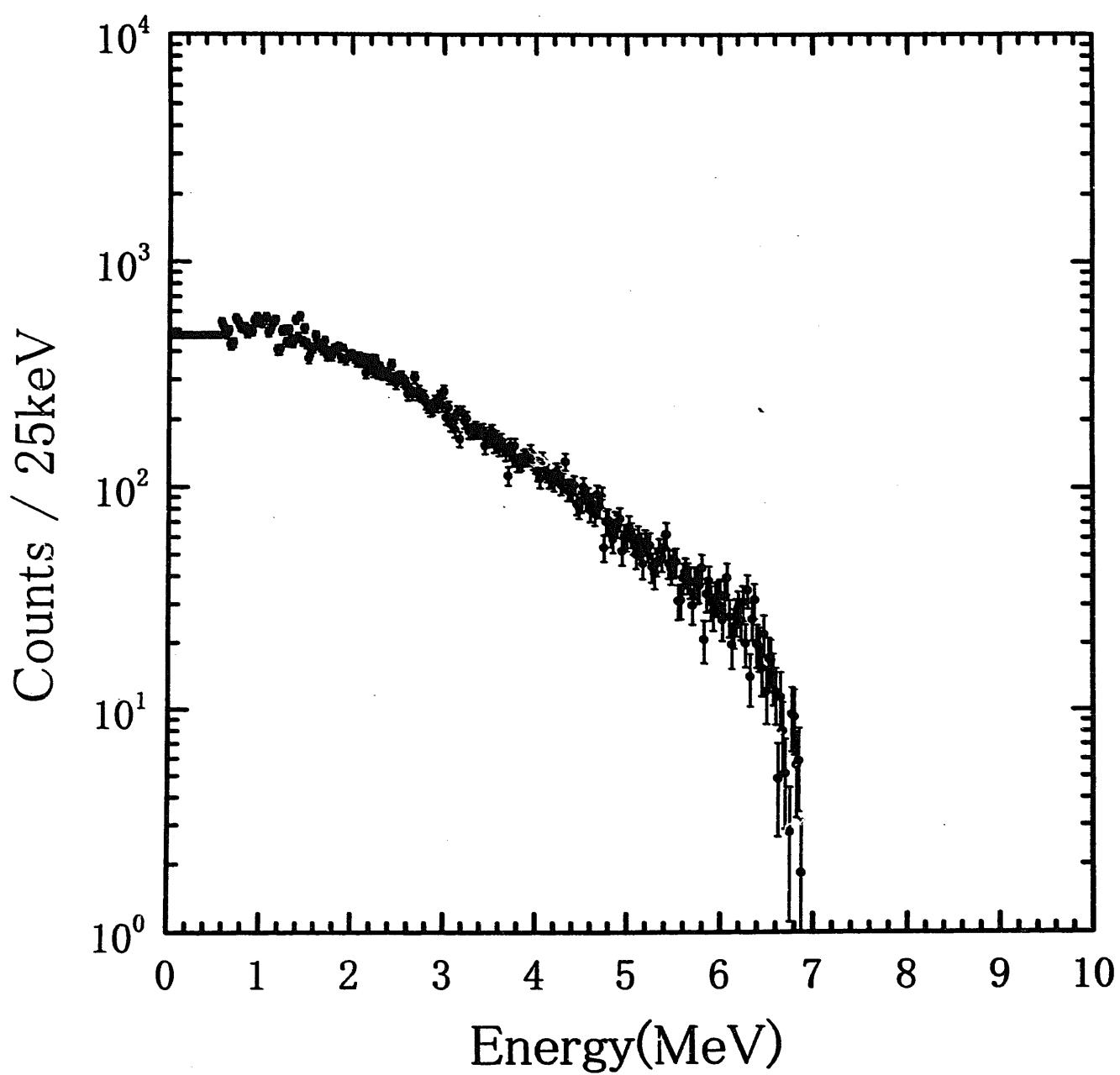


図 25 ガンマ線検出器で測定された<sup>7</sup>Tcの正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル。  
中性子エネルギー 10 ~ 100 keV の実験における、DW1 のスペクトル。

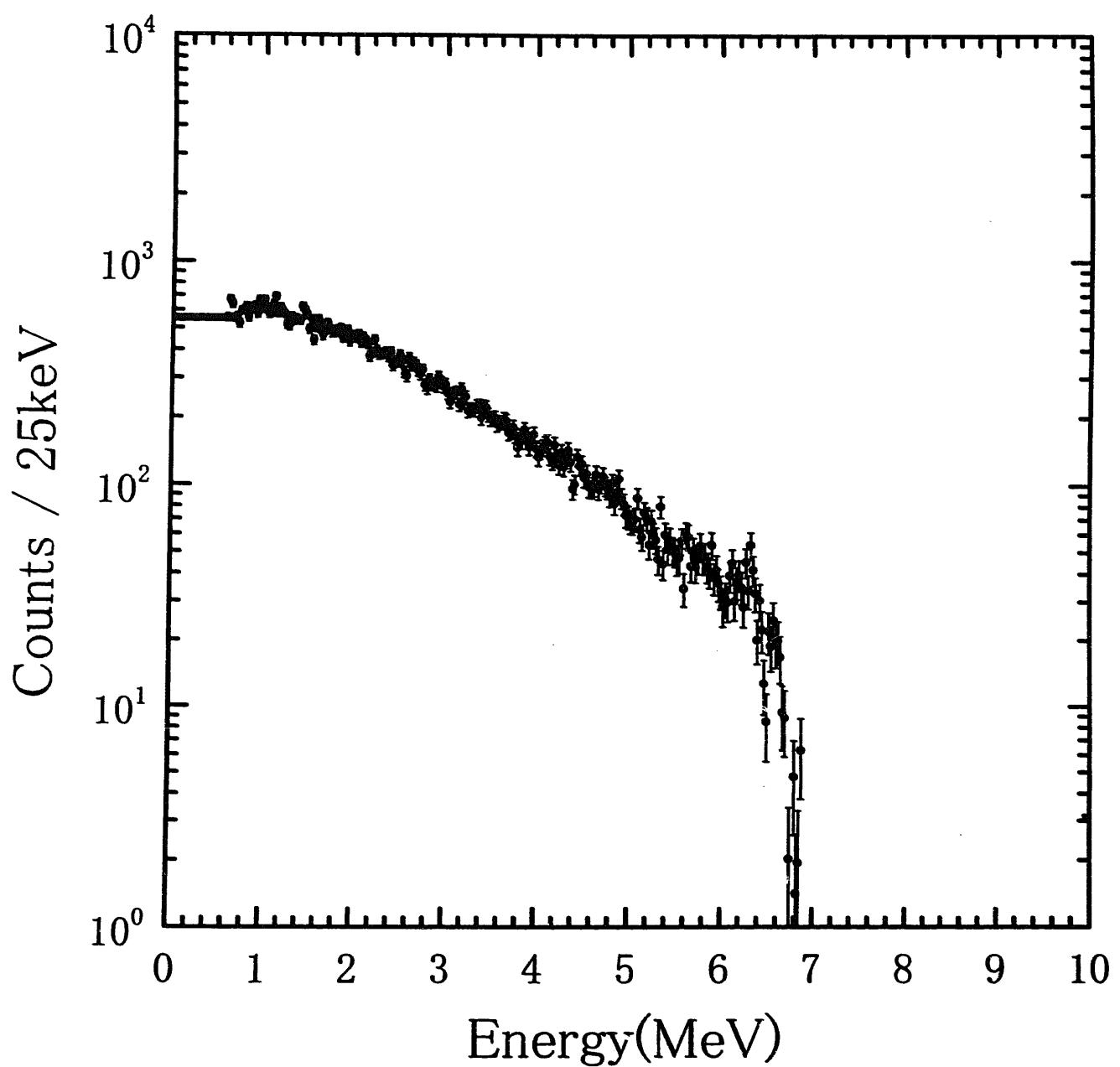


図 2 6 ガンマ線検出器で測定された<sup>3</sup>T の正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル。  
中性子エネルギー 10 ~ 100 keV の実験における、DW2 のスペクトル。

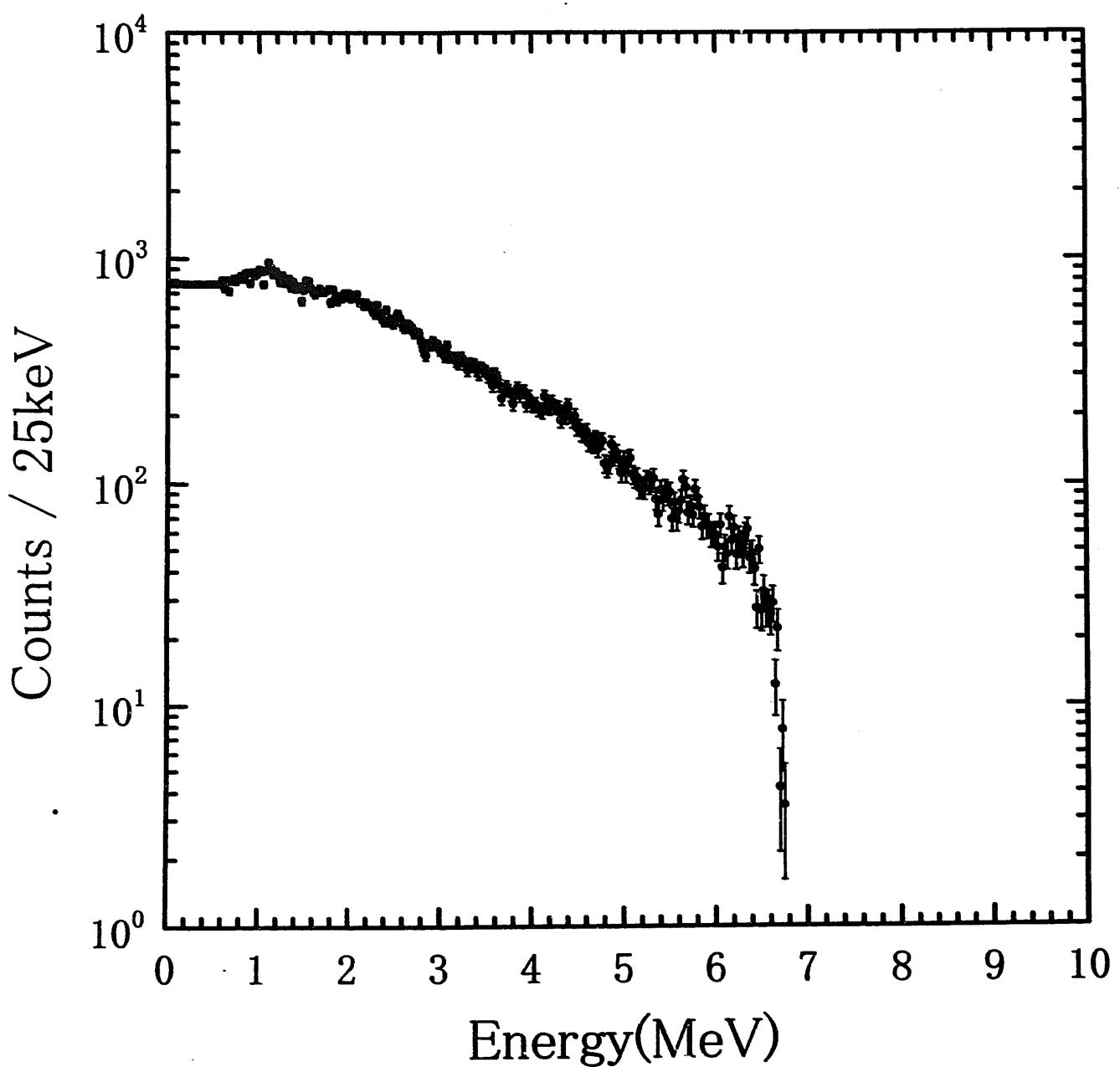


図 27 ガンマ線検出器で測定された $^{25}\text{Tc}$ の正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル。  
中性子エネルギー  $10 \sim 100 \text{ keV}$  の実験における、DW3 のスペクトル。

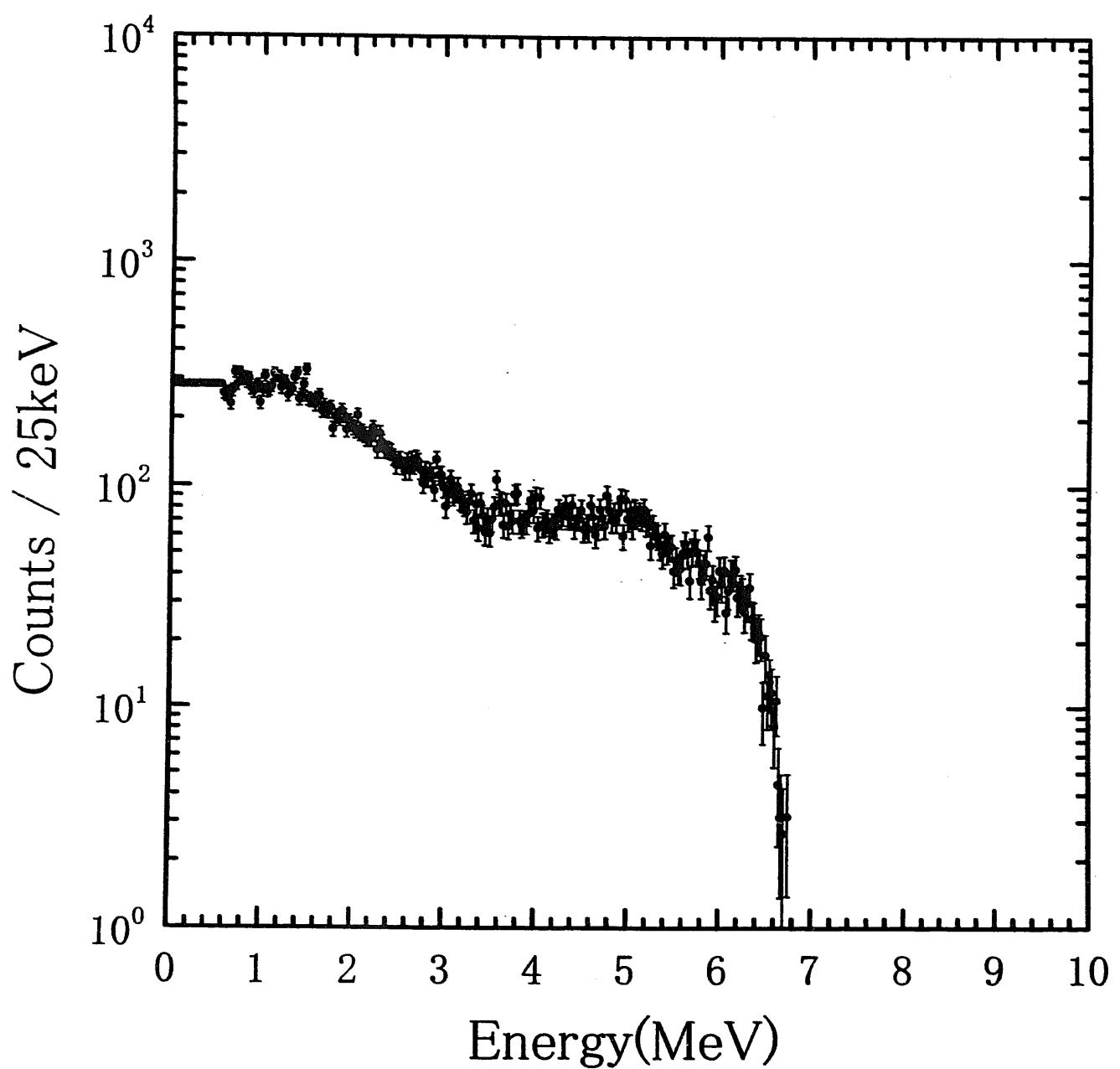


図 28 ガンマ線検出器で測定された $^{197}\text{Au}$ 正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル。  
中性子エネルギー  $10 \sim 100\text{ keV}$  の実験における、DW2 のスペクトル。

### 3. 3 捕獲イールド

本研究では、正味の捕獲ガンマ線波高スペクトルに波高重み法<sup>11)</sup>を適用して捕獲イールドを求めた。以下に、波高重み法について説明する。

#### 3. 3. 1 波高重み法

中性子捕獲によって形成された複合核には様々なガンマ線崩壊モードがあり、放出されるガンマ線の数やエネルギーは各モードによって異なる。しかし、各崩壊モードで放出されるエネルギーの合計は、中性子結合エネルギー  $B_E$  と入射中性子エネルギー  $E_n$  の和に等しい。即ち、

$$\sum_{j=1}^{m_i} E_{ij} = B_E + E_n \quad (3-2)$$

ただし、 $m_i$  は  $i$  モードで放出されるガンマ線の数、 $E_{ij}$  は  $i$  モードで  $j$  番目に放出されるガンマ線のエネルギーである。

また、崩壊モードが  $M$  種類、 $i$  モードが  $S_i$  回起きたとすると、中性子捕獲イールド  $Y$  は次のように表わされる。

$$Y = \sum_{i=1}^M S_i \quad (3-3)$$

検出器の応答関数を  $R(I, E)$  とすると、 $I$  チャネルの計数  $S(I)$  は、

$$S(I) = \sum_{i=1}^M S_i \sum_{j=1}^{m_i} R(I, E_{ij}) \quad (3-4)$$

と書ける。

波高重み法では、重み関数  $W(I)$  を、

$$\sum_I R(I, E_{ij}) W(I) = E_{ij} \quad (3-5)$$

で定義し、 $W(I)$  を (3-4) 式の両辺にかけて  $I$  について和をとる。すなわち、

$$\begin{aligned} \sum_I S(I) W(I) &= \sum_{i=1}^M S_i \sum_{j=1}^{m_i} \sum_I R(I, E_{ij}) W(I) = \sum_{i=1}^M S_i \sum_{j=1}^{m_i} E_{ij} \\ &= (B_E + E_n) \sum_{i=1}^M S_i = (B_E + E_n) Y \end{aligned} \quad (3-6)$$

よって、捕獲イールドは

$$Y = \frac{\sum_I S(I) W(I)}{B.E. + E_n} \quad (3-7)$$

と求まる。なお、 $W(I)$ は試行関数を仮定して、(3-5)式を満たすように最小二乗法で求めた。  
得られた重み関数は、

$$W(I) = 2.42 \times 10^2 I^{0.5} + 3.01 I + 0.244 I^2 - 2.96 \times 10^{-4} I^3 \quad (\text{MeV}) \quad (3-8)$$

である。

### 3. 4 入射中性子数

標準Au試料の測定から得られたAuの捕獲イールドとAuの標準捕獲断面積を用いると、標準Au試料及び各測定試料に入射した中性子数を以下の様に求めることができる。

Auの標準中性子捕獲断面積  $\sigma_{Au}$ (barn)、金試料の厚さ  $d_{Au}$ (atoms/barn)、金に入射した中性子数  $\phi_{Au}$ を用いると、金の中性子捕獲イールドは次のように書ける。

$$Y = C_{Au} d_{Au} \phi_{Au} \int \sigma_{Au}(E) \eta(E) dE \quad (3-9)$$

$C_{Au}$  : 検正係数  
 $\eta$  : 中性子分布関数(1/keV)

(3-7)式と(3-9)式から、金試料に入射した中性子数  $\phi_{Au}$ は

$$\phi_{Au} = \frac{\sum_I S(I) W(I)}{B.E. + E_n} / (C_{Au} d_{Au} \int \sigma_{Au}(E) \eta(E) dE) \quad (3-10)$$

と求まる。

また、各試料に入射した中性子数  $\phi_S$ は、

$$\phi_S = \phi_{Au} \times \frac{T_S \times R_S^2}{T_{Au} \times R_{Au}^2} \quad (3-11)$$

$T_S, T_{Au}$ : 試料及び金の測定時のLi検出器の計数  
 $R_S, R_{Au}$ : 試料及び金試料の半径

と求まる。(ここで、中性子源とLi検出器の間に試料が存在するので、試料による中性子遮蔽効果を補正する必要がある。)

### 3. 5 捕獲断面積

各試料の捕獲イールド  $Y_S$  と捕獲断面積  $\sigma_g$  との関係は、

$$Y_S = Cd \phi_S \int \sigma_g(E) \eta(E) dE / \int \eta(E) dE \quad (3-12)$$

C : 補正係数

d : 試料の厚さ (atoms/barn)

と書ける。ここで、平均捕獲断面積  $\langle \sigma \rangle$  を、

$$\langle \sigma \rangle = \int \sigma_g(E) \eta(E) dE / \int \eta(E) dE \quad (3-13)$$

で定義すると、

$$\langle \sigma \rangle = Y_S / Cd \phi_S \quad (3-14)$$

と求まる。

### 3. 6 補正係数

捕獲断面積の導出の際には、次の補正を考慮した。

$$C = C_{ns} \cdot C_{nm} \cdot C_{gg} \cdot C_{ga} \quad (3-15)$$

$C_{ns}$ : 試料内での中性子の分布に関する補正（自己遮蔽）

$C_{nm}$ : 試料によって散乱された中性子線の捕獲に関する補正（多重散乱）

$C_{gg}$ : 試料内の位置によるガンマ線の検出効率の変化に関する補正

$C_{ga}$ : 試料による捕獲ガンマ線の吸収に関する補正

各補正係数の導出法について次に述べる。

#### 3. 6. 1 $C_{ns}$

試料に入射した中性子束は、試料によって散乱・吸収されて減衰する。このため、実際の捕獲イールドは、エネルギーが  $E \sim E+dE$  の中性子による捕獲イールドを  $Y(E) dE$  とすると、

$$Y(E) dE = \sigma_g(E) \frac{1 - \exp(-n \sigma_t(E))}{\sigma_t(E)} \phi(E) dE \quad (3-16)$$

$n$  : 試料の厚さ

$\sigma_g$ : 捕獲断面積

$\sigma_t$ : 全断面積

$\phi$ : 中性子束

である。

ここで、 $C_{ns}$ を、

$$Y = \int Y(E) dE = C_{ns} \cdot n \int \sigma_g(E) \phi(E) dE \quad (3-17)$$

で定義すると、全断面積と捕獲断面積の比が入射中性子エネルギー範囲で一定であると仮定すると、

$$C_{ns} = \frac{\int (1 - \exp(-n\sigma_t(E))) \phi(E) dE}{\int n\sigma_t(E) \phi(E) dE} \quad (3-18)$$

となる。

### 3. 6. 2 $C_{nm}$

実際の捕獲イールドには、試料によって散乱された中性子による捕獲が含まれる。そこで、 $C_{nm}$ を次式で定義した。

$$Y = C_{ns} \cdot C_{nm} \cdot \int n\sigma_g(E) \phi(E) dE \quad (3-19)$$

$$C_{nm} = \frac{\text{捕獲反応の総数}}{\text{一度も散乱されなかった中性子による捕獲反応数}} \quad (3-20)$$

$C_{ns}$ 及び $C_{nm}$ の値は、モンテカルロ法による計算コードT I M<sup>12</sup>で求めた。

参考のため、 $C_{ns}$ 、 $C_{nm}$ 、及び $C_n = C_{ns} \cdot C_{nm}$ の値を表5に示す。

### 3. 6. 3 $C_{gg}$

試料が有限の大きさを持つために、試料内の各点から検出器を見込む立体角が異なる。このため、試料から発生したガンマ線の平均検出効率は、試料の中心からのガンマ線の検出効率と異なる。これを補正するための補正係数が $C_{gg}$ である。試料位置の各点でのガンマ線検出効率と試料の中心での検出効率との比をモンテ・カルロ法で計算して求められた。補正の量は1%以下であった。

### 3. 6. 4 $C_{ga}$

試料内で発生したガンマ線の一部は、試料自身によって吸収・散乱される。試料内でエネルギーEのガンマ線が一様・等方的に発生したとする。このとき、発生方向が検出器を見込む立体角内に入っているガンマ線の数をN、実際に検出器に入射するエネルギーE'のガンマ線の数をN(E', E)とし、 $N(E', E)/N$ をモンテカルロ法によって計算した。E'を離散化すると $R_s(k, E)=N(k, E)/N$ は一種の応答関数となり、(3-4)及び(3-5)式中の応答関数R(I, E)の代わりに合成応答関数 $R_c(I, E)=\sum_k R(I, k) R_s(k, E)$ を用いると、試料自身による捕獲ガンマ線の吸収・散乱の影響を補正することができる。補正の量は金試料に対しては2あるいは5%程度、<sup>90</sup>Tc試料については1%程度であった。

### 3. 7 誤差評価

最終結果の捕獲断面積の誤差として、以下の誤差を含めた。

- (1) ガンマ線波高スペクトル及び中性子TOFスペクトルの統計誤差。
- (2) <sup>197</sup>Auの捕獲断面積の標準として用いたENDF/B-VIの評価値<sup>13)</sup>の誤差。(3%)
- (3) 波高重み法で用いる重み関数の誤差に起因した誤差。(1%)
- (4) 波高重み法を適用した際、ディスクリ・レベル以下への波高スペクトルの外挿に起因した誤差。(1%)

表 5 中性子補正係数とその内訳

En=10~100keVの実験				
	DW1	DW2	DW3	
<sup>99</sup> Tc	C	1.047	1.156	1.032
	Cnm	1.065	1.207	1.055
	Cns	0.983	0.958	0.978
<sup>197</sup> Au	C	1.083	1.075	1.062
	Cnm	1.127	1.115	1.098
	Cns	0.961	0.964	0.967

#### 4 結果及び考察

本測定で得られた捕獲断面積の結果を表6に示す。また、今回の測定結果をJENDL-3.2並びにENDF/B-VIの評価値<sup>14)15)</sup>、及び他の測定値<sup>16)-18)</sup>と比較して図29に示す。

表6から分かるように、<sup>33</sup>Tcの捕獲断面積は5%程度の精度で得られた。また、図29から分かるように、今回の測定結果とLittle等の測定結果<sup>17)</sup>は良く一致している。しかし、Macklinの測定結果<sup>18)</sup>は今回の結果よりも15~20%小さく、また、Chou等の測定結果<sup>16)</sup>も今回の結果よりも30%程度小さい。JENDL-3.2の評価ではMacklinの測定値を全面的に採用したので、その評価値は今回の結果よりも15~20%小さな値となっている。一方、ENDF/B-VIの評価はMacklinの測定よりも古く、Chou等の測定値とLittle等の測定値を参考にして行われたので、評価値は今回の測定値に近い値となっている。

Chou等の実験では14MeV中性子源と鉛減速スペクトロメータを用いている。Little等及びMacklinの測定では共に電子線形加速器による光核反応中性子源を用いている。ガンマ線検出器としては、Little等は直径1.25mのタンク検出器、Macklinは一対のCsI検出器を用いている。即ち、今回と他の測定では測定方法が全く異なっている。従って、測定方法の異なるLittle等の測定値と今回の測定値が良く一致したことは、双方の測定値の信頼性が高いと考えるのが妥当である。

表 6 本研究で得られた<sup>33</sup>Tcの中性子捕獲反応断面積

En (keV)	捕獲断面積 (b)
22 (15-27)	1.29±0.06
34 (27-41)	0.89±0.04
59 (41-96)	0.64±0.03

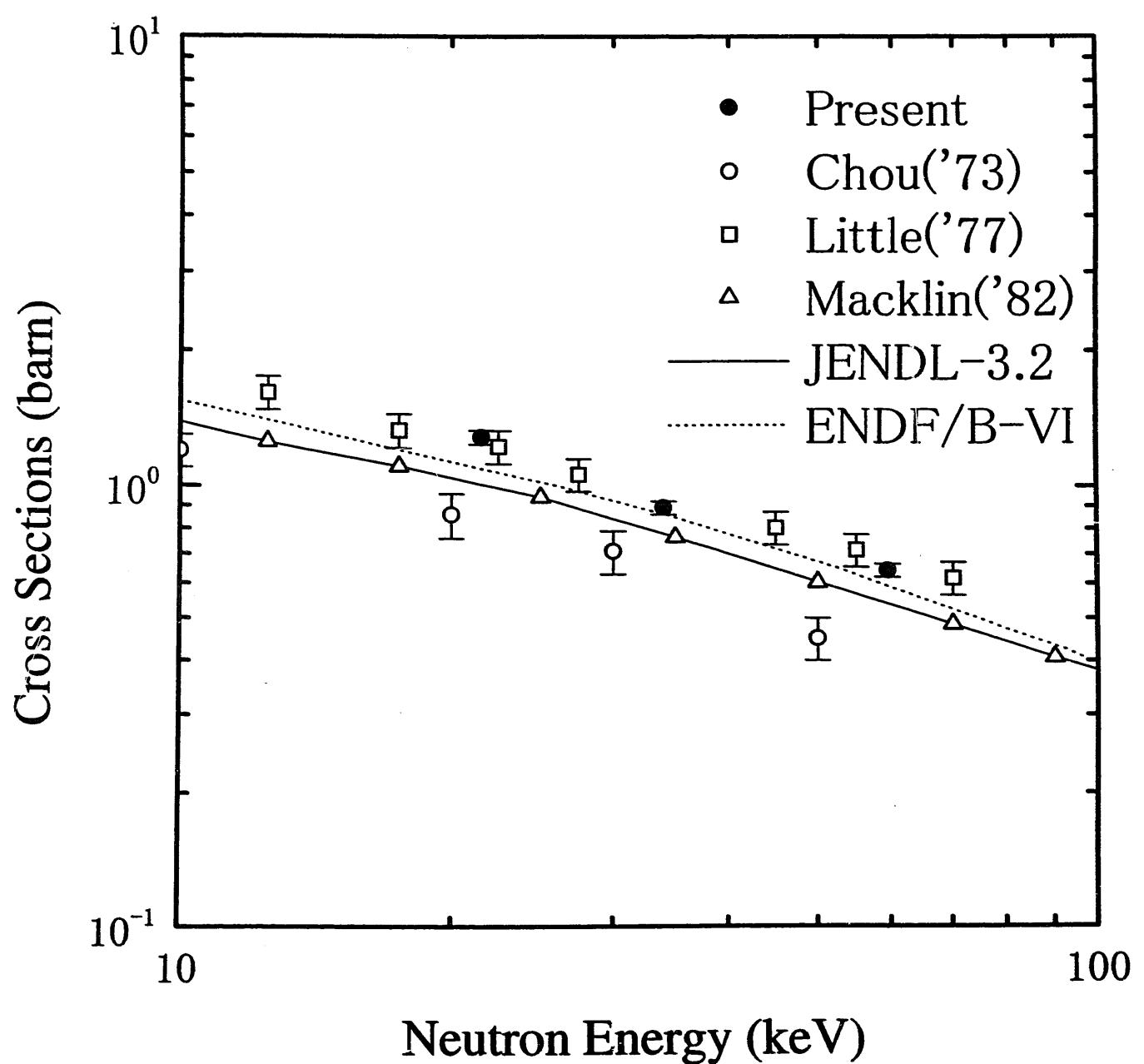


図 29 <sup>77</sup>Tc の中性子捕獲反応断面積。今回の測定値を、他の測定値、JENDL-3.2 及び ENDF/B-VI の評価値と比較している。

## 5 結論

本研究によって得られた成果及び結論をまとめると以下の様になる。

- (1)  $^{90}\text{Tc}$ について、入射中性子エネルギー 5～600 keV の領域において、中性子捕獲反応断面積測定実験を行い、誤差 5 % の精度で断面積を得た。
- (2) 今回得られた測定結果を、現存する他測定データ及び JENDL-3.2 並びに ENDF/B-VI の評価値と比較検討した。その結果、JENDL-3.2 は、 $^{90}\text{Tc}$ については 15～20 % の過小評価を行っていることが明らかになった。

## 参考文献

- 1) G. Zeisel: Acta. Phys. Austr., 23, 5223 (1966).
- 2) L. A. McVey, R. L. Brodzinski, and T. M. Tanner: J. Radio. Chem., 76, 131 (1963).
- 3) H. Harada, T. Sekine, Y. Hatsukawa, N. Shigeta, K. Kobayashi, T. Ohtsuki, and T. Katoh: J. Nucl. Sci. Technol., 31, 173 (1994).
- 4) Tables and Figures from JNDC Nuclear Data Library for Fission Products, Version 2, Ed. H. Ihara, JAERI-M 89-204 (1989).
- 5) S. F. Mughabghab and D. I. Garber: BNL 325, 3rd ed., vol.1 (1973).
- 6) M. Igashira, H. Kitazawa, and N. Yamamuro: Nucl. Instr. and Meth., A245, 432 (1986).
- 7) R. E. Meads and J. E. G. McIldowie: Nucl. Phys., 33, 502 (1962).
- 8) C. Y. Choa, A. V. Tollesstrup, W. A. Fowler and C. C. Lauritsen: Phys. Rev., 79, 108 (1950).
- 9) A. Anttia, J. Keinonen, M. Hautala and I. Forsbrom: Nucl. Instr. and Meth., 147, 501 (1977).
- 10) H. Kendrick and S. M. Sperling: GA-9882 (1970).
- 11) R. L. Macklin and J. H. Gibbons: Phys. Rev. 159, 1007 (1967).
- 12) K. Senoo, Y. Nagai, T. Shima, T. Ohsaki, and M. Igashira: Nucl. Instr. and Meth., A339, 556 (1994).
- 13) ENDF/B-VI data file for <sup>197</sup>Au (MAT=7925), evaluated by P. G. Young (1984).
- 14) M. Kawai, T. Nakagawa, S. Chiba, Y. Nakajima, T. Sugi, Y. Kikuchi, T. Watanabe, A. Zukeran, and H. Matsunobu: Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Gatlinburg, Tennessee, May 9-13, 1994, p. 727, edited by J. K. Dickens, American Nuclear Society, 1994.
- 15) ENDF/B-VI data file for <sup>99</sup>Tc (MAT=4325), evaluated by S. E. Schenter et al. (1978).
- 16) J. C. Chou and H. Werle: J. Nucl. Energy, 27, 811 (1973).
- 17) R. C. Little and R. C. Block: Trans. Am. Nucl. Soc., 26, 574 (1977).
- 18) R. L. Macklin: Nucl. Sci. Eng., 81, 520 (1982).

## 付録 アンフォールディング

正味の捕獲ガンマ線波高スペクトル（以後、波高分布と呼ぶ）は、実際に試料内で発生した捕獲ガンマ線スペクトルとは異なっている。波高分布から捕獲ガンマ線スペクトルを計算することを、一般に、アンフォールディングという。

波高分布を  $h(I)$  ( $I$  : チャネル)、ガンマ線エネルギースペクトルを  $\nu(E)$  ( $E$  : エネルギー)、応答関数を  $R(I, E)$  とすると、波高分布  $h(I)$  は、

$$h(I) = \int R(I, E) \nu(E) dE \quad (A-1)$$

と表すことができる。エネルギー  $E$  は連続量で扱うことができないので、

$$h(I) \sim \sum; R(I, E_j) \nu(E_j) \Delta E_j \quad (A-2)$$

と近似する。この (A-2) 式から  $\nu(E_j)$  を求めたいのだが、実際にはこの  $\nu(E_j)$  も、検出効率が一定でガウス形の応答関数を持つ理想的な検出器の概念を導入し、その検出器で得られる波高スペクトル  $\nu'(E_j)$  で近似される<sup>10)</sup>。この  $\nu'(E_j)$  を観測された波高分布  $h(I)$  から最小二乗法で求める。本研究では、前に述べた応答関数を用いて、計算コード F E R D O R<sup>10)</sup>によってアンフォールディングを行った。（尚、アンフォールディングの際には、試料自身による捕獲ガンマ線の吸収・散乱の影響も考慮した。）