

JNC TJ9400 2000-009

鉛スペクトロメータを用いた
テクネシウム-99 の
中性子捕獲断面積測定の予備検討

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2000年 2月

京都大学原子炉実験所

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下さい。

〒 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

鉛スペクトロメータを用いた
テクネシウム-99 の
中性子捕獲断面積測定の予備検討

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2000年 2月

京都大学原子炉実験所

2000年2月

鉛スペクトロメータを用いたテクネシウム-99の 中性子捕獲断面積測定の前備検討

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

小林捷平 *

要 旨

本研究の前半では、長半減期を有する核分裂生成物(FP)の代表的核種であるTc-99について、まず、中性子核データの現状、評価済核データについて調査を行った。次に、京都大学原子炉実験所の電子線型加速器と組み合わせて付設されている京都大学鉛スペクトロメータ(KULS)を用いて、 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を熱中性子から1 keVのエネルギー領域において測定した。中性子捕獲によって放出される即発ガンマ線は、アルゴンガス入り比例計数管を用いて測定した。入射中性子束/スペクトルの測定はBF₃比例計数管によって行い、捕獲断面積の絶対値は $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応によって求めた相対測定値をTc-99の熱中性子断面積に規格化した。Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽効果は、MCNPコードを用いた計算によって補正した。Chouらが鉛スペクトロメータを用いて測定したTc-99の中性子捕獲断面積は、本測定値より全体に高いがエネルギー依存性はよく一致している。ENDF/B-VI、JENDL-3.2の評価済核データは、5.6、20eV共鳴領域及び数100keV以上で高くなっている。

本研究の後半では、鉛スペクトロメータの原理とその構築、諸特性についてまとめた。中でも、KULSの特性として ①中性子減速時間 $t(\mu\text{s})$ とエネルギー $E(\text{keV})$ の関係 (ビスマス孔: $E=190/t^2$ 、鉛孔: $E=156/t^2$) 及び ②エネルギー分解能 (ビスマス孔、鉛孔共に約40%) に関しては共鳴フィルターを用いて実験的に求め、③飛行時間分析法によってKULS体系中の中性子スペクトルを測定した。一方、MCNPコードを用いてKULSの諸特性を計算した結果、全体に実験値とよい一致を示した。

本報告書は、京都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

* 京都大学原子炉実験所

February 2000

Preliminary Experiment of Neutron Capture Cross Section of Tc-99 with Lead Slowing-down Spectrometer

Katsuhei Kobayashi *

Abstract

The present status of nuclear data for technetium(Tc)-99, which is a well-known fission product(FP), has been reviewed and investigated. And making use of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS), the cross section of the $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ reaction has been measured in the energy range from thermal to keV neutron energy with an Ar-gas proportional counter. The neutron flux/spectrum has been monitored with a BF_3 proportional counter, and the relative measurement has been normalized to the well-known standard capture cross section value for the $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ reaction at 0.0253 eV. Self-shielding corrections, especially near the resonance peaks, were made by the calculations with the MCNP code. Although the experimental data measured by Chou et al with a lead slowing-down spectrometer are higher in general, the energy dependency is similar to the present measurement. The evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are higher near the resonances at 5.6 and 20 eV and above several 100 eV.

A lead slowing-down spectrometer was installed coupled to a 46 MeV electron linac at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). Characteristics of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) were measured and ① the relation between neutron slowing-down time $t(\mu\text{s})$ and energy $E(\text{keV})$ ($E=190/t^2$ in Bi hole and $E=156/t^2$ in Pb hole) and ② the energy resolution ($\sim 40\%$ in Bi and Pb holes) were experimentally investigated. ③ The neutron energy spectrum in the KULS was also measured by the neutron TOF method. The results obtained by the MCNP code were in general agreement with these experimental ones.

Work performed by Research Reactor Institute, Kyoto University under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC).

JNC Liaison: O-arai Engineering Center, System Engineering Technology Division
Reactor Physics Research Group.

* Research Reactor Institute, Kyoto University

鉛スペクトロメータを用いたテクネシウム-99の 中性子捕獲断面積測定の前備検討

目 次

第 1 章 テクネシウム(Tc)-99の中性子捕獲断面積測定

	ページ
1. 序論	1
2. Tc-99の中性子核データ	5
2.1 評価済核データファイル	5
2.2 核データの現状	6
3. 鉛スペクトロメータを用いたTc-99の中性子捕獲断面積測定	8
3.1 はじめに	8
3.2 Tc-99の試料	8
3.3 アルゴンガス入り比例計数管	9
3.4 中性子捕獲断面積の測定	10
3.5 中性子自己遮蔽効果の補正	11
3.6 測定結果	12
3.7 まとめ	14
4. 本実験の課題と今後	15
参考文献	16

第2章 京都大学鉛スペクトロメータ

	ページ
1. 鉛スペクトロメータとその特徴	18
2. 鉛スペクトロメータの原理	20
3. 京都大学鉛スペクトロメータ	21
3.1 京都大学鉛スペクトロメータ、KULS	21
3.2 KULS 中の中性子輸送計算	23
3.3 KULS の特性	25
3.3.1 中性子減速時間とエネルギーの関係	25
3.3.2 KULS のエネルギー分解能	25
3.3.3 KULS 内の中性子スペクトル	28
3.4 まとめ	31
参考文献	31
付 録	33
付録A : $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)$ 反応断面積の実験データの現状	35
付録B : Capture Cross Section Measurement of Np-237 below 1 keV with Lead Slowing-down Spectrometer	40
付録C : MA Nuclear Data Measurement with Lead Slowing- down Spectrometer	46
付録D : Characteristics of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) coupled to an Electron Linac	52

第1章 テクネシウム-99の中性子捕獲断面積測定

図のリスト

	ページ
図1 アクチニド核種の生成と崩壊の図	2
図2 HLWの潜在的毒性指数の経年変化	3
図3 Tc-99 の中性子全断面積の既存実験データ	6
図4 Tc-99 の中性子全断面積の評価済核データ	6
図5 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の既存実験データ	7
図6 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子捕獲断面積の既存実験データ	7
図7 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の評価済核データ	7
図8 Tc-99とアルゴンガス比例計数管の実験配置図	9
図9 Tc-99による時間スペクトル測定の例	10
図10 バックグラウンド（試料なし）測定の時間スペクトル測定の例	10
図11 マイクロBF ₃ 比例計数管による時間スペクトル測定の例	11
図12 Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数	12
図13 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定結果と評価値の比較 （KULSのエネルギー分解能でなましている）	13
図14 KULSのエネルギー分解能（半値幅）曲線	13

第1章 テクネシウム-99の中性子捕獲断面積測定

表のリスト

	ハ°-ｼ°
表1 マイナーアクチニド(MA)の生成量 - - - - -	3
表2 PWRにおける半減期10年以上の核分裂生成物の年間の生産量 - - - - -	4
表3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子断面積(2200m/s値)(ハ°-ｼ°) - - - - -	7

第2章 鉛スペクトロメータ

図のリスト

	A°-ジ°
図 1 鉛スペクトロメータKULSの断面図 - - - - -	22
図 2 電子線型加速器室と鉛スペクトロメータKULSの設置位置 - - - - -	22
図 3 鉛スペクトロメータKULSの平面図（上）と垂直断面図（下） - - - - -	22
図 4 KULSのビスマス実験孔における中性子の時間依存スペクトル - - - - -	24
図 5 KULS内の（定常）中性子スペクトルの計算結果 - - - - -	24
図 6 KULSのビスマス実験孔と鉛実験孔における中性子減速時間とエネルギーの関係 - - - - -	26
図 7 中性子透過法によって測定された時間スペクトルの例 - - - - -	26
図 8 共鳴捕獲 γ 線測定によるエネルギー分解能測定の例 - - - - -	27
図 9 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応のENDF/B-VI評価値と、KULSの分解能関数でなました結果 - - - - -	29
図 10 $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ 反応のENDF/B-VI評価値と、KULSの分解能関数でなました結果 - - - - -	29
図 11 ^6Li ガラスシンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した 鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較 - - - - -	30
図 12 ^{10}B -vaseline plug NaI(Tl)シンチレータを用いて飛行時間分析法により 測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる 計算値の比較 - - - - -	30

第2章 鉛スペクトロメータ

表のリスト

表1	中性子源としてのKULS、Linac、KURの比較	19
表2	共鳴フィルターと共鳴エネルギー	24
表3	ビスマス及び鉛実験孔におけるエネルギー分解能	27

第1章 テクテシウム(Tc)-99の中性子捕獲断面積測定

1. 序論

原子炉では、核分裂によって多量のエネルギーと中性子が発生すると共に核燃料の燃焼によって核分裂生成物(FP)が、中性子捕獲によって燃料中のウランやプルトニウムからは高次の超ウラン元素(TRU)/マイナーアクチニド(MA)が生成蓄積される。図1は、ネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)など、いわゆるマイナーアクチニド(MA)核種の生成と変換の過程を示している。100万kWe級の軽水炉一基あたり、MAは一年間に約20数kg生成すると言われている(表1)/1,2/。表2は、PWRの使用済燃料(燃焼度33000MWd/tU)における半減期10年以上のいわゆる長寿命核分裂生成物(LLFP)の主なものの生成量を示す/1-3/。MA核種の大部分は超長半減期の高レベルアルファ放射性廃棄物(HLW)であり、また表2に示した寿命の長いFPも長半減期の放射性廃棄物となるため、これらは燃料再処理時の取扱い、放射性廃棄物の保管・管理において問題となる。図2は、放射性廃棄物の潜在的毒性指数の経年変化を示している。ここで言う毒性指数はHLW及びFP中のある核種の存在量(Bq単位)を経口年摂取限度(Bq単位)で割った値として定義している。この図を見ると、最初の数百年間はSr-90とCs-137が毒性指数の大半を占めるが、その後は長半減期核種が多いMAが毒性指数を占めるようになる。また、長寿命で収率の高いLLFPとして、Tc-99、I-129、Zr-93、Cs-135なども注目される。LLFPの地下水への移行性はMAよりはるかに大きいことも指摘されており、放射性毒性以外の点からもLLFPの消滅処理問題は重要である。こうした長寿命の高レベル放射性廃棄物を負の遺産として、またこれらのリスクを次の世代に残さないためにも、FPやMAをどのように処理処分するかが、今日の我々に課せられた大きな課題となっている/1-3/。

現在、放射性廃棄物の処理処分法の中で最も有力視されている方法に地層処分が挙げられる。核種の半減期が短く、人が直接管理できる低レベル放射性廃棄物の場合には、比較的浅い地層中で保管管理することも考えられるが、半減期の長いFPやMA核種のように長半減期の放射性廃棄物の場合には、人が住む環境に影響を及ぼさない地下約1000mの岩盤中に隔離貯蔵する深地層処分の方法が検討されている。このような場合でも、廃棄物の量をできるだけ減量しておくことが望まれる。

MAやFPを原子炉や加速器において核分裂・消滅させたり、核変換によって半減期の短い核種や毒性の少ない核種に変換させようとする試み、いわゆる消滅処理法が注目されている/1-3/。MAの場合は、単なる放射性廃棄物ではなく、中性子と反応させれば核分裂を起こしてエネルギー源にもなり、またMAやFPに中性子を吸収させると核変換する点

が注目される。こうしたMAやFPに関する消滅処理が実用化に至れば、放射性廃棄物の減量化と共にそれらの毒性指数も下がり、次世代の人々へのリスクを低減した地層処分が期待できる。一方、MAやFPであっても人工的に生成された新しい資源として、人類にとって有用なものも少なくない。

MAやFPに関連した核データは、原子炉の安全性・経済性評価のみならず、核燃料の燃焼特性や使用済燃料中に生成蓄積されるMAやFP量の予測、これらの消滅処理における有効性評価にとっても極めて重要な基礎データである。MAに関する核データの実験研究は、主として1960年頃から1980年代中頃にかけてかなり行われてきたものの^{/4/}、測定値間の差異が著しく、評価済核データ間にも違いが見られる等まだ不十分である^{/5/}。FPに関する核データの現状も必ずしも十分とは言い難い^{/4/}。このように問題となる主な理由には、MAは強いアルファ放射体で自発核分裂性核種も含んでおり、実験上その取扱いが難しくなること、バックグランドが高くなること、純度の高い試料が得にくいこと等が考えられる。Wagemans は、試料中の不純物が核データの測定値を大きく乱す（断面積を見かけ上大きくする）ことについて忠告している^{/6/}。特にMA核種は同位体元素も多く、不純物として混入し易いため、試料純度の問題は一層重要である。また、純度の高い試料であっても、試料自身の核変換/崩壊によって不純物となる核種が徐々に生成蓄積する場合もある

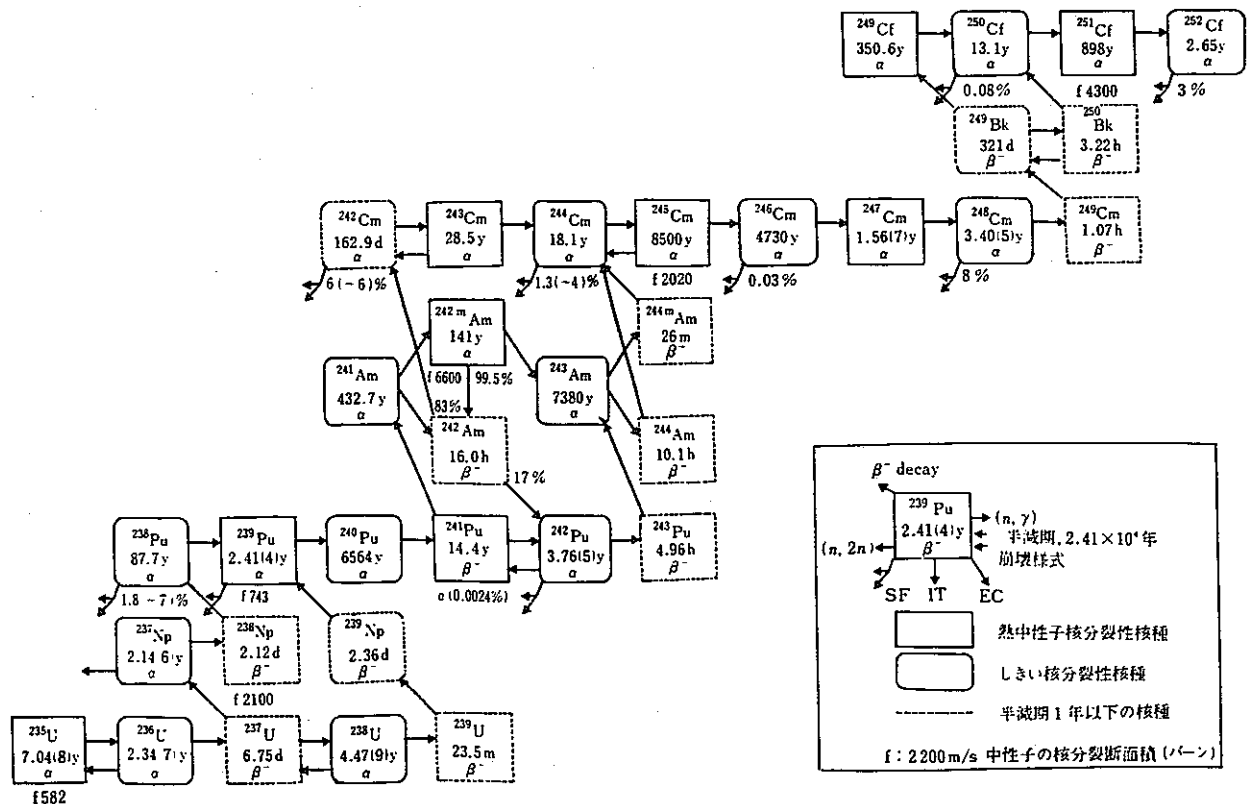
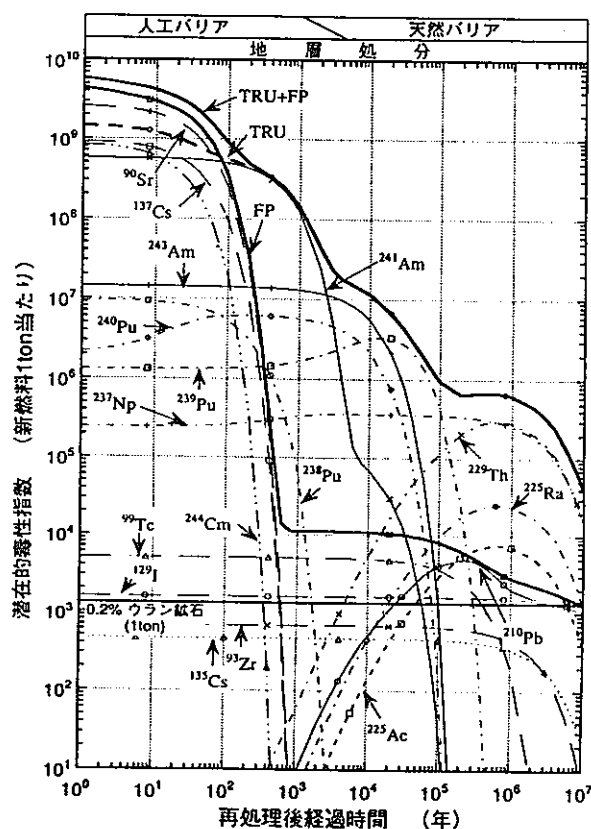


図1 アクチニド核種の生成と崩壊の図

表1 マイナーアクチニド(MA)の生成量

	3410MWt-PWR		2500MWt-FBR
冷却期間 核種	3年	10年	3年
²³⁷ Np	57.9%	41.3%	9.45%
²⁴¹ Am	27.4	48.8	54.9
^{242m} Am	0.06	0.04	1.38
²⁴³ Am	11.9	8.33	25.4
²⁴³ Cm	0.03	0.02	0.29
²⁴⁴ Cm	2.67	1.44	7.73
²⁴⁵ Cm	0.15	0.10	0.89
全重量	23.8kg	33.9kg	24.0kg

計算 : データ JENDL-2, 計算コード SRAC-FPGS
 燃焼度 : 33GWd/MT(PWR) 150GWd/MT(FBR)
 再処理から群分離までの冷却期間: 5年
 U,Puの回収率 : 100 %



潜在的毒性指数 = $\frac{\text{HLW中の核種量 (Bq)}}{\text{核種の経口年摂取限度 (Bq)}}$
 使用済燃料：燃焼度33GWD/MT、3年冷却
 再処理効率：99.5%U,Pu回収
 TRU：全超ウラン元素、FP：全核分裂生成物

図2 H L Wの潜在的毒性指数の
経年変化

表2 PWRにおける半減期10年以上の核分裂生成物の年間の生産量

半減期区分	核種名	半減期 (year)	重量 (kg/年)
10年～100年	Kr 85	1.07E+01	0.70
	Sr 90	2.91E+01	16.3
	Cs137	3.00E+01	36.4
	Sm151	9.00E+01	0.37
100年～10 ⁴ 年	該当無し		
10 ⁴ 年 ～ 5×10 ⁹ 年 ²⁾	Se 79	6.50E+04	0.15
	Zr 93	1.53E+06	21.3
	Tc 99	2.13E+05	23.4
	Pd107	6.50E+06	6.21
	Sn126	1.00E+05	0.64
	I129	1.57E+07	5.00
	Cs135	2.30E+06	9.52
合計 ³⁾	120.		
5×10 ⁹ 年以上	Rb 87	4.70E+10	7.25
	In115	5.00E+14	0.04
	Ce142	>5.0E+16	33.6
	Nd144	2.10E+15	30.3
	Sm147	1.07E+11	2.45
	Sm148	8.00E+15	2.76
	Sm149	9.99E+15	0.09

1) 生成量1g以上の核種のみ記載

2) ²³⁸Uの半減期は4.47×10⁹年

3) 半減期が10年～5×10⁹年の核分裂生成物の合計値

計算 : データ JENDL-2, 計算コード SRAC-FPGS

燃焼度 : 33GWd/MT

冷却期間 : 照射停止150日後の値

全FP生成量: 1,002kg/年

/6, 7/。FPの場合においても多量の試料を入手することは必ずしも容易でなく、放射性であることからMAの場合同様、実験上の取扱いにおいても困難を伴う場合が多い。

FPやMA試料のように、放射性物質であってバックグランドが高く、微量試料による実験を行う場合には、強力な中性子源が必要になる。熱中性子から高速中性子までの広いエネルギー領域をカバーできる一連の実験が実施できる強力中性子源を得ることは必ずしも容易ではないため、各実験者／エネルギー領域における測定結果をつなぎ合わせた断面積を基に核データ評価が行われることになり、それぞれの評価済核データの結果に食い違いが生じる原因ともなっている。さらに、一般的には、エネルギー依存の中性子断面積、

いが生じる原因ともなっている。さらに、一般的には、エネルギー依存の中性子断面積、特に中性子捕獲断面積の絶対値測定については必ずしも容易ではないと言う問題もある。

本研究の目的は、F P 核種の中でも比較的多量に高燃焼燃料中に生成蓄積すると言われる Tc-99 核種を取り上げ、その中性子捕獲断面積について実験値、評価値の現状を見た後、京都大学原子炉実験所の 46MeV 電子線型加速器と組み合わせて付設された鉛（減速）スペクトロメータ (KULS)/8/ を用いて $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{T}$ 反応断面積測定を試み、既存実験データや評価済核データファイルとの比較、評価を行うことにある。

2. Tc-99 の中性子核データ

2.1 評価済核データファイル

核分裂で生まれた高速中性子は、核燃料及び原子炉構造材と相互作用を繰り返しながら、減速・拡散していく過程の中では、炉心や炉心周辺の物質／構造材による吸収、炉心からの漏洩など複雑な振る舞いをする。こうした中性子の挙動は、原子炉の核的特性として多群のエネルギー構造を持つ輸送計算/9/や連続エネルギー減速モンテカルロ計算/10/などによって求められる。これらの計算では、熱中性子から 20MeV 近辺までの中性子エネルギー領域における散乱、吸収／捕獲及び核分裂の断面積など、全てをカバーする一貫した核データが必要となる。ところが、個々の実験データはある特定のエネルギーや反応に限られたものであるため、これらを取りまとめて評価し、作成されたところの「評価済核データファイル」が必要となる。日本において作成された評価済核データファイルは、JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library: 最新バージョンは JENDL-3.2) /11/ と呼ばれ、水素からフェルミウムまでの殆んど全核種に対して中性子全断面積、中性子吸収／捕獲断面積、核分裂断面積、散乱断面積などが収納されている。同種の評価済核データファイルは、米国、ヨーロッパ、ロシア及び中国においても、それぞれ独自に ENDF/B-VI、JEFF-2、BROND-2、CENDL-2 として作成されている。これらのファイルは熱中性子から 20MeV 領域の実験データをベースにして評価され、データの欠けている領域・反応については理論計算で補う形で作成される。しかし、実験データの不十分さ、評価法や計算上のモデルの違いなどによって評価済核データ間にも著しい差異が見受けられる場合がある。これらは、後の実験により検証、修正され、より信頼度の高い評価済核データファイルへとバージョンアップされて行くことになる。

最近では、研究の進展と共に核データに対する要請も具体的になり、上に挙げた一般的な評価済核データファイルの他に、ある特定の利用目的のために Dosimetry File、Fusion

までの89核種)などが用意されている。

2.2 核データの現状

F PやMA核種に関連した核データの実測値は、U-235、U-238、Pu-239等のメジャーアクチニド核種の場合に比べて少なく、また、データ間の差異も依然大きいものがある/4, 5, 12/。今までに世界各国において測定された実験データは、殆んど全て NEA Data Bank に登録され、EXFORから作成されたNESTOR-2/13/を見ても、F P及びMA核種の実験データ数は一般的に少ない。特に中性子捕獲断面積の測定に関しては、全断面積や核分裂断面積測定に比べ、一般に実験上の困難を伴うため、実験データは必ずしも多くないのが実状である。

本研究では、 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{T}$ 反応断面積の測定を取り上げることもあって、まず Tc-99核種に関する中性子捕獲断面積の実験データの現状について調査を行った。付録Aは、EXFORに登録されている ^{99}Tc の実験データの現状をまとめたものである。図3～図7は、Tc-99に関する中性子全断面積及び捕獲断面積データの实验値、評価値の現状を示す。表3には、熱中性子断面積データをまとめた。これらを見ると、Tc-99に関する測定データは幾つか存在するものの核データの現状としては必ずしも十分ではない。また、ENDF/B-VI、JENDL-3.2、JEF-2.2の評価データは全エネルギー領域で互いに重なり合っている。また、図4の評価データの何れにも図3の実験データに見られる2 eV付近の共鳴は見当たらない。このようなTc-99核種に関する核データの状況から見て、その核変換/消滅処理の問題を適切に検討評価するためには、新たな核データの測定、評価が望まれるところである。

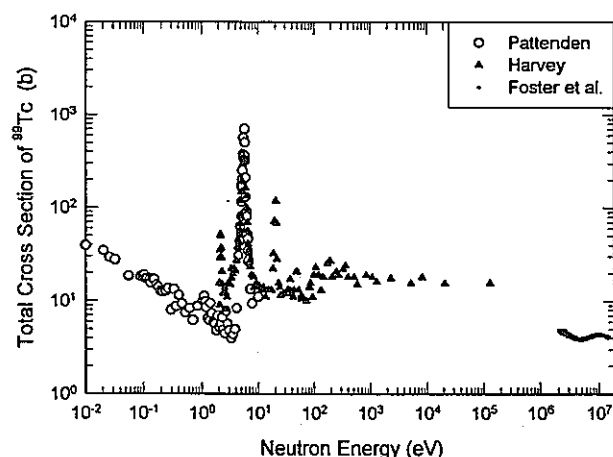


図3 Tc-99 の中性子全断面積の
既存実験データ

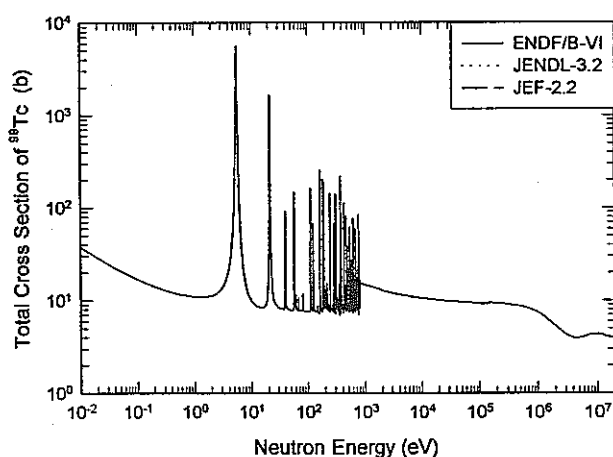


図4 Tc-99 の中性子全断面積の
評価済核データ

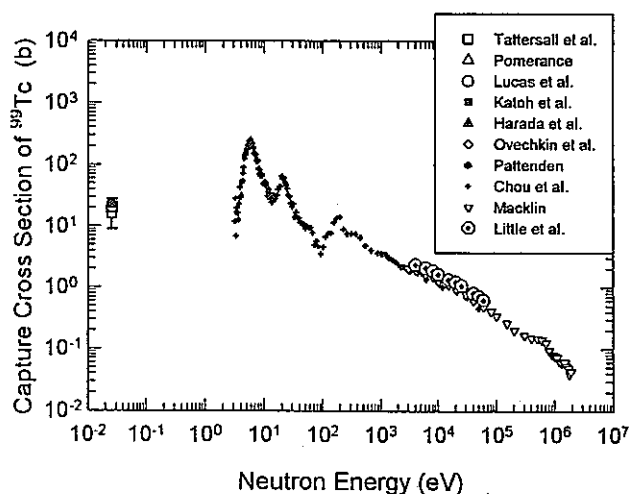


図5 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の既存実験データ

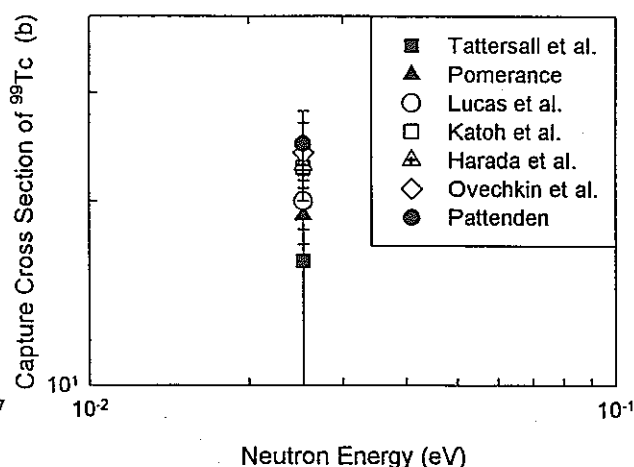


図6 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子捕獲断面積の既存実験データ

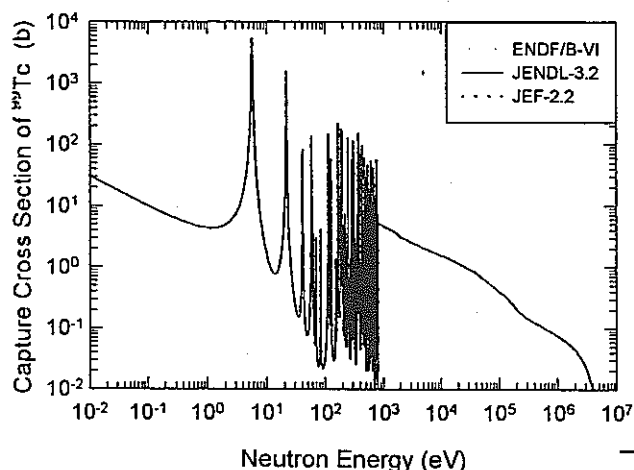


図7 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の評価済核データ

表3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子断面積(2200m/s値)(ハ'-γ) #

24.8 ± 2	Pattenden (1958)
16 ± 7	Tattersall (1960)
24 ± 4	Ovechkin (1973)
19 ± 2	Pomerance (1975)
20 ± 2	Lucas (1977)
22.7 ± 1.1	Katoh (1993)
22.9 ± 1.3	Harada (1995)
19.641	JENDL-3.2 (1998)
20 ± 1	Mughabghab (1981) *

付録Aを参照

* "Neutron Cross Sections", Vol.1, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections, Part A('81)

3. 鉛スペクトロメータを用いたTc-99の中性子捕獲断面積測定

3.1 はじめに

先章の表1、2にも示されている様に、高燃焼燃料中には超ウラン(TRU)元素のみならず、長半減期の核分裂生成物・核種もかなり生成蓄積される。テクネシウム(Tc)-99は、核分裂生成物の中でも超長半減期核種の1つであって、その半減期は 2.13×10^5 年である。こうした核分裂生成物については、高レベルアルファ放射性廃棄物(HLW)である超ウラン元素の場合同様、これらを処理処分する方法、減量・消滅させる方法について検討されている^{/1, 2/}。Tc-99のような核分裂生成物では、超ウラン元素に見られるような核分裂反応によって破壊・消滅させることは期待できないため、中性子捕獲反応によって核変換させ、短半減期核種または安定核種に核変換させる方法が考えられる。 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積は、図5、図7に見られるように、低エネルギー領域において10バーン前後の吸収断面積(熱中性子断面積: 約 20 barn)を持っており、5.6eV、20eV近辺などには大きな共鳴ピークが存在している。Tc-99は中性子を吸収して半減期が約16秒のTc-100を経てRu-100の安定核に至る。

Tc-99の中性子捕獲反応断面積は、熱中性子領域からMeV領域にかけて一応実験データは存在するものの(図5)、その数は少なく、特に3 eV以下の領域では0.0253eVのデータ(図6)を除き、実験データが存在していない。図5のChouらによる測定値は、我々と同様、鉛スペクトロメータを用いて測定した結果である^{/14/}。Littleら^{/15/}およびMacklin^{/16/}のデータは電子線型加速器を用いた飛行時間分析法による測定結果である。図4、図7の評価済核データは何れも同じ値を示しており、実験データとの比較では分離領域で評価データが少し低くなっている様に思われる。

本研究では、京都大学原子炉実験所の46MeV電子線型加速器と組み合わせて設置された鉛スペクトロメータ(KULS)^{/8/}を用いて、共鳴領域から熱中性子に至る領域の $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定する。実験に使用するTc-99は円盤形状をした密封線源であることと、実験では中性子捕獲に際して放出される即発ガンマ線を測定するために、検出器として円筒状のアルゴンガス入り比例計数管を使用する。Tc-99試料をこの計数管のそばにセットし、一緒に鉛スペクトロメータの実験孔に挿入して実験を行う。また、中性子束/スペクトル測定用にはマイクロBF₃比例計数管を使用し、得られたエネルギー依存断面積の相対測定値を熱中性子の標準断面積値に規格化することによって $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を熱中性子領域から1 keVのエネルギー範囲において求める。

3.2 Tc-99の試料

Tc-99試料は、AEA Technologyを通じてAmersham社より購入したもので、酸化テクネシウム(TcO_2)の密封線源として円盤状のアルミニウム製容器に封入したものである。Tc原料は再結晶によって精製されており、紫外線スペクトル、液体シンチレーション計測によって純度は95%以上である結果が得られている。水分の含有量は 180°C 、 10^{-2} トルで乾燥させ配位水の損失による質量差から0.5質量%であることが確認された。放射化学的純度をガンマ線測定によって検証した結果、K-40に起因する1455keVのピークは観測されたが、それ以外の不純物ピークは観測されなかった。

Tc-99試料の放射能は35MBqで、酸化物(TcO_2)として72.78mgがアルミニウム製の円盤状容器に封入されている。その外径は30mm、厚さ1.9mm、Tc試料は円盤の中央部に封入されており、その内径は8mm、厚さ1.1mmである。酸化物試料としての厚さは $0.145\text{g}/\text{cm}^2$ である。

3.3 アルゴンガス入り比例計数管

Tc-99試料が中性子を捕獲すると、これから即発ガンマ線が放出される。我々は、このガンマ線測定に直径12.7mm、有効長約6.3cm、内圧1気圧(Ar :97%, CO_2 :3%)のアルゴンガス入り比例計数管を用いた。使用した高電圧は1400ボルトである。この検出器によるガンマ線の測定効率は必ずしも高くないが、中性子に対しては殆んど感度を示さないことに大きな特徴がある。本実験のように、中性子場において測定試料からの即発ガンマ線を測定する場合には、測定場周辺の中性子に感度を持たない測定器の使用が重要となる。図8は、Tc-99試料と比例計数管の実験配置を示しており、これを鉛スペクトロメータのビスマス実験孔に挿入した。

Tc-99試料に対する中性子捕獲断面積は、 BF_3 比例計数管を用いて試料に入射する中性子束/スペクトルの測定を行うと共に、 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)$ 反応に対する $^{99}\text{Tc}(\text{n}, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の相対測定結果を別途求められている熱中性子の標準的な断面積値に規格化する方法によって求めた。

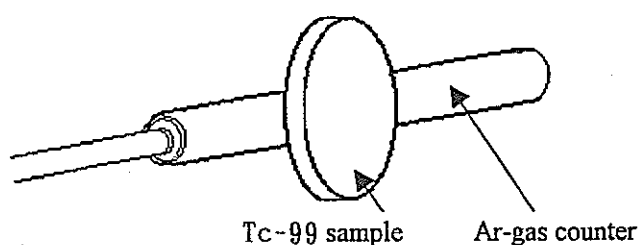


図8 Tc-99とアルゴンガス比例計数管の実験配置図

3.4 中性子捕獲断面積の測定

鉛スペクトロメータ(KULS)を用いた $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積測定の実験の手法は、先に我々が行ったNp-237の中性子捕獲断面積測定の場合と同様である[17]。これまでの核分裂断面積測定では、測定対象とする試料の電着膜とU-235の電着膜を背中合わせ(back-to-back型)にセットして電離箱に封入し、実験に用いた[7, 18-20]。 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応は、標準断面積値を与えるとして測定結果の規格化に使用された。しかし今回のKULSの実験では、図8に示す実験配置において、アルゴンガス比例計数管による $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定した。マイクロBF₃比例計数管は、(n, γ)反応のエネルギー依存断面積の相対測定を行うためのモニターとして使用した。この場合もアルゴンガス比例計数管用、BF₃比例計数管用にそれぞれ一系統ずつ独立に実験回路系を用意した。各時間分析器のチャンネル幅は共に0.5 μs 、チャンネル数は8192である。図9～図11は、Tc-99/アルゴン比例計数管、バックグラウンド(実験試料なし)/アルゴン比例計数管、マイクロBF₃比例計数管を用いた各測定に対する時間スペクトルの例を示す。図9の380, 190チャンネル付近には5.6eV、20eV付近の共鳴ピークが観測される。図10には、ビスマス実験孔のビスマス中に含まれる銀の不純物によるバックグラウンドピーク(385チャンネル付近)が測定されている。

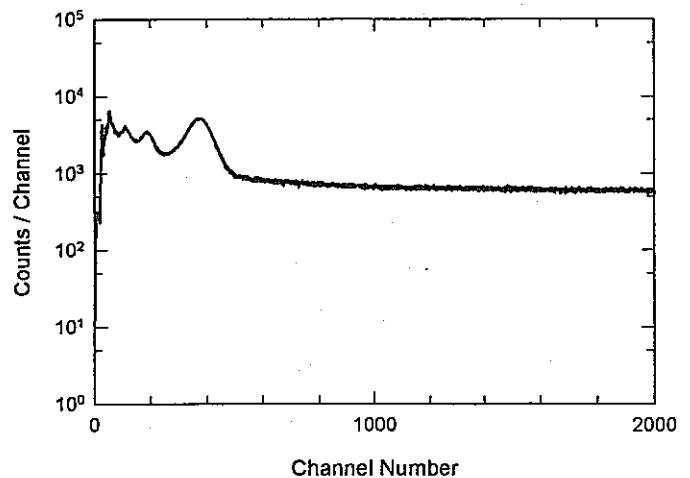


図9 Tc-99による時間スペクトル測定の例

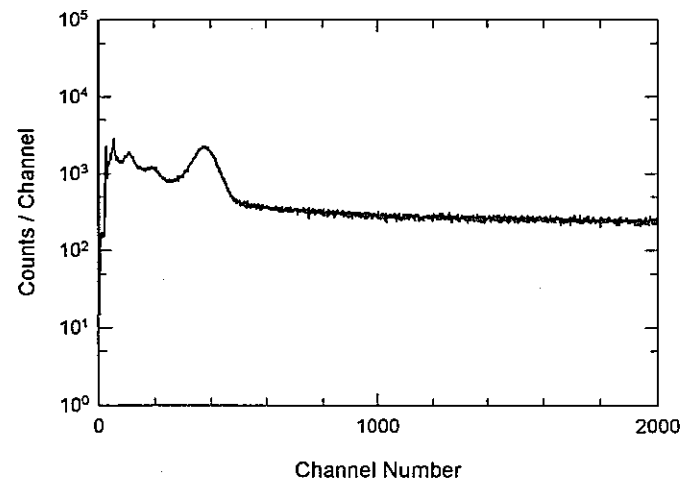


図10 バックグラウンド(試料なし)測定の時間スペクトル測定の例

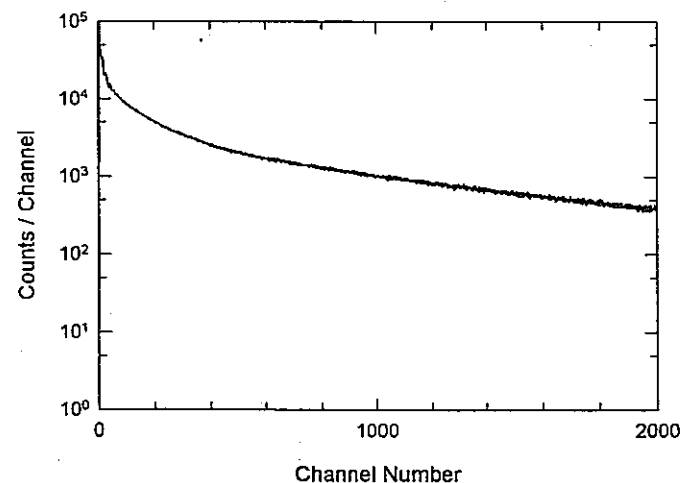


図11 マイクロBF₃比例計数管による時間スペクトル測定の例

本中性子捕獲断面積の測定は、アルゴンガス比例計数管を用いた即発ガンマ線測定法によって行ったが、この場合は先の核分裂電離箱の場合と異なり検出器周辺に存在するガンマ線に対しても感度が高く、これらのガンマ線がバックグラウンドの要因となる。また、比例計数管の特性として、パルス信号に対する時間応答がシンチレータなどより遅いことも実験上不利な条件である。今回の実験では、このような比例計数管を使用せざるを得なかったことがkeV以上のエネルギー領域における測定をより困難なものにしていると言える。鉛スペクトロメータの実験孔は周囲が鉛で覆われてはいるが、ガンマ線測定を行うという点で従来の核分裂実験に比べて、加速器から受けるγフラッシュは深刻な問題であった。そのためγフラッシュの影響をできるだけ少なくするために、加速器の運転条件を以下のような低出力状態に保って実験を行った：パルス幅：6.8 ns、パルスの繰り返し：150 Hz、ピーク電流：600 mA、電子加速エネルギー：30 MeV。実験に要した時間は、合計してほぼ40時間余りであった。

中性子捕獲断面積 $\sigma_c(E)$ の相対値は、次式によって求められる：

$$\sigma_c(E) = \frac{\text{アルゴン比例計数管の計数率(捕獲事象測定 - バックグラウンド)}}{\text{マイクロBF}_3\text{比例計数管の計数率}} \times F(E) \times \sigma_B(E)$$

ここで、マイクロBF₃比例計数管は、入射中性子束／スペクトルのモニターとして使用している。¹⁰B(n, α)反応断面積 $\sigma_B(E)$ は、いわゆる1/v型の曲線を示し、標準断面積としてもよく知られている²¹⁾。F(E)は、試料における実効的な中性子自己遮蔽に対する補正項（関数）で、次節で述べる計算によって求めた。また、アルゴンガス比例計数管の即発γ線測定に対する検出効率、入射中性子のエネルギーに依存しないものと仮定した。

3.5 中性子自己遮蔽効果の補正

Tc-99は5.6eV、20eVなどに大きな共鳴ピークを持っている。そのため、本実験には実効的な試料厚さとしても比較的薄いTcO₂粉末(厚さ1.1mm、0.145g/cm²)を用いたとはいえ、これらの巨大共鳴付近では中性子の自己遮蔽効果について検討をしておく必要がある。本研究では、連続エネルギー減速モンテカルロコードMCNP/10/を用いて、それぞれの試料中における中性子の自己遮蔽効果について計算を試みた。KULS実験孔内では、中性子は試料の周囲から一様に入射するとして、iのエネルギーグループE_i毎に、次式に従い計算を行った。

$$\langle \sigma_c(E_i) \rangle = \frac{\int_r \int_{E_i} N \sigma_c(E) \phi(r, E) dr dE}{\int_r \int_{E_i} N \phi(r, E) dr dE}$$

ここで、 N ：試料の原子数密度、 $\sigma_c(E)$ ：中性子捕獲断面積、 $\phi(r, E)$ ：試料中の場所 r における中性子スペクトルを示す。各エネルギーグループには、ほぼ0.12レサジー幅を持たせている。さらに試料に関しては十分希釈した（密度を6桁落とした）状態の計算も行い、これら両者の比からエネルギーに依存した自己遮蔽の補正関数を算出した。これをKULSのエネルギー分解能関数でなまし、Tc-99試料に対する (n, γ) 反応断面積の測定値を補正した。図12は、その補正関数を示している。この図にも見られるように、本実験に使用した薄い試料の場合でも大きな共鳴エネルギー付近では中性子自己遮蔽について補正が必要となることが分かる。

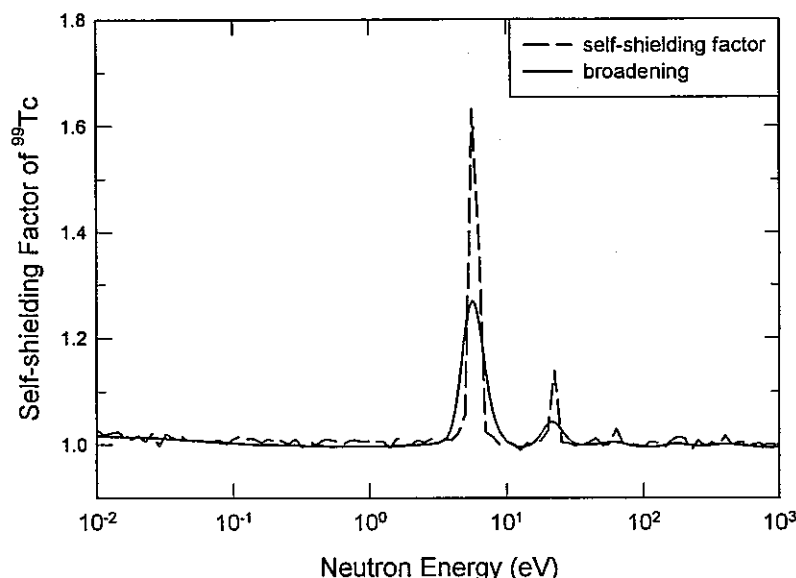


図12 Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数

3.6 測定結果

KULSを用いて測定した1 keV以下の $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の結果を図13に示す。中性子共鳴領域／低エネルギーの領域では、実験に用いた鉛スペクトロメータのエネルギー分解能(半値幅)が、図14に見られるように、～40%ないしそれ以上を示すため、図13では評価済核データ(ENDF/B-VI、JENDL-3.2、JEF-2.2の3つの評価データ値は一致しており重なっている)をKULSのエネルギー分解能関数を用いてなました(broadeningした)後、実験値との比較を行っている。また、Tc-99試料中の中性子に対する自己遮蔽効果の計算を行い、これについても分解能関数でbroadeningした後、実験データの補正を行った。本実験は相対測定であるため、0.0253eVにおける $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子断面積の標準値(20 ± 1 バ-ツ)に規格化している/22/。主たる誤差は、計数値に関わる統計誤差(2～3%から30%近くまで)、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応におけるエネルギー依存性(1/v特性からのズレ：<2%)、相対測定の規格化に伴う誤差(数%)、試料中での中性子自己遮蔽の補正に伴う誤差

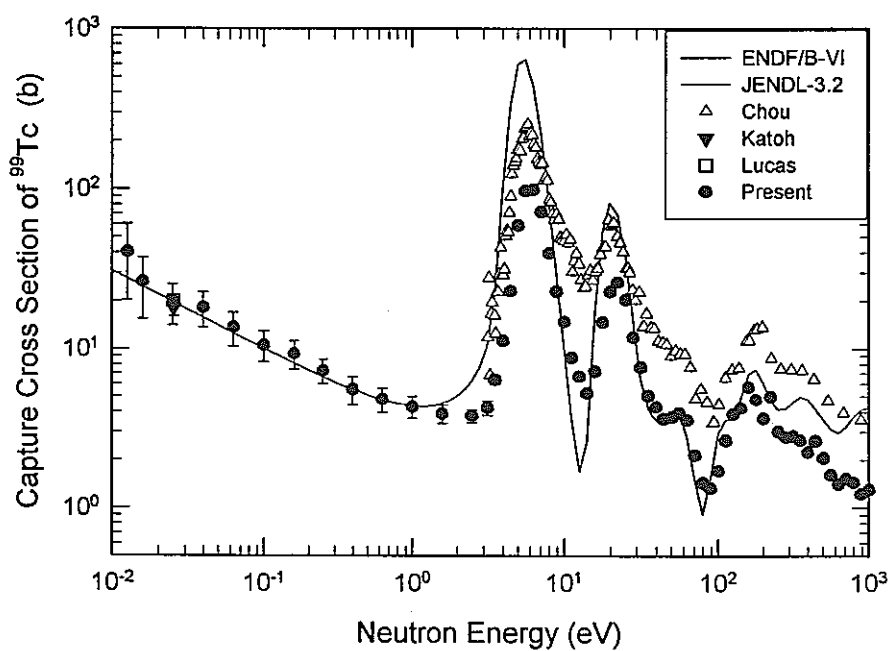


図 1.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定結果と評価値の比較
(KULSのエネルギー分解能でなましている)

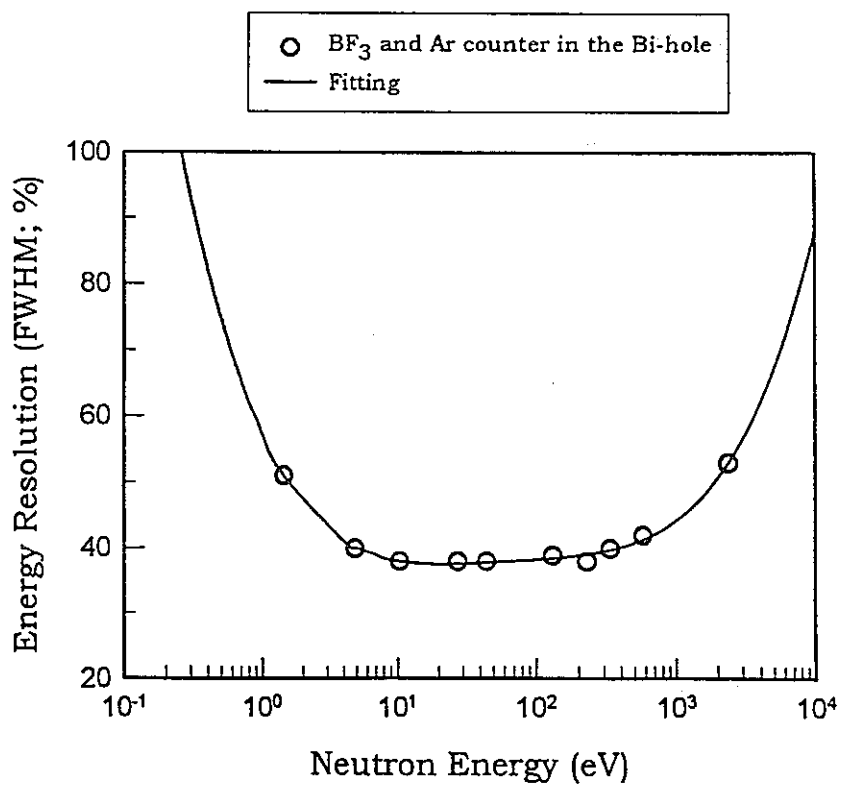


図 1.4 KULSのエネルギー分解能（半値幅）曲線

(ピーク近辺で<15%)などが考えられ、全体で3~30%程度となった。

図13では、従来の実測値と今回の測定値を比較している。Chouらも鉛スペクトロメータを用いて $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定しているが、我々の測定値より全体に高い。彼らのデータを全体に0.4倍し平行移動すれば、3 eVから1 keVのエネルギー領域において今回のデータとよい一致を示す。Chouらのデータは、5.6 eVと20 eVの共鳴領域では評価済データに近くなる方向にあるが、30 eV付近から700 eV近辺までの領域では評価データより高くなっている。我々の測定結果は、大きな共鳴ピーク領域と数百 eV以上の領域を除けば評価済データと全体により一致を示している。本実験データの高エネルギー領域における問題は、ガンマフラッシュなど測定上の問題も考えられる。共鳴領域に見られる差異も含め、これらは今後の検討課題である。

3.7 まとめ

我々は、ここ数年来、鉛スペクトロメータを用いてアクチニド(MA)核種の消滅に関わる基礎的な核データの測定を試みてきたが、本研究では、こうした研究の一環として超長半減期の核分裂生成物(FP)に関する中性子捕獲断面積の実験的研究を実施した。本実験で得られた測定値をもとに、従来の実験データ及び評価済核データについて比較、検討を行った。

本研究において得られた成果を以下にまとめる。

- (1) Tc-99の中性子捕獲反応断面積に関する核データの現状を調査した結果、当反応断面積に関する核データ数は必ずしも豊富ではなく、0.0253 eVにおける熱中性子断面積を除けば、3 eV以下の領域では実験データが得られていない。
- (2) 本研究では、熱外及び共鳴中性子エネルギー領域における $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定に、京都大学原子炉実験所の46 MeV電子線型加速器(ライツ)と組み合わせて設置されている鉛スペクトロメータ(KULS: エネルギー分解能は半値幅にして約40%)を用いた。その結果、1 keV以下の領域における $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を実験的に求めることができた。
- (3) 本断面積測定では、Tc-99試料から放出される即発ガンマ線を測定する方法によった。この測定に用いた検出器は、アルゴンガス比例計数管(直径12.7 mm、有効長約 6.3 cm、内圧1気圧)で、試料から放出される即発ガンマ線の検出効率は、入射中性子のエネルギーには依存しないものと仮定している。検出器の検出効率はシンチレータを使った検出器などに比べて低いが、実験場(鉛スペクトロメータの実験孔内)の中性子に対して殆んど感度を持たないことが特徴である。
- (4) 実験孔内の中性子束/スペクトルは BF_3 比例計数管を用いて測定し、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応断面積を利用して $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の相対値を求め、これを熱中性子(0.0253 eV)における標準的な断面積値($20 \pm 1 \text{ barn}$)に規格化した。

- (5) $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定結果を従来の測定値、評価済データと比較したところ、Chouらが鉛スペクトロメータを用いて測定した結果は、本実験値より全体に高いが、これを0.4倍すると我々の実験値とよく一致するエネルギー依存性を示す。評価済核データでは、ENDF/B-VI、JENDL-3.2、JEF-2.2の何れも同じ値を示しているが、本実験値と比較すると、5.6eV、20eVの共鳴領域及び数百eV領域では高くなっている。
- (6)MCNPコードを用いてTc-99試料に対する中性子の自己遮蔽効果に関する補正計算を行ったが、評価済核データは共鳴領域においてなお実測値より大きくなっている。
- (7)今後は、さらに実験データの信頼度を向上させるためにも、まず、本実験の再現性を見る実験の追試を行うと共に、熱中性子の捕獲断面積測定が可能かどうか、出来れば飛行時間測定法による実験の可能性などについても検討を試みてみたい。

4. 本実験の課題と今後

本研究では、平成11年度において京都大学原子炉実験所の46MeVの電子線型加速器と組み合わせた鉛スペクトロメータ(KULS)を用いてTc-99の中性子捕獲断面積の測定を試みた。本実験に用いたTc-99試料の量は、酸化物 TcO_2 粉末として約70mgであったが、KULSを用いることにより熱中性子からkeV領域にわたる $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定することができた。この実験では、直径12.7cm、有効長約6.3cm、内圧1気圧のアルゴンガス(Ar:97%、 CO_2 :3%)入り比例計数管を用い、Tc-99試料から放出される即発 γ 線を測定する方法によったが、検出器の特性からみてその検出効率はずしも高くない(661keV γ 線で $\sim 0.8\%$ 以下)ことが予測された。本実験は試料量と検出器の点で不利な条件下にあったが、強力中性子源であるKULSの使用によって当初の目的を達成することができた。

KULSは、FPやMAなどの放射性核種、バックグラウンドが高い試料、十分な量が扱えない試料の実験などに適している。しかし、エネルギー分解能(半値幅)が約40%にもなることが最大の短所である。また本実験では、核分裂断面積測定の場合の様に背中合わせ型(BTB)のdouble fission chamberが使えないため、熱中性子からkeV領域の $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積は BF_3 カウンタを用いた相対測定であった。平成11年度においては、この結果を熱中性子の評価済核データ値に規格化することとした。今後の課題は、相対測定の結果を規格化するための標準断面積値を実験的に求めると共に、飛行時間分析(TOF)法による実験を行って、KULSの場合よりエネルギー分解能のよいデータを取得することにある。

平成12年度では、上記の課題に注目して、次の2つの面から実験を行う予定である。

- (1)電子線型加速器を用いたTOF法により測定データのエネルギー分解能の向上を図る。TOF実験ではKULSを用いた場合に比べ中性子束が低くなることが予測されるが、即発 γ 線測定にはArガスカウンタに代わって CsI 液体シンチレータ(直径:11cm、厚さ:5cm)を用いる

ことと、中性子源ターゲットシステムの工夫によって、低エネルギー領域での実験としてはそれなりの計数率を確保出来ることを期待したい。

(2)標準熱中性子場を用いてTc-99の熱中性子捕獲断面積を放射化法によって測定する。本測定では、金箔による $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応断面積を標準とし、 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積をAu-198、Tc-100の誘導放射能測定によって求める。得られた測定値にKULSやTOF法による相対測定データを規格化し、これらの結果を既存の実験データ、評価済核データと相互に比較して、検討評価を加える。

【参考文献】

- /1/ 「消滅処理研究の現状」、日本原子力学会 消滅処理研究専門委員会 1994。
- /2/ 「高レベル廃棄物の消滅処理研究開発」、日本原子力学会誌、Vol. 37, No. 3, p. 159 (1995)。
- /3/ 木村逸郎、『機械の研究』、第51巻、第11号、1109 (1999)。
- /4/ V. McLane, C. L. Dunford and P. F. Rose, "Neutron Cross Sections", Vol. 2, Neutron Cross Section Curves, Academic Press, Inc. New York (1988)。
- /5/ 菊池康之、中川庸雄、高野秀機、向山武彦、「アクチノイド核データの信頼性－微分データとその積分的検証」、日本原子力学会誌、Vol. 36、No. 3、211 (1994)。
- /6/ C. Wagemans, Nucl. Instr. Methods in Phys. Res., A236, 429 (1985)。
- /7/ K. Kobayashi et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 36, No. 1, 20 (1999) (付録C 参照)。
- /8/ K. Kobayashi et al., Nucl. Instr. Methods in Nucl. Phys. Res. A, 385, 145-156 (1997) (付録D 参照)。
- /9/ 例えば、K. Tsuchihashi et al., "SRAC; JAERI Thermal Reactor Standard Code System for Reactor Design and Analysis", JAERI 1285 (1983), and "Revised SRAC Code System", JAERI 1302 (1986)。
- /10/ 例えば、"MCNP - A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A", LA-7396-M, Rev. 2, Los Alamos National Laboratory (1986)。
- /11/ K. Shibata and T. Narita(Eds.) "Descriptive Data of JENDL-3.2", JAERI-Data/Code 98-006, Parts I & II, (1998)。
- /12/ 中川庸雄、日本原子力研究所 核データセンター発行「核データニュース」、No. 50、p. 13 (1995)。
- /13/ T. Nakagawa, "Neutron Data Storage and Retrieval System", JAERI Nuclear Data Center (1995)。

- /14/ J. C. Chou et al., J. Nucl. Energy, 27, 811 (1973).
- /15/ R. C. Little and R. C. block, Am. Nucl. Soc., 26, 574 (1977).
- /16/ R. L. Macklin, Nucl. Sci. Eng., 81, 520 (1982).
- /17/ K. Kobayashi et al., Presented at the 1999 Symp. on Nuclear Data, JAERI,
Nov. 18-19, 1999, JAERI-Conf 2000-005, 119-124 (2000) (付録 B 参照) .
- /18/ A. Yamanaka et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol.30, No.9, 863 (1993) (付録 C
参照) .
- /19/ S. Yamamoto, et al., Nucl. Sci. Eng., 126, 201 (1997) (付録 C 参照) .
- /20/ T. Kai et al., "Fission Cross Section Measurement of Am-242m using Lead
Slowing-down Spectrometer", JAERI-Conf 98-003, p.225 (1998) (付録 C 参照) .
- /21/ IAEA Technical Reports Series No.227, "Nuclear Data Standards for Nuclear
Measurements", IAEA (1983).
- /22/ S. F. Mughabghab, "Neutron Cross Sections", Vol.1, Neutron Resonance Parame-
ters & Thermal Cross Sections, Part B, Academic Press, Inc., New York (1984).

第2章 京都大学鉛スペクトロメータ

1. 鉛スペクトロメータとその特徴

鉛のように重い物質であって、その中性子吸収断面積が小さい原子核でできている大きな体系（一辺が 1.5~2m）にパルス状中性子を打ち込むと、中性子は体系から殆んど漏れ出ることなく、弾性散乱を繰り返しながら減速していく。この場合、散乱当たりに減速される割合が小さいため、多数回の散乱を繰り返す中で、比較的狭い velocity group に集まる傾向を示しながら、パルス打ち込み後の減速時間と共にgroup化した中性子の平均エネルギーが下がっていく。1950年頃、Lazarev & Feinberg は、こうした現象に着目し、これをスペクトロメータとして応用できないかと考えた/1/。Bergmanらは、1955年の第1回ジュネーブ原子力平和利用国際会議において、初めて鉛減速スペクトロメータ（または単に「鉛スペクトロメータ」とも言う）の原理と実験結果について報告している/1/。それ以後、世界各国で幾つかの鉛スペクトロメータが設置されたが、今日稼動状態にあるものは、米国のレンスラー工科大学(RPI)のRINS/2/、ロシアのクルチャトフ研究センターのスペクトロメータ/3/など数基程度かと思われる。

大きな鉛集合体のほぼ中央部にパルス状高速中性子が打ち込まれると、鉛は中性子吸収断面積が小さいため、中性子は弾性散乱（0.57 MeV以上では非弾性散乱も起こり得るが）を繰り返し減速して行く。高エネルギー側の中性子はそれだけ速くエネルギーを失うため、エネルギーの focus 現象が起こり、50~100keV 以下の中性子になると、減速時間に対応してほぼガウス分布に近いエネルギー分布を持つようになる。その平均中性子エネルギーは減速時間の自乗に反比例する関数として導かれる/1, 4/。減速途中のvelocity group中性子が持つエネルギー分解能（半値幅）は、鉛スペクトロメータ固有の核的な特性により30~35%と広がっている/1, 4/。この点が鉛スペクトロメータ最大の短所と言える。しかし、鉛スペクトロメータの最大の特徴は、中性子源より僅か数10cmの場所で実験が行えることもあって、強力な中性子束が得られることである。例えば、通常の飛行時間分析実験に比べ、中性子強度が数千倍から1万倍（飛行路が5 mの場合）にもなると言われている/2/。この点に注目して、RPI では鉛スペクトロメータを用いて、keV 領域における U-238 の sub-threshold 核分裂断面積の測定/2/、100 keV以下でのトリウム、キュリウム、アインシュタニウム等に対する核分裂反応断面積の測定/5-8/が行われている。これらの実験においては、反応断面積がマイクロバツ(μ b)オーダーと小さい、または実験試料の入手量が極めて制限される等の実験上不利な条件下にあっても測定が可能であった。Block等は鉛スペクトロメータを用いて核分裂断面積を測定する場合、測定可能となる最低条件として「1 μ g

b」と言う表現を使っている/2/。即ち、1 μ g 以上の試料があれば1 bの核分裂断面積の測定が可能であり、1 g 以上の試料があれば1 μ bの核分裂断面積測定が可能となる一つの目安を示している。 α 崩壊、 β 崩壊を伴い、実験上のバックグラウンドが高くなるアクチナイド核種、試料量を十分入手できないF P核種、断面積の小さい核種等の核データ測定、物質のassay等の基礎的な研究に対しても、鉛スペクトロメータは、その特徴を生かして活用されている/2, 5-10/。

表1 中性子源としてのK U L S、L i n a c、K U Rの比較

項 目	K U L S	L i n a c	K U R
中性子発生 の原理	Linacのパルス 中性子源を使用	電子を加速し重 金属を標的に照射 光中性子を発生	ウランを核分 裂させる
中性子発生 の制御方法	Linacパワーを 調整する	電子の加速状態 を制御	制御棒で連鎖 反応量を制御
中性子発生 部位の体積	スペクトロメータ内 全域(実験孔)	小さい: 約10cm x 10cm x 10cm程度	容積は大きい 約60cm x 60cm x 60cm程度
中性子発生 の時間的様相	Linacパルスの 発生に同じ	間欠的、パルス状 毎秒数百回程度	連続的に発生 定常中性子源
中性子エネルギー スペクトル	0.1eV~100keV 共鳴領域	熱中性子から MeV領域まで	熱中性子から MeV領域まで
中性子束強度	Linac条件と 実験場による $10^5 \sim 10^8$ n/cm ² /s	平均 $\sim 10^{12}$ n/s $\sim 10^{18}$ n/パルス	$\sim 10^{14}$ n/cm ² /s
利用できる 放射線	共鳴中性子が主	中性子の他、 電子、陽子、 γ	中性子が 支配的
中性子利用 方法、形態	核データ、 即発 γ 線分析 assay	TOF実験、核 データ、照射、 放射光、物性・ 陽電子研究、 RI製造	中性子を多量 に、ビーム実 験、照射、RI 製造

中性子源としてみた場合、飛行時間分析実験に用いられる京都大学原子炉実験所の電子線型加速器 (Linac: 最高電子エネルギー46MeV)/11, 12/、原子炉中性子源としての5 MWの京都大学研究用原子炉 (K U R)/13/、Linacと組み合わせて設置された京都大学鉛スペクトロメータ (K U L S)/14/について比較し、それらの特徴を表1にまとめた。K U L Sは

エネルギー分解能の点でLinac飛行時間分析法に比べ遥かに及ばないが、実験場の中性子束は数千倍の強さがある。しかし、中性子束の高さから言うと、KURはKULSの場合より一段と高いが、定常中性子源であるため時間的にもエネルギー的にも得られる情報は積分量である。これらの中性子源には、それぞれ特徴があって、これらを生かした相補的使い方により一層充実した研究の遂行が期待できる。

2. 鉛スペクトロメータの原理

鉛は、原子番号が 82、質量数が 207.2 と大きい物質であるため、中性子が鉛との衝突によって低エネルギーまで減速するためには（1 衝突当たりのレサジーの平均増加量： $\xi = 0.0096$ ）、多数回の衝突を繰り返すことになる（例えば、1 MeV の中性子が 0.1 eV になるまで：1680 回）。また、鉛の中性子断面積は殆んどが散乱断面積（熱中性子で 11.2 b）であり、中性子吸収断面積が小さいため（熱中性子で 0.17 b）、大きな鉛体系にパルス状の高速中性子が打ち込まれると、鉛によって中性子は殆んど吸収されることがなく、体系からの漏れも少ないため、中性子は体系内に長く留まって、その中性子束群は減速時間と 1 対 1 の対応関係を保ちながら、低エネルギーまで減速されていく。

鉛体系内に打ち込まれた高速中性子の時間的な振る舞いは、次のような時間依存減速方程式によって与えられる /4/：

$$\frac{dn(v, t)}{dt} = -v \Sigma_s n(v, t) + \frac{2v}{1 - \alpha} \Sigma_s n(v', t) \frac{dv'}{v'} \quad (1)$$

重核の均質媒質の内部では、弾性散乱によって減速して行く中性子の平均速さを v とすると、中性子の減速時間 t は、次のように導かれる /4/：

$$t = A \lambda \times \left(\frac{1}{v} - \frac{1}{v_0} \right) = \frac{A \lambda}{v} = \frac{A}{v \Sigma_s} \quad (2)$$

ここで、 v_0 は中性子の初期速さ、 A は散乱媒質の質量数、 λ は散乱の平均自由行程、 Σ_s は散乱断面積である。

$$E = \frac{1}{2} m v^2 = \frac{1}{2} m \left(\frac{A}{t \Sigma_s} \right)^2 = \frac{K}{t^2} \quad (3)$$

となって、中性子の平均エネルギー E (keV) は、減速時間 t (μ s) の自乗に反比例することが分かる。 K は減速時間定数である。実際の測定においては、減速時間のゼロ時間補正項 t_0 が入るため、(3) 式において一般的には t に代わって $t + t_0$ が用いられる。エネルギー分解能は中性子速度の広がり（分散）によって決まり、

$$\left(\frac{\Delta E}{E} \right)^2 = \frac{\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2}{\langle E^2 \rangle} = \frac{8}{3A} \quad (4)$$

で与えられる/4/。半値幅は標準偏差 $\Delta E/E$ の2.35倍であるから、鉛スペクトロメータにおける理想的な条件下でのエネルギー分解能（半値幅）は27%と導ける。

3. 京都大学 鉛スペクトロメータ

3.1 京都大学鉛スペクトロメータ、KULS

京都大学原子炉実験所に付設されている鉛スペクトロメータは、当初、東京大学工学部に設置され（昭和43年）、その後、同大学原子力総合研究センターに移管された「鉛減速時間スペクトロメータ(LESP)」/15/を、1991年（平成3年）になって京都大学原子炉実験所の方に譲り受けたもので、46MeV電子線型加速器(Linac)と組み合わせた京都大学鉛（減速）スペクトロメータ（KULS）として実験に使用されることとなった/14/（付録E）。

本鉛スペクトロメータは、 $10 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$ の大きさを持つ高純度鉛(99.9%)ブロックを約1600個積み重ね、1辺が1.5mからなる立方体で総重量は約40トンである。図1に鉛スペクトロメータの断面図を示す。鉛ブロックを積み上げるとき、表面の酸化膜や油分、水分を除去するため、サンドペーパーやワイヤブラシで1個ずつ丁寧に研磨し、エタノールで十分洗浄を行っている。

本鉛スペクトロメータKULSの設置に当たり、幾つかの工夫が加えられた/14/。

- ①京大原子炉実験所電子線型加速器(Linac)のターゲット室に鉛スペクトロメータを設置（図2）するとき、従来から進めてきた実験も支障なく行えるよう、ターゲット室の床面の補強工事を行い、鉛体系全体を頑丈な台車の上に乗せて移動できるようにした。
- ②LESPには、中心付近に貫通孔、その後方と上部にも実験孔があったが、図3に示すように、今回はさらに8ヶ所に角柱型（断面 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ ）実験孔（奥行き50cm～60cm）を新設した。
- ③新設実験孔の内、1ヶ所はその周辺を厚さ10～15 cmのビスマス層で覆う構造とした。鉛からの中性子捕獲 γ 線は6～7 MeVと高いのに比べ、ビスマスのそれは約4 MeVと低い。核分裂率測定などの実験では、鉛から受ける中性子捕獲 γ 線により、実験試料に誘発核分裂（光核分裂）が起きることを避けるために低 γ 線量場としてビスマス実験孔を設けた。
- ④KULSのほぼ中央部に金属タンタルターゲットを置いて、パルス状高速中性子を発生させるが、Linacのドリフトチューブはスペクトロメータ入り口までとし、Linac側の真空系が実験系によって乱される恐れがないよう光中性子源用タンタルターゲットシステムから独立させている。

Linacの運転条件によっては、ターゲットに打ち込まれるパワーは500W前後にもなるが、圧縮空気を流す冷却方式によりターゲットケースの表面温度を200℃以下となるように抑え

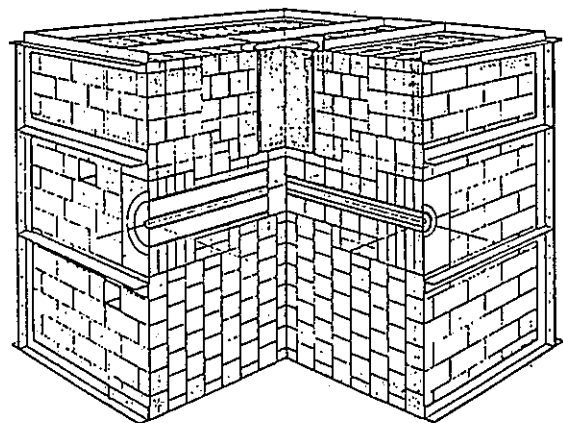


図1 鉛スペクトロメータKULSの断面図

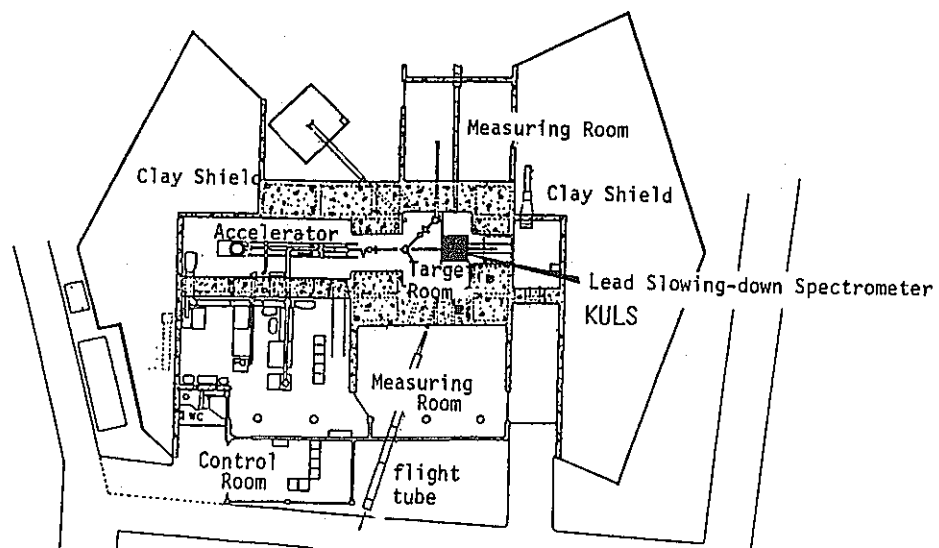


図2 電子線型加速器室と鉛スペクトロメータKULSの設置位置

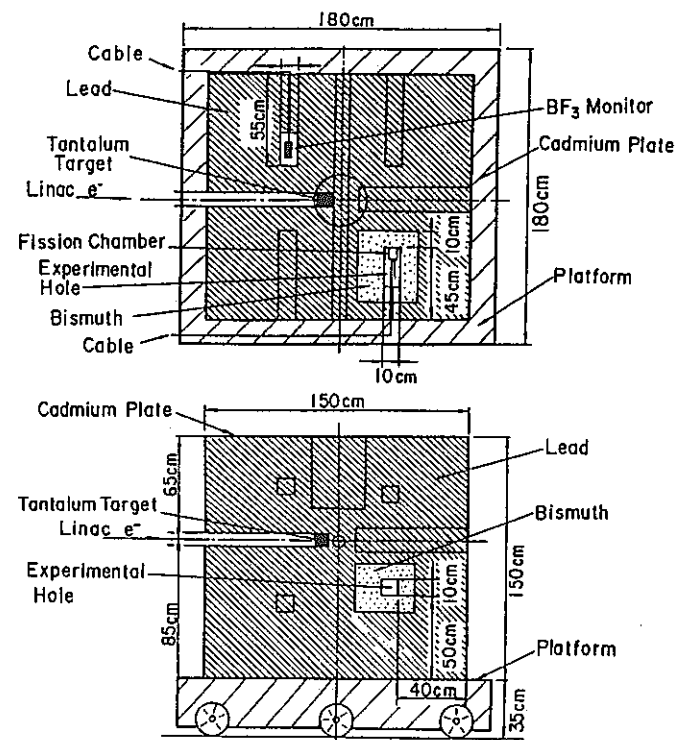


図3 鉛スペクトロメータKULSの平面図（上）と垂直断面図（下）

て実験を行うこととした。タンタルターゲットより得られる光中性子は、平均エネルギー約 1 MeV 前後のものが多く、U-235 の核分裂スペクトルを低エネルギー側に約 1 MeV シフトさせたような分布、広がりを持つスペクトル形状を示している /11, 14/。

3.2 K U L S 中の中性子輸送計算

京大原子炉実験所に付設された 46 MeV Linac からパルス状高速中性子が鉛スペクトロメータ KULS に打ち込まれた後、鉛体系内で徐々に減速されていく中性子の時間的振舞いは、連続エネルギー減速モンテカルロコード MCNP/16/ を用いた計算により求めた /14/。MCNP は中性子と γ 線の輸送計算が行える計算コードとして知られているが、これに加えてパルス状中性子に対する固定中性子源問題では、中性子の時間的変化を 10^{-8} 秒間の間隔毎に追跡することが可能である。MCNP は鉛スペクトロメータ中での中性子の時間的な挙動を計算によって求めるコードとして適している。米国の RPI の研究グループにおいても、鉛スペクトロメータ中の中性子挙動（時間スペクトル、エネルギー分解能など）を求める計算に、本コードを使用している /17/。

本計算では、KULS を設置した台車を含めた 3 次元計算を行っている。さらに、KULS 内部に設けたビスマス実験孔部についても考慮し、中性子源の位置、KULS を覆ったカドミウム板など、実際に即した計算配置を取っている。図 4 は、KULS のビスマス実験孔における時間依存スペクトルの計算結果で、Linac からパルス状中性子源打ち込み後、刻々と変化する減速時間に対応した時間スペクトルを示している。高速中性子のエネルギー領域では、入射中性子源スペクトルの広がりがそのまま広いエネルギー幅となっているが、やがてガウス分布に近い漸近形を保ちながら中性子が減速していく様子が分かる。本計算の結果、ビスマス実験孔における減速時間とエネルギーの関係 ($E = K/t^2$) を示す定数 K として、 $191 \pm 3 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ が得られた。鉛の実験孔においても、ほぼ同様の時間依存スペクトルが観測され、 K として $157 \pm 4 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ が得られた。本 MCNP 計算による減速時間とエネルギーの関係をみると、ビスマス実験孔の方が鉛実験孔の場合に比べ中性子の減速が約 18 % 程度遅いことが分かる。また、ガウス分布に近い漸近形を保つ中性子グループのエネルギースペクトル計算の結果から分解能（半値幅）を求めた。その結果、次節の表 3 にも見られるように、計算上にも些かばらつきが見られるものの、半値幅として 30 ~ 40 % 前後の値を示した。

本 KULS における中性子挙動・特性の 1 つとして、先に MCNP コードを用いて時間依存スペクトルを計算したが、これを時間積分すると定常中性子源としての中性子スペクトルが得られる。計算には、MCNP コード用に ENDF/B-IV より作成された核データファイルを使用した。他に JENDL-3、ENDL-85 データファイルによる計算も比較のために実施した。これらの核データファイルによる計算結果を図 5 に示す。KULS 内では、 $1/E$ より硬い中性子スペクトルが得られ、熱中性子は少ないことが分かる。3 つのデータファイルによる計算結果は全

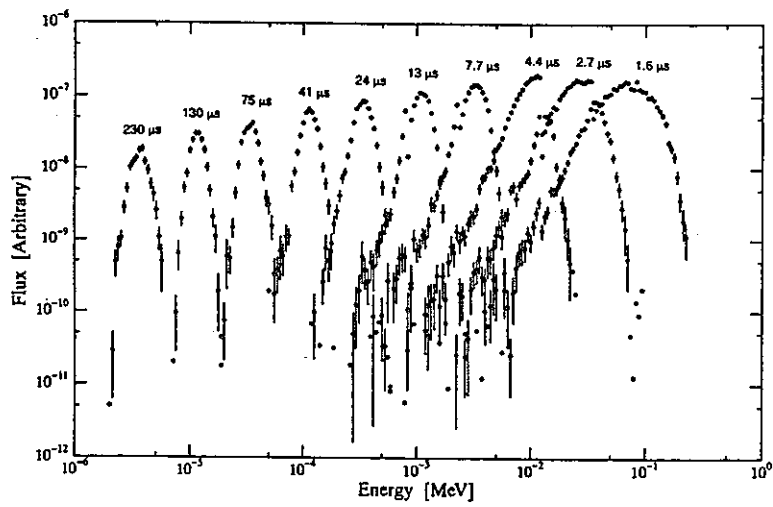
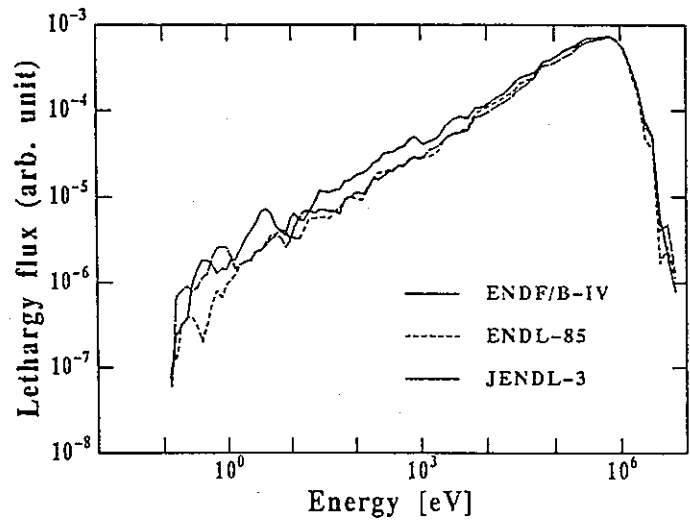


図 4 KULSのピスマス
実験孔における
中性子の時間
依存スペクトル

図 5 KULS内の (定常)
中性子スペクトル
の計算結果



Material	Energy (eV)	Thickness (mm)	Form
In	1.46	0.2	foil
Te	2.33	7.0	powder
Ta	4.28	0.2	foil
Ta	10.4		
Au	4.91	0.05	cylinder
Ag	5.19	0.5	cylinder
Ag	16.3		
Cd	27.5	0.3	cylinder
Mo	44.9	7.0	powder
Co	132	0.3	cylinder
Cu	230	1.0	cylinder
Cu	579		
Mn	336	7.0	powder

表 2 共鳴フィルターと
共鳴エネルギー

般的に一致しているが、10keV以下のエネルギー領域ではENDF/B-IVによる計算値が他のものより大き目となっている。

3.3 KULSの特性

3.3.1 中性子減速時間とエネルギーの関係

鉛スペクトロメータKULSのエネルギー較正は、表2に示した共鳴フィルターの透過中性子スペクトル測定及び共鳴中性子の捕獲 γ 線測定の方法によった/14/。まず、中性子透過率測定では、BF₃比例計数管（直径12mm、有効長50mm、内圧1気圧）を用意し、これを共鳴フィルターで巻き、減速時間の関数として中性子計数を行った。測定された時間スペクトルには、フィルターの共鳴エネルギーに対応した時間位置（即ちエネルギー点）に凹みが現れる。共鳴フィルターを交換して中性子の透過率測定を繰り返し、共鳴エネルギーと減速時間の関係を求めた。また、アルゴンガス比例計数管（直径0.5"、有効長2.5"、内圧1気圧：Ar:97%、CO₂:3%）を用いて共鳴フィルターから得られる中性子捕獲ガンマ線の測定を行ったが、その時間スペクトルには共鳴エネルギーに対応して凸みが現れる。これらの結果から共鳴エネルギーと減速時間の関係を求めた。図6は、BF₃比例計数管／アルゴンガス比例計数管と共鳴フィルターを用いて求めたビスマス及び鉛実験孔における中性子減速時間とエネルギーの関係の較正曲線を示す。これらの結果を最小自乗フィットすることにより減速時間定数Kを求めると、ビスマス及び鉛実験孔のそれぞれについて 190 ± 2 および 156 ± 2 ($\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2$) が得られ、BF₃比例計数管による測定結果 191 ± 3 ($\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2$) ともよい一致を示した。これらの測定値は、先のMCNPコードによる計算から求めた定数 (191 ± 3 ($\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2$))) ともよい一致を示している。また、鉛実験孔における定数は、以前に東京大学のLEPS時代に測定された値 155 ($\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2$)/15/ともよい一致を示した。

3.3.2 KULSのエネルギー分解能

鉛スペクトロメータKULSにとって、エネルギー分解能も重要な特性の1つである。エネルギー分解能の測定には、次の条件を備えた物質（フィルター）の使用が望まれる：①共鳴ピークが大きく、その幅が狭いこと、②共鳴エネルギーが既知で、隣の共鳴ピークから十分離れていること、③共鳴物質（フィルター）の厚さが薄いこと、などである。

本研究におけるエネルギー分解能測定も、先の表2に示したように、大きくて鋭いピークを持つ共鳴フィルターを使い、BF₃比例計数管を用いた中性子透過率測定法と、アルゴンガス比例計数管による共鳴捕獲 γ 線測定の方法によった/14/。まず、BF₃比例計数管では、中性子透過率測定において求めた時間スペクトルを凹型のガウス分布関数にフィットして求め、その半値幅からKULSのエネルギー分解能を算出した。中性子透過率の時間スペクトル測定の例を図7に示す。アルゴンガス比例計数管を用いたエネルギー分解能測定では、BF₃比例計数管の測定に用いた大きな共鳴を持つフィルターより、むしろカドミウム

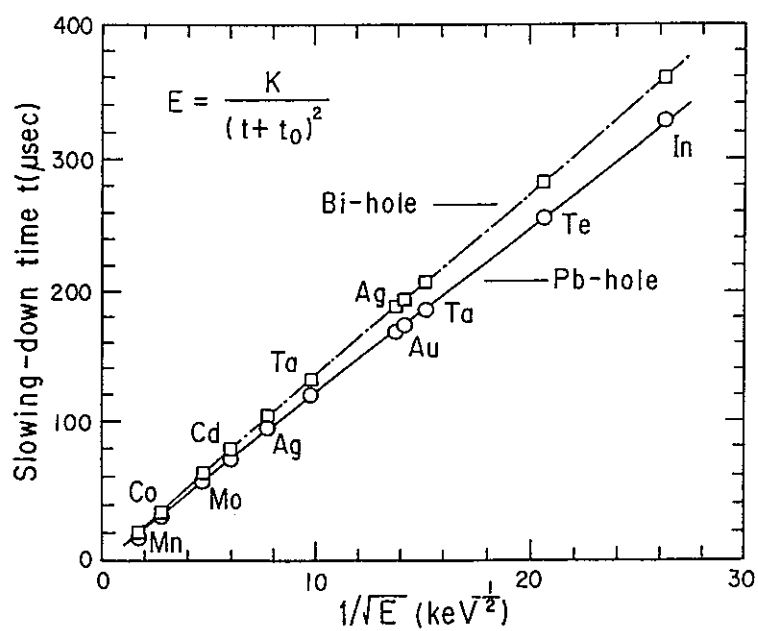


図 6 KULSのビスマス実験孔と鉛実験孔における中性子減速時間とエネルギーの関係

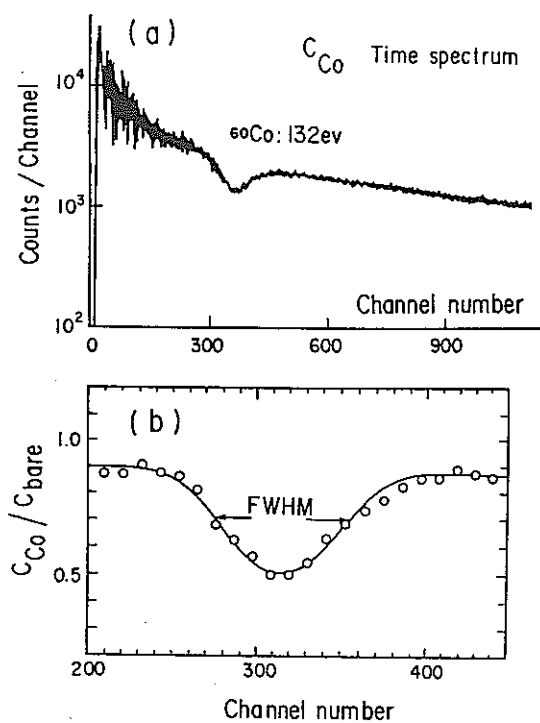


図 7 中性子透過法によって測定された時間スペクトルの例

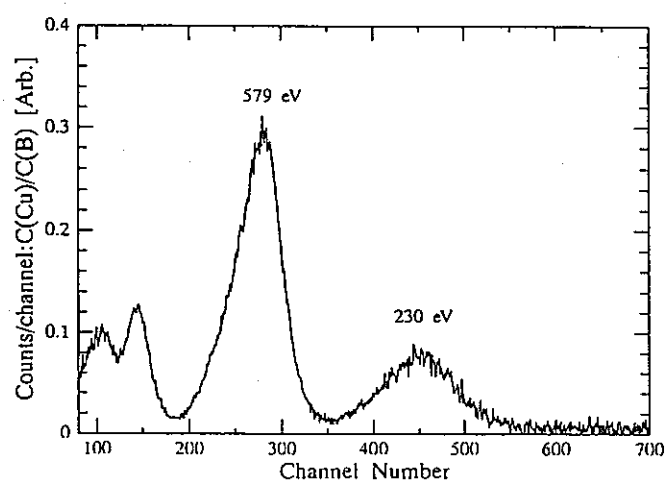


図 8 共鳴捕獲 γ 線測定によるエネルギー分解能測定の実例

表 3 ビスマス及び鉛実験孔におけるエネルギー分解能

Measurements				Calculations		
Energy (eV)	BF3 counter Bi hole	Ar gas counter Bi hole Pb hole		Energy (eV)	MCNP code Bi hole	Pb hole
1.46	51 \pm 3			3.02		35.7
4.9	40 \pm 2			3.56	37.4	
10.4	38 \pm 1			10.0		28.5
27.5		38 \pm 2	37 \pm 2	11.6	31.6	
44.9	38 \pm 1			29.8		28.2
132	39 \pm 2			33.8	35.7	
230		38 \pm 3	40 \pm 3	99.1		29.8
336	40 \pm 3			113	34.5	
579		42 \pm 3	42 \pm 4	298		33.7
2370	53 \pm 3			339	38.3	
				990		38.1
				1091	43.2	
				2988		50.3
				3208	51.8	

や銅試料に見られる δ 関数状の極めて狭く鋭い共鳴ピークに注目した。図8は、銅フィルターによる579eVと230eVの共鳴捕獲ピークについて測定した時間スペクトルの例である。KULSの持つエネルギー分解能の広がりを見ると、 δ 関数状の鋭い共鳴ピークを中性子透過率法によって測定することは困難である。また、透過率測定法では使用したフィルターの共鳴断面積にもある程度の幅があるため、これらに対する補正を必要とする場合がある。しかし、共鳴捕獲 γ 線測定法では鋭い共鳴ピークの場合でも測定が可能であり、むしろ共鳴ピーク幅を考慮せずに分解能測定が行える長所がある。KULSのビスマス及び鉛実験孔において、我々が求めたエネルギー分解能測定の結果を表3にまとめた。数eVから数keV付近までの実測値は約40%となり、これより高いエネルギー側、低いエネルギー側では、分解能が共に大きくなっている。表3には、MCNPコードによる計算結果も示されているが、実験誤差の範囲内とは言え、計算によるエネルギー分解能は実測値に比べ少し小さ目の値を示している。こうした要因及びKULSのエネルギー分解能が理論的な予測値(27%)よりかなり大きい値を示した点に関しては、(1)鉛スペクトロメータの寸法、(2)鉛ブロック中の不純物、(3)中性子源スペクトルの形状、鉛の非弾性散乱に関わる影響についてMCNPコードによる計算を行い、KULSの諸特性について検討を行った。その結果、KULSの分解能が理論値より大きくなった原因は、これらの要因が重なり合って生じたものと考えられる。この問題の詳細は、別報/14/(付録E)に譲る。

U-235やNp-237に関するENDF/B-VI、JENDL-3.2等の評価データによると、いわゆる共鳴領域(eVオーダーから200~300eV)においてはエネルギー幅が極めて狭く、鋭いピークを示す多数の共鳴が存在している。KULSによる実験では、第1章の図22に見られるように、エネルギー分解能が~40%またはそれ以上にも及ぶため、後述の実験値と評価値の比較においては、ガウス分布型の分解能関数を使って評価データのなまし(broadening)を行っている。図9、図10は、それぞれの評価データに対し、KULSの分解能でなます操作を行う前とその後のデータの例を示している。

3.3.3 KULS内の中性子スペクトル

本研究では、KULSの特性実験の一環として、22m飛行路を用いた中性子飛行時間分析法により、鉛スペクトロメータ中の中性子スペクトルを測定した/14/。KULSのほぼ中央部にセットされたタンタルターゲット製の光中性子源の後方約15cmの位置に、直径8cmの貫通孔が設けられている(図3)。その中央部まで飛行路側の鉛プラグを抜き取り、設けられた実験孔(リエントラントホール)の底部から、ターゲット位置に対し90度方向に取り出された中性子を測定した。本実験には、我々が従来より使用してきている ^6Li ガラスシンチレータ及び ^{10}B -vaseline plug NaI(Tl)検出器/18/を用いた。図11、図12は、それぞれの検出器を用いて測定したKULS中の中性子スペクトルを示す。また、これらの図では、ENDF/B-IV、JENDL-3、ENDL-85ファイルから作成された断面積セットを用いて計算した結果とそれぞれの実験値を比較している。計算値は実験値と全般的によい一致を示しているが、

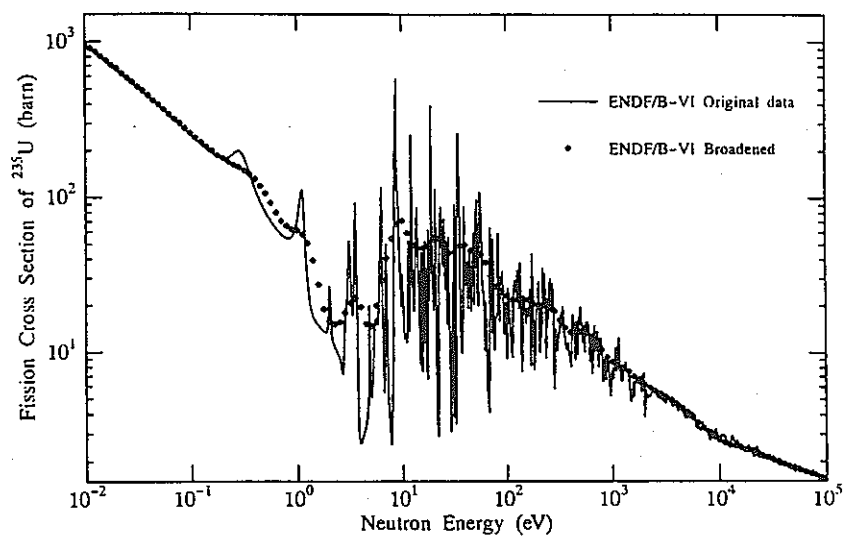


図 9 ^{235}U (n, f) 反応の ENDF/B-VI 評価値と、
KULS の分解能関数でなました結果

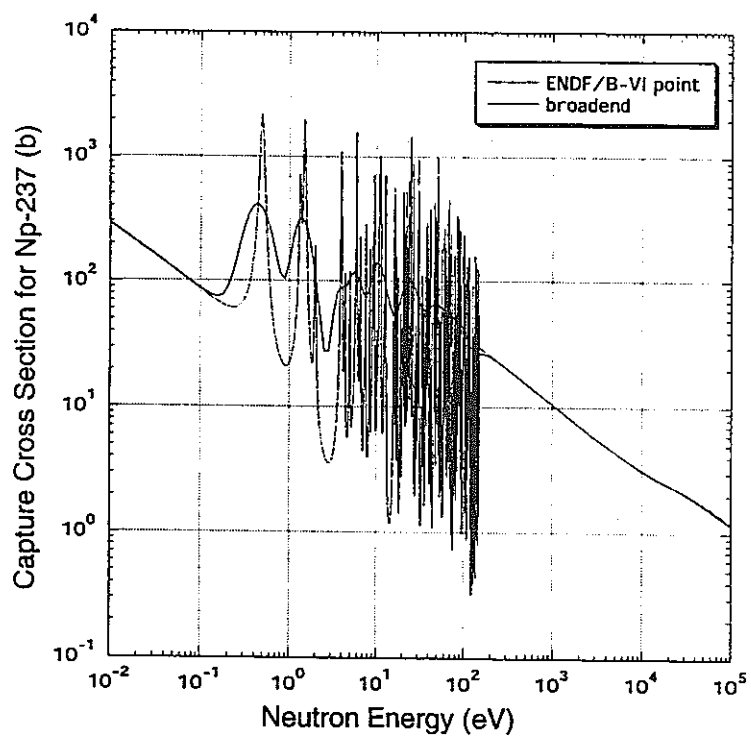


図 10 ^{237}Np (n, γ) 反応の ENDF/B-VI 評価値と、
KULS の分解能関数でなました結果

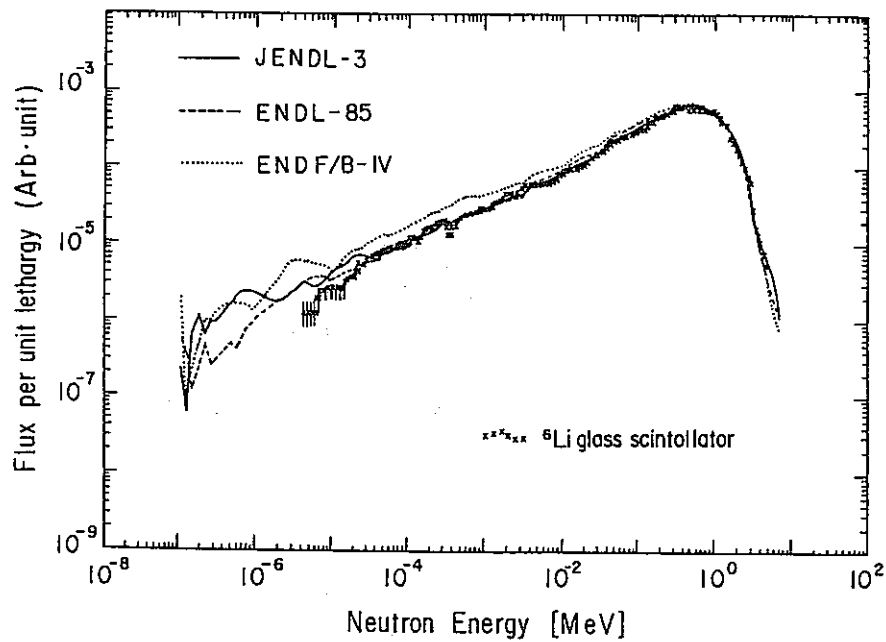


図 1.1 ^6Li ガラスシンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較

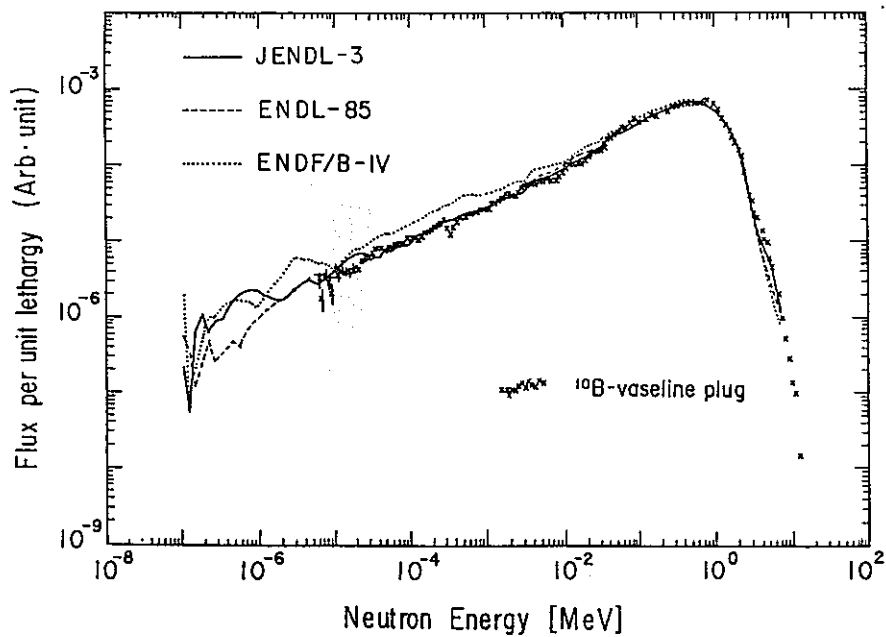


図 1.2 ^{10}B -vaseline plug NaI(Tl)シンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較

10keV近辺より下のエネルギー領域では、ENDF/B-IVによる計算値が他の定数による計算及び実験結果より高目になっていることが分かる。このことはENDF/B-IVの鉛の評価データについて再評価の必要性を示唆している。また、KULS内では低エネルギー、特に熱中性子は殆んど存在していないことが分かる。図11、図12を見ると、KULS内の中性子場は大型の高速炉における炉心スペクトルの形状に近くなっていることが分かる/19/。KULSでは、標準的な中速中性子スペクトルの場が得られるとして、今後の利用が期待できよう。

3.4 まとめ

Linacをパルス状中性子源とした鉛スペクトロメータKULSについて、実験と計算によりその特性を明らかにした。本研究で得られた結果をまとめると、

- (1)BF₃比例計数管による共鳴フィルターの中性子透過率測定とアルゴンガス比例計数管による共鳴フィルターの捕獲ガンマ線測定の結果から、中性子の減速時間とエネルギーの関係 ($E = K / t^2$) を特徴づける減速定数Kを求めた。その結果、ビスマス実験孔で $190 \pm 2(\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ 、鉛実験孔で $156 \pm 2(\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ を得た。
- (2)同様の方法で、KULSのエネルギー分解能を実験的に求めた結果、数eVから数keVにおいて約40% (半値幅)、それ以上または以下ではこれを上回るU字型の分解能曲線を示した。
- (3)MCNPコードを用いたモンテカルロ計算の結果、減速定数Kに関して実験値とよい一致を示したが、エネルギー分解能に関しては計算値が実験値より小さめ (30~40%) になった。その原因の1つは、鉛スペクトロメータ中の不純物の影響やKULSの持つ固有の特性 (体系の大きさ、パルス中性子源のスペクトル、鉛の非弾性散乱) 等が影響しているとも考えられる。
- (4)KULS内の中性子スペクトルを計算により求めた結果と実験値を比較したところ、10keV以下でENDF/B-VIの評価済データによる結果は実験値より高目となったが、全般に計算/実験の両者はよい一致を示した。また、低エネルギー側の中性子束は低く、高速炉・中速炉型のスペクトル形状を示すことが分かった。
- (5)KULSを用いた実験として、既にNp-237、Am-241, 242m, 243の核分裂断面積が~0.1eVから10keV領域において測定されている。その結果を見ても、KULSはこうした核断面積測定を可能にする条件「1 $\mu\text{g b}$ 」を十分満たしていることが分かった。今後も強力中性子源としてのKULSの特徴を生かし、MA、FPの核データ測定への応用が期待される。

【参考文献】

/1/ A. A. Bergman, et al.: Proc. 1st Int. Conf. on Peaceful Uses At. Energy,

- United Nations, 4, 135 (1955).
- /2/ R. E. Slovacek, et al.: Nucl. Sci. Eng., 62, 455 (1977).
- /3/ V. F. Gerasimov et al., Proc. of V-th Int'l Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, NEUTRON SPECTROSCOPY, nUCLEAR STRUCTURE, RELATED TOPICS, ISINN-5, Dubna, p.348 and p.361 (1997).
- /4/ K. H. Beckurts & K. Wirtz: "Neutron Physics", Springer-Verlag, New York, p. 167 (1964).
- /5/ Y. Nakagome, et al.: Phys. Rev., C43, 1824 (1991).
- /6/ H. T. Maguire, Jr. et al.: Nucl. Sci. Eng., 89, 293 (1985).
- /7/ B. Alam, et al.: Nucl. Sci. Eng., 99, 267 (1988).
- /8/ Y. Danon, et al., Nucl. Sci. Eng., 109, 341 (1991).
- /9/ E. C. Vanterpool, et al.: Nucl. Sci. Eng., 110, 186 (1992).
- /10/ N. M. Abdurrahman, et al.: Nucl. Sci. Eng., 115, 279 (1993).
- /11/ K. Kobayashi, et al., Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.22, p. 142 (1989).
- /12/ K. Kobayashi and Y. Fujita, Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol. 26, p.92 (1993).
- /13/ K. Kobayashi, et al., Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.20, p. 1 (1987).
- /14/ K. Kobayshi, et al., Nucl. Instr. Methods in Nucl. Phys. Res. A, 385, 145-156 (1997).
- /15/ H. Wakabayashi, et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 6, 487 (1970).
- /16/ 例えば、"MCNP - A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A", LA-7396-M, Rev.2, Los Alamos National Laboratory (1986).
- /17/ R. C. Little, et al.: Trans. Am. Nucl. Soc., 43, 119 (1982).
- /18/ I. Kimura, et al., Nucl. Instr. Meth., 137, 85 (1976).
- /19/ A. E. Walter and A. B. Reynolds, "Fast Breeder Reactors", p.710, Pergamon, New York (1981).

付 録

付録 A : $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)$ 反応断面積の実験データの現状	34
付録 B : Capture Cross Section Measurement of Np-237 below 1 keV with Lead Slowing-down Spectrometer	39
付録 C : MA Nuclear Data Measurement with Lead Slowing- down Spectrometer	45
付録 D : Characteristics of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) coupled to an Electron Linac	51

付録 A

$^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ 反応断面積の実験データの現状

AUTHOR Y.D.HARKER, E.H.TURK
 TITLE THE USE OF CFRMF INTEGRAL DATA IN CROSS SECTION EVALUATIONS
 REFERENCE C,72KIAMESHA,2,614,7208、 C,71KNOX,1,113,7103
 FACILITY COUPLED FAST REACTIVITY MEASUREMENT FACILITY (CFRMF)
 INSTITUTE USAMTR
 METHOD ACTIVITY OF SAMPLES AFTER IRRADIATION, GAMMA-SPECTROMETER
 DETECTOR (GEL) GERMANIUM-LITHIUM DETECTOR

AUTHOR R.C.LITTLE, R.C.BLOCK
 TITLE NEUTRON CAPTURE CROSS-SECTION MEASUREMENTS OF ^{99}TC UP TO 80 KEV
 REFERENCE J,ANS,26,574,770612
 FACILITY RPI 100 MEV ELECTRON LINEAR ACCELERATOR
 INSTITUTE USARPI
 METHOD TIME-OF-FLIGHT
 DETECTOR LIQUID SCINTILLATOR TO DETECT CAPTURE GAMMAS, B-10 NA-I DETECTOR FOR TRANSMISSION MEASUREMENT USED TO NORMALIZE CAPTURE YIELD AT LOW NERGES CORRECTION DATA CORRECTED FOR SELF-SHIELDING AND MULTIPLE SCATTERING IN THE SAMPLE ERR-ANALYS
 TOTAL ERROR STATISTICAL ERRORS AND ERRORS DUE TO NORMALIZATION AND SYSTEMATICS ADDED IN QUADRATURE
 DATA REGION 0.4~60 keV

AUTHOR H.POMERANCE
 TITLE THERMAL ABSORPTION CROSS SECTION OF TC-99
 REFERENCE R,ORNL-1975,31,5509
 FACILITY (OSCIP) PILE OSCILLATOR
 INSTITUTE USAORL
 INC-SPECT THERMAL SPECTRUM
 MONITOR 79-AU-197(N,G)79-AU-198,SIG
 DATA EN-MEV DATA(B) DATA-ERR(B) MONIT(B)
 2.53 -08 1.9 +01 2 98

AUTHOR R.L.MACKLIN
 TITLE TECHNETIUM-99 NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION
 REFERENCE J,NSE,81,520,8208
 FACILITY (LINAC) ORELA
 INSTITUTE USAORL
 SAMPLE HOT PRESSED HIGHLY PURIFIED TECHNETIUM METAL
 POWDER IN 12.8 MM DIAMETER DISKS.
 DISKS WERE 93.24 PERCENT BY WEIGHT TECHNETIUM AS
 DETERMINED BY X-RAY
 FLUORESCENCE. IMPURITIES IDENTIFIED WERE SODIUM
 421 MICROGRAM/GRAM AND RHENIUM 82.5 MICRO-GRAM/
 GRAM.
 METHOD (TOF) 40.12 METERS TO SAMPLE. COUNTED FOR 207 HOURS.
 DETECTOR 2 NON-HYDROGENOUS LIQUID SCINTILLATORS ON EITHER
 SIDE OF THE SAMPLE
 6-LI GLASS FOR FLUX MONITOR
 CORRECTION CORRECTED FOR BACKGROUND NEUTRONS AND GAMMAS,
 INELASTIC NEUTRON GAMMAS, DETECTOR EFFICIENCY,
 DEAD-TIME LOSS, GAIN DRIFT, RESONANCE SELF-PROTEC-
 TION AND MULTIPLE SCATTERING.
 DATA REGION 3keV~1.9MeV

AUTHOR S.M.QAIM
 TITLE NUCLEAR REACTION CROSS-SECTIONS FOR 14.7 MEV
 NEUTRONS ON TC-99
 REFERENCE J,JIN,35,3669,7311
 FACILITY (CCW) DYNAGEN NEUTRON GENERATOR.
 INSTITUTE GERJUL
 SOURCE (D-T) DEUTERON-TRITIUM.
 FLUX/SPECT NEUTRON FLUX ABOUT 2.E+9 N/CM2/SEC.
 SAMPLE TC-99 IN THE FORM OF NH(4)-TCO(4).
 METHOD (ACTIV) ACTIVATION AND FAST CHEMICAL SEPARATION.
 DETECTOR (GELI) EITHER A CO-AXIAL 28 CM3 OR A WELL
 TYPE 65 CM3 GE(LI) DETECTOR WITH A 4000-CHANNEL
 INTER-TECHNIQUE DIDAC ANALYSER.
 ANALYSIS FOR MEASUREMENTS ON (N,G), (N,NG), (N,P) AND (N,A)
 REACTIONS A CHEMICAL
 SEPARATION STEP WAS NOT NECESSARY, INVESTIGATING
 THE (N,N A), (N,HE3) AND (N,2P) REACTIONS, HOWEVER,
 CHEMICAL SEPARATION OF NIOBIUM WAS ESSENTIAL AND
 WAS PERFORMED.
 MONITOR 33-AS-75(N,2N)33-AS-74; SIG) = 970 +- 80 MB.
 13-AL-27(N,A)11-NA-24,,SIG)= 121 +- 6 MB FOR CHECKING THE
 MONITORS, (33-AS-75(N,A)31-GA-72,,SIG)=9.5 +- 1.0 MB,
 ERR-ANALYS . COMBINING ALL THE INDIVIDUAL ERRORS IN QUADRATURE
 THE OVERALL ERROR FOR EACH CROSS-SECTION VALUE
 WAS OBTAINED. UNCERTAINTY IN PHOTOPEAK EFFICIENCY
 OF DETECTORS AND UNCERTAINTY IN DETERMINING THE
 COMPTON BACKGROUND WERE INCLUDED.
 DATA EN(MEV) DATA(B) DATA-ERR(B)
 14.7 9.0000E-03 2.0000E-03

AUTHOR J.C.CHOU, H.WERLE
 TITLE MEASUREMENT OF (N,G) CROSS-SECTION FOR TC-99, EU, SM AND IRON IN THE ENERGY RANGE 1 EV TO 50 KEV WITH A SLOWING-DOWN-TIME-SPECTROMETER
 REFERENCE J,JNE,27,811,7311
 FACILITY LEAD SLOWING-DOWN-TIME SPECTROMETER WITH (CCW) COCKCROFT-WALTON PULSE GENERATOR
 INSTITUTE GERKFK
 INC-SOURCE (D-T), H3(D,N)HE4 REACTION.
 INC-SPECT ENERGY RANGE 1 EV TO 50 KEV. RESOLUTION BETTER 12 PERC
 METHOD SLOWING-DOWN TIME
 DETECTOR ARGON PROPORTIONAL COUNTER (760 TORR) AS CAPTURE DETECTOR, BF3 COUNTER AS FLUX MONITOR.
 MONITOR B-10(N,A)3-LI-7,,SIG) SIGMA = 611 B SQRT(EV)/SQRT(E), 79-AU-197(N,G)79-AU-198,,SIG) SIGMA = (98.8+-0.36)B AT 0.0253 EV.
 COMMENT LEAD CUBE WITH 1.3 M EDGE-LENGTH, TRITIUM TARGET AT CENTRE, SAMPLE 0.3 M FROM CENTRE.
 DATA REGION 3.6 eV ~ 50 keV

AUTHOR R.B.TATTERSALL, H.ROSE, S.K.PATTENDEN, D.JOWITT
 TITLE PILE OSCILLATOR MEASUREMENTS OF RESONANCE ABSORPTION INTEGRALS
 REFERENCE J,JNE/A,12,32,6005, R.AERE-R-2887,59, SAME DATA.
 FACILITY PILE OSCILLATOR FACILITIES OF DIMPEL REACTOR
 INSTITUTE UK HAR
 METHOD PILE OSCILLATOR TECHNIQUE WITH A 1 MINUTE PERIOD AND A TRANSITION TIME OF ABOUT 1.2 SECOND.
 ANALYSIS WESTCOTT FORMALISM THE NEUTRON TEMPERATURE WAS DETERMINED BY USING THE NON-1/V-ABSORBERS SM-149, CD-113 AND GD-NATURAL
 ERR-ANALYS ERROR ON THE BORON CALIBRATIONS LESS THAN 1 %

AUTHOR N.J.PATTENDEN
 TITLE SOME NEUTRON CROSS SECTIONS OF IMPORTANCE TO REACTORS
 TC-99,ND-143,ND-145,SM-149,SM-152,EU-151,EU-153,GD-155,GD-157,PU-240
 REFERENCE R,NRDC-103,,1958, FOR TC-99
 FACILITY CRYSTAL SPECTROMETER
 INSTITUTE UK HAR
 INC-SOURCE BEPO REACTOR
 METHOD TRANSMISSION

AUTHOR M.LUCAS, R.HAGEMANN, R.NAUDET, C.RENSON,
C.CHEVALIER
TITLE DETERMINATION BY IRRADIATION IN THE TRITON REACTOR
OF NEUTRON CAPTURE CROSS SECTIONS FOR ISOTOPES
INVOLVED IN THE OKLO PHENOMENON
REFERENCE C,77PARIS,1,431,771219, IAEA-PUBL. 475.
FACILITY SWIMMING POOL REACTOR TRITON AT SACLAY, AT
TEMPERATURE OF 40 DEG-C
INSTITUTE FR SAC
INC-SOURCE REACTOR NEUTRONS
METHOD ACTIVATION ANALYSIS, USING CHEMICAL SEPARATION AND
MASS SPECTROMETRY AFTER THERMOIONIZATION.
ALSO ISOTOPIC DILUTION TECHNIQUES USED.
MONITOR 92-U-238(N,G)92-U-239,,SIG
92-U-238(N,G)92-U-239,,RI,,RNV; CUT OFF AT 0.5 EV.
CORRECTION RADIOACTIVE DECAY

AUTHOR H.HARADA, S.NAKAMURA, T.KATOH, Y.OGATA
TITLE MEASUREMENT OF THERMAL NEUTRON CROSS SECTION
AND RESONANCE INTEGRAL OF THE REACTION
99-TC(N,G)100-TC
REFERENCE J,NST,32,395,9505
FACILITY THE TRIGA MARK II REACTOR AT RIKKYO UNIVERSITY
INSTITUTE JPNPNC
INC-SPECT SAMPLE IRRADIATED IN THE REFLECTOR SURROUNDING
THE CORE OF THE REACTOR GIVING A THERMAL N-FLUX
5.0E+11 N/CM2/S AND AN EPITHERMAL INDEX IN THE
WESTCOTT CONVENTION OF 0.033
SAMPLE THE TC-99 WAS CONTAINED IN 0.01 MOLAR AMMONIUM
HYDROXIDE AS AMMONIUM PERTECHNOTATE. THE
SPECIFIC ACTIVITY WAS DETERMINED TO 461 +/- 7 KBQ PER
GRAM IN A LIQUID SCINTILLATION COUNTER. THE
SOLUTION WAS PUT INTO FOR 4 POLYETHYLENE TUBES, 10
MM IN OUTER DIAMETER AND 45 MM IN OUTER LENGTH,
WITH 1 MM THICK WALLS. THE WEIGHT OF EACH TARGET
WAS DETERMINED TO WITHIN 0.1 PERCENT, AND THE
ACTIVITY RANGED FROM 371 TO 375 KBQ.
IN SOME OF THE IRRADIATIONS, A CADMIUM SHIELD, 1 MM
IN THICKNESS AND 22 MM IN OUTER DIAMETER AND 63 MM
IN OUTER LENGTH, WAS INSERTED BETWEEN THE
POLYETHYLENE TUBE AND THE BOTTLE. FLUX MONITOR
WIRES OF CO-AL AND AU-AL ALLOYS WERE USED.
THEY HAD DIAMETERS OF 0.38 AND 0.51 MM, RESPECTIVELY,
AND WERE INSERTED INTO THE POLYETHYLENE TUBES
SHAPED AS SPIRALES.
METHOD IRRADIATION TIME 2 MIN. IRRADIATIONS WERE PERFORMED
WITH AND WITHOUT CADMIUM SHIELDING.
DETECTOR (HPGE) THE ACTIVITIES WERE MEASURED WITH A HPGE
DETECTOR, HAVING A RELATIVE EFFICIENCY OF 90
PERCENT AND A RESOLUTION OF 2.1 KEV FWHM AT 1.33
MEV. THE DISTANCE FROM THE CENTRE OF THE SAMPLE TO
THE FRONT END OF THE DETECTOR WAS 100 MM.

MONITOR 27-CO-59(N,G)27-CO-60-G,,SIG,,MXW; MONITOR 1
79-AU-197(N,G)79-AU-198-G,,SIG,,MXW; MONITOR 2
CORRECTION THE DATA WERE CORRECTED FOR SUM-COINCIDENCE LOSS,
PILE-UP AND SELF- ABSORPTION.

AUTHOR T.KATOH, Y.OGATA, H.HARADA, S.NAKAMURA
TITLE MEASUREMENT OF THE NEUTRON CAPTURE CROSS
SECTION OF TC-99.
REFERENCE C,94GATLIN,,230,9405
FACILITY THE RIKKYO UNIVERSITY REACTOR
INSTITUTE JPNNAG
INC-SPECT THERMAL NEUTRONS FROM REACTOR. IRRADIATIONS
WERE PERFORMED BOTH WITH AND WIRHOUT CD SHIELDS
SAMPLE THE FOUR TARGETS EACH CONTAINED ABOUT 370 KBQ OF
TC-99. THE SPECIFIC ACTIVITY OF THE TC-99 WAS TARGET
SOLUTION WAS DETERMINED BY MEASURING THE SPECIFIC
BETA-ACTIVITY BY THE LIQUID SCINTILLATION COUNTING
METHOD, AND WAS FOUND TO BE 461 KBQ/G.
METHOD THE RESONANCE INTEGRAL WAS MEASURED USING THE
CD-RATIO METHOD.
DETECTOR (HPGE) THE CAPTURE GAMMA-RAY ACTIVITIES WERE
MEASURED WITH A HPGE DETECTOR OF 90 PERCENT
EFFICIENCY COMBINED WITH FAST ELECTRONICS.

AUTHOR T.KATOH, Y.OGATA, H.HARADA, S.NAKAMURA
TITLE MEASUREMENT OF THE NEUTRON CAPTURE CROSS
SECTION ON TC-99
REFERENCE J,NST,30,(11),1099,199311
INSTITUTE JPNNAG
INC-SPECT THERMAL NEUTRON SPECTRUM. THERMAL NEUTRON FLUX
IS $(4.91 \pm 0.12) \times 10^{11}$ NEUTRONS/CM²/SEC
DETECTOR (HPGE) FOR GAMMA DETECTION, EFFICIENCY 90 PC
(SCIN) FOR TC-99 QUANTITY DETERMINATION

AUTHOR V.V.OVECHKIN, D.F.RAU, V.S.RUDENKO
TITLE MEASUREMENT OF THE ACTIVATION CROSS SECTION OF
TC-99 BY THE THERMAL NEUTRONS
INC-SOURCE PU-BE NEUTRON SOURCE
REFERENCE C,73KIEV,2,131,7404
INSTITUTE CCPCCP
METHOD ACTIVATION
DETECTOR (SCIN) TWO SCINTILLATION DETECTOR NAI(TL)
(GELI) GERMANIUM-LITHIUM DETECTOR WITH SENSITIVE
VOLUME 27 CM³
CORRECTION G-RAYS FROM ADMIXTURES OF THE SAMPLE WERE TAKEN
INTO ACCOUNT
ERR-ANALYS STATISTICAL AND NORMALIZATION ERRORS WERE TAKEN
INTO ACCOUNT.

付録 B

Capture Cross Section Measurement of Np-237 below 1 keV with Lead Slowing-down Spectrometer

Katsuhei Kobayashi¹, Hyun-Je Cho^{1*}, Shuji Yamamoto¹,
Takaaki Yoshimoto¹, Yoshiaki Fujita¹, and Yasushi Ohkawachi²

¹ Research Reactor Institute, Kyoto University
Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan

* Visiting Scientist from University of Ulsan, Korea

² The O-arai Engineering Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute,
O-arai-machi, Higashi-ibaraki-gun, Ibaraki 311-1393, Japan

Making use of the Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS) driven by a 46 MeV electron linear accelerator (linac) at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI), the relative cross section for the $^{237}\text{Np}(n,\gamma)$ reaction has been measured from 0.01 eV to 1 keV with energy resolution of about 40 % (FWHM). The neutron flux/spectrum has been measured by a BF_3 counter. The cross section of the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ reaction in ENDF/B-VI was used as a reference one for the cross section measurement. The measured result has been normalized to the reference value of the $^{237}\text{Np}(n,\gamma)^{238}\text{Np}$ reaction in ENDF/B-VI at 0.0253 eV, and the measurement has been compared with the experimental and the evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2, whose data were broadened by the energy resolution of the KULS.

1. Introduction

The neptunium (Np)-237, which is abundantly produced in light water reactors, is one of the minor actinides with a long half-life. In order to make nuclear power more acceptable and practical, much interest has been paid to the disposal of radioactive waste matter ⁽¹⁻³⁾. One of the waste management methods for ^{237}Np is to adopt the nuclear transmutation using reactor neutrons. The Np-237 has a large capture cross section in the low/resonance energy region. It has also a relatively large fission cross section in the MeV energy region. Accurate determination of these cross sections is very important for the evaluation of the transmutation of ^{237}Np which is produced in large quantities in power reactors.

Although several measurements of the $^{237}\text{Np}(n,f)$ cross section have been reported at higher energies, the capture cross section has rarely been measured in the lower/resonance energy region. Hoffman et al. measured the neutron capture cross section of Np-237 by the neutron time-of-flight (TOF) method and Moxon-Rae detector⁽⁴⁾. Weston et al. measured the capture cross section between about 10^{-2} eV and 0.2 MeV by the neutron TOF method using an Oak Ridge Electron Linear Accelerator ⁽⁵⁾. The evaluated fission cross section data are appeared in ENDF/B-VI ⁽⁶⁾ and JENDL-3.2 ⁽⁷⁾.

In the present study, we measure the neutron capture cross section of Np-237 in the range of

0.01 eV to 1 keV relative to that of the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ reaction by using the lead slowing-down spectrometer ⁽⁸⁾ coupled to the 46 MeV electron linear accelerator (linac) of the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). Below 1 keV, the relative measurement has been carried out with an Ar-gas counter, and the neutron flux/spectrum has been measured with a BF_3 counter. The relative cross section obtained has been normalized to the reference value of the thermal cross section at 0.0253 eV. The present result is compared with the existing experimental and evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2.

2. Experimental Methods

2.1. Lead Slowing-down Spectrometer

A lead slowing-down spectrometer has been installed in coupling to the 46 MeV linac at KURRI. This Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS)⁽⁸⁾ is composed of 1600 lead blocks (each size : $10 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$, purity : 99.9 %) and the blocks are piled up to make a cube of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$ (about 40 tons in weight) without any structural materials. The KULS is covered with Cd sheets of 0.5 mm in thickness to shield it against low energy neutrons scattered from the surroundings. At the center of the KULS, an air-cooled photoneutron target of Ta is set to generate pulsed fast neutrons. One of the experimental holes in the KULS is covered by Bi layers of 10 to 15 cm in thickness to shield from high energy capture γ -rays (6 to 7 MeV) produced by the $\text{Pb}(n, \gamma)$ reaction in the spectrometer.

Characteristics of behavior of neutrons in the KULS have been studied by experiments using the resonance filter method⁽⁸⁾. The slowing-down constant K in the relation of $E=K/t^2$ was determined to be $190 \pm 2 \text{ (keV} \cdot \mu\text{s}^2\text{)}$ for the Bi hole in the KULS by the least squares method using the measured relation between the neutron slowing-down time t in μs and the average neutron energy E in keV. The energy resolution for the experimental holes was also deduced from the measured data to be about 40 % at energies between a few electron-volts and about 500 eV and was worse than that below a few electron-volts and above about 500 eV ⁽⁸⁾. The relation between the neutron slowing-down time and the energy, and its energy resolution were also verified by Monte Carlo calculations ⁽⁸⁾.

2.2. The Np-237 sample

Neptunium oxide powder of 1.13 gram was purchased from Amersham, which was packed in an aluminum disk container of 20 mm in diameter and 1.4 mm in thickness. The purity of the sample is 99.6 % by weight and the major impurities are about 4 μg in total weight of Ga, K, P, Rb, and S. The gamma-rays of 86.5 keV to 300, 312, 341 keV from Pa-233, which was produced through the α -decay of Np-237, were measured with a high-purity germanium detector (HPGe). The pulse height distribution of the Np-237 is shown in Fig. 1. No peak from the impurities is found in the figure.

2.3. Ar-gas counter

The Ar-gas counter, which is filled with a mixed gas of 97 % Ar and 3 % CO₂ at the pressure of 1 atm., was of a cylindrical type, 12.7 mm in diameter, 6.3 cm in effective length, and high-voltage bias was 1400 V. The Np-237 sample was put together by the side of the counter as seen in Fig. 2 and inserted into the Bi hole of the KULS.

A BF₃ counter, 12.7 mm in diameter and 5.8 cm in effective length was applied to measure the neutron flux / spectrum at the Bi hole of the KULS. In order to monitor the neutron intensities between the experimental runs, another BF₃ counter was placed in an experimental hole of the KULS.

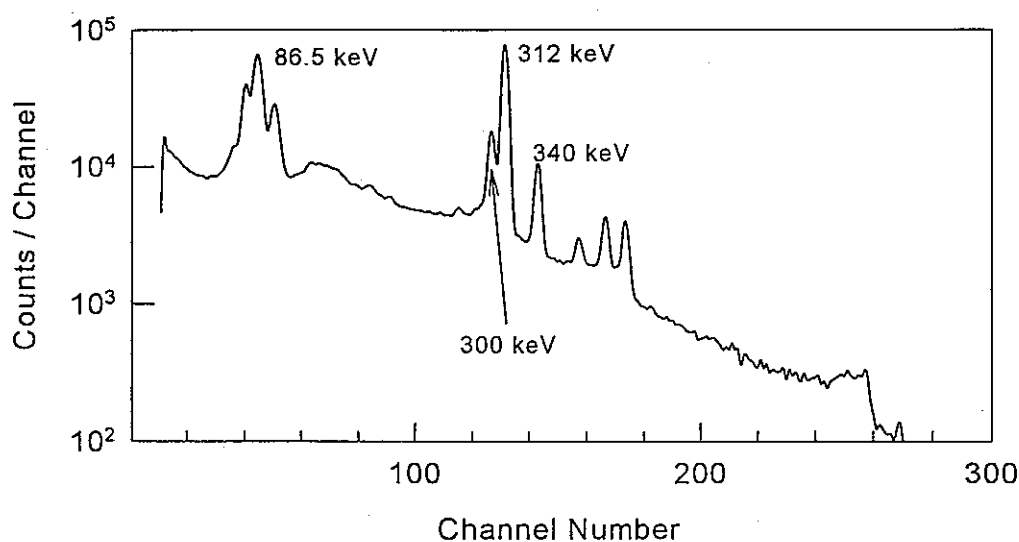


Fig. 1. The pulse height spectrum of the Np-237 sample measured with a HPGe detector.

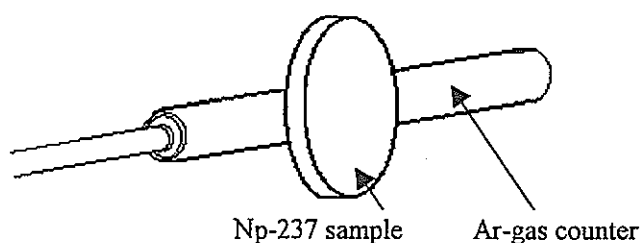


Fig. 2. The Ar-gas counter and the Np-237 sample.

3. Measurement and Analysis

3.1. Capture Cross Section Measurement

The relative cross section of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ reaction is given by the following relation :

$$\sigma_{\text{Np}}(E) = \frac{C_{\text{Np}}(E)}{C_{\text{B}}(E)} \sigma_{\text{B}}(E), \quad (1)$$

where $C_{\text{Np}}(E)$ is capture counts of Np-237 at energy E , $C_{\text{B}}(E)$ is counts from the BF_3 counter at energy E , and $\sigma_{\text{B}}(E)$ is the energy-dependent reference cross section of the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ reaction. The cross section of the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ reaction is a well-known reference one and has been used to determine the neutron flux in the current measurement. The cross section values of $\sigma_{\text{B}}(E)$, whose data were broadened by the resolution function of the KULS, were taken from ENDF/B-VI⁽⁶⁾. The typical operating conditions that the KULS was driven were as follows ; the pulse repetition rate was 200 Hz, the pulse width 6.8 ns, the electron peak current 600 mA, and the electron energy 30 MeV. A background run was carried out without the NpO_2 powder using the same size of empty aluminum disk container instead of the Np-237 sample.

3.2. Electronics and Data Taking

Through the amplifiers and the discriminators, signals from the Ar-gas counter or the BF_3 counter for the neutron flux/spectrum monitor were fed into the time digitizer, which was initiated by the linac electron burst. Two sets of 4096 channels with a channel width of $0.5 \mu\text{s}$ were allotted to the slowing-down time measurements for the Ar-gas counter or the BF_3 counter and the BF_3 counter for the neutron intensity monitor between the experimental runs. Pulse height distributions for these counters were also measured together with the slowing-down time measurements.

For the relative measurement to the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ cross section, output signals from the BF_3 counter were also fed to the time digitizer through the amplifiers and the discriminators, and were stored in almost the same way as for the measurement with the Ar-gas counter.

3.3. Self-shielding Correction

As mentioned above, the NpO_2 powder of 1.13 gram was encapsulated in the aluminum disk container of 20 mm in diameter and 1.4 mm in thickness. Then, the self-shielding effects of neutrons has to be taken into account in the capture cross section measurements, especially near the large resonance region. We have assumed that the sample is isotopically irradiated from the surrounding in the Bi hole of the KULS. The self-shielding correction in the Np-237 sample has been calculated by the MCNP Monte Carlo Code using the following relation.

$$\langle \sigma_c(E) \rangle = \frac{\int_V \int_E N \sigma_c(E) \phi(r,E) dr dE}{\int_V \int_E N \phi(r,E) dr dE} \quad (2)$$

where, N is atomic density of the Np-237 sample, $\sigma_c(E)$ is capture cross section, $\phi(r,E)$ is neutron energy spectrum at the position r . The correction function has been obtained from the ratio of the effective capture cross section for the Np-237 sample and that for the infinite diluted sample (the atomic density is multiplied by 10^{-6}).

The correction function broadened by the resolution function of the KULS is illustrated in Fig. 3. The broadened function has been applied to the self-shielding correction for the present measurement of the $^{237}\text{Np}(n,\gamma)^{238}\text{Np}$ reaction cross section with the KULS.

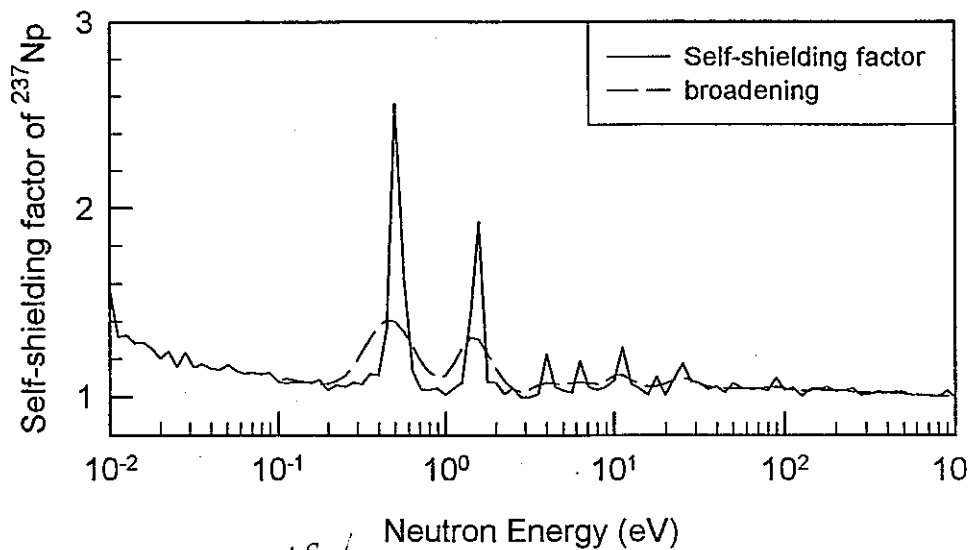


Fig. 3. The self-shielding factor of ^{237}Np . The solid-line is self-shielding factor of ^{237}Np and dot-line is broadened by the resolution function of the KULS.

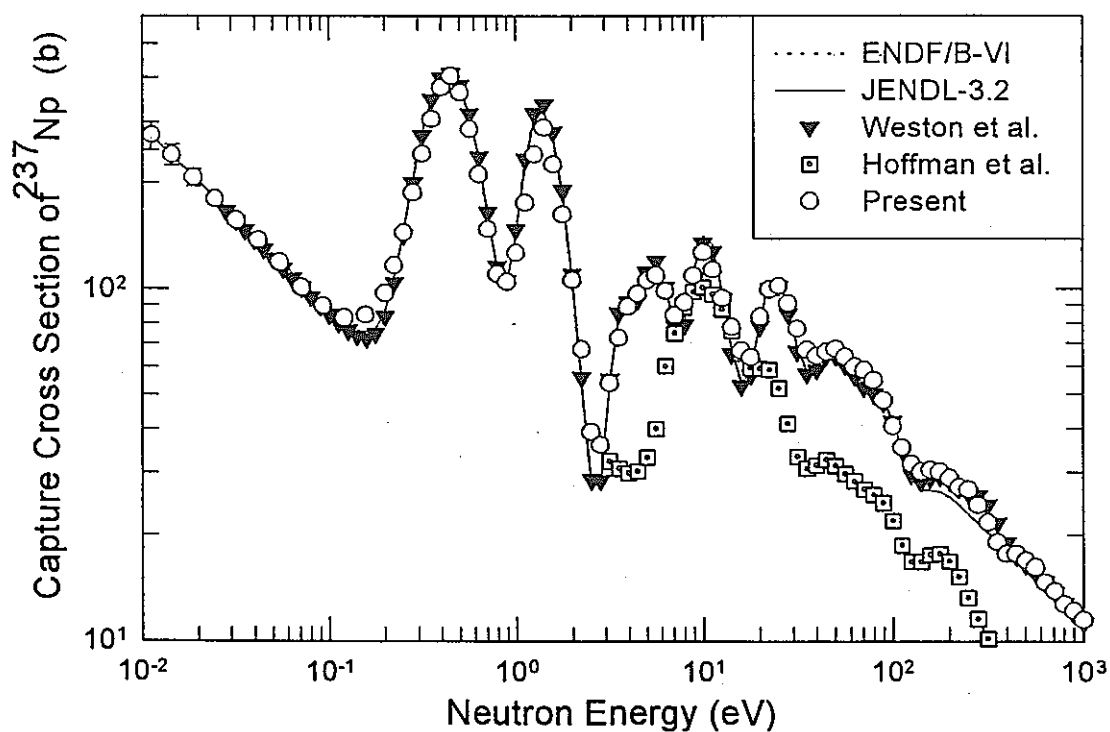


Fig. 4. Comparison of the measured and the evaluated data for the $^{237}\text{Np}(n,\gamma)^{238}\text{Np}$ reaction, whose values are broadened by the resolution function of the KULS.

4. Results and Discussion

Making use of the KULS, the cross section of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ reaction has been measured relative to that of the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ reaction at energies below 1 keV. The cross section data were obtained by summing up the slowing-down time data in intervals of about 0.12 lethargy width. The result obtained has been normalized to the reference value of the thermal neutron cross section in ENDF/B-VI at 0.0253 eV. The experimental uncertainties are in the range from 2 % to 10 %, and the major uncertainties are due to the statistical error (2~10 %) and that in the reference cross section (~2 %). Since the Np-237 sample was almost free from impurities, no correction was made for the impurity effect.

The capture cross sections measured by Weston et al. are in good agreement with the present measurement as seen in Fig. 4, but the data measured by Hoffman et al. are remarkably lower than the present values. In Fig. 4, the experimental and the evaluated data are broadened by the resolution function of the KULS. The evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are close to the present measurement in the relevant energy region.

5. Conclusion

The cross section of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ reaction has been measured from 0.01 eV to 1 keV relative to that of the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ reaction, making use of the lead slowing-down spectrometer KULS at KURRI. The data by Weston et al. and the evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are in good agreement with the present measurement in the relevant energy region. However, the data by Hoffman et al. are lower obviously.

References

- (1) Mukaiyama, T., et al., "Conceptual Study of Actinide Burner Reactors", Proc. Of the 1988 Int. Reactor Phys. Conf., Jackson Hale. Vol. IV, 369 (1988).
- (2) Berwald, D. H. and Duderstadt, J. J., Nucl. Technol., Vol. 42, 34 (1979).
- (3) Takano, H., et al., "Concept of Actinide Transmutation with Intense Proton Accelerator", 6th Int. Conf. On Emerging Nuclear Energy System, Monterey, USA 1991.
- (4) Hoffman, M. M., Sanders, W. M. and Semon, M. D., "Fission, Scattering and Capture Cross Sections for 237-Neptunium", BAP, 21, 655 (JE3) (1976).
- (5) Weston, L. W. and Todd, J. H., "Neutron Capture Cross Section of Np-237", Nucl. Sci. Eng., Vol. 79, 184 (1981).
- (6) Rose, R. F. (Ed.), "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation", BNL-NCS-17541, 4th Ed. (ENDF/B-VI) Brookhaven National Laboratory (1991), and "ENDF/B-VI MOD 2 Evaluation", by P.G. Young (1996).
- (7) Shibata, K. and Narita, T. (Eds.), JAERI-Data/Code 98-006 (part II) (1998).
- (8) Kobayashi, K. et al., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Research A, 385, 145 (1997).

付録 C

MA Nuclear Data Measurement with Lead Slowing-down Spectrometers

Katsuhei Kobayashi

Research Reactor Institute, Kyoto University
Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494
e-mail: koba@rri.kyoto-u.ac.jp

This paper reviews the minor actinide (MA) nuclear data measured with lead slowing-down spectrometers. The Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) at the Research Reactor Institute, Kyoto University has been applied to the measurements of (1) the fission cross sections of Np-237, Am-241, Am-242m and Am-243 in the energy range from 0.1 eV to 10 keV and (2) the capture cross section of Np-237 at energies between 0.01 eV and 1 keV. The results are compared with the existing experimental and the evaluated nuclear data (ENDF/B-VI, JENDL-3.2 and JEF-2.2).

The recent MA nuclear data, which were measured with the Rensselaer Intense Neutron Spectrometer (RINS) at the Rensselaer Polytechnic Institute and the spectrometer at the Kurchatov Institute, are also introduced.

1. Introduction

Neptunium (Np), americium (Am) and curium (Cm) are burdensome minor actinides (MA), which are abundantly produced in power reactors[1,2]. The nuclear data are of great importance for the design of reactors with MOX or Pu fuels and the system design of spent fuel reprocessing. From a standpoint of the disposal of radioactive waste, the fission/capture cross sections are of interest for their transmutation.

Up to now, numerous cross section measurements for MA nuclides have been made[3]. However, there still exist discrepancies among the measured and the evaluated data, such as ENDF/B-VI[4], JENDL-3.2[5] and JEF-2.2[6]. The difficulties to measure the fission/capture cross sections for the MA isotopes have been caused by strong alpha-particle activities or pile up pulses, or due to their short half-lives. Another problem for the cross section measurement is often due to lack of pure isotope samples. In addition, some of the cross sections are lower than about 1 b in the low/resonance energy region.

A lead slowing-down spectrometer is a powerful tool and is often used for this kinds of fission/capture cross section measurements because of about 10^4 increase in neutron flux comparing to the conventional time-of-flight (TOF) experiment at a 5 m flight path[7], although the energy resolution of the spectrometer is about 30 to 40 % full width at half maximum (FWHM).

In this report, first a survey of lead slowing-down spectrometers, Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS)[8], Rensselaer Intense Neutron Spectrometer (RINS)[7] and a spectrometer at the Kurchatov Institute[9], is provided. Then the MA nuclear data measured with these spectrometers are presented.

2. Lead Slowing-down Spectrometers

2.1. Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer

The Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS) has been installed in coupling to the 46 MeV linac at KURRI[8]. The KULS is composed of 1600 lead blocks (each size : $10 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$, purity : 99.9 %) and the blocks are piled up to make a cube of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$ (about 40 tons in weight) without any structural materials. At the center of the KULS, an air-cooled photoneutron target of Ta is set to generate pulsed fast neutrons.

The slowing-down constant K in the relation of $E=K/t^2$ was experimentally determined to be 190 ± 2 for the Bi hole in the KULS[8] using the measured relation between the neutron slowing-down time t in μs and the average neutron energy E in keV[8]. The energy resolution was also deduced to be about 40 % (FWHM) at energies between a few electron-volts and about 500 eV and was worse than that below a few electron-volts and above about 500 eV[8]. The characteristics of the KULS were also verified by Monte Carlo calculations[8].

2.2. Rensselaer Intense Neutron Spectrometer

The Rensselaer Intense Neutron Spectrometer (RINS) is coupled to the 100 MeV electron linac at the Rensselaer Polytechnic Institute (RPI) Gaerttner Laboratory[7]. The RINS is a cube, 1.8 m on edge and is stacked containing 75 tons of 99.99 % purity lead. The photoneutron target is constructed of tantalum plates and cooled by recirculated helium.

The neutron behavior in the RINS between the average neutron energy E in keV and the slowing-down time t in μs is represented by the expression; $E=K/(t+t_0)^2$, where $t_0 \sim 0.3 \mu\text{s}$ and $K=165 \pm 3$ for the RINS. The energy resolution of the RINS was $\sim 35 \%$ (FWHM) from 1 eV to 1 keV[7].

2.3. Spectrometer at Kurchatov Institute

The lead slowing-down spectrometer is driven by the high current electron linac "Fakel" at Kurchatov Institute[9,10]. The size of the spectrometer is $1.6 \times 1.8 \text{ m}^2$ and 1.6 m depth and is built with many pieces of lead blocks ($20 \times 10 \times 5 \text{ cm}^3$; 99.99%). The total weight of the spectrometer is 50 tons. The neutron target is assembled of the tungsten (W) disks of 40 mm in diameter and 40 mm in thickness and is cooled by air.

The relation between the slowing-down time t in μs and the neutron energy E in keV was derived as $E=K/(t+t_0)^2$, where $K=181.5$ and $t_0=0.9$ were experimentally determined. The energy resolution was equal to be 30 % [9,10].

3. Measured Results and Discussion

3.1 Measurements with the KULS

²³⁷Np(n,f) cross section[11]

The first measurement using the KULS was the ²³⁷Np(n,f) cross section from $\sim 1 \text{ eV}$ to $\sim 5 \text{ keV}$ [11], as seen in Fig. 1. The data by Plattard et al. and in ENDF/B-VI and JENDL-3.1 are lower by a factor of three[11]. Just after Yamanaka et al. published the result[11], Carlson et al. measured the cross section by the neutron TOF method[12] and reported that their data were in good agreement with the data by Yamanaka et al. These new

measurements were taken into account in the evaluation of JENDL-3.2. The data measured by Hoffman et al. are in general agreement with those by Yamanaka et al. in the relevant energy region[11].

$^{241}\text{Am}(n,f)$, $^{242m}\text{Am}(n,f)$ and $^{243}\text{Am}(n,f)$ cross sections[13,14,15]

The fission cross section of Am-241 measured by Dabbs et al. are in good agreement with those by Yamamoto et al.[13].

Some of the experimental data are in disagreement, and some other data are close to the Yamamoto's. As shown in Fig. 2,

good agreement can be seen in general shape and absolute values between the data by Yamamoto et al. and the evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2, which are energy broadened with the resolution function of the KULS. The JENDL-3.2 data between 22 and 140 eV are underestimated by 1.2 to 2.3 times, while the ENDF/B-VI data are in good agreement with the measurement.

The evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 for the $^{242m}\text{Am}(n,f)$ reaction seem to be a little higher below about 0.3 eV and lower in the range from 0.6 to 3 eV than the measurement by Kai et al.[14], as displayed in Fig. 3. Above 3 eV, the JENDL-3.2 data are close to the measurement in general, while the ENDF/B-VI data are obviously high.

The $^{243}\text{Am}(n,f)$ cross sections measured by Wisshak et al. and Knitter et al. show good agreement with those by Kobayashi et al.[15], while the result by Seeger is considerably higher above hundreds of electron-volts. Kobayashi et al. measured the fission cross section for the first time in the lower/resonance energy region. Figure 4 shows that the ENDF/B-VI data are in general agreement except for the region above 300 eV and lower at energies between 15 and 60 eV. The JENDL-3.2 data seem to be lower than the Kobayashi's in general above 100 eV.

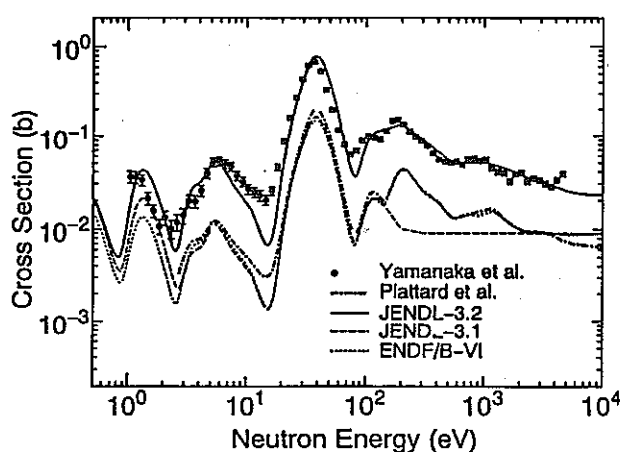


Fig. 1 Fission cross section of Np-237.

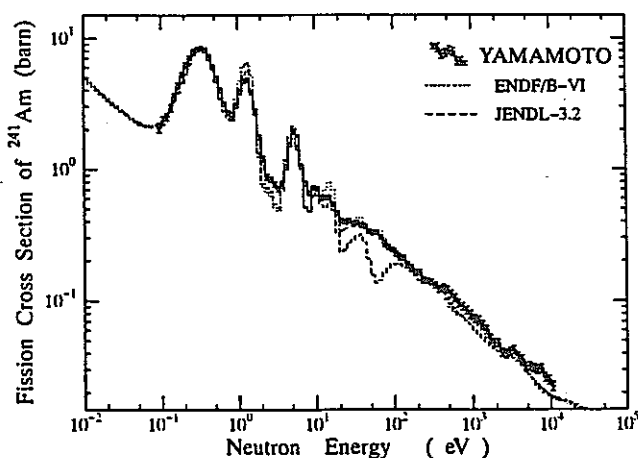


Fig. 2 Fission cross section of Am-241.

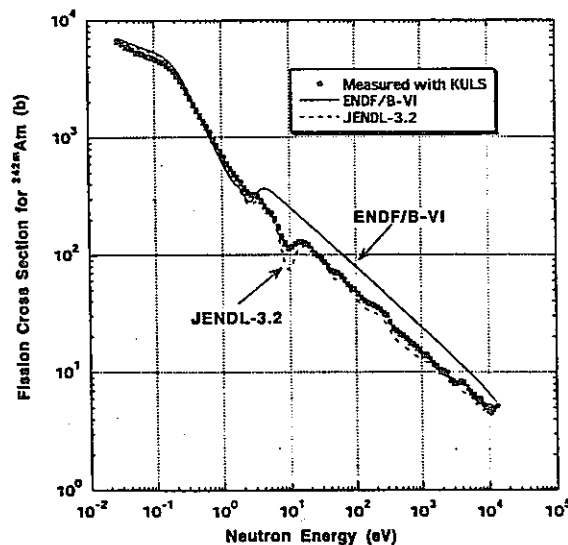


Fig. 3 Fission cross section of Am-242m.

In contrast to this, the evaluation shows a tendency to be higher below 0.3 eV. The JEF-2.2 data are obviously low except for the big resonance region.

$^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ cross section[16]

Figure 5 shows the measured and the existing experimental/evaluated data which are broadened by the resolution function of the KULS. The data by Weston et al. are in good agreement with those by Kobayashi et al.[16]. However the data by Hoffman et al. are markedly lower. The evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 agree well with the Kobayashi's.

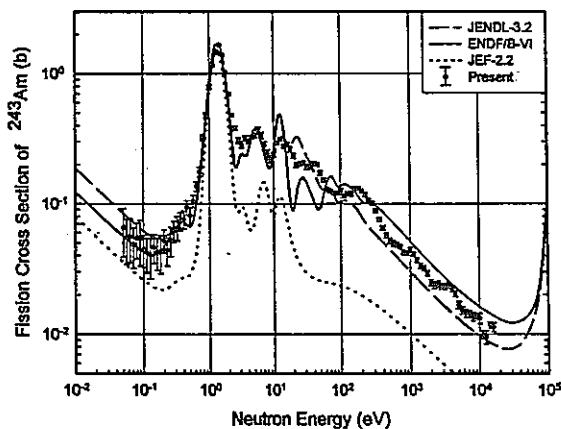


Fig. 4 Fission cross section of Am-243.

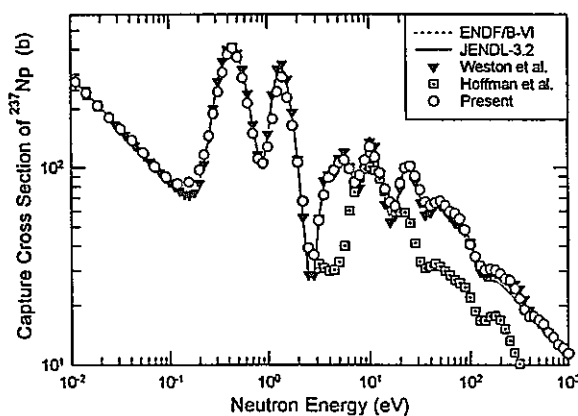


Fig. 5 Capture cross section of Np-237.

3.2. Measurements with the RINS

$^{238}\text{U}(n, f)$ and $^{238}\text{Pu}(n, f)$ cross sections[7,17]

Making use of the RINS, the $^{238}\text{U}(n, f)$ cross section was measured relative to the $^{235}\text{U}(n, f)$ cross section from 3 eV to ~ 100 keV with 2.2 cm diam. cylindrical ionization chamber coated with highly enriched U-238[7]. Fission in the lowest energy U-238 resonance was clearly resolved for the first time. The fission cross section of Pu-238 was measured in the 0.1 eV to 100 keV[17], which was the second reported measurement below ~ 2 eV. The ENDF/B-VI data are generally in poor agreement with the measurement in the resonance structure region[17].

$^{242}\text{Cm}(n, f)$, $^{244}\text{Cm}(n, f)$, $^{246}\text{Cm}(n, f)$, $^{247}\text{Cm}(n, f)$ and $^{248}\text{Cm}(n, f)$ cross sections[17-19]

Alam et al. made the first fission cross section measurement of Cm-242 from 0.1 eV to 100 keV[17]. Maguire, Jr et al. measured the fission cross sections of Cm-244, Cm-246 and Cm-248[18]. These data were the first measurements between 0.1 and 20 eV. Figure 6 shows the $^{246}\text{Cm}(n, f)$ cross section comparing with the ENDF/B-V data[18]. The evaluated data for these even curium isotopes are generally in poor agreement with the measurement. Danon et al. measured the $^{247}\text{Cm}(n, f)$ cross section from 0.1 eV to 80 keV[19], and this was the first measurement at the energy range of 0.1 to 20 eV. In the energy range from 20 eV to 100 keV, the shape of the cross section agrees with the fission cross section measured by Moor and Keyworth, but higher by about 30 % above 150 eV[19].

²⁵⁰Cf(n,f) and ²⁵⁴Es(n,f) cross sections[19]

These cross sections were first measured in the energy range of 0.1 eV to 80 keV. The Cf-250 cross section has only one resonance at 0.53 eV and has an average cross section of the order of ~ 4 b in the 17 to 76 eV energy range[19]. Es-254 showed only very little structure possibly because of wide fission widths and small level spacing[19].

3.3. Measurements with the Kurchatov Spectrometer

²³⁷Np(n,f), ^{236,239,241}Pu(n,f), ^{241,242m}Am(n,f), ²⁴⁵Cm(n,f) and ²⁴⁹Cf(n,f) cross sections[9,10]

Making the correction procedure for the resolution function with the Kurchatov spectrometer, the MA fission cross sections were obtained. For Np-236, Pu-236, Pu-239, Pu-241, Am-242m and Cm-245 isotopes, the results were published elsewhere[20,21]. The data for the Np-236 and Pu-236 so far remain the unique experimental evaluations of the fission cross section in the over-thermal neutron energy region. The fission cross section of Np-237 measured by Gerasimov et al.[10] seems to be close to that by Yamanaka et al.[11] although a little discrepancy are seen in the peak or valley structure region due to the different energy resolution between the spectrometers. For the Pu-239 measurement, good agreement is seen between the results using the RINS and the Kurchatov spectrometer. The Kurchatov data of the ²⁴¹Am(n,f) and ^{242m}Am(n,f) reactions are in very good agreement with the measurements with the KULS[13,14], respectively. Figure 7 show the ²⁴⁵Cm(n,f) cross section measured by Gerasimov et al.[9]. RPI group has not measured this cross section, although the group has measured some other Cm fission cross sections with the RINS.

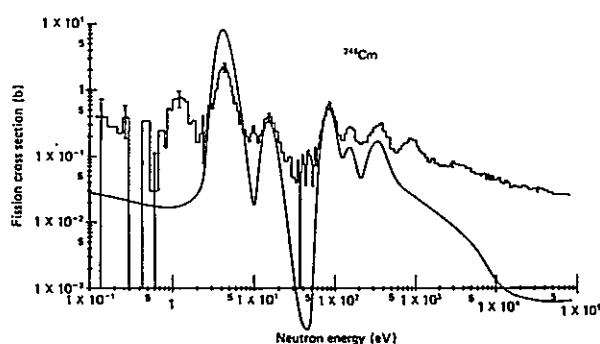


Fig. 6 Fission cross section of Cm-246.

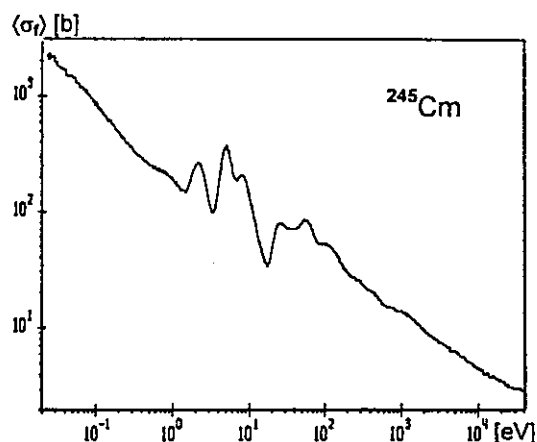


Fig. 7 Fission cross section of Cm-245.

4. Summary

The present review of the recent MA nuclear data measurements are summarized as follows:

- (1) Making use of the KULS, the fission cross sections of Np-237, Am-241, -242m and -243 and the capture cross section of Np-237 have been measured in the energy range of about ~ 0.1 eV to 10 keV.
- (2) The RINS has been used to measure fission cross sections of U-238, Pu-238, -239, Cm-242, -244, -246, -247, -248, Cf-250 and Es-254 between about 0.1 eV and ~ 100 keV.
- (3) With the Kurchatov spectrometer, the fission cross section of Pu-236, -238, -239 -241, Np-

237, Am-241, -242m, Cm-245 and Cf-249 have been measured below 40 keV. The fission cross section of Pu-238 has been measured with the RINS and the Kurchatov spectrometer, and those of Np-237, Am-241 and Am-242m have been measured with the KULS and the Kurchatov spectrometer. It is said that the MA nuclear data measured with these Spectrometers are in general agreement with each other. However, discrepancies can be still seen between the evaluation and measurement or among the measurements for some MA nuclear data. It is expected in future that more experimental studies with MA nuclides are carried out with the pure sample.

References

- [1] Lancaster, D.: *Proc. Int. Conf. and Technol. Exposition on Future Nucl. system: Global '93*, Seattle, 1993, ANS, La Grange Park, Illinois, p.609 (1993).
- [2] Mukaiyama, T. *et al.*: *J. At. Energy Soc. Jpn*, 37(3), 159 (1995).
- [3] MaLane, V. *et al.*: "*Neutron Cross Sections*", Vol.2, Neutron Cross Section Curves, Academic Press (1988).
- [4] Rose, R. F.(Ed.): ENDF/B-201, ENDF/B-VI Summary Documentation, *BNL-NCS17541*, 4th Ed.(ENDF/B-VI) (1991), and ENDF/B-VI Mod.2 Evaluation, by P.G.Young (1996).
- [5] Shibata, K. and Narita, T.(Eds.): *JAERI-Data/Code* 98-006 (part II) (1998).
- [6] Nordbor, C. and Salvatores, M.: *Proc. Int. Conf. Nucl. Data Science and Technol.*, Gatlinberg, Tenn. 1994, ANS, Vol.2, p.680 (1994).
- [7] Slovacek, R. E. *et al.*: *Nucl. Sci. Eng.*, 62, 455 (1977).
- [8] Kobayashi, K. *et al.*: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 385, 145 (1997).
- [9] Gerasimov, V. F. *et al.*: *Proc. V Int. Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, ISINN-5*, Dubna, p.361 (1997).
- [10] Gerasimov, V. F. *et al.*: *ibid.*, p.348 (1997).
- [11] Yamanaka, A. *et al.*: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 30(9), 863 (1993).
- [12] Carlson, A. D. *et al.*: *Proc. Int. Conf. Nucl. Data Science and Technol.*, Gatlinberg, Tenn. 1994, ANS, Vol.1, p.40 (1994).
- [13] Yamamoto, S. *et al.*: *Nucl. Sci. Eng.*, 126, 201 (1997).
- [14] Kai, T. *et al.*: *JAERI-Conf*98-003, p.225 (1998).
- [15] Kobayashi, K. *et al.*: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 36(1), 20 (1999).
- [16] Kobayashi, K. *et al.*: To be published in this Symposium.
- [17] Alam, B. *et al.*: *Nucl. Sci. Eng.*, 99, 267 (1988).
- [18] Maguire, Jr., H. T. *et al.*: *Nucl. Sci. Eng.*, 89, 293 (1985).
- [19] Danon, Y. *et al.*: *Nucl. Sci. Eng.*, 109, 341 (1991).
- [20] Gerasimov, V. F. *et al.*: *Proc. Int. Conf. on Neutron Phys.*, Kiev, Vol.3, p.87 (1988).
- [21] Gromova, E. A. *et al.*: *Atomnaja Energija*, Vol.68, p.193 (1989).



ELSEVIER

Characteristics of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) coupled to an electron linac

Katsuhei Kobayashi^{a,*}, Shuji Yamamoto^a, Akihiro Yamanaka^{b,1}, Yoshihiro Nakagome^a,
Yoshiaki Fujita^a, Satoshi Kanazawa^b, Itsuro Kimura^b

^aResearch Reactor Institute, Kyoto University, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-04, Japan

^bDepartment of Nuclear Engineering, Kyoto University, Yoshidahonmachi, Sakyo-ku, Kyoto 606-01, Japan

Received 20 September 1995; revised form received 17 September 1996

Abstract

A lead slowing-down spectrometer coupled to a 46 MeV electron linear accelerator (linac) was installed at Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). The size of this Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) is $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$, and it is covered with Cd sheets 0.5 mm thick. One of the eleven experimental holes in the KULS is covered with 10 to 15 cm thick bismuth layers to suppress high energy capture gamma-rays from lead.

The characteristics of this KULS have been experimentally obtained and the results are compared with the predicted values by Monte Carlo calculations using the MCNP code. 1) The slowing-down constant K in the relation $E = K/t^2$ between the neutron slowing-down time t and energy E is $190 \pm 2 \text{ (keV } \mu\text{s}^2)$ for the bismuth hole and $156 \pm 2 \text{ (keV } \mu\text{s}^2)$ for an ordinary lead hole, respectively. The K values agree with the calculated ones. 2) The measured energy resolution $\Delta E/E$ at full-width-at-half-maximum (FWHM) was about 40% for both holes, while the calculated values were lower by about 10% than the measured ones in the relevant energy region. 3) The neutron energy spectrum from 0.01 eV to 20 MeV and the spatial distribution of neutrons in the KULS were measured by the foil activation method. The angular neutron spectrum perpendicular to the linac electron beam was also obtained experimentally in the energy range from a few eV to about 10 MeV by the neutron time-of-flight (TOF) method. The measured results are compared with the calculated ones in which we have used the three evaluated nuclear data JENDL-3, ENDL-85 and ENDF/B-IV for lead. Through the comparison a check on the nuclear data has been performed.

1. Introduction

Lead is one of the heavy mass elements and it has no inelastic scattering cross section below about 600 keV, where the neutron total cross section mainly consists of elastic scattering cross section, since the absorption cross section is very small. Therefore, when pulsed fast neutrons are put into the central region of a large lead assembly, the neutrons are slowed down by repeating many elastic scattering processes, because of little leakage of neutrons. The slowing-down neutrons present focusing behaviour and keep an asymptotic form at each energy corresponding to the slowing-down time [1]. There exists a relation $E = K/t^2$ between the mean energy E in keV of the slowing-down neutrons and the mean slowing-down time t

in μs [1], where K is the slowing-down constant. The energy resolution of the slowing-down neutrons is theoretically given at full-width-at-half-maximum (FWHM) by [1]

$$(\Delta E/E)_{\text{FWHM}} = 2.35 \times (\Delta\sigma/\sigma)_{\text{Gaussian}} \\ = 2.35 \times (8/3A)^{1/2} = 27\%,$$

where, $(\Delta\sigma/\sigma)_{\text{Gaussian}}$ is the standard deviation in a Gaussian function and A is the atomic mass (207.2) of lead.

Hence a large lead assembly was proposed to be applicable as a neutron spectrometer and practically used by Bergman et al. [2] for the first time. Since that, in some laboratories or universities, lead slowing-down spectrometers coupled to a D-T pulsed neutron source by a Cockcroft-Walton accelerator have been installed and widely applied to measurements of neutron capture and fission cross sections in the intermediate and/or resonance neutron energy region [1–7].

* Corresponding author.

¹ Present address: Hitachi Works, Hitachi Ltd., Saiwai-cho, Hitachi-shi, Ibaraki 317, Japan.

Most of electron linear accelerators have been developed in 1960s as an intense neutron source and neutron time-of-flight (TOF) method has often been used for neutron cross section measurements [8]. The usage of a lead slowing-down spectrometer coupled to an electron linear accelerator (linac) was proposed for the measurement of small amount of samples with low cross sections and for the cross section measurement of radioactive materials to give high background level. The first spectrometer was installed at the Rensselaer Polytechnic Institute (RPI) as an intense neutron spectrometer [9]. Since neutrons can be detected at the distance of tens of centimeters from the pulsed neutron source in the lead slowing-down spectrometer, higher neutron intensities by more than thousands times than those at the measuring station of 5 m flight path for the conventional neutron TOF method can be obtained [9]. Making use of the spectrometer, the RPI groups have made measurements of sub-threshold fission cross sections [9,10] of ^{238}U and ^{232}Th and measured fission cross sections of trans-uranium nuclides [11–13] in the energy range from about 1 eV to several tens of keV. Recently, the spectrometer was also applied to the nondestructive assay of spent fuels [14,15].

In the present work, we have experimentally investigated characteristic behaviour of neutrons in the lead slowing-down spectrometer coupled to a 46 MeV electron linear accelerator (linac) at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). The spectrometer was originally installed at University of Tokyo [5] and transferred to KURRI in 1991. With this Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS), we first obtained the relation between neutron slowing-down time and energy and the neutron energy resolution by the experiments with resonance filters and by the calculations using the continuous energy Monte Carlo code MCNP [16]. Secondly, making use of the NEUPAC and the SAND-II codes [17,18], the neutron flux spectrum in the KULS has been analyzed by the adjustment method with activation foil data. Radial flux distributions of neutrons have also been measured by Au foils and Ni wires. In addition, neutron TOF method has been employed to measure the angular neutron flux spectrum in the KULS, as we have done before [19,20]. These experimental results have been compared with calculations performed by the MCNP code using the evaluated nuclear data files of ENDF/B-IV [21], ENDL-85 [22] and JENDL-3 [23]. The nuclear data for lead is useful to understand the characteristics of a lead slowing-down spectrometer.

2. Lead slowing-down spectrometer

The lead slowing-down spectrometer was recently installed by coupling to the 46 MeV linac at KURRI. Specific features of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) are as follows.

1) The KULS is a cube of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$ and about 40 tons in weight, and is set on a platform car in the linac target room so that it can be removed when the conventional neutron TOF measurement is made, as shown in Fig. 1.

2) The number of the lead blocks used was about 1600 (each size: $10 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$, and purity: 99.9%). Each block was carefully cleaned with alcohol or acetone and piled up to make the cube without any structural steel. All sides of the KULS were covered with cadmium sheet of 0.5 mm in thickness to shield low energy neutrons scattered from the surroundings.

3) Two types of photoneutron targets were employed: one was a cylindrical lead block (8 cm in diameter and 5 cm thick) casted with an aluminum pipe for air cooling, and the other was a tantalum target assembly (8 cm in diameter and 6 cm in effective thickness), which was made to set 12 sheets of tantalum plates in all (1 to 5 mm in each thickness) in a cylindrical titanium case. The tantalum target assembly was also cooled by compressed air flow. The photoneutron target is separated from the linac vacuum system to prevent troubles by which the linac machine is disturbed. The temperature on the target case was monitored with thermocouples and the linac operating conditions were controlled so that the temperature was kept less than 300°C . During the KULS experiments, the linac beam power on the target was about 200 to 500 W.

4) For the multi-purpose and/or parallel measurements, as seen in Fig. 1, we added eight experimental/irradiation

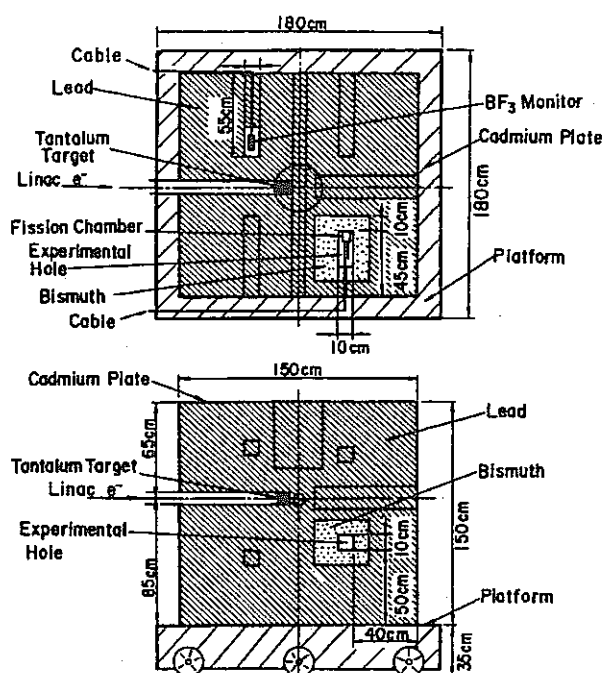


Fig. 1. Cross sectional view of Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer, KULS.

holes ($10 \times 10 \text{ cm}^2$, 55 or 45 cm in depth) to the spectrometer which were originally designed at University of Tokyo [5]. One of the good points of the KULS is that one of the lead holes was covered by a bismuth layer of 10 to 15 cm (neutron source side of the hole) in thickness to shield high energy gamma-rays (6 to 7 MeV) by the $\text{Pb}(n,\gamma)$ reaction in the spectrometer. The bismuth layers are useful to reduce background counts due to photofissions in the fission event measurement [10].

5) An advantageous point of the KULS is the design to be able to measure the neutron energy spectrum in the KULS by the conventional TOF method. At a distance of 12.5 cm behind the photoneutron target, a through hole of 8 cm in diameter is provided at a right angle to the incident electron beam, as shown in Fig. 1. Moreover, in the forward and the upper directions there are large experimental plugs of lead, each of which has an axial irradiation hole of 3 mm in diameter along the central axis. Activation foils or wires can be set to measure the flux distribution of neutrons.

3. Experimental method and measurement

3.1. Slowing-down time and energy

The relation between neutron slowing-down time and energy in the KULS has been measured in the bismuth hole and the lead hole at the opposite upper position to the bismuth hole, as shown in Fig. 1. For the investigation of the experimental reliability, two types of detectors were employed: one was a BF_3 counter (12 mm in diameter, 50 mm in length, 1 atm. pressure) for the neutron transmission measurement through a resonance filter which gave the dip structure in the slowing-down time spectrum, and the other was an Ar gas counter (12.7 mm in diameter, 63.5 mm in length, 1 atm. pressure) for the capture γ -ray measurement with a resonance filter which showed the bump structure in the slowing-down time spectrum. The detector was placed at the bottom of the bismuth or the lead hole covered with and without the resonance filter and the setting position was about 40 cm distant from the photoneutron target in the KULS. Table 1 shows the resonance filters and their main resonance energies used in the present measurement. Since the resonance energies for these filters are well known [24], we can calibrate the relation between slowing-down time t at the center of the dip spectrum by the BF_3 counter or of the bump spectrum by the Ar gas counter and its energy E , as a function of $E = K/(t + t_0)^2$, where K is slowing-down constant and t_0 is constant for the zero time correction.

Output pulses from the BF_3 or the Ar gas counter were transmitted through the pre-amplifier, the main amplifier and the discriminator and were stored in a multi-channel analyzer of 4096 channels as a function of the neutron slowing-down time. The channel width of 62.5 to 500 ns

Table 1

Resonance filters and their main resonance energies used in the present measurement

Material	Energy [eV]	Thickness [mm]	Form
In	1.46	0.2	foil
Te	2.33	7.0	powder
Ta	4.28	0.2	foil
Ta	10.4		
Au	4.91	0.05	cylinder
Ag	5.19	0.5	cylinder
Ag	16.3		
Cd	27.5	0.3	cylinder
Mo	44.9	7.0	powder
Co	132	0.3	cylinder
Cu	230	1.0	cylinder
Cu	579		
Mn	336	7.0	powder

was selected. Another BF_3 counter was set in a lead hole as seen in Fig. 1, to monitor the neutron source intensity during the experiment.

3.2. Energy resolution

The energy resolution of neutrons in the KULS has been experimentally obtained from the dip or the bump spectrum, as performed in the above measurements, making use of the BF_3 and the Ar gas counters. The dip or the bump spectrum was fitted with a Gaussian function to give the energy resolution at full width at half maximum $(\Delta E/E)_{\text{FWHM}} = 2.35(\Delta\sigma/\sigma)_{\text{Gaussian}}$ using the standard deviation. In the transmission measurement with a resonance filter, corrections are required for the dip spectrum broadened by certain width of the resonance cross section and by the certain thickness of the resonance filter. Then, the capture γ -ray measurement using a sharp resonance peak like a delta function would be better to determine the energy resolution, because one can derive the energy resolution without any corrections in the measured data. Table 1 lists not only the big resonance filters but also the Cu and Cd filters with sharp resonances at 230, 579 and 27.5 eV, respectively.

3.3. Neutron spectrum and flux distribution measured by activation method

With the photoneutron target of lead placed near the center of the KULS, we have irradiated eleven kinds of activation foils at the distance of 12.5 cm behind the target, as seen in Fig. 1. During the irradiations, lead plugs were put into the through hole. Table 2 shows the activation foils and the fourteen nuclear reactions used in the present measurement. Gamma-rays from these induced activities were measured with a HPGe detector, whose detection efficiency was calibrated using a mixed radioactive standard source. The linac operations were performed with a

Table 2

Nuclear reaction, half life, gamma-ray energy and its intensity used for the present data processing

No.	Reaction	Half life ^a	Gamma-ray ^a energy [MeV]	Gamma-ray ^a intensity [%]
1	¹⁹⁷ Au(n,γ) ¹⁹⁸ Au	2.694 d	0.412	95.5
2	⁵⁵ Mn(n,γ) ⁵⁶ Mn	2.579 h	0.847	98.93
3	⁵⁹ Co(n,γ) ⁶⁰ Co	5.271 y	1.173	99.90
4	¹⁸⁶ W(n,γ) ¹⁸⁷ W	23.85 h	0.686	29.3
5	²⁴ Mg(n,p) ²⁴ Na	14.66 h	1.369	100.0
6	²⁷ Al(n,p) ²⁷ Mg	9.462 m	0.844	73.0
7	²⁷ Al(n,α) ²⁴ Na	14.66 h	1.369	100.0
8	⁴⁶ Ti(n,p) ⁴⁶ Sc	83.83 d	0.889	99.98
9	⁴⁷ Ti(n,p) ⁴⁷ Sc	3.341 d	0.159	68.2
10	⁴⁸ Ti(n,p) ⁴⁸ Sc	1.821 d	0.984	100.0
11	⁵⁸ Ni(n,p) ⁵⁸ Co	70.92 d	0.811	99.53
12	⁵⁴ Fe(n,p) ⁵⁴ Mn	312.2 d	0.835	99.98
13	⁶⁴ Zn(n,p) ⁶⁴ Cu	12.70 h	0.511	35.8
14	¹¹⁵ In(n,n') ^{115m} In	4.486 h	0.336	45.8

^aThe nuclear data were taken from Ref. [25].

pulse width of 33 ns, a repetition rate of 30 Hz, an electron peak current of about 2 A and an electron energy of 32 MeV, respectively.

The activation data were analyzed by spectrum adjustment method employing the NEUPAC and the SAND-II codes [17,18]. The NEUPAC code contains energy dependent group cross sections of 135 groups from 0.01 eV to 16.4 MeV, including the error matrices [26] for neutron dosimetry reactions in ENDF/B-V. For the SAND-II code, the original code was revised to produce the analytical uncertainties using the Monte Carlo method [27,28]. Moreover, a subroutine program was added for the self-shielding correction in the foil. The group cross sections of 642 energy bins were used and taken from the JENDL Dosimetry File [29]. As an initial spectrum for the adjustment with the NEUPAC and the SAND-II codes, the spectral result calculated with the MCNP code was used, as described later.

Neutron flux distribution in the KULS was measured in the radial irradiation holes and the through hole. Nickel wires of 1 mm in diameter were radially set in the experimental holes to measure fast neutron fluxes by the ⁵⁸Ni(n,p)⁵⁸Co reaction. Gold foils, each of 5 mm×10 mm and 50 μm thick, were put on the nickel wire in every 10 cm distance for the measurement of slow neutrons by the ¹⁹⁷Au(n,γ)¹⁹⁸Au reaction. At the position of 12.5 cm behind the neutron source and the bottom of the bismuth and the lead holes, neutron fluxes were also measured with Ni foils (12.7 mm in diameter and 0.5 mm thick) and Au foils (12.7 mm in diameter and 50 μm thick). With the Au foils and Mn–Cu foils (Mn:Cu=88:12, 12.7 mm in diameter, 0.2 mm thick), cadmium ratio measurement (Cd-cover: 0.5 mm thick) was made in the bismuth and the lead holes by their (n,γ) reactions. These induced activities were measured with the above HPGe detector.

3.4. Neutron spectrum measured by TOF method

Making use of the Ta photoneutron target, angular neutron flux spectrum of $\mu = 0$ ($\theta = 90^\circ$) to the incident electron beam was measured from a few eV to 10 MeV by the neutron TOF method. The experimental arrangement is shown in Fig. 2. A horizontal through hole of 8 cm in diameter was stuffed with a lead plug in the backward region to make a re-entrant hole and to extract neutrons at the position of $r = 12.5$ cm from the photoneutron target.

In order to experimentally investigate the reproducibility of the neutron spectrum measurement, different types of two neutron detectors were employed: one was composed of a bank of three ⁶Li glass (12.7 cm in diameter and 1.27 cm thick) scintillation detectors at the 22 m station and the other was ¹⁰B-vaseline-plug NaI(Tl) (12.7 cm in diameter and 5.08 cm thick) scintillation detectors at the 24 m station. When the ¹⁰B-vaseline-plug NaI(Tl) detectors were used for the spectrum measurement, the ⁶Li glass detectors were removed from the TOF neutron beam. Relative detection efficiencies for these neutron detectors were experimentally calibrated by making use of a borated graphite standard pile [30]. The background measurement was performed by removing the backward lead plug to make a through hole. Through the amplifiers and the discriminator, output signals from the detectors were fed into a time digitizer, which was initiated by the linac electron burst, and the TOF data were stored in a data acquisition system. The channel width was 20 ns to 0.25 μs and the number of channel was 4096.

The linac was operated with the pulse width of 10 ns, the repetition rate of 180 Hz, the electron peak current of about 1 A and the electron energy of about 32 MeV, respectively. A BF₃ counter was set in an experimental hole of the KULS to monitor the neutron intensity between

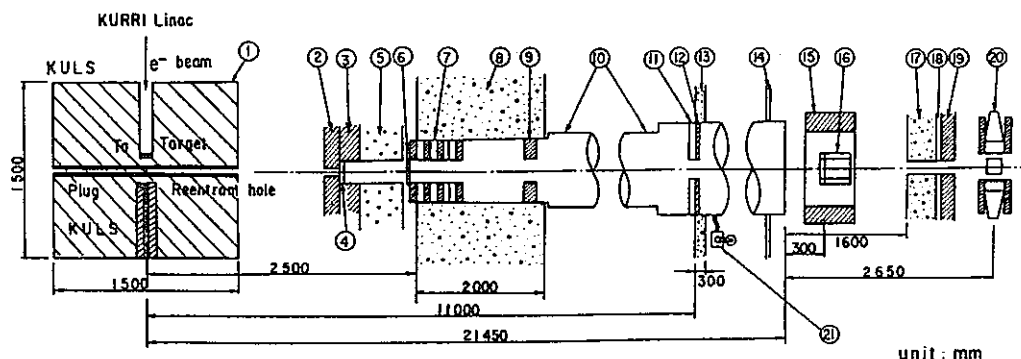


Fig. 2. Experimental arrangement for the linac TOF method. (1) KULS, (2) Pb collimator, (3) Pb shield, (4) U-filter, (5) Heavy concrete (6) Cd-filter, (7) Pb + B₄C collimator, (8) Concrete wall, (9) Pb collimator, (10) Flight tube, (11) B₄C collimator, (12) Pb collimator, (13) Concrete wall, (14) Wall of measuring house, (15) Detector shield of Pb, (16) ⁶Li glass detectors, (17) Concrete shield, (18) Cd shield, (19) Pb shield, (20) ¹⁰B-vaseline-plug NaI(Tl) detectors, (21) Rotary pump.

the experimental runs. An uranium filter of 2 cm in thickness was placed in the TOF beam to shield the neutron detectors against the intense γ -ray flash from the linac burst. Moreover, a Cd-filter of 0.5 mm in thickness was placed in the TOF beam to suppress overlap of thermal neutrons from the previous pulses. The relation between neutron TOF and its energy was calibrated with resonance energies of 132 eV for Co, of 336 eV and 2.37 keV for Mn and of 27.7 keV for Fe filters. Good linearity was found between the neutron TOF and the channel number.

4. Calculations

The continuous energy Monte Carlo code MCNP [16] has been employed to analyze the time-dependent spectrum of slowing-down neutrons in the KULS. This code can track the time behavior of neutrons every 10^{-8} s. The calculations were performed with three dimensional Cartesian coordinate, and the geometrical parameters and/or size of the KULS were referred as the spectrometer was. For the calculations, the photoneutron source spectrum was taken from the experimental data, which were previously measured by the neutron TOF method [20]. Tally boxes of $10 \times 10 \times 10$ cm³ for the MCNP calculations were put at the positions of the bismuth and the lead holes. Fig. 3 shows the calculated time-dependent neutron spectra for average energies from 70 keV to 3.6 eV at the bismuth hole about 40 cm distant from the Ta photoneutron source. In the figure, the mean time in μ s after the pulsed neutron burst is shown for the each corresponding spectrum. The time behavioral spectra seem to be asymptotic form at energies below a few keV and after that, the spectrum form is kept in the slowing-down process, although small dips are observed at 0.8, 2.31 and 12.09 keV due to the sharp

resonances of bismuth. From the calculated time-dependent spectra, we can obtain the relation between neutron slowing-down time and its average energy and also the energy resolution at FWHM.

The time-dependent spectra were integrated over a few tens of milliseconds to get the steady state neutron spectrum from about 0.1 eV to 10 MeV. For these calculations, one million random histories were performed. The statistical errors were poor in the lower energy region and 20 to 30% at neutron energies of a few eV, although the error was about 1% at hundreds of keV. There was scarcely difference in shape between the scalar neutron flux and the angular neutron flux in the lead hole. Activation data support the fact that the angular flux distribution of neutrons is almost symmetric around the neutron source in the KULS, as described later.

The MCNP code has its own nuclear data libraries, which were generated from the evaluated nuclear data files of ENDF/B-IV [21] and ENDL-85 [22]. New data library [31] generated from JENDL-3 [23] was also available for the MCNP calculations. Comparison of the calculated neutron spectrum and the measured one would be useful for the integral investigation of the nuclear data for lead, to understand the characteristics of the lead slowing-down spectrometer.

5. Results

5.1. Slowing-down time and energy

The measured relation between the neutron slowing-down time t in μ s and the average neutron energy E in keV is summarized in Fig. 4. By the least squares fitting with these measured data, the slowing-down constant K appeared in the relation of $E = K/(t_0 + t)^2$ was obtained to be

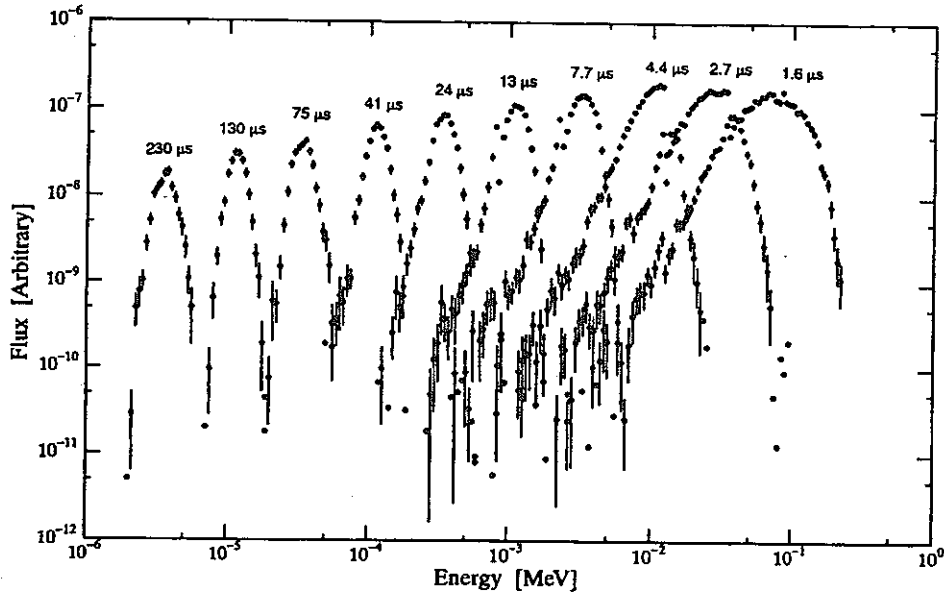


Fig. 3. Calculation of time dependent neutron spectra in the Bi hole after the pulsed neutrons were driven into the Ta target.

190 ± 2 ($\text{keV } \mu\text{s}^2$) for the bismuth experimental hole and 156 ± 2 ($\text{keV } \mu\text{s}^2$) for the lead one in the KULS, respectively. For both experimental holes, the constant t_0 was derived to be 0.2 to 0.3 μs . The present value of the constant K for the lead hole is in good agreement with 155 ($\text{keV } \mu\text{s}^2$), which was obtained by Wakabayashi et al. [5] before it was transferred from the University of Tokyo to KURRI. The bismuth hole was originally provided at KURRI.

As seen in Fig. 3, the time-dependent spectra from a few eV to hundreds keV calculated with a certain time bin were fitted with a Gaussian function, especially near the peak region. Making use of the slowing-down time corre-

sponding to the Gaussian peak, the constant K for the bismuth hole was derived as 191 ± 3 ($\text{keV } \mu\text{s}^2$), which was in excellent agreement with the experimental results mentioned above. In the same manner, the constant K for the lead hole was obtained with the calculations. The resultant value for the lead hole is 157 ± 4 ($\text{keV } \mu\text{s}^2$), which is in good agreement with the present experimental value and that measured by Wakabayashi et al.

5.2. Energy resolution

After the neutron transmission data measured by the BF_3 counter were corrected for the resonance width and the sample filter thickness, neutron energy resolution of the KULS was obtained by fitting the resonance dip data in the slowing-down time spectrum, and derived from the FWHM in the Gaussian distribution. Resonance capture measurements using the Ar gas counter could give the appropriate energy resolution at sharp and narrow resonances of 230 and 579 eV for copper and 27.5 eV for cadmium without any corrections for the resonance peak width. Fig. 5 illustrates the present results measured in the bismuth hole. It is seen that the measured energy resolution is about 40% at energies from a few eV to about 500 eV and that the resolution is going to be larger in the lower and the higher energy regions. The results for the lead hole were in good agreement with those for the bismuth hole measured by the BF_3 and the Ar gas counters, as shown in Table 3.

The time-dependent spectra calculated with the MCNP code were also fitted with a Gaussian function. The resultant energy resolutions at FWHM are summarized in

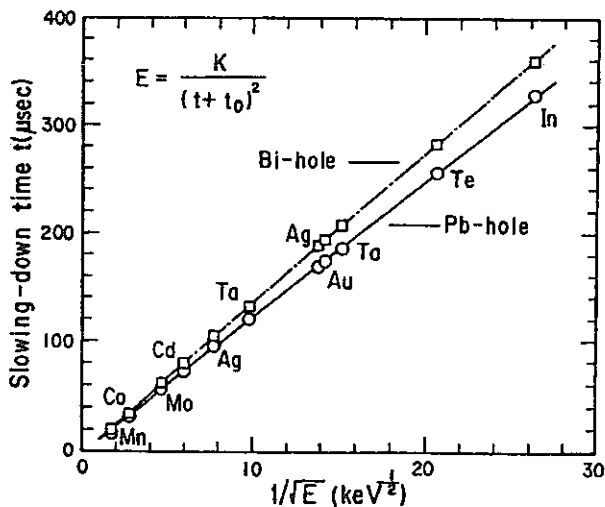


Fig. 4. Relation between neutron slowing-down time and mean energy in Bi and Pb holes of the KULS.

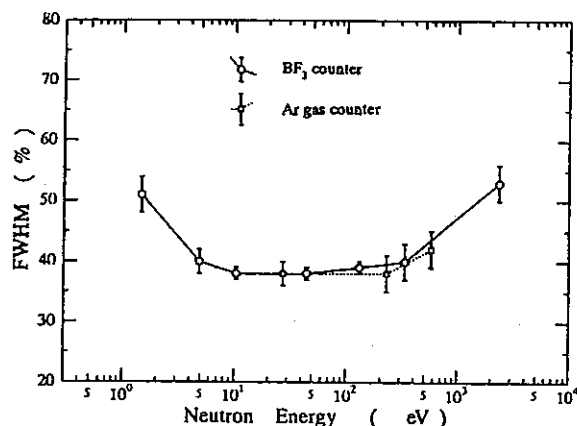


Fig. 5. Energy resolution measured by resonance filters in Bi hole of the KULS. (—○—) neutron transmission method using the BF_3 counter. (---□---) capture gamma-ray measurement using the Ar gas counter (Error lines are indicated).

Table 3 and are compared with the measured data using the BF_3 and the Ar gas counters in the bismuth and the lead holes, respectively. Although good agreement can be seen between the measured energy resolutions in both holes, the calculated values are generally lower by about 10% than the measured ones. It may be said that the difference is due to some other effects, such as impurity in the KULS.

5.3. Neutron spectrum and flux distribution measured by activation method

Making use of fourteen kinds of activation data, neutron spectrum from the lead target has been obtained in the energy region from 0.01 eV up to 20 MeV by the SAND-II code and up to 16.4 MeV by the NEUPAC code. The initial

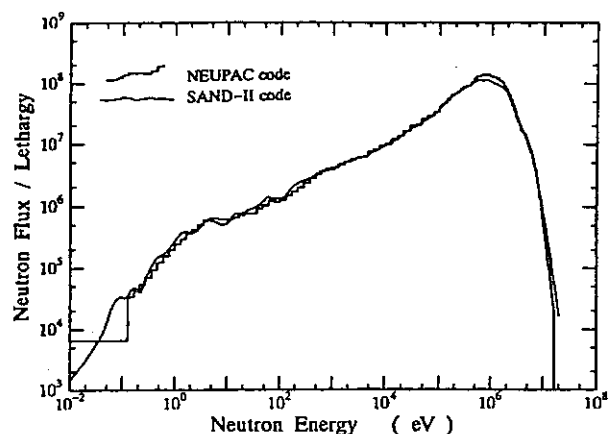


Fig. 6. Neutron spectra obtained by the activation data analysis for the lead photoneutron source.

spectrum for both analysis codes has been taken from the MCNP calculation, and the adjusted results are shown in Fig. 6. In the figure, neutron fluxes are given by the absolute values from the activation reaction rates. The spectral uncertainties in these results are 2 to 3% at least and 7 to 8% above 10 MeV and below a few hundreds keV where the activation responses are poor. Both spectra, adjusted with different type of analysis codes, are in general agreement with each other except for energies around 1 MeV, although small deviations are observed in the resonance neutron energy region within the order of analysis error. The discrepancy around 1 MeV would be due to the difference between the dosimetry cross section libraries for some threshold reactions. In the MeV energy region, the spectral shape is close to that of lead photoneutron source and harder than that of $1/E$ spectrum in the slowing-down neutron energy region. From the Cd-ratio

Table 3
Energy resolution [%] in Bi and Pb holes of the KULS

Measurements				Calculations		
Energy [eV]	BF_3 counter Bi hole	Ar gas counter		Energy [eV]	MCNP code	
		Bi hole	Pb hole		Bi hole	Pb hole
1.46	51±3			3.02		35.7
4.9	40±2			3.56	37.4	
10.4	38±1			10.0		28.5
27.5		38±2	37±2	11.6	31.6	
44.9	38±1			29.8		28.2
132	39±2			33.8	35.7	
230		38±3	40±3	99.1		29.8
336	40±3			113	34.5	
579		42±3	42±4	298		33.7
2370	53±3			339	38.3	
				990		38.1
				1091	43.2	
				2988		50.3
				3208	51.8	

measurements using Au and Mn–Cu foils, it was found that there existed scarcely thermal neutrons in the KULS as displayed in Fig. 6, since the Cd-ratio was almost unity.

By the $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ reaction used in the above activation measurement, fast neutron flux was obtained at $r = 12.5$ cm behind the neutron source (at the center of the horizontal through hole). Making use of the spectrum-averaged cross section for the KULS, the resultant fast neutron flux was 2.9×10^8 n/cm²/s, which was the result normalized to 100 W operation of the linac, although the linac power was about 63 W during the irradiation. This neutron flux is in good agreement with the normalized integral value between 1 keV and 20 MeV, appeared in Fig. 6. Fast neutron fluxes at the bottom of the bismuth and the lead holes ($r = 35$ to 50 cm from the source) were also measured with nickel foils. The results were 1.8×10^7 to 7.1×10^6 n/cm²/s/100 W depending upon the distance from the source, respectively. Experimental uncertainties for these neutron fluxes were 5 to 7%.

The spatial distribution of neutrons in the KULS was experimentally determined by the activation method. The results are given in Fig. 7 for the epi-thermal neutron flux distribution by the $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ reaction and in Fig. 8 for the fast neutron flux distribution by the $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ reaction. Although the epi-thermal neutron flux may be higher by 5 to 10% in the forward direction, it is seen that not only flux distribution of epithermal neutrons but also that of fast neutrons are approximately symmetric in the KULS. From Figs. 7 and 8, in addition, it may be realized that the neutron flux distribution in the KULS is not affected by the room-return neutrons, at least, at the position to set the detector in the experimental hole.

5.4. Neutron spectrum measured by TOF method

The angular neutron flux spectrum of $\mu = 0$ was measured at the position of $r = 12.5$ cm behind the Ta photoneutron target in the KULS, making use of the ^6Li

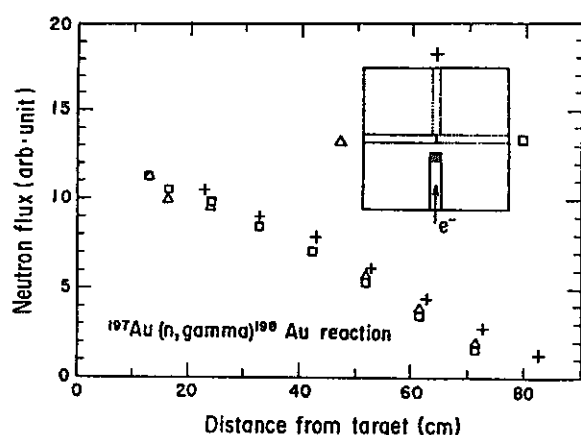


Fig. 7. Spatial distribution of epi-thermal neutrons measured by the $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ reaction in the KULS.

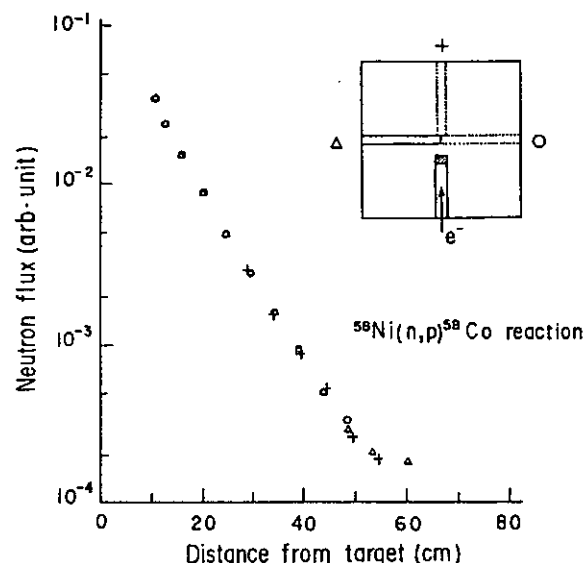


Fig. 8. Spatial distribution of fast neutrons measured by the $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ reaction in the KULS.

glass detectors from a few eV up to 4.5 MeV and of the ^{10}B -vaseline-plug NaI(Tl) detectors from a few eV up to 10 MeV. The results are shown in Figs. 9 and 10 and are compared with the time-integrated spectra calculated by the MCNP code. By the MCNP calculations, we have also found that the angular neutron fluxes and scalar neutron fluxes are in general agreement in spectral shape.

The measured data were summed with energy interval of $\Delta u = 0.1$ in lethargy unit to give better statistics. The statistical errors were 2 to 10%, in general, and about 50% at worst at lower energies as seen in the figures. The neutron source normalization was made for the calculated spectra, and the measured spectrum was normalized to the calculated ones by the spectrum integration above 100 keV in Figs. 9 and 10, respectively. Fluctuations in the calculated spectra are caused by poor statistics in the Monte

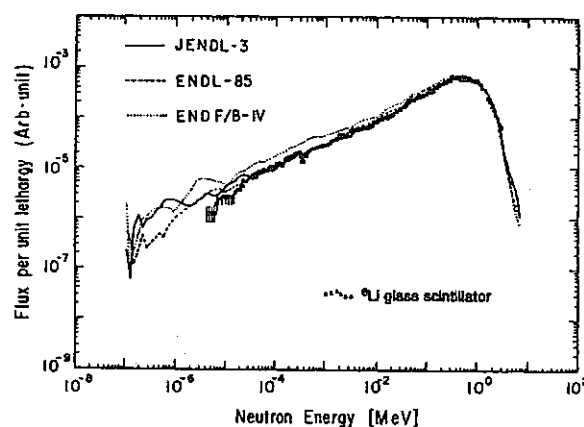


Fig. 9. Neutron spectra measured with ^6Li glass scintillators and calculated with the MCNP code for the Ta photoneutron source.

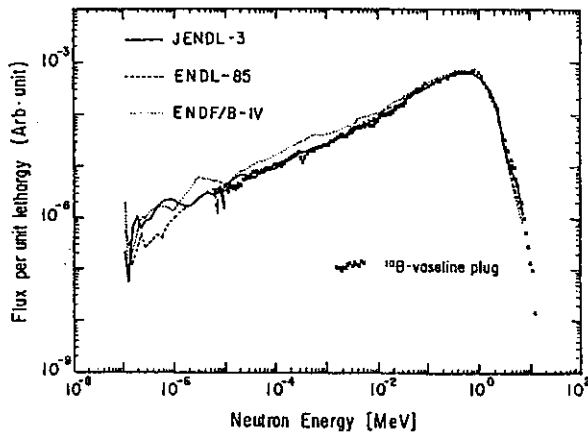


Fig. 10. Neutron spectra measured with ^{10}B -vaseline-plug NaI(Tl) detectors and calculated with the MCNP code for the Ta photon-neutron source.

Carlo calculations, especially below 10 eV the uncertainties are about 300%. As seen in Figs. 9 and 10, good agreement is obtained in general between the measured spectrum and those calculated with the evaluated nuclear data libraries of JENDL-3 and ENDL-85, while the ENDF/B-IV spectrum is higher below 100 keV than the measured and the other calculated spectra. The difference is about 25% around 10 keV and 50% around 100 eV, respectively, for both ^6Li glass and ^{10}B -vaseline-plug NaI(Tl) detectors' measurements. It has also been found that the agreement is good between the experimental results by the detectors. This fact implies that the systematic uncertainty in the measured spectrum may be small.

Around 336 eV in the measured spectra in Figs. 9 and 10 one can see a dip structure due to the big resonance of manganese, which is included as an impurity in the steel case of lead plug. In the MCNP calculations, the manganese impurity has not been considered. If the antimony impurity exists in lead of the KULS, this may absorb lower energy neutrons and make the fluxes lower in the lower energy region. Moreover, the measured TOF data had poor counting rate and the background counting rate was almost half of the foreground one. Lower neutron fluxes near 10 eV may be due to the neutron absorption by Sb, poor counting rate or inappropriate background subtraction for the TOF measurement.

In Fig. 11, the neutron spectra by the NEUPAC and the MCNP codes are compared. In the slowing-down energy region below 100 keV, these spectra are in general agreement with each other, although the lead target produces higher energy neutrons than the Ta target above several hundreds of keV [20]. The ENDF/B-IV spectrum below about 100 keV is also higher than that analyzed by the activation data, as seen in Figs. 9 and 10, although large deviations are observed among the spectra. From the comparison of the results in Figs. 6, 9–11, good agreement

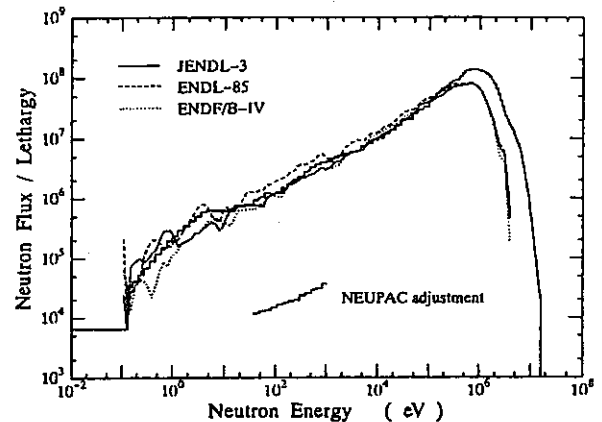


Fig. 11. Comparison of neutron flux spectra analyzed by the NEUPAC code and calculated by the MCNP code.

can be seen between the TOF spectra and the MCNP calculations by the JENDL-3 and the ENDL-85 data, so that it may be said that the NEUPAC and the SAND-II spectra by the activation data are in good agreement with the TOF spectra in the slowing-down energy region.

6. Discussion

In the present study on the characteristics of the KULS, good agreement can be seen in general between the experiments and the calculations related to the neutron slowing-down time and its energy and to the energy resolution. It has been also found that the energy resolution of the KULS is larger than 27% for the theoretically predicted value at FWHM [1,2]. Making use of the MCNP code, we have more investigated the KULS characteristics from the points of 1) the spectrometer size, 2) the impurities in lead blocks, and 3) the spectral shape of the neutron sources.

At first, we have tried to make one dimensional calculations for the neutron fluxes and energy spectra not only in the KULS of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$ (effective radius = 93.1 cm) but also in lead slowing-down spectrometers of $1.2 \times 1.2 \times 1.2 \text{ m}^3$ (effective radius = 74.4 cm), $1.8 \times 1.8 \times 1.8 \text{ m}^3$ (effective radius = 112 cm) and $2.0 \times 2.0 \times 2.0 \text{ m}^3$ (effective radius = 124 cm) as typical cases of the spectrometer size, respectively. At the radial positions of more than 10 cm from the photoneutron source, it is found that the relation of neutron slowing-down time and energy is almost independent of the size of the spectrometer and of the distance from the neutron source, except for the neutron intensity. Even in case that the neutron source position shifts 10 cm from the KULS center, the relation of slowing-down time and energy and the energy resolution are almost same as before at 10 cm from the source. Neutron leakage with the KULS is higher than those with the bigger spectrometers, and the neutron fluxes in the 30

to 40 cm region from the neutron source of the KULS are about 70% and 35% of those in the bigger spectrometer of radius = 112 cm at 10 keV and 10 eV, respectively. From the point of the spectrometer size, one can see that the energy resolution in the KULS (1.5 m cubic) is larger than those in other bigger spectrometers, especially in the higher energy region as appeared in Fig. 12.

If the KULS is made of bismuth material only, the slowing-down constant K becomes larger and can be calculated as 308 ($\text{keV } \mu\text{s}^2$). In the KULS, 10 to 15 cm thick layers of bismuth blocks are partially used and those blocks may make the slowing-down constant larger than that made by lead material only. One may be able to understand the reason why the slowing-down constant K in the bismuth hole is larger than that in the lead hole.

Concerning the impurities which may contribute to the energy resolution of the KULS, we have taken account of antimony (0.05% Sb in weight) added to the lead as hardener and of water (10 to 1000 ppm of H_2O in weight) adhered to the lead surface. From the calculated results, we found that the Sb impurity was effective in absorbing epi-thermal neutrons and made the neutron fluxes lower, although the impurity did not give a severe influence to the energy resolution. In Figs. 9 and 10, the reason why the experimental spectra deviate from the MCNP calculations below about 30 eV would be explained by the neutron absorption of Sb. Fig. 13 shows the FWHM data depending upon the Sb and water impurities in the KULS. From the results, it is said that the energy resolution is not affected much by the adhered water up to 100 ppm. Even if the lead blocks were oxidized or some water was adhered to the lead, more than 10 ppm water would not be considered because the blocks were carefully cleaned to pile up.

As far as the neutron energy spectrum in the KULS is concerned, good agreement can be seen between the calculations and the TOF measurements, although the impurities in the KULS are not considered. However, the

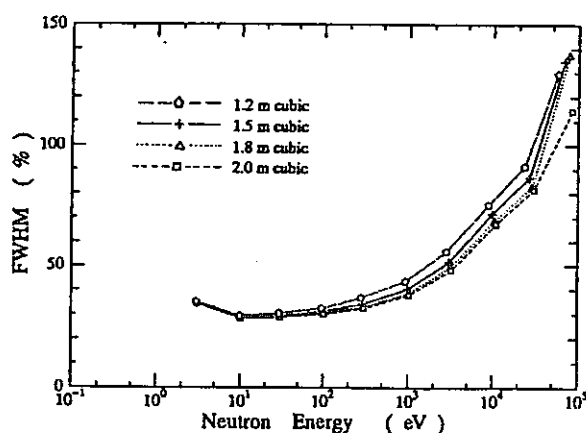


Fig. 12. Comparison of the calculated FWHM with different sizes of lead slowing-down spectrometers.

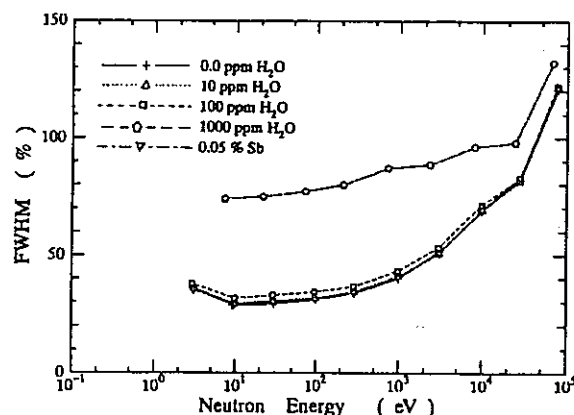


Fig. 13. Comparison of the calculated FWHM with Sb and H_2O impurities in the KULS.

calculated energy resolutions of the KULS are 5 to 10% lower than the measured ones, as given in Table 3. The difference may be due to some effects by such as small amount of impurities which are not considered in the present calculations.

With the different types of neutron source spectra, neutron behavior in the KULS has been investigated. We have selected the following spectra: 1) Ta photoneutron source, 2) 14 MeV neutrons, and 3) 500 keV neutrons whose energy is lower than the threshold level (0.57 MeV) for the inelastic scattering cross section of lead. The 14 MeV neutrons are widely spread after a few interactions with lead, and the slowing-down time spectrum may become similar to that from the Ta photoneutrons. The slowing-down time spectrum by the 500 keV neutrons already shows asymptotic form above 1 keV, as seen in Fig. 14, and the calculated energy resolution at 100 eV, for example, is about 28% at FWHM, while the energy resolution obtained with the Ta photoneutron source is about 30% in the lead hole. This fact implies that the energy resolution of the KULS is broadened by the inelastic scattering processes with lead. In the lower energy region, up-scattering neutrons may also broaden the energy resolution.

As we have investigated above, main factors to make the energy resolution broadened are thought to be the effects due to the size of the KULS, the inelastic scattering of fast neutrons and the impurities in the KULS. It may be said that the practical energy resolution of the KULS was broadened by the superposition of these effects.

As seen in Figs. 6, 9 and 10, it may be realized that there scarcely exist thermal neutrons in the KULS and that the neutron spectrum is close to that obtained in a large core of fast breeder reactors [32]. The neutron spectral shape in the KULS is simple and no structure can be observed. We have characterized the neutron spectrum in the KULS through the present experiments and the calculations. It can be expected to use the KULS in future not

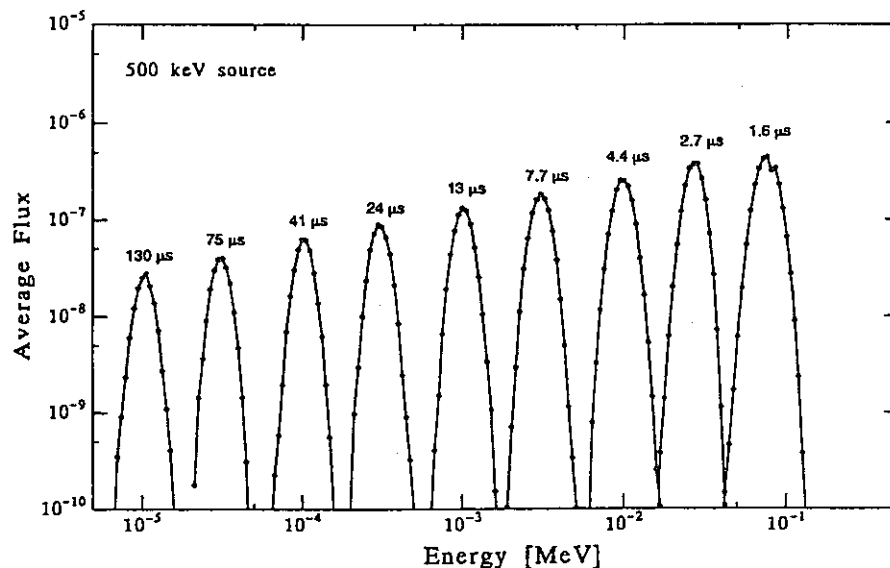


Fig. 14. Calculation of time dependent neutron spectra in the KULS driven by 500 keV neutrons.

only for measurements of energy dependent nuclear data but also for integral experiments as a reference neutron spectrum field.

7. Conclusion

The characteristic behavior of neutrons in the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer, KULS of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$, was obtained by the experiments using resonance neutron filters and by the calculations with the MCNP code. The slowing-down constant K in the relation of $E = K/t^2$ was experimentally determined to be $190 \pm 2 \text{ (keV } \mu\text{s}^2)$ for the bismuth hole and $156 \pm 2 \text{ (keV } \mu\text{s}^2)$ for the lead hole, respectively. The energy resolution of the KULS was obtained to be around 40% in the relevant energy region for the bismuth and the lead holes, making use of the Ar gas counter for the sharp resonances at 230 and 579 eV of Cu and at 27.5 eV of Cd, and of the BF_3 counter for the neutron transmission measurement using resonance filters.

Monte Carlo calculations using the MCNP code were also performed to determine the relation between the neutron slowing-down time and its average energy and to obtain the energy resolution and the neutron spectrum in the KULS. The calculated results agreed in general with these measurements, and the calculated energy resolutions were lower by about 10% than the measured ones.

Spatial distribution of neutrons in the KULS was measured by the activation method and the results showed almost symmetric around the photoneutron source. The neutron flux spectrum in the KULS was obtained by the spectrum adjustment method with activation data in the energy range from 0.01 eV to 20 MeV. The angular neutron

spectrum was also measured by the TOF method from 4 eV to 10 MeV, and the TOF measurement was compared with the spectra calculated with the JENDL-3, the ENDL-85 and the ENDF/B-IV cross section data. The calculated spectra are in general agreement with the measured one except for that the ENDF/B-IV spectrum seems to be 25 to 50% higher than the TOF measurement below about 100 keV. The present result would be useful for the integral investigation of lead cross section which is related to the neutron transport in the lead slowing-down spectrometer. The neutron flux spectrum per unit lethargy in the KULS is proportional to the square root of energy in the slowing-down neutron energy region and show similar spectral tendency to the TOF measurement and the activation analysis. Since there exist scarcely thermal neutrons in the KULS, the neutron field there would be expected to be a quasi-standard field for integral measurements in the epi-thermal/resonance neutron energy region.

Acknowledgments

The authors would like to express their sincere thanks to Prof. M. Nakazawa of University of Tokyo for the reconstruction of the lead slowing-down spectrometer. They are also indebted to Mr. K. Nishio of Kyoto University for his kind assistance in the Monte Carlo calculations.

This study was supported by the Grant-in-Aid of Scientific Research from the Ministry of Education, Science and Culture (No. 03452302 and No. 63460234) and by the Cooperative Use Program of KURRI. The calculations were carried out with the FACOM M-Series Computers at the Data Processing Center of Kyoto University.

References

- [1] K.H. Beckurts and K. Wirtz, *Neutron Physics* (Springer, New York, 1964) p. 342.
- [2] A.A. Bergman, A.I. Isacoff, I.D. Murin, F.L. Shapiro, I.V. Shtraniikh and M.V. Cazamovsky, *Proc. 1st Int. Conf. on Peaceful Uses for Atomic Energy, United Nations, P/642, Vol. 4* (1955) p. 135.
- [3] Y.P. Popov, *Proc. Lebedev Phys. Inst., Academy of Sci., USSR, Vol. 24* (1964) p. 111.
- [4] F. Mitzel and H.S. Plendl, *Nukleonik* 6 (1964) 371.
- [5] H. Wakabayashi, A. Sekiguchi, M. Nakazawa and O. Nishino, *J. Nucl. Sci. Technol.* 7 (1970) 487.
- [6] A.A. Bergman, A.E. Samsonov, Yu. Ya. Stavisskii, V.A. Tolstikov and V.B. Chelnokov, *Proc. Nuclear Constants, Obninsk Reports, Vol. 7* (1971) p. 37.
- [7] M. Fujino, F. Takahashi and H. Yamamoto, *J. Nucl. Sci. Technol.* 13 (1976) 566.
- [8] J.A. Harvey (ed.), *Experimental Neutron Resonance Spectroscopy* (Academic Press, New York and London, 1970).
- [9] R.E. Slovacek, D.S. Cramer, E.B. Bean, J.R. Valentinc, R.W. Hockenbury and R.C. Block, *Nucl. Sci. Eng.* 62 (1977) 455.
- [10] Y. Nakagome, R.C. Block, R.E. Slovacek and E.B. Bean, *Phys. Rev. C* 43 (1991) 1824.
- [11] H.T. Maguire, Jr., C.R.S. Stopa, R.C. Block, D.R. Harris, R.E. Slovacek, J.W.T. Dabbs, R.J. Dougan, R.W. Hoff and R.W. Loughheed, *Nucl. Sci. Eng.* 89 (1985) 293.
- [12] B. Alam, R.C. Block, R.E. Slovacek and R.W. Hoff, *Nucl. Sci. Eng.* 99 (1988) 267.
- [13] Y. Danon, R.E. Slovacek, R.C. Block, R.W. Loughheed, R.W. Hoff and M.S. Moore, *Nucl. Sci. Eng.* 109 (1991) 341.
- [14] E.C. Vanterpool, R.E. Slovacek, D.R. Harris and R.C. Block, *Nucl. Sci. Eng.* 110 (1992) 186.
- [15] N.M. Abdurrahman, R.C. Block, D.R. Harris, R.E. Slovacek, Y. Lee and F. Rodriguez-Vera, *Nucl. Sci. Eng.* 115 (1993) 279.
- [16] MCNP – A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version-3A, LA-7396-M, Rev.2, Los Alamos National Laboratory (1986).
- [17] M. Nakazawa and A. Sekiguchi, *Proc. 2nd ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry, NEUREG/CP-0004, Vol. 3* (1977) p. 1423.
- [18] W.N. McElroy, S. Berg and G. Gigas, *Nucl. Sci. Eng.* 27 (1967) 533.
- [19] S.A. Hayashi, I. Kimura, K. Kobayashi, S. Yamamoto, H. Nishihara, T. Mori and S. Kanazawa, *J. Nucl. Sci. Technol.* 24 (1987) 702.
- [20] K. Kobayashi, I. Kimura and T. Mori, *Nucl. Sci. Eng.* 99 (1988) 157.
- [21] D. Garber (ed.), BNL-17541 (ENDF-201) (1975).
- [22] R.J. Howerton, D.E. Cullen, R.C. Haight, M.H. MacGregor, S.T. Perkins and E.F. Plechaty, UCRL-50400, Vol. 15 (1975).
- [23] K. Shibata, T. Nakagawa, T. Asami, T. Fukahori, T. Narita, S. Chiba, M. Mizumoto, A. Hasegawa, Y. Kikuchi, Y. Nakajima and S. Igarasi, JAERI 1319 (1990).
- [24] S.F. Mughabghab, M. Divadeenam and N.E. Holden, *Neutron Cross Sections, Vol. 1, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections, Part A* (Academic Press, Inc., New York, 1981); and S.F. Mughabghab, *Neutron Cross Sections, Vol. 1, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections, Part B* (Academic Press, Inc., New York, 1984).
- [25] E. Browne and R.B. Firestone, *Table of Radioactive Isotopes* (Wiley-Interscience, New York, 1986).
- [26] T. Iguchi, Private communication (1985).
- [27] Z. Li, Y. Wang and J. Gao, *Measurements of Neutron Flux Spectra in SPR, Japan-China Symp. on Research and Test Reactor, UT-1, JAERI* (1988).
- [28] K. Kobayashi, I. Kimura, Z. Li and Y. Wang, *Proc. 7th ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry*, eds. G. Tsotridis et al. (Kluwer, London, 1992) p. 263.
- [29] M. Nakazawa, K. Kobayashi, S. Iwasaki, T. Iguchi, K. Sakurai, Y. Ikeda and T. Nakagawa, JEARI 1325 (1992).
- [30] I. Kimura, K. Kobayashi, S.A. Hayashi, S. Yamamoto, M. Ando, S. Kanazawa, H. Nishihara and Y. Higashihara, *Nucl. Instr. and Meth.* 137 (1976) 85.
- [31] K. Kosako, Y. Oyama and H. Maekawa, JAERI-M 91-187 (1991).
- [32] A.E. Waltar and A.B. Reynolds, *Fast Breeder Reactors* (Pergamon, New York, 1981).