

JNC TJ9400 2001-003

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

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)



2001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 49

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 319-1194

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

JNC TJ9400 2001-003

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

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2001年 2月

京都大学原子炉実験所

2001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

(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

本研究では、まず、長寿命核分裂生成物(LLFP)の代表的核種であるTc-99について、その中性子核データの実測値及び評価済核データの現状調査を行った。次に、京都大学原子炉実験所の46MeV電子線型加速器(ライナック)を用いた飛行時間(TOF)分析法によって、 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)$ 反応断面積に対する相対値として0.01eV～10keV領域における $^{99}\text{Tc}(\text{n}, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定した。本実験では、中性子捕獲によって放出される即発ガンマ線をC₆D₆液体シンチレータによって測定する実験手法を用いた。試料中における中性子の自己遮蔽効果をMCNPモンテカルロコードにより計算、補正した後、得られた捕獲断面積の相対測定値を熱中性子(0.0253eV)の標準的な断面積値に規格化した。従来の実験値、評価値は、本実験値と概ね一致を示したが、共鳴ピーク領域の凹み部では評価データが低い。

また、京都大学原子炉実験所のライナックと組み合わせた鉛スペクトロメータ(KULS)を用いて、0.25eV～300eV領域における $^{99}\text{Tc}(\text{n}, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定を行った。この場合はアルゴンガス比例計数管によって捕獲ガンマ線測定を行い、中性子束/スペクトル測定にはBF₃比例計数管を用いた。TOF測定の場合と同様、中性子自己遮蔽効果の補正を行った後、低エネルギー中性子(0.35eV)の標準的な断面積値に規格化した。従来の実験値、評価値との比較結果は上述のTOF実験の場合とほぼ同様で、評価値は共鳴の凹み部でKULSデータより低い。また、KULSを用いた測定値は、TOF法で得たデータをKULSのエネルギー分解能でなました(broadening)結果に近くなっている。

最後に、Tc-99試料を用いて行った放射化法による予備実験の結果について述べる。

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 廉心技術開発グループ
* 京都大学原子炉実験所

February 2001

Neutron Capture Cross Section Measurement 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 long-lived fission product (LLFP), has been reviewed. Making use of the neutron time-of-flight (TOF) method with a 46 MeV electron linear accelerator (linac) of the Kyoto University Research Reactor Institute (KURRI), the $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ cross section has been measured from 0.01eV to 10keV relative to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ reaction with a pair of C₆D₆ liquid scintillation detectors. After the neutron self-shielding correction for the Tc-99 sample, the cross section has been normalized at 0.0253eV to the well-known reference cross section value. The existing experimental data and the evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are in general agreement with the current measurement, although the evaluations seem to be lower than the measurement in the valley regions of the resonance cross section.

The Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS) has been also applied to the capture cross section measurement from 0.25eV to 300eV with an Ar-gas proportional counter. The neutron flux/spectrum in the KULS has been measured with a BF₃ proportional counter. The result obtained has been also normalized at 0.35eV to the well-known reference cross section. The same tendency as the result with the current TOF measurement can be seen with the KULS measurement in comparison of the earlier measurements and the evaluated values. The KULS data are close to those obtained by energy-broadening the TOF data.

Finally, the preliminary result of the neutron activation experiment with the Tc-99 sample is presented.

Work performed by Research Reactor Institute, Kyoto University under contract with
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

目 次

	ヘーリー
1. 序論	1
2. Tc-99の中性子核データ	6
2.1 評価済核データファイル	6
2.2 核データの現状	6
3. 飛行時間分析法によるTc-99の中性子捕獲断面積測定	10
3.1 はじめに	10
3.2 実験の方法	11
3.2.1 Tc-99試料	11
3.2.2 パルス状中性子源	11
3.2.3 実験配置	12
3.2.4 捕獲ガンマ線検出器	13
3.3 測定と解析	13
3.3.1 中性子捕獲断面積の測定	13
3.3.2 バックグラウンドの測定	13
3.3.3 データ処理	14
3.3.4 エネルギー分解能	15
3.3.5 中性子自己遮蔽効果の補正	17
3.4 測定結果	17
4. 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	19
4.1 アルゴンガス入り比例計数管	19
4.2 中性子捕獲断面積の測定	19

4.3 中性子自己遮蔽効果の補正	- - - - -	21
4.4 測定結果と検討	- - - - -	21
5. 放射化実験の試み	- - - - -	24
6. まとめと今後の課題	- - - - -	26
6.1 まとめ	- - - - -	26
6.2 今後の課題	- - - - -	27
参考文献	- - - - -	29
付 錄	- - - - -	31
付録A : $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)$ 反応断面積の実験データの現状	- - - - -	33
付録B : 京都大学鉛スペクトロメータ	- - - - -	38
付録C : Neutron Capture Cross section Measurement of Np-237 below 10 keV by Linac Time-of-Flight Method	- - - - -	53

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

図のリスト

	ヘーリー
図1.1 アクチニド核種の生成と崩壊の図	2
図1.2 H L Wの潜在的毒性指数の経年変化	3
図2.1 Tc-99 の中性子全断面積の既存実験データ	7
図2.2 Tc-99 の中性子全断面積の評価済核データ	7
図2.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の既存実験データ	8
図2.4 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の評価済核データ	8
図2.5 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子捕獲断面積の既存実験データ	9
図3.1 飛行時間分析実験の配置	12
図3.2 Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数	17
図3.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積のTOF法による測定結果と 評価値の比較	18
図4.1 Tc-99とアルゴンガス比例計数管の実験配置図	19
図4.2 Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数 (KULSのエネルギー分解能でbroadeningした結果)	21
図4.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積のKULSによる測定結果と 評価値の比較	22
図5.1 HPGe検出器によるTc-100のガンマ線パルス波高分布	25
図5.2 Tc-100の半減期曲線	25

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

表のリスト

	八〇-シ
表1.1 マイナーアクチニド（MA）の生成量	3
表1.2 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2.1 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子断面積(2200m/s値)(八一シ)	9
表3.1 本TOF実験における中性子エネルギーとエネルギー分解能	16

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

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1.1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）^{1,2}。表1.2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1.2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1.2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、その技術開発に向けての取り組み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、長寿命のFPやMA核種のように長半減期の放射性廃棄物の場合は、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／核変換技術

の方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、バックグラウ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

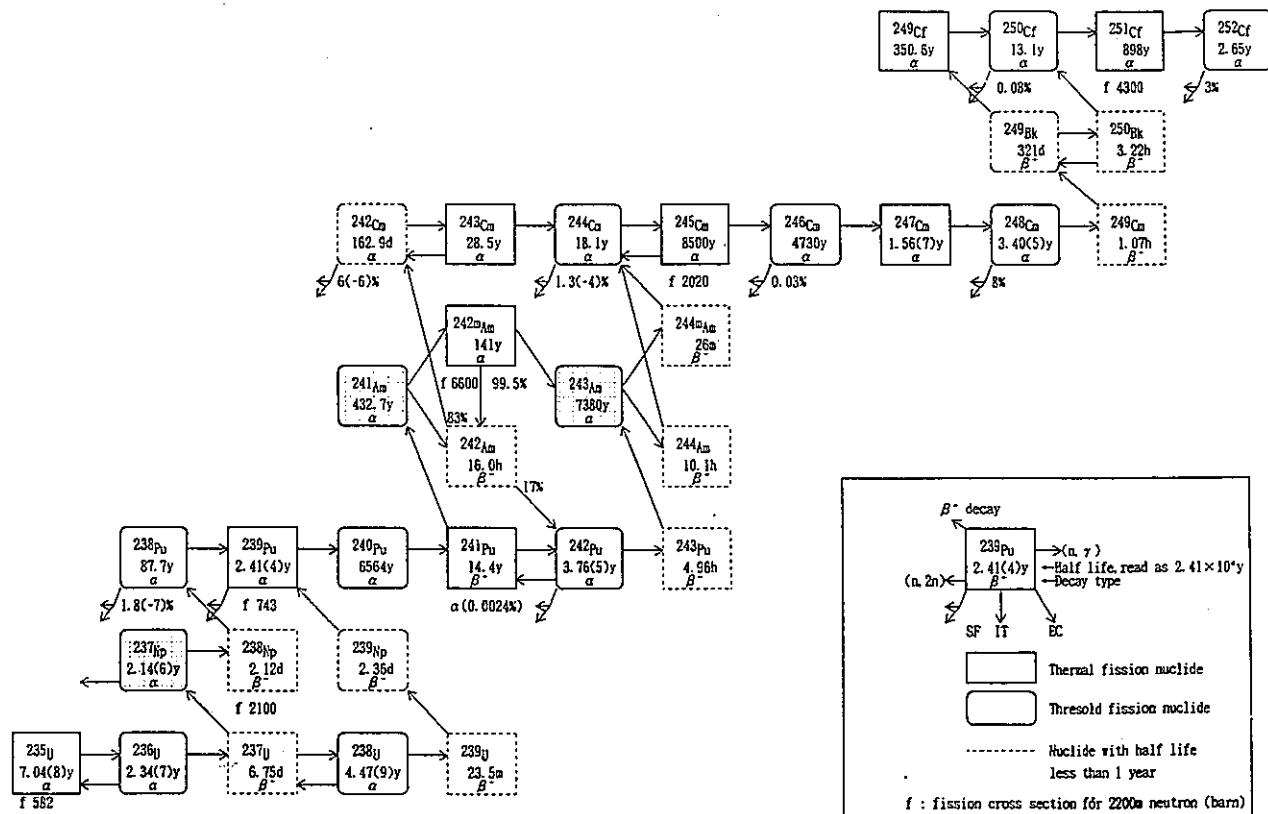


図1.1 アクチニド核種の生成と崩壊の図

表1.1 年間あたりのマイナーアクチニド(MA)生成量

核種 冷却期間	3410MWt-PWR		2500MWt-FBR
	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 %

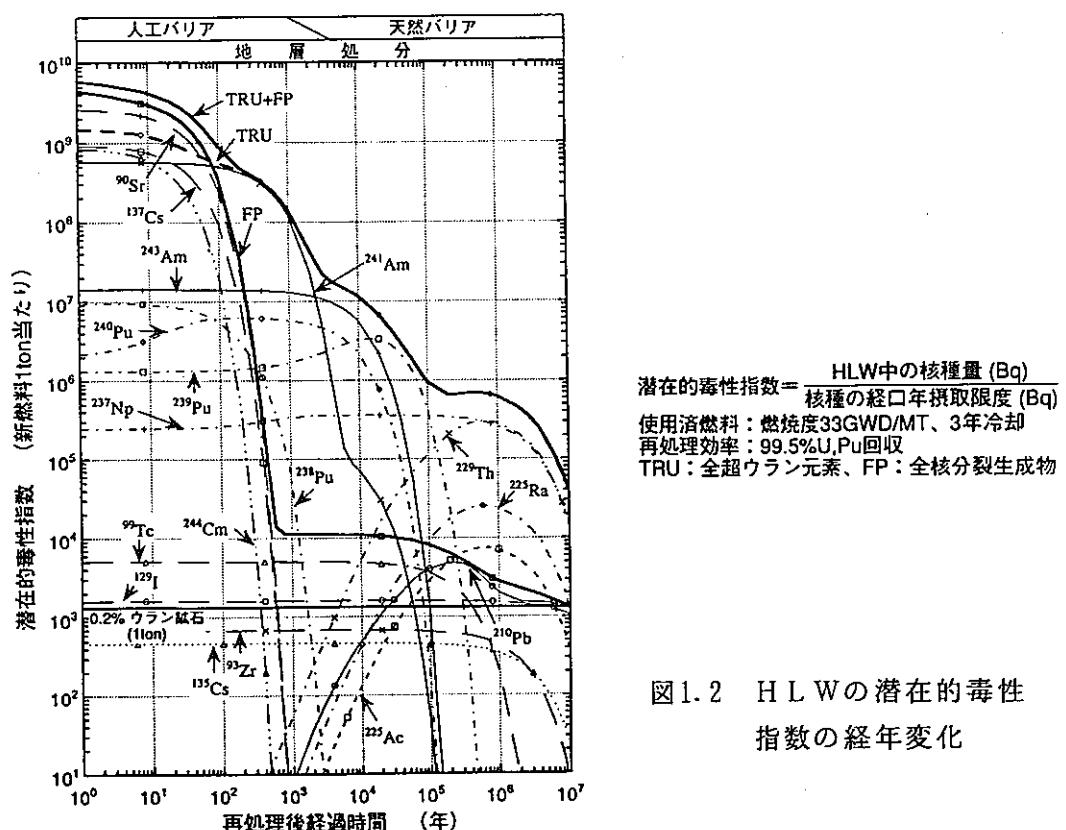
図1.2 H L W の潜在的毒性
指数の経年変化

表1.2 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) ^{238}U の半減期は 4.47×10^9 年3) 半減期が10年～ 5×10^9 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

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/7/。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/7,8/。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はなく、しかも放射性である場合には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ウンドが高く、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手法やそのための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たり、理論モデルによる計算が行われている。しかし、これらによって求められた評価済核データ間にも、実測データの欠落、食い違いや理論計算が不十分であることによって食い違いが生じる原因となっている。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実験上の難しい問題もある。

本研究の目的は、FP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、① 京都大学原子炉実験所の46MeV電子線型加速器を用いた中性子飛行時間分析法によって⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積を測定すると共に、② 同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)/9/を用いて⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc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および我々が測定した2つの実験方法による結果についても比較、評価を行うことにある。最後に、③ KUR重水設備の標準中性子場においてTc-99試料を照射し、放射化法による予備的な実験を実施する。

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/10/や連続エネルギー減速モンテカルロ計算/11/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、これらをとりまとめて評価し、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)/12/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、JEF-2、BROND-2、CENDL-2 が作成されている。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 File、Actinide File (JENDLの場合、半減期が1日以上の核種で、Th(Z=90)からEs(Z=99)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

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、FP や MA 核種に関連した核データの実測値は少なく、また、データ間の差異も依然大きいものがある/4, 5, 13/。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

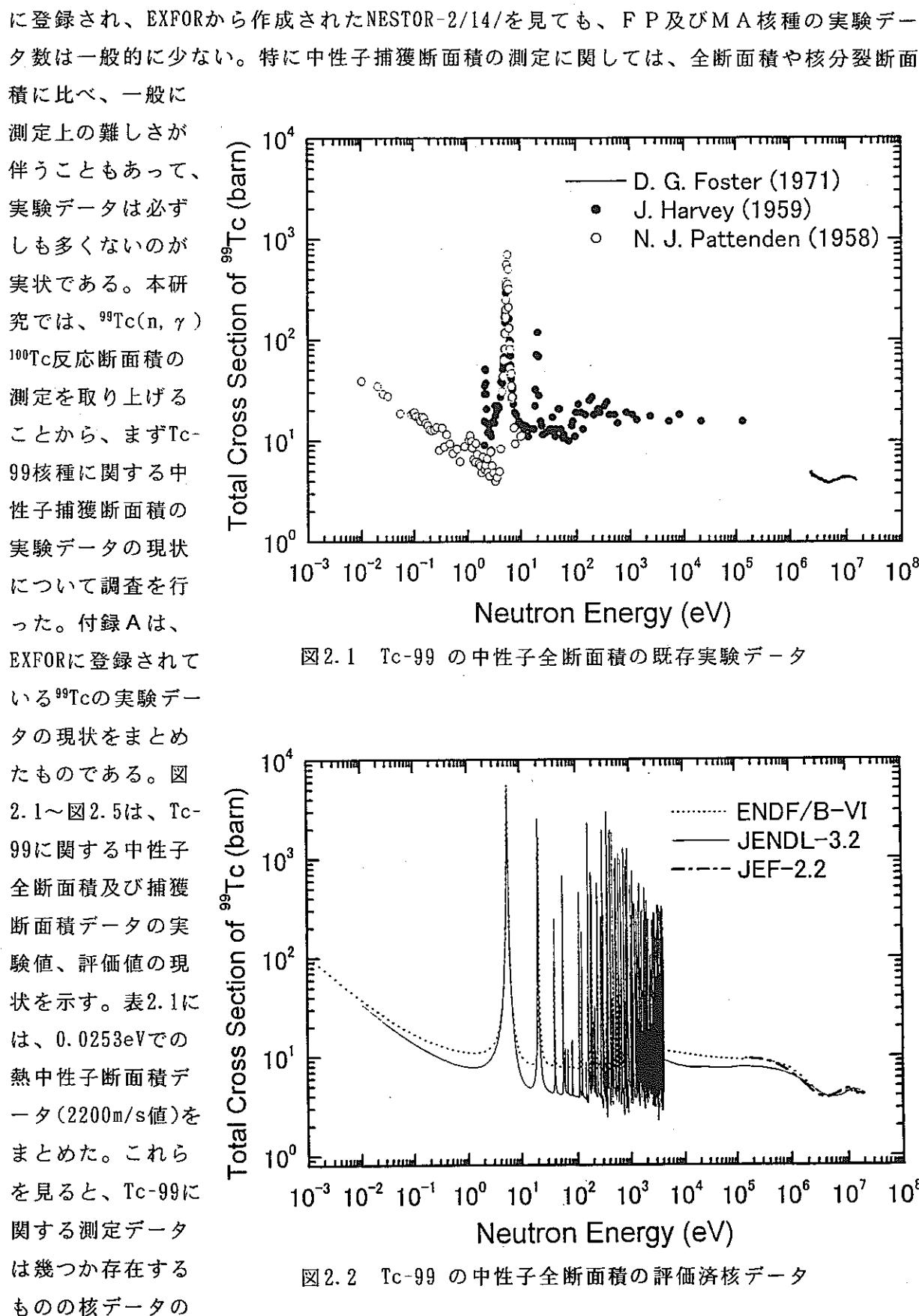
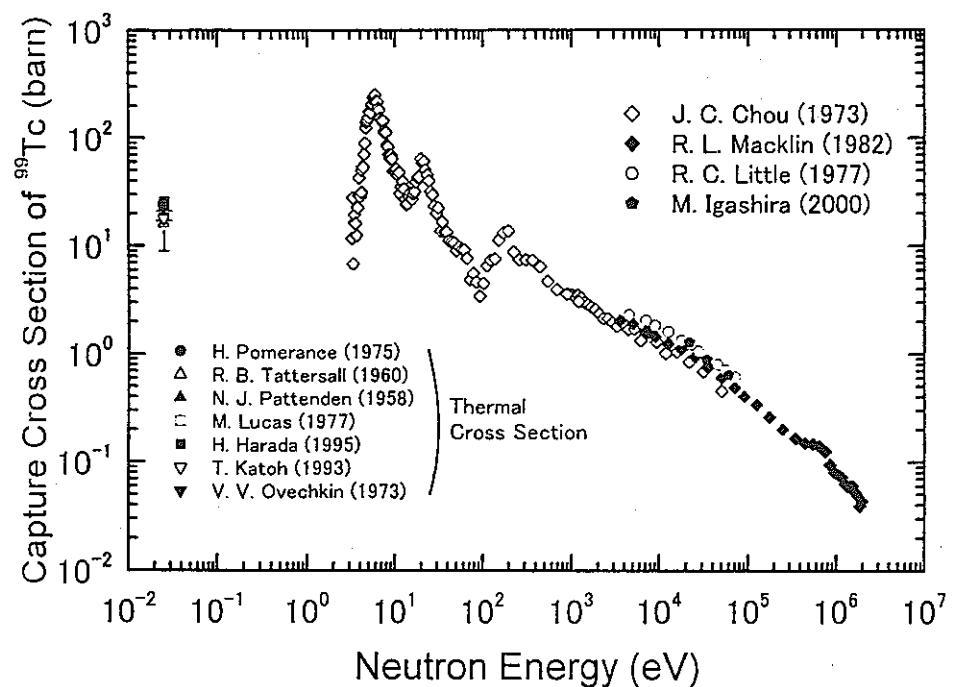
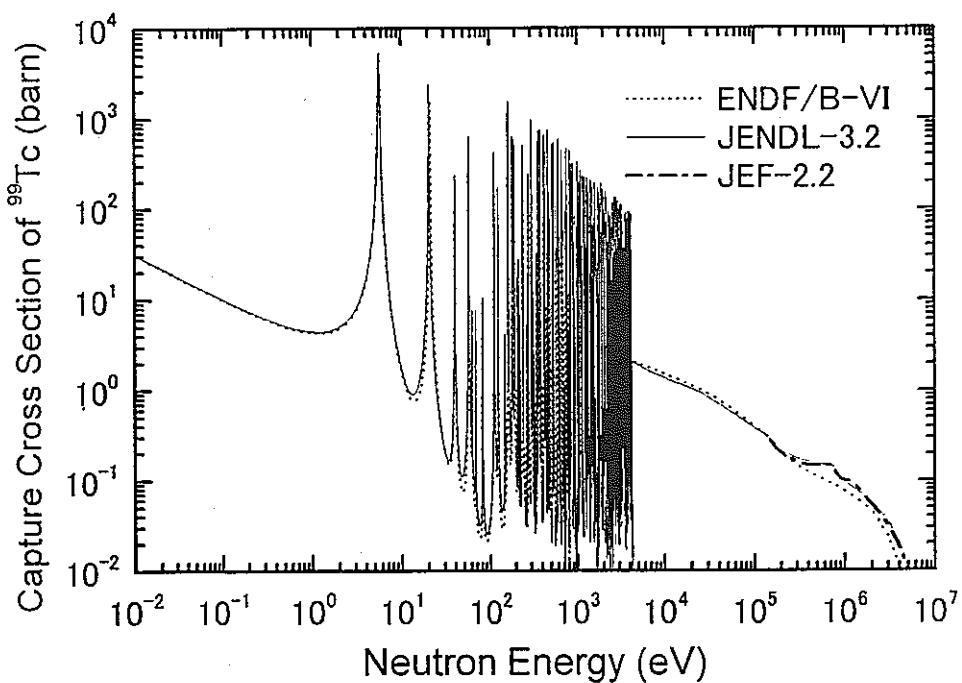


図2.1 Tc-99 の中性子全断面積の既存実験データ

図2.2 Tc-99 の中性子全断面積の評価済核データ

現状としては必ずしも十分ではない。中性子捕獲断面積では熱中性子領域のデータを除くと、最近の井頭らのデータを加えても4件の発表がなされているだけで、3eV以下の領域では実測データが得られていない。また、ENDF/B-VI/15/、JENDL-3.2/12/、JEF-2.2/16/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2.2の評価データの何れにも図2.1の実験データに見られる2eV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2.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の既存実験データ図2.4 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応捕獲断面積の評価済核データ

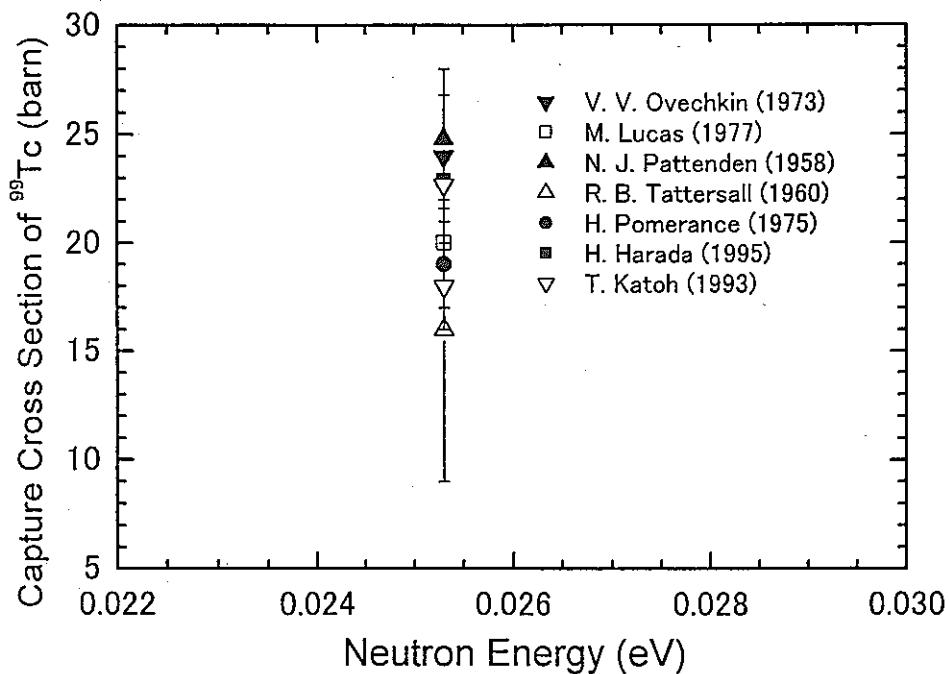


図2.5 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子捕獲断面積の既存実験データ

表2.1 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応の熱中性子断面積(2200m/s値)(バーン)

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)
20 ± 1	Mughabghab (1981)
19.57	ENDF/B-VI (1991)
19.64	JENDL-3.2 (1998)

3. 飛行時間分析法によるTc-99の中性子捕獲断面積測定

3.1 はじめに

先章の表1.1、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、長寿命の核分裂生成物・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寿命核種の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、処理処分技術の1つとして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。Tc-99は、中性子を捕獲すると半減期が約16秒のTc-100を経てRu-100の安定核に至る。 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積は、図2.3、図2.4に見られるように、低エネルギーから共鳴エネルギー領域において10バーン前後の中性子捕獲断面積（熱中性子断面積：約20バーン）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の中性子捕獲断面積は、熱中性子領域からMeV領域にかけて実験データは一応存在するものの(図2.3)、その数は少なく、特に3eV以下の領域では0.0253eVのデータ(図2.5)を除き、実験データが存在していない。図2.3のChouらによる測定値は、鉛スペクトロメータを用いて測定した結果である/17/。Littleら/18/およびMacklinら/19/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。最近、井頭らはペレトロン加速器を用いて10～90keV領域の $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定している/20/。図2.2、図2.4の評価済核データは互いにオーバラップしており、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の電子線型加速器(ライナック)を用いた飛行時間(TOF)分析実験によって、0.01eV～10keV領域における $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定する。中性子捕獲断面積の測定は、一対のC₆D₆液体シンチレータを用いて実験試料の即発ガンマ線を測定する方法による。試料に入射するTOFビームの中性子束は、ボロン(B)-10試料を用いて $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応断面積に対する $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の相対値を求め、Tc-99試料における中性子自己遮蔽の効果を補正した後、全体を0.0253eVの熱中性子標準断面積(19.57 b、ENDF/B-VI/15/より引用)に規格化する。従来の測定値、評価値と本実験結果を比較し、評価検討を行う。

3.2 実験方法

3.2.1 Tc-99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。テクネシウム試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-99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グラム/ cm^2 である。

3.2.2 パルス状中性子源

電子を高エネルギーまで加速して重金属に当てるとき、制動輻射ガンマ線の発生と共に(γ, n)反応を経て光中性子が得られる。本実験では、京都大学原子炉実験所の46MeV電子線型加速器(ライナック)を用いて加速した電子ビームを水冷タンタルターゲットに当ててパルス状の中性子を発生させ、これを用いて中性子飛行時間(TOF)分析を行う。ターゲットアセンブリーは、チタン製の円筒容器(直径5cm、長さ6.1cm)と冷却水が流れるように厚さ1~5mmのタンタル板を12枚重ね合わせた(実効厚さ29mm)ターゲットで作られている/21/。このターゲットアセンブリーを直径30cmのアルミニウム製円筒型タンク内の中央部にセットし、これを取り巻く周辺の水を高速中性子の減速材としてTOF実験に使用する。水タンクには、中央部にセットしたターゲットアセンブリーまで電子ビームを打ち込むためのビーム孔と、中性子ビームを取り出す方向には、断面の直径10cm、深さ約10cmのリエントラントホールが設けられている。

本実験では、(1)数10eV以下と(2)数eV以上のエネルギー領域を対象とした2種類の実験を行った。ライナックの代表的な運転・実験条件は、(1)低エネルギー側の場合；パルス幅： $3\mu s$ 、繰り返し： $50Hz$ 、電子の加速エネルギー： $\sim 30MeV$ 、ピーク電流値： $500mA$ 、(2)高エネルギー側の場合；パルス幅： $100ns$ 、繰り返し： $200Hz$ 、電子の加速エネルギー： $\sim 30MeV$ 、ピーク電流値： $6A$ であった。低エネルギー領域の実験では、熱中性子まで測定を行うため飛行路中にはフィルター類は何も置かず、高繰り返し運転／高エネルギー領域の

実験の場合は、一つ前のライナックのバーストで生じた熱中性子が次のバーストで生じた中性子とオーバラップしないように、飛行路中に厚さ0.5mmのカドミウム板を挿入して熱中性子を遮蔽した。

3.2.3 実験配置

本実験におけるTOF分析実験の配置図を図3.1に示す。TOF実験用の中性子ビームは、ライナックで加速された電子ビームの入射方向に対し、135度方向で水平に取り出される。ターゲットアセンブリーを中央部に配置した減速材タンクのリエントラントホール底面から出た中性子は、飛行管を通して 12.0 ± 0.02 mの飛行距離にセットされた実験試料に導かれる。飛行管中には、中性子線、 γ 線の遮蔽・コリメータ用としてドーナツのようなリング形状をした鉛、 B_4C 、 H_3BO_3 、 Li_2CO_3 、パラフィンが配置されている。また、飛行管出口付近と捕獲ガンマ線検出器の周辺にはバックグラウンドを低減するために鉛、 B_4C を主体とした遮蔽が施されている。さらに、タンタルターゲットで発生する強烈なガンマフラッシュが検出器に入射して実験を乱すことのないように、中性子飛行管の入口前、即ち中性子減速材用のタンクの出口に直径7cm、長さ10cmの鉛製シールドが置かれている。飛行距離12mの位置には、試料から出た中性子捕獲ガンマ線測定用の CeD_6 液体シンチレータ(直径11cm、厚さ5cm)二つを向かい合わせにして遮蔽体の後ろに配置し、両検出器の真中に試料をセットして中性子TOFビームを入射させる。また、実験中の中性子ビーム強度をモニターするために、飛行管の出口に BF_3 比例計数管が取り付けられている。

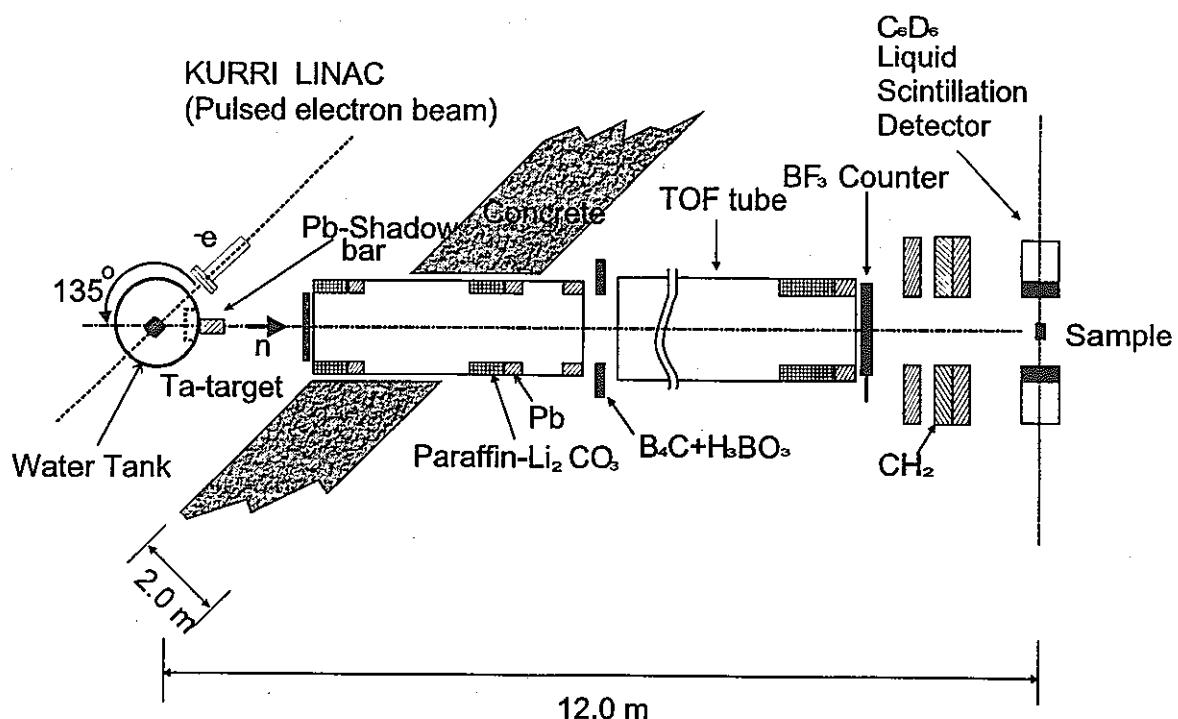


図3.1 飛行時間分析実験の配置

3.2.4 捕獲ガンマ線検出器

本実験では、中性子TOFビームを実験試料に当てて、これより放出される捕獲ガンマ線を測定する方法により中性子捕獲断面積測定を行う。この場合、試料に入射または試料などで散乱された中性子に対し殆んど感度をもたず時間分解能のよいシンチレータとして、Nuclear Enterprise 社製のC₆D₆液体シンチレータNE-230(直径11cm、厚さ5cm)を使用した。これを光電子増倍管RCA-4525(直径12.5cm)に取り付け、入射する捕獲ガンマ線を測定し、增幅器、パルス波高弁別器を通してTOF分析実験用の信号を得た。

3.3 測定と解析

3.3.1 中性子捕獲断面積の測定

本実験では、試料から放出される捕獲ガンマ線を一对のC₆D₆シンチレーション検出器によって測定した。まず、パルス波高分布において雑音と捕獲ガンマ線信号を弁別するため、約200keVに弁別レベルを設定した。Tc-99試料の場合は、中性子捕獲事象によって多数本の捕獲ガンマ線が放出される点に注目し、実験上の信号／バックグランド比の向上を図る目的で二つの検出器に対して同時計数法を採用した。しかし、B-10試料を用いた入射中性子束／スペクトル測定では、¹⁰B(n, α)反応により480keVのガンマ線が1本しか出ないので、両検出器からの信号を単に加算して信号データとした。Tc-99及びB-10試料の実験並びにこれらのバックグランドを30～90分毎に順次繰り返して測定した。

C₆D₆検出器及びBF₃比例計数管から得られたTOF信号は、それぞれの増幅器、波高弁別器を経て時間分析器に導き、低エネルギー実験ではチャンネル幅4μsにて4096チャンネルに、高エネルギー実験ではチャンネル幅0.25μs、8192チャンネルのデータとしてパーソナルコンピュータシステムによりデータを収集、取得した。その後、オフラインとしてデータ処理・解析を行った。

また、本TOF実験における中性子ビーム強度の変化をモニターするため、図3.1に示したように、飛行管出口にBF₃比例計数管をセットし、C₆D₆検出器と同時に測定を行った。得られたTOFデータにおいて測定対象となるエネルギー領域の計数値を積分して、測定データ間の比較・規格化に用いた。

3.3.2 バックグランドの測定

Tc-99は強いベータ線(0.3MeV)を放出するが、ガンマ線は放出しない。従って、Tc-99は

放射性試料であっても C_6D_6 シンチレーション検出器のパルス波高弁別レベルを約 200 keV に設定すれば捕獲ガンマ線測定における実験上のバックグラウンドとしては問題にならない。また、実験に先立ち高純度ゲルマニウム検出器(HPGe)を用いて Tc-99 試料のガンマ線波高分布測定を実施したが、不純物と思われるガンマ線ピークは観測されなかった。

C_6D_6 シンチレータは中性子に対して殆んど感度を有しないものの、試料などで散乱された中性子が周辺の物質と相互作用を起こせば捕獲ガンマ線が出るため、これが実験上のバックグラウンドとなる。我々は次の方法によってバックグラウンド測定を行った。即ち、アルミニウム製容器に封入された Tc-99 試料と同寸法で、Tc-99 試料のみ取り除かれた空のアルミニウム製容器(ダミー容器)を用意し、これを試料に置き換えてバックグラウンド測定を行った。この方法に従えば、試料容器のアルミニウムによる影響がバックグラウンドとして反映されることになり、Tc-99 試料の「あり」、「なし」の効果を実験的に求めることができる。TcO₂ 試料全量(約 73 mg)はアルミニウム容器量(約 3.4 g)に比べて遙かに少なく、散乱断面積の概略値から見ても、試料のみによる散乱中性子のバックグラウンドの影響は無視できるものと考えられる。この方法で得られたバックグラウンドレベル測定の結果と、Ag(5.2 eV)、Co(132 eV)、Mn(336 eV, 2.37 keV)などのノッチフィルター及び薄い Cd 板(主として熱中性子領域を遮蔽)を用いた測定値を比較した。その結果、両バックグラウンド測定には誤差の範囲内でよい一致が見られた。

ボロン試料による中性子束／スペクトル測定の場合にも、ボロンの粉末試料を封入したアルミニウム容器と同様の空容器を置いて、これをバックグラウンド測定とした。

3.3.3 データ処理

中性子飛行時間測定法では、中性子源より放出された中性子が測定地点(検出器)に到達するまでの時間を測定し、その中性子エネルギーを求ることになる。中性子の(相対論に関わる項は無視できる)エネルギーと飛行時間、飛行距離の関係は、次式で与えられる。

$$E = \frac{1}{2} m v^2 = \frac{m}{2} \left(\frac{L}{t} \right)^2 = \left(\frac{72.3 L}{t} \right)^2 \quad (1)$$

ここで、m は中性子の質量、v (=L/t) は中性子の飛行速度、E(eV) は中性子エネルギー、L (m) は飛行距離、t (μs) は飛行時間を示す。飛行時間分析装置では、各中性子飛行時間ごとの捕獲事象計数率が測定されるので、飛行時間、即ちエネルギーに関する Tc-99 と B-10 試料の測定データが得られれば、以下の式に従って容易にエネルギー依存の中性子捕獲収率を求めることができる。

$$C_{Tc}(E) = \varepsilon_{Tc} Y_{Tc}(E) \phi(E) \quad (2)$$

$$C_B(E) = \varepsilon_B Y_B(E) \phi(E) \quad (3)$$

ここで、 $C_{Tc}(E)$ は中性子エネルギーEにおけるTc-99の中性子捕獲計数率、 $C_B(E)$ は中性子エネルギーEにおけるB-10の中性子捕獲計数率、 ε_{Tc} 、 ε_B は C_6D_6 シンチレータのTc-99、B-10に対する検出効率、 $Y_{Tc}(E)$ 、 $Y_B(E)$ は、Tc-99、B-10試料に対する中性子捕獲収率、 $\phi(E)$ は試料に入射する中性子束を示す。(2)式、(3)式から、次式が導かれる。

$$Y_{Tc}(E) = \frac{C_{Tc}(E)}{C_B(E)} \frac{\varepsilon_B}{\varepsilon_{Tc}} Y_B(E) \quad (4)$$

本実験においては、まず、 C_6D_6 シンチレータを用いた相対測定により、 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積のエネルギー依存性を求め、これを0.0253eVにおける標準的な熱中性子断面積に規格化する手法をとっているので、 $\varepsilon_B / \varepsilon_{Tc}$ 項は定数扱いとする。ここで、 ε_{Tc} は入射中性子エネルギーに依存しないものと仮定した。(ε_B は入射中性子の如何を問わず480 keV γ 線1本の放出となるので、定数とみなせる。)

捕獲収率データから捕獲断面積を算出する場合には、解析的には次の(5)式が使用されるが、本実験においては、後に述べるモンテカルロ法による計算を行い、試料中の中性子自己遮蔽効果なども考慮に入れた上で捕獲断面積を求ることとした。

$$Y_{Tc}(E) = (1 - \exp(-N_{Tc} \sigma_t(E) t)) \frac{\sigma_c(E)}{\sigma_t(E)} f_{Tc}(E) \quad (5)$$

ここで、 N_{Tc} はTc-99試料の原子密度、 $f_{Tc}(E)$ は実験試料における中性子自己遮蔽効果や不純物等の補正関数である。なお、試料が十分薄い場合には、(5)式より次式が導かれ捕獲断面積を容易に求めることができる。

$$\sigma_c(E) = \frac{Y_{Tc}(E)}{N_{Tc} t f_{Tc}(E)} \quad (6)$$

3.3.4 エネルギー分解能

本実験では、12m (=L)の飛行路を用いてTOF測定を行ったが、飛行時間 t (μs)に対する中性子エネルギー $E(\text{eV})$ は、(1)式で与えられる。この場合の中性子エネルギー分解能は、

飛行時間の不確かさの関数として(1)式から次式のように導かれる。

$$\frac{dE}{dt} = -2 \times \left(\frac{72.3 L}{t}\right)^2 \times \frac{1}{t} = -\frac{2}{t} E \quad (7)$$

$$\frac{dt}{E} = -2 \frac{dt}{t} \quad (8)$$

即ち、エネルギー分解能は、飛行時間 t に対する不確かさ dt の2倍で与えられる。この dt の要因となるものに、①飛行距離の不確かさ dF 、②中性子源減速材の厚さ dM 、③サンプルの厚さ dS 、④ライナックのパルス幅 dL_F 、⑤時間分析器のチャンネル幅 dL_T 、⑥検出器のタイムジッタ dL_D 等が考えられる。①、②、③の時間の不確かさ (dL_F 、 dL_T 、 dL_S) は、 dF 、 dM 、 dS を F/t (F :飛行距離12m、 t : 飛行時間) で割り算すれば求まるので、TOF実験に対する全体の不確かさ dt は、

$$dt = \{(dL_F)^2 + (dL_T)^2 + (dL_S)^2 + (dL_F)^2 + (dL_T)^2 + (dL_D)^2\}^{1/2} \quad (9)$$

によって与えられる。

本実験では、 $dF = 2\text{cm}$ 、 $dL_F = 0.0017t$ 、 $dM = 10\text{cm}$ 、 $dL_M = 0.008t$ 、 $dS = 1.9\text{mm}$ 、 $dL_S \sim 0$ 、 $dL_P = 0.1 \sim 3(\mu\text{s})$ 、 $dL_T = 0.25 \sim 4(\mu\text{s})$ であり、 dL_D は小さく無視できると仮定した。表3.1には、(8)式、(9)式に従って5種類の中性子エネルギーに対するエネルギー分解能を求めた結果を示す。0.1eVと1eVでは、 dL_F 、 dL_T に対し低エネルギー実験での条件を用いた。

表3.1 本TOF実験における中性子エネルギーとエネルギー分解能

中性子エネルギー	0.1eV	1eV	10eV	100eV	1keV
12mのTOF(μs)	2744	867.6	274.4	86.76	27.44
エネルギー分解能(%)	5.2	2.0	1.6	1.7	2.5

これらの結果に比べ、鉛スペクトロメータを用いた実験では、中性子エネルギーの分解能が35~40%程度に広がっている/9, 22, 23/。しかし、中性子束強度から言えば、鉛スペクトロメータでは5mの飛行距離をもつTOF実験の場合に比べ数千倍から一万倍にもなると言われている/23/。

3.3.5 中性子自己遮蔽効果の補正

本実験に使用したTc-99は、比較的薄い粉末TcO₂試料(厚さ1.1mm、0.145g/cm²)ではあるが、Tc-99は5.6eV、20eVなどに大きな共鳴ピークをもつため、特に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/11/を用いて、試料中における中性子の自己遮蔽効果を計算し、測定結果に対して補正を行った。中性子TOFビームは、実験試料の面に対し垂直に入射するとして、本実験試料に対する実効的な反応率関数R(E)を計算する。次に、十分希釈された状態(密度を6桁落とした)の試料についても計算を行い、これら両者の関数の比からエネルギーに依存した自己遮蔽の補正関数f_c(E)を算出し、これを⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積の補正関数とした。図3.2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有意な値の補正が必要であることが分かる。

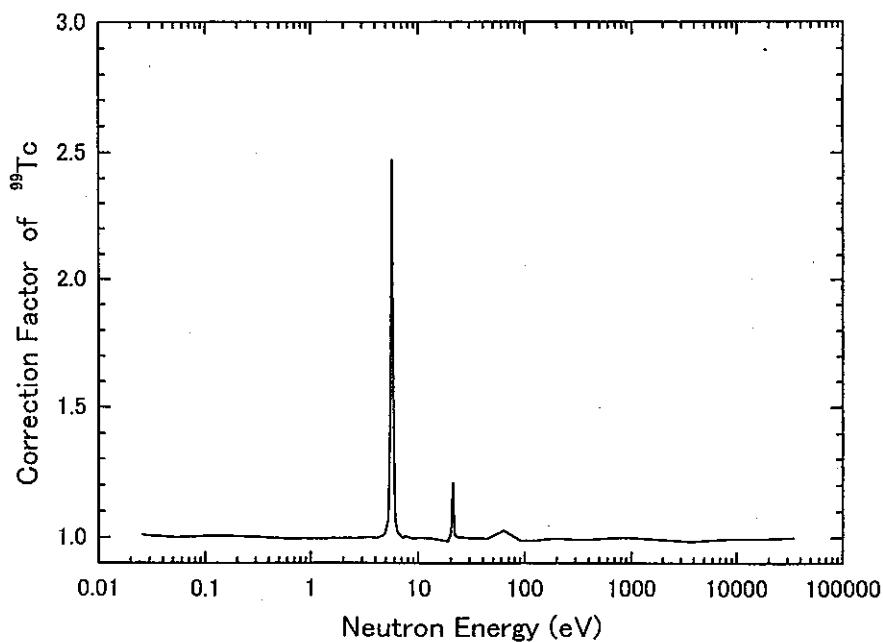


図3.2 Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数

3.4 測定結果

ライナックTOF法を用いて0.01eVから10keV領域における⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積を¹⁰B(n, α)反応断面積に対する相対値として測定した。これに対してTc-99試料における中性子自己遮蔽効果の補正を行った後、0.0253eVの熱中性子標準断面積値19.57 b (ENDF/B-VI

より引用)に規格化した。本実験により得られた結果を図3.3に示す。主な実験誤差は、①統計誤差として11%～33%、② $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応における標準断面積のエネルギー依存性(1/v特性からのズレ)に関する誤差<2%、③熱中性子標準断面積への規格化に伴う誤差2%、④中性子自己遮蔽補正に伴う誤差<3%等が考えられ、総合すると実験誤差は11.7%～33.3%になる。高純度Ge検出器を用いた放射線計測では、Tc-99試料中の不純物は観測されなかったので、不純物による問題は無視できるものと仮定し補正は行っていない。

図3.3では、従来の実験データ及び評価済核データと本実験によるライナックTOF法の測定結果を示している。評価済核データでは、非分離共鳴領域とされる4keV以上においてMacklinら/19/の実測値は本実験値より少し低目であるが、Littleら/18/の測定値は～8keVのデータを除き、本実験データとよく一致している。井頭ら/20/による最近のデータもよい一致を示す。Chouら/17/は、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たが、スペクトロメータのエネルギー分解能による広がりがあるため、5.6eV, 20.3 eVなどの共鳴ピークでは測定値がなまされ(broadening)ている。Chouらのデータは、数十 eV以上では本実験値と一致しているが、keV領域では低目になっている。本実験データのエネルギー分解能は、表3.1にも示されているように、ライナックTOF法による実験値としては必ずしもよくないが、鉛スペクトロメータによるエネルギー分解能(半値幅にして35～40%)に比べれば遙かに高いエネルギー分解能を示しており、評価済核データに見られる共鳴ピーク形状を再現していることが分かる。しかし、数十eV以上の鋭い共鳴ピーク領域では、実験上のエネルギー分解能の問題もあって非分離領域並みの実効断面積を示している。二つの評価済核データ、ENDF/B-VI/15/とJENDL-3.2/12/は、ほぼ同様な形状を示しており、本実験データとも概ね一致している。

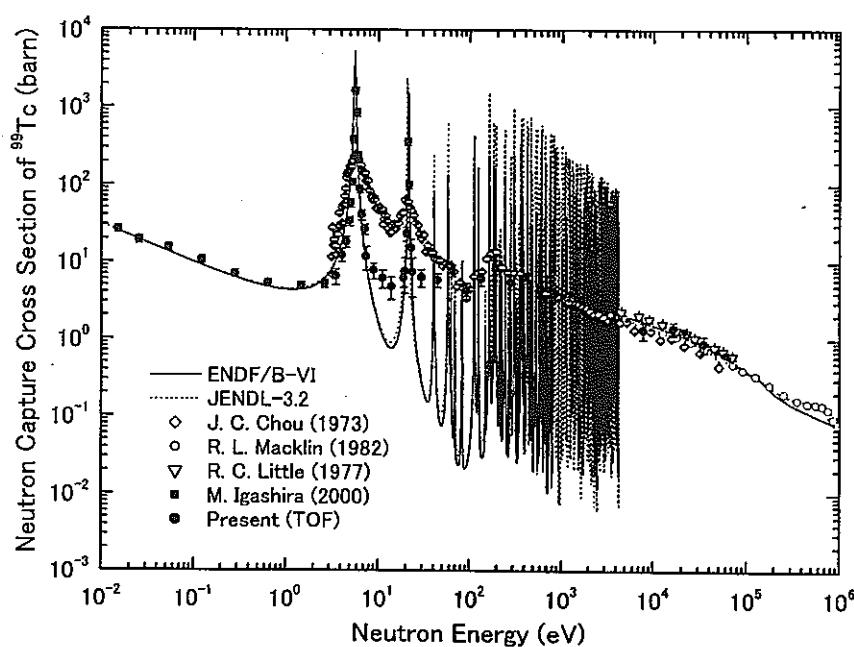


図3.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積のTOF法による測定結果と評価値の比較

4. 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

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)/9/を用いて、0.25eVから300eV領域における $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を測定する。実験に使用するTc-99は、前の章において述べたように円盤形状をした密封線源であり、中性子捕獲によってこの試料より放出される即発ガンマ線を円筒状のアルゴンガス入り比例計数管を用いて測定する。当該検出器は、中性子に対し殆んど感度を持たないので、この計数管とTc-99試料を一緒にKULSの実験孔に挿入して実験を行うことができる。また、実験孔においては中性子束／スペクトル測定に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領域における標準断面積(E NDF/B=VI)値に規格化することによって $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積を求める。

なお、本実験に用いる京都大学鉛スペクトロメータ(KULS)に関する記述は、付録Aに譲る。

4.1 アルゴンガス入り比例計数管

Tc-99試料は中性子を捕獲すると、即発ガンマ線が放出する。本実験のように、中性子場において測定試料からの捕獲ガンマ線を測定する場合には、中性子に感度を持たない測定器の使用が重要となる。我々はこのガンマ線の測定に、直径12.7mm、有効長約6.3cm、内圧1気圧(Ar:97%, CO₂:3%)のアルゴンガス入り比例計数管を用いた。使用する高電圧は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はないが(661keV γ線で~0.8%以下)、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。図4.1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KULSに設けられたビスマス実験孔に挿入して実験を行う。

4.2 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手法は、先に我々が行ったNp-237の中性子捕獲断面積測定

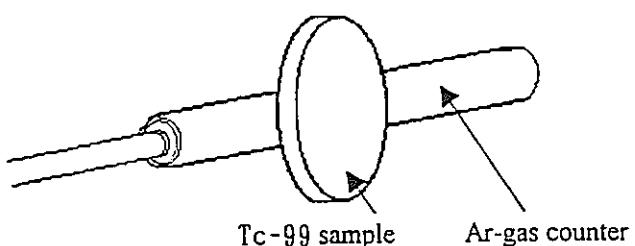


図4.1 Tc-99とアルゴンガス比例計数管の実験配置図

の場合とほぼ同様である/24/（付録B）。まず、Tc-99試料とアルゴンガス比例計数管をKULSのビスマス実験孔に挿入し、パルス状中性子がKULSに打ち込まれた後の減速時間に対する捕獲事象を時間スペクトルとして測定する。減速時間 t (μs)と中性子エネルギー E (keV)の間には、 $E = K/t^2$ の関係式があり、KULSのビスマス実験孔においては $K = 190 \pm 2$ (keV $\cdot \mu s$)の関係が求められている/9/。

$^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定に必要となる入射中性子束／スペクトルは、Tc-99とアルゴン比例計数管に替わってビスマス実験孔にBF₃比例計数管を挿入し、測定した。本実験に使用したBF₃比例計数管は直径12.7mm、有効長5.8cmの円筒形で、先に用いたアルゴン比例計数管と殆んど同じ形状をしている。 $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応断面積は、低エネルギー領域で $1/\sqrt{E}$ 形状のエネルギー依存性を示す標準的な断面積としてよく知られているので、これを用いて中性子束／スペクトル測定を行った。この結果を用いて $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の相対値を求め、熱中性子領域の標準的な断面積値に規格化した。

本実験においては、アルゴン比例計数管とBF₃比例計数管をそれぞれ別々に用いて捕獲断面積の相対測定を行ったため、実験回路系としては一系統を用意した。いずれも比例計数管の出力は増幅器、パルス波高弁別器を経た後、チャンネル幅0.5 μs 、チャンネル数8192の時間分析器に導き、パーソナルコンピュータによりデータを収集、取得した。

中性子捕獲断面積は、アルゴン比例計数管を用いて試料からの即発ガンマ線を測定する方法によって求めたが、この場合は検出器周辺に存在するガンマ線に対しても感度を有するため、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、本実験に用いたTc-99試料の全量は、信号／バックグラウンド比を上げて実験を行うためには必ずしも十分ではなかったと言える。実験においては、信号／バックグラウンド比の向上も大切であるが、ガンマフラッシュの問題はもっと重要である。KULSの実験孔は、鉛、ビスマスの層で覆われてはいるが、実験においては試料からの捕獲ガンマ線測定を行うため、加速器が起因となるバックグラウンドガンマ線と区別することが重要である。また、本実験に用いた比例計数管の特性は、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く、ガンマフラッシュを受けた場合は検出器の時間的回復に遅れが生じることも実験上不利な条件となる。今回の実験では、測定上の都合とは言え、このような比例計数管を使用せざるを得なかつたことが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たと言える。本実験では、ガンマ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：6.8ns、パルスの繰り返し：150Hz、ピーク電流：600mA、電子加速エネルギー：30MeV。なお、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、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、標準断面積としてENDF/B-VIより引用し、これをKULSのエネルギー分解能でbroadeningしている。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、前章の3.3.5にて述べたモンテカルロ計算により求めた。ただし、この場合の補正関数としては、細かいエネルギー meshes(～0.12レサジーアップ)の計算値をKULSのエネルギー分解能によってbroadeningしている。また、アルゴン比例計数管の捕獲ガンマ線測定に対する検出効率は、入射中性子のエネルギーに依存しないものと仮定した。

4.3 中性子自己遮蔽効果の補正

本補正のための計算条件及び方法等は、前章の3.3.5の場合とほぼ同様である。ただし、KULS内における実験では、試料／検出器に対し中性子は周りから入射すると仮定して、MCNPコードを用いた計算を行った。図4.2は、モンテカルロ計算の結果をKULSのエネルギー分解能でbroadeningして求めた結果を示している。大きな共鳴ピークでは、中性子の自己遮蔽効果に対して補正が必要とされることが分かる。

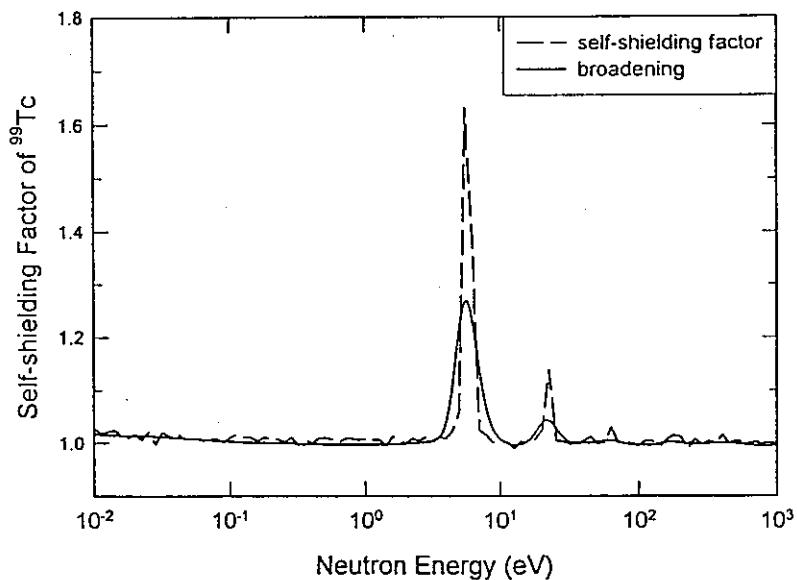


図4.2 Tc-99試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数
(KULSのエネルギー分解能でbroadeningした結果)

4.4 測定結果と検討

KULSを用いて0.25eVから300eV領域における⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積を¹⁰B(n, α)反応断面積に対する相対値として測定した。これに対して、Tc-99試料における中性子自己遮

蔽効果の補正を行った後、熱中性子領域(0.35eV)の標準断面積値(6.14 b, ENDF/B-VIより引用)に規格化した。その結果を図4.3に示す。本実験における主な誤差は、①計数値に関する統計誤差として0.3%~23%、② $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応の標準断面積に係る誤差<2%、③標準断面積値への規格化に伴う誤差2%、④中性子自己遮蔽の補正として誤差<3%を仮定すると、全体では4.1%~23.4%程度になる。

図4.3では、まず、従来の実測値と本実験結果を比較している。Chouら/17/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、12eV付近の凹み部分を除けば、KULSの実験値と全体に一致している。前章で我々が求めたTOF法による $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定結果をKULSのエネルギー分解能でbroadeningして比較したところ、10eV以上に見られる断面積の凹み領域では、TOFデータの方が低目になっていることが分かる。評価済核データ、ENDF/B-VIとJENDL-3.2に関しては、共にKULSのエネルギー分解能でbroadeningして図4.3に示した。両評価値は56.6eV、163eVの共鳴ピーク及び700eV以上の領域を除けば全体をとおして互いによく一致している。実験データとの比較では、断面積の凹み部分において評価値は低くなっているが、TOFデータのbroadening結果とは全体に一致の方向にある。

評価データを鉛スペクトロメータの分解能関数でbroadeningした結果と実測値は、大きな共鳴ピーク領域の凹凸部で、特に凹みの部分において一致が必ずしもよくない。TOFデータをbroadeningした結果にも同様な傾向が見られる。我々はbroadeningに際してガウス分布関数を適用したが/9, 23/、その是非も含め鋭い共鳴ピーク近辺のbroadening手法につ

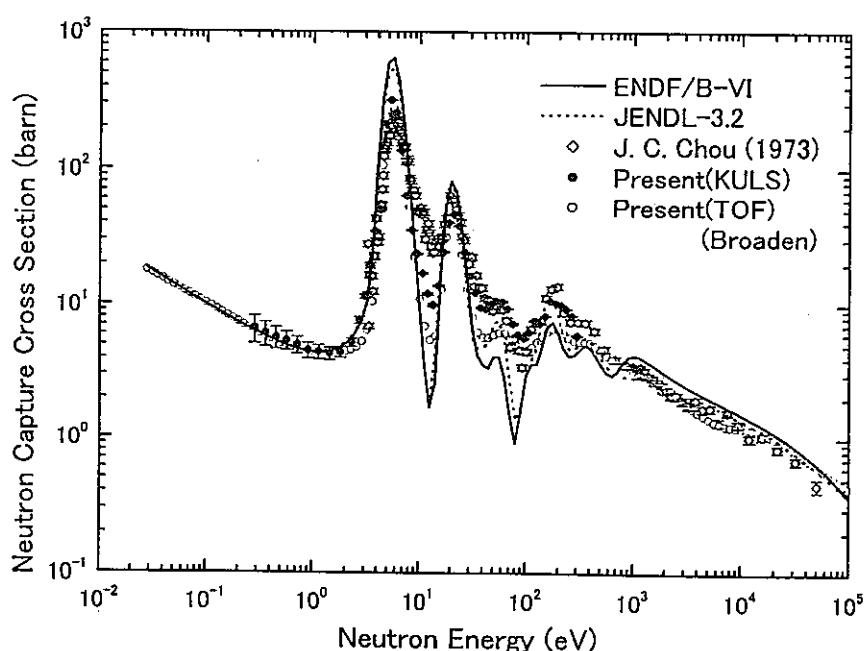


図4.3 $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積のKULSによる測定結果と評価値の比較

評価データを鉛スペクトロメータの分解能関数でbroadeningした結果と実測値は、大きな共鳴ピーク領域の凹凸部で、特に凹みの部分において一致が必ずしもよくない。TOFデータをbroadeningした結果にも同様な傾向が見られる。我々はbroadeningに際してガウス分布関数を適用したが/9, 23/、その是非も含め鋭い共鳴ピーク近辺のbroadening手法については今後の検討課題となろう。

KULSの実験では、0.25eV以下及び300eV以上のエネルギー領域において測定値を得るまでに至らなかった。その理由としては、Tc-99試料の全体量が十分でなかったことと、KULSでは熱中性子領域の中性子束が相対的に低いことが信号／バックグラウンド比を悪くし、また、アルゴンガス比例計数管を用いた実験では測定回路／検出器の時間応答特性が緩やかであり、かつ検出効率が低かったことなどが考えられる。前章のTOF実験の場合は、試料に入射する中性子束は必ずしも高くはなかったが、水のタンクで十分減速された中性子が利用できしたことと、実験配置の工夫によりガンマフラッシュやバックグラウンドなどの影響を低減できたためと思われる。また、Tc-99は β 放射体の放射性試料であり、実験においてガンマ線のバックグラウンドが高くなるなどの問題は殆んどなかった点がTOF実験にとって幸いしたと言える。

5. 放射化実験の試み

本研究では、ライナックTOF法と鉛スペクトロメータを用いた2つの方法により $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定を行ったが、これらは何れも $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応断面積に対する相対測定であり、得られた結果を熱中性子領域の標準的な断面積値に規格化する手法をとった。中性子捕獲断面積の測定法には、この他に放射化法を用いる測定がある。我々は、KURの重水設備では標準的な熱中性子場が得られる/25/ことに注目し、放射化法によって $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定を試みることとした。実際に断面積測定を行う場合には、照射場の中性子束測定に標準断面積としてよく知られている $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応断面積がしばしば用いられる。そこで $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積は次の関係式より求まる/26/。

$$\sigma_x = \frac{\varepsilon_{Au} R_x N_{Au} S_{Au} g_{Au}}{\varepsilon_x R_{Au} N_x S_x g_x} \sigma_{Au} \quad (11)$$

ここで、 ε_x 、 ε_{Au} は金箔、Tc-99試料に対する高純度Ge検出器(HPGe)の検出効率、 R_x 、 R_{Au} はそれぞれの放射化反応率、 N_x 、 N_{Au} は原子密度、 S_x 、 S_{Au} は補正項、 g_x 、 g_{Au} はWestcottのg因子/27/、 σ_{Au} は $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応の標準断面積を示す。

本実験では、まず、3章の3.2.1で述べたTcO₂試料を重水設備に設けられた照射レールを用いて照射した。資料のセット、取り出しが照射室外の横から実験者が操作できる。Tc-100の半減期は15~16秒程度と言われているので、1分間照射・10分間冷却の実験を5回繰り返し、それぞれの照射後20~30秒後にはHPGe検出器による誘導放射能測定を開始した。相対検出効率20%のHPGe検出器を使い、厚さ3mmのアクリル板をとおしてGe検出器から約11cmの距離に照射した試料をセット、計数した。照射直後はTc-100の生成放射能が強いため、測定開始後数十秒間は測定系がdead-timeの影響を強く受けて信頼のおけるデータを得ることはできなかった。そのうちに、Tc-100はdecay-outするので、この場合には十分な計数値を得ることが難しくなる。計数率を上げるために1半減期かそれ以上の時間計測を行うと、その間にdead-timeの状況に著しい変化が生じるため、Tc-100測定における補正法の問題が生じる。照射後、試料にどの程度の放射能強度をもたらせるか、dead-timeの影響を如何にして避けるか(最小限に留めるか)、何秒間測定を行うのが適当かは重要な問題である。本実験においてHPGe検出器により測定したガンマ線スペクトルの一例を図5.1に示す。Tc-100から出ている539keV、590keVの2本のガンマ線エネルギーピークが観測されている。図5.2は539keVのフォトピーク計数からTc-100の半減期を求める試みを行った結果であり、予備的な結果として 15.8 ± 0.3 秒を得た(誤差は、図5.2のデータを単に最小自乗法で処理した結果である)。

重水設備での中性子束モニター用に金箔を照射計測し、(11)式に従って $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の導出を試みようとした。しかし、今回の実験照射においては、Tc-100の誘導放射能計測、データ処理において問題点が残ったため、結果を得るまでには至らなかった。こうした経験は、短寿命核種測定における今後の検討課題としたい。

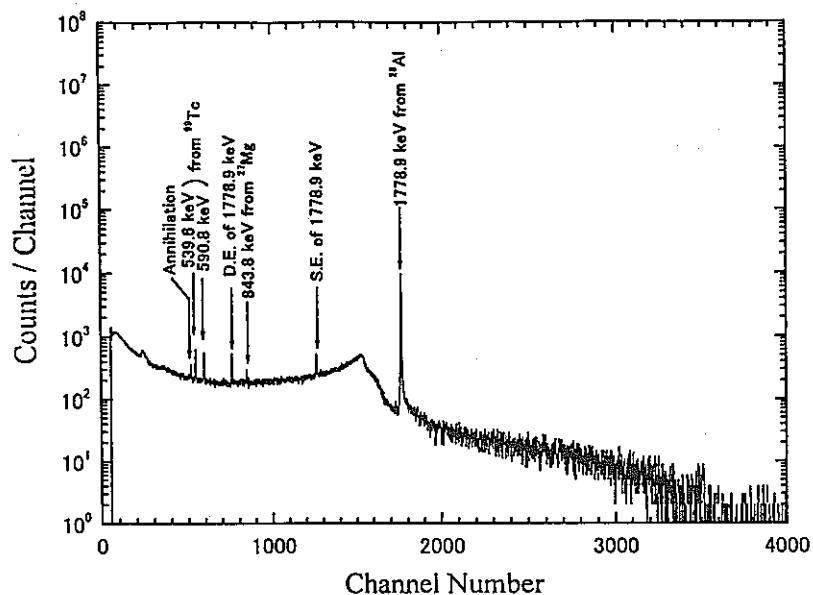


図5.1 HPGe検出器によるTc-100のガンマ線パルス波高分布

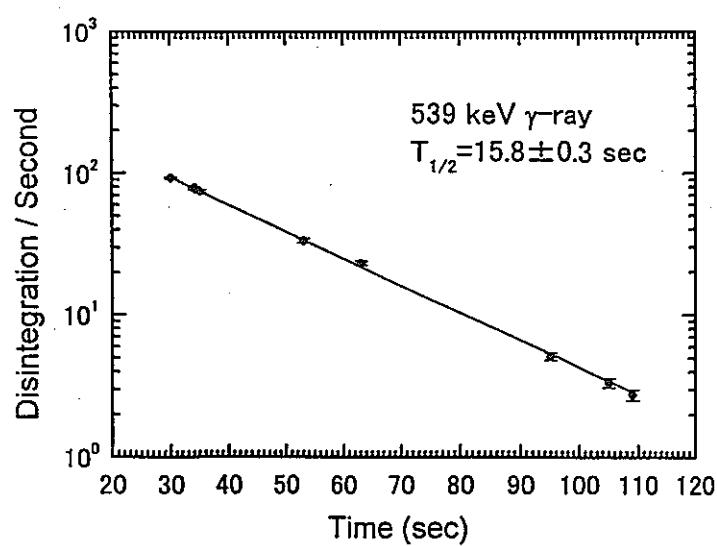


図5.2 Tc-100の半減期曲線

6.まとめと今後の課題

6.1 まとめ

我々は、ここ数年来、鉛スペクトロメータ(KULS)を用いてマイナーアクチニド(MA)核種の核変換に関わる基礎的な核データの測定を試みて来たが、本研究では、KULSによる核データ実験研究の一環として、超長寿命核種のFPであるテクネシウム(Tc)-99を取り上げ、その中性子捕獲断面積を熱中性子から10keV領域において測定した。本実験の方法は、①京都大学原子炉実験所の46MeVライナックを用いた飛行時間分析法と、②KULSを用いた実験に大別できる。これらの実験結果をもとに、従来の実験データ、評価済核データの評価を行い、①、②による実験結果についても比較検討を行った。最後に、Tc-99試料の放射化法に関する予備実験の結果について触れる。

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は必ずしも十分ではなく、0.0253eVにおける熱中性子断面積を除けば、3eV以下の領域では実測データが存在していない。
- (2) まず、TOF法を用いた実験では、12mの飛行路を使用し、パルス状中性子源として京大原子炉実験所の46MeVライナックを用いた。中性子捕獲断面積は、Tc-99試料より放出される中性子捕獲ガンマ線を一对のC₆D₆液体シンチレータを用いて測定した。
- (3) Tc-99試料に入射する中性子束／スペクトルはB-10試料によって測定し、¹⁰B(n, α)反応断面積に対する相対値として0.01eVから10keV領域における⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積を測定した。得られた結果に中性子の自己遮蔽効果に関する補正を行った後、0.0253eVにおける標準的な断面積値(19.57 b、ENDF/B-VI値)に規格化した。
- (4) 本実験値に比べ、既存のMacklinら及びChouらのデータはkeV領域において少し低目であるが、Littleら及び最近の井頭らの測定値はよく一致している。
- (5) 評価済核データ、ENDF/B-VI, JENDL-3.2は、全体に本実験データと一致しているが、分離共鳴領域の凹み部においては少し低目になっている。
- (6) 次に、京大原子炉実験所の46MeVライナックと組み合わせて設置されているKULS(エネルギー分解能は半値幅にして約40%)を用いて、⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積の測定を行った。本実験ではアルゴンガス比例計数管を用いてTc-99試料から放出される捕獲ガンマ線を測定する方法によった。
- (7) KULSの実験孔内の中性子束／スペクトルはBF₃比例計数管を用いて測定し、¹⁰B(n, α)反応断面積を利用して⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積の相対値を0.25eVから300eV領域において求め、これを0.35eVにおける標準的な断面積値(6.14 b, ENDF/B-VI値)に規格化した(0.25eV

以下の領域では、計数率が必ずしも十分ではなく、データとして求められなかつたため)。

(8)Chouらのデータは、12eV付近の凹み部分を除けばKULSの実験値(鉛スペクトロメータによる実験値同士)とは全体に一致している。

(9)評価済核データ、ENDF/B-VI及びJENDL-3.2については、KULSのエネルギー分解能でbroadingし本実験値と比較した結果、共鳴領域の凹みの部分で評価値は低くなっている。

(10)KULSの実験データとTOFデータのbroadening結果を比較すると、断面積曲線の凹み部でTOFデータの方が低くなり評価データに近づく傾向が見られるが、両者は全く違った実験法にもかかわらず全体的には一致が見られる。このことは、我々の実験結果において特に大きな系統的問題はないものと思われる。

(11)ライナックTOF法及びKULSを用いた実験において、特にKULSを用いた低エネルギー領域では、今回使用したTc-99試料では十分な信号／バックグラウンド比を得るまでに至らず、捕獲断面積測定は0.25eVから300eV領域に留まった。その要因は、KULSの特性上、熱外／keV中性子束に比べて熱中性子束が低く、また検出効率が必ずしも高くないアルゴンガス入りの比例計数管を用いた点などにあると考えられる。

(12)最後に、京大原子炉実験所の研究炉(KUR)に付設されている重水熱中性子標準場においてTc-99試料を照射し、HPGe検出器を用いて生成核Tc-100(半減期15～16秒)のガンマ線スペクトルを測定した。本実験では、短寿命核の誘導放射能測定においてdead-timeの取扱などに問題を残すことになり、Tc-99の熱中性子捕獲断面積を導出するまでには至らなかった。測定データのうち、539keVのフォトピーク計数から予備的な半減期を求めた結果、 15.8 ± 0.3 秒を得た。

(13) $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の実測データは、図2.3に示したとおり、0.0253eVの測定値を除けば最近の井頭らの結果を加えても4件の発表があるのみで、3eV以下のエネルギー領域では実測データが存在しない。本研究では、この様な未測定領域のデータを提供することができたと同時に、従来の測定値についても実験的に評価を加えることができた。

6.2 今後の課題

我々は、従来より数十keV以下のエネルギー領域において、幾つかの中性子捕獲断面積に関する絶対測定を実施してきた。しかし、本実験ではTc-99試料の形状寸法及び量的な問題と放射性試料であることを考慮して、C₆D₆液体シンチレータを用いて捕獲ガンマ線を測定し、捕獲断面積の相対測定を行った。今後は絶対測定の実施が望まれるところである。

本実験では、放射性同位元素であるTc-99試料の使用量を制限せざるを得なかつたが、試料量が多ければそれだけ実験の遂行も容易になり、信号／バックグラウンド比のよいデータが得られるものと思われる。

鉛スペクトロメータを用いた実験はChouらのデータも含め、評価済核データをbroadeningした結果と比較した場合、特に共鳴領域の凹み部において差異が見られる。本実験で求めたTOFデータと鉛スペクトロメータの実験値についても同様な傾向が見られる。こうした問題については、断面積のbroadeningを行う関数の評価、方法、適用も含め今後の検討課題であろう。

KURの重水設備の標準熱中性子場において、放射化法により $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ 反応断面積の測定を試みた。生成核のTc-100は、半減期が約15~16秒と短いので、計測中のdecay-outによって放射能強度は著しく変化する。本実験では、HPGe検出器を用いて単にTc-100のガンマ線スペクトルとその半減期曲線の予備的な結果を求めるに留まつたが、断面積測定様などの精度よい実験値を得るためにには、検出器／測定回路系におけるdead-time効果の時々刻々の変化に対する測定法／補正法に一工夫が必要であろう。

【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. Kai et al., "The Influence of Impurities for Cross Section Measurement of $^{241,243}\text{Am}(n, f)$ Reactions", Proc. of the 1996 Symp. on Nucl. Data, JAERI -Conf 97-005, 280 (1997).
- /8/ K. Kobayashi et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 36, No. 1, 20 (1999).
- /9/ K. Kobayashi et al., Nucl. Instr. Methods in Nucl. Phys. A, 385, 145-156 (1997) (付録B参照) .
- /10/ 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).
- /11/ 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).
- /12/ K. Shibata and T. Narita(Eds.) "Descriptive Data of JENDL-3.2", JAERI-Data/Code 98-006, Parts I & II, (1998).
- /13/ 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)。
- /14/ T. Nakagawa, "Neutron Data Storage and Retrieval System", JAERI Nuclear Data Center (1995).
- /15/ P. F. Rose(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).
- /16/ C. Nordborg and M. Salvatores, "Status of the JEF Evaluated Data Library", Proc. Int'l Conf. on Nucl. Data Sci. and Technol., Gatlinberg, Tennessee, Vol. 2, ANS, 680 (1994).

- /17/ J. C. Chou et al., J. Nucl. Energy, 27, 811 (1973).
- /18/ R. C. Little and R. C. block, Am. Nucl. Soc., 26, 574 (1977).
- /19/ R. L. Macklin, Nucl. Sci. Eng., 81, 520 (1982).
- /20/ T. Matsumoto, M. Igashira et al., "Measurement of keV-Neutron Capture Cross Sections of ^{99}Tc and ^{237}Np for the transmutation Study", Japan-Korea seminar on Advances reactors, Bull. Res. Lab. for Nuclear reactors, Special issue 3, 208 (2000).
- /21/ K. Kobayashi et al., Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., 22, 142 (1987).
- /22/ A. A. Bergman et al., Proc. First Int'l Conf. on Peaceful Uses for Atomic Energy, United Nations, p/642, Vol. 4, p. 135 (1955).
- /23/ R. E. Slovacek et al., Nucl. Sci. Eng., 62, 455 (1977).
- /24/ K. Kobayashi et al., Presented at the 1999 Symp. on Nuclear Data, JAERI, Nov. 18-19, 1999, JAERI-Conf 2000-005, 119-124 (2000).
- /25/ Y. Sakurai et al., Proc. Advances in Neutron Capture Therapy, Vol. 1, Medicine and Physics, (by B. Larsson et al. Eds.), p. 316 (1997).
- /26/ K. Kobayashi et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 31, No. 12, 1239 (1994).
- /27/ C. H. Westcott et al., Proc. 2nd Int'l Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, United Nations, Vol. 16, 70 (1958).

付 錄

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

33

付録 B : 京都大学鉛スペクトロメータ

38

付録 C : Neutron Capture Cross Section Measurement
of Np-237 below 10 keV by Linac Time-of-Flight
Method

53

付録 A

⁹⁹Tc(n, gamma)反応断面積の実験データの現状

AUTHOR	(Y.D.HARKER, E.H.TURK)
INSTITUTE	(1USAMTR)
REFERENCE	(C,72KIAMESHA,2,614,7208) (C,71KNOX,1,113,7103)
TITLE	THE USE OF CFRMF INTEGRAL DATA IN CROSS SECTION EVALUATIONS.
FACILITY	COUPLED FAST REACTIVITY MEASUREMENT FACILITY (CFRMF)
METHOD	(ACTIV) ACTIVITY OF SAMPLES AFTER IRRADIATION GAMMA SPECTROMETER
DETECTOR	(GELI) GERMANIUM-LITHIUM DETECTOR
AUTHOR	(R.C.LITTLE, R.C.BLOCK)
INSTITUTE	(1USRPI)
REFERENCE	(J,ANS,26,574,770612)
TITLE	NEUTRON CAPTURE CROSS-SECTION MEASUREMENTS OF 99-Tc UP TO 80 KEV
FACILITY	(LINAC) RPI 100 MEV ELECTRON LINEAR ACCELERATOR
METHOD	(TOF) TIME-OF-FLIGHT
DETECTOR	(SCIN) LIQUID SCINTILLATOR TO DETECT CAPTURE GAMMAS (NAICR) B-10 NA-I DETECTOR FOR TRANSMISSION MEASUREMENT USED TO NORMALIZE CAPTURE YIELD AT LOW ENERGIES CORRECTION DATA CORRECTED FOR SELF-SHIELDING AND MULTIPLE SCATTERING IN THE SAMPLE
ERR-ANALYS	(ERR-S) STATISTICAL ERRORS (ERR-T) TOTAL ERROR=STATISTICAL ERRORS AND ERRORS DUE TO NORMALIZATION AND SYSTEMATICS ADDED IN QUADRATURE
DATA REGION	4~80 keV
AUTHOR	(H.POMERANCE)
INSTITUTE	(1USAORL)
REFERENCE	(R,ORNL-1975,31,5509)
TITLE	THERMAL ABSORPTION CROSS SECTION OF TC-99
FACILITY	(OSCIP) PILE OSCILLATOR
INC-SPECT	THERMAL SPECTRUM
MONITOR	(79-AU-197(N,G)79-AU-198,,SIG)
DATA	EN(MEV) DATA(B) DATA-ERR(B) 2.53 -08 1.9 +01 2 +00
AUTHOR	(R.L.MACKLIN)
INSTITUTE	(1USAORL)
REFERENCE	(J,NSE,81,520,8208)
TITLE	TECHNETIUM-99 NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION
FACILITY	(LINAC) ORELA
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 MICROGRAM/GRAM.

METHOD (TOF) 40.12 METERS TO SAMPLE. COUNTED FOR 207 HOURS.
 DETECTOR (SCIN) 2 NON-HYDROGENOUS LIQUID SCINTILLATORS ON EITHER SIDE OF
 THE SAMPLE (GLASD) 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-PROTECTION AND MULTIPLE SCATTERING.
 DATA REGION 3keV~2MeV

AUTHOR (S.M.QAIM)
 INSTITUTE (2GERJUL)
 REFERENCE (J,JIN,35,3669,7311)
 TITLE NUCLEAR REACTION CROSS-SECTIONS FOR 14.7 MEV NEUTRONS ON TC-99
 FACILITY (CCW) DYNAGEN NEUTRON GENERATOR.
 INC-SOURCE (D-T) DEUTERON-TRITIUM.
 INC-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,N G), (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. SYSTEMATIC
 ERRORS SUCH AS THE UNCERTAINTIES IN THE DETERMINATION OF
 NEUTRON FLUX, THE 3 PERC. UNCERTAINTY IN PHOTOPEAK EFFICIENCY
 OF DETECTORS AND UNCERTAINTY IN DETERMINING THE COMPTON BACK-
 GROUND WERE INCLUDED.
 DATA EN(MEV) DATA(B) DATA-ERR(B)
 14.7 9.0000E-03 2.0000E-03

AUTHOR (J.C.CHOU, H.WERLE)
 INSTITUTE (2GERKFK)
 REFERENCE (J,JNE,27,811,7311)
 TITLE (W,CHOU,7011) INT.REPORT OF INST. FUER NEUTRONENPHYSIK UND
 REAKTORTECHNIK, KFK, INR-4/70-28,NOV. (1970).
 (W,SCHATZ,7202) AUTHOR LEFT KFK, DATA FROM SCHATZ.
 - 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.-(IN GERMAN)
 FACILITY .LEAD SLOWING-DOWN-TIME SPECTROMETER WITH (CCW) COCKCROFT-
 WALTON PULSE GENERATOR
 INC-SOURCE (D-T) H3(D,N)HE4 REACTION.
 INC-SPECT ENERGY RANGE 1 EV TO 50 KEV. RESOLUTION BETTER 12 PERC
 METHOD (SLODT) SLOWING-DOWN TIME
 DETECTOR (PROPC) ARGON PROPORTIONAL COUNTER (760 TORR) AS CAPTURE
 DETECTOR,
 MONITOR .BF3 COUNTER AS FLUX MONITOR.
 (5-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 3.2 eV ~ 50 keV

AUTHOR	(R.B.TATTERSALL, H.ROSE, S.K.PATTENDEN, D.JOWITT)		
INSTITUTE	(2UK HAR)		
REFERENCE	(J,JNE/A,12,32,6005), (R,AERE-R-2887,59) SAME DATA.		
	(R,AERE-R/R-2516,59) REPORT SUPERSEDDED EXCEPT FOR DATA ON BE,C,NA, NATURAL CD AND GD COMPILED SEPERATELY.		
TITLE	(B,58GENEVA,16,34,5809) PRELIMINARY RESULTS -PILE OSCILLATOR MEASUREMENTS OF RESONANCE ABSORPTION INTEGRALS.-		
FACILITY	(OSCIP)PILE OSCILLATOR FACILITIES OF DIMPEL REACTOR		
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 PER CENT .ERROR FROM THE UNCERTAINTY IN RESONANCE INTEGRAL OF GOLD.		
DATA	EN(EV)	DATA(B)	DATA-ERR(B)
	2.5300E-02	1.6000E+01	7.0000E+00

AUTHOR	(N.J.PATTENDEN)		
INSTITUTE	(2UK HAR)		
REFERENCE	(R,NRDC-103,,1958) FOR TC-99		
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,PU-240		
FACILITY	(SPECC) CRYSTAL SPECTROMETER.		
INC-SOURCE	(REAC) BEPO REACTOR.		
METHOD	.TRANSMISSION.		
ANALYSIS	.DERIVED FROM ENERGY DEPENDENT TOTAL CROSS SECTION MEASURE- MENTS.		
DATA	EN(EV)	DATA(B)	DATA-ERR(B)
	2.5300E-02	2.4800E+01	2.0000E+00

AUTHOR	(M.LUCAS, R.HAGEMANN, R.NAUDET, C.RENSON, C.CHEVALIER)		
INSTITUTE	(2FR SAC)		
REFERENCE	(C,77PARIS,1,431,771219) IAEA-PUBL. 475.		
TITLE	-DETERMINATION BY IRRADIATION IN THE TRITON REACTOR OF NEUTRON CAPTURE CROSS SECTIONS FOR ISOTOPES INVOLVED IN THE OKLO PHENOMENON.-		
FACILITY	(REAC,2FR SAC) SWIMMING POOL REACTOR TRITON AT SACLAY, AT TEMPERATURE OF 40 DEG-C.		
INC-SOURCE	(REAC) REACTOR NEUTRONS.		
METHOD	(ACTIV) ACTIVATION ANALYSIS, USING (CHSEP) CHEMICAL SEPARATION AND (ASEP) MASS SPECTROMETRY AFTER THERMOIONIZATION. ALSO ISOTOPIC DILUTION TECHNIQUES USED.		
MONITOR	1(92-U-238(N,G)92-U-239,,SIG) 2(92-U-238(N,G)92-U-239,,RI,,RNV) CUT OFF AT 0.5 EV.		
CORRECTION	.RADIOACTIVE DECAY.		
DATA	EN(EV)	DATA(B)	DATA-ERR(B)
	2.5300E-02	2.0000E+01	2.0000E+00

AUTHOR	(H.HARADA, S.NAKAMURA, T.KATO, Y.OGATA)		
INSTITUTE	(2JPNPNC,2JPNNAG,2JPNYOK)		

REFERENCE	(J,NST,32,395,9505)		
TITLE	MEASUREMENT OF THERMAL NEUTRON CROSS SECTION AND RESONANCE INTEGRAL OF THE REACTION 99-TC(N,G)100-TC.		
FACILITY	(REAC,2JPNYOK) THE TRIGA MARK II REACTOR AT RIKKYO UNIVERSITY.		
INC-SPECT	.SAMPLE IRRADIATED IN THE REFLECTOR SURROUNDING THE CORE OF THE REACTOR, GIVING A THERMAL N-FLUX $5.0E+11$ N/CM ² /S AND AN EPI-THERMAL 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. THE POLYETHYLENE TUBES WERE LOCATED IN AN OUTER POLY-ETHYLENE BOTTLE. 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	(ACTIV) 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		
DECAY-DATA	(43-TC-100, 15.5SEC, DG,540...0700, DG,591.,0574) .THE HALF-LIFE WAS DETERMINED AS AN AVERAGE OF FOUR VALUES TO $15.5 +/- 0.1$ SEC.		
CORRECTION	.THE DATA WERE CORRECTED FOR SUM-COINCIDENCE LOSS, PILE-UP AND SELF-ABSORPTION.		
DATA	EN(EV)	DATA(B)	DATA-ERR(B)
	2.5300E-02	2.2900E+01	1.3000E+00
AUTHOR	(T.KATO, Y.OGATA, H.HARADA, S.NAKAMURA)		
INSTITUTE	(2JPNNAG,2JPNJA,2JPNYOK)		
REFERENCE	(C,94GATLIN,,230,9405) MAIN REF.		
TITLE	MEASUREMENT OF THE NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION OF TC-99.		
FACILITY	(REAC,2JPNYOK) THE RIKKYO UNIVERSITY REACTOR.		
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.		
METHOD	.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.		
DETECTOR	(ACTIV) THE RESONANCE INTEGRAL WAS MEASURED USING THE CD-RATIO METHOD.		
DATA	(HPGE) THE CAPTURE GAMMA-RAY ACTIVITIES WERE MEASURED WITH A HPGE DETECTOR OF 90 PERCENT EFFICIENCY COMBINED WITH FAST ELECTRONICS.		
	EN(EV)	DATA(B)	DATA-ERR(B)
	2.5300E-02	2.2700E+01	1.1000E+00

AUTHOR (T.KATOH, Y.OGATA, H.HARADA, S.NAKAMURA)
INSTITUTE (2JPNNAG,2JPNJAE)
REFERENCE ((S,JAERI-M-94-019,403,199311)=(S,INDC(JPN)-169/L,403,199311))
MAIN REF. (J,NST,30,(11),1099,199311) EXPERIMENTAL AND ANALYSIS DETAILS
TITLE MEASUREMENT OF THE NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION ON TC-99
INC-SPECT THERMAL NEUTRON SPECTRUM. THERMAL NEUTRON FLUX IS
(4.91+-0.12)E+11 NEUTRONS/CM2/SEC
DETECTOR (HPGE) FOR GAMMA DETECTION, EFFICIENCY 90 PC
(SCIN) FOR TC-99 QUANTITY DETERMINATION
DATA EN(EV) DATA(B) DATA-ERR(B)
2.5300E-02 1.8000E+01 2.0000E+00

AUTHOR (V.V.OVECHKIN, D.F.RAU, V.S.RUDENKO)
INSTITUTE (4CCPCCP)
REFERENCE (C,73KIEV,2,131,7404) DATA ARE GIVEN
TITLE MEASUREMENT OF THE ACTIVATION CROSS SECTION OF TC-99 BY THE
THERMAL NEUTRONS INC-SOURCE PU-BE NEUTRON SOURCE
METHOD (ACTIV) ACTIVATION
DETECTOR (SCIN) TWO SCINTILLATION DETECTOR NAJ(TL)
CORRECTION (GEL) GERMANIUM-LITHIUM DETECTOR WITH SENSITIVE VOLUME 27 CM**3
ERR-ANALYS G-RAYS FROM ADMIXTURES OF THE SAMPLE WERE TAKEN INTO ACCOUNT
(DATA-ERRER) STATISTICAL AND NORMALIZATION ERRORS WERE TAKEN
INTO ACCOUNT.
DATA EN(EV) DATA(B) DATA-ERR(B)
2.5300E-02 2.4000E+01 4.0000E+00

付録 B

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、弹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RINS²⁾、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、中性子は弹性散乱（0.57 MeV以上では非弹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^{1/2)}。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^{1/2)}、100 keV 以下のトリウム、キュリウム、AINシュタニウム等に対する核分裂反応断面積の測定^{1/5-8)}が行われている。これらの実験においては、反応断面積が マイクロバーン(μb)オーダと小さい、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「 $1 \mu\text{g b}$ 」と言う表現を使っている/2/。即ち、 $1 \mu\text{g}$ 以上の試料があれば 1b の核分裂断面積の測定が可能であり、 1g 以上の試料があれば $1 \mu\text{b}$ 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ト核種、試料量を十分入手できないFP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、Linac、K U Rの比較

項目	K U L S	Linac	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	スペクトロメタ内 全域(実験孔)	小さい： 約 $10\text{cm} \times 10\text{cm}$ $\times 10\text{cm}$ 程度	容積は大きい 約 $60\text{cm} \times 60\text{cm}$ $\times 60\text{cm}$ 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 $10^5 \sim 10^8 \text{n/cm}^2/\text{s}$	平均 $\sim 10^{12} \text{n/s}$ $\sim 10^{18} \text{n/パルス}$	$\sim 10^{14} \text{n/cm}^2/\text{s}$
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5MW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遙かに及ばないが、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、K U RはK U L S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： $\delta = 0.0096$ ）、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0.1eV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していく。

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/}：

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

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/}：

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

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、 \sum_s は散乱断面積である。

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

となって、中性子の平均エネルギー E (keV)は、減速時間 t (μs)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、K U L S

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（K U L S）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10～15cm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6～7MeVと高いのに比べ、ビスマスのそれは約4MeV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）が起こ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°C以下となるように抑

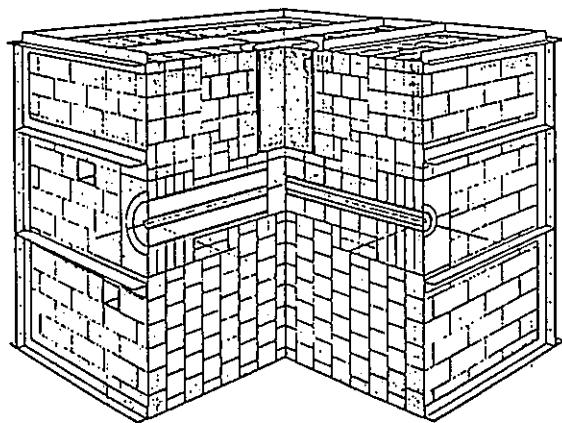


図 1 鉛スペクトロメータ KULS の断面図

-42-

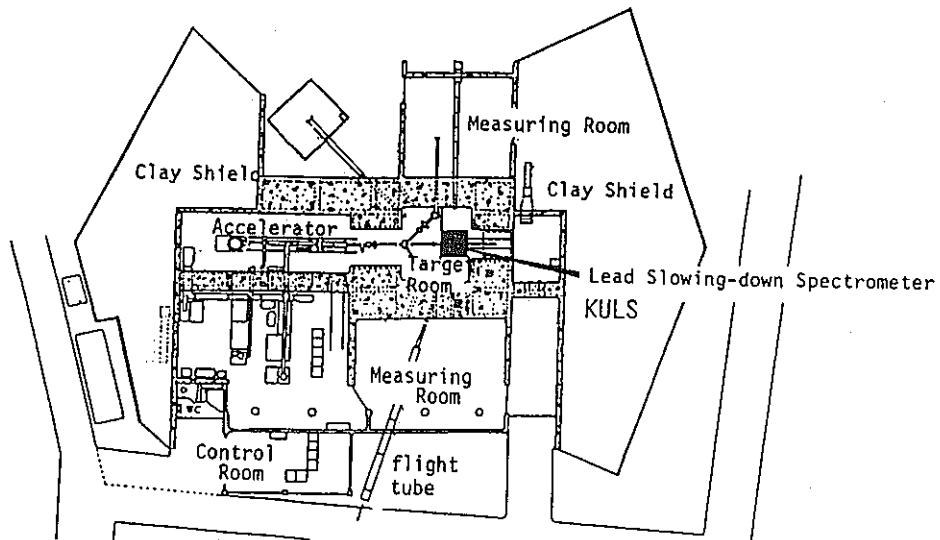


図 2 電子線型加速器室と鉛スペクトロメータ
KULS の設置位置

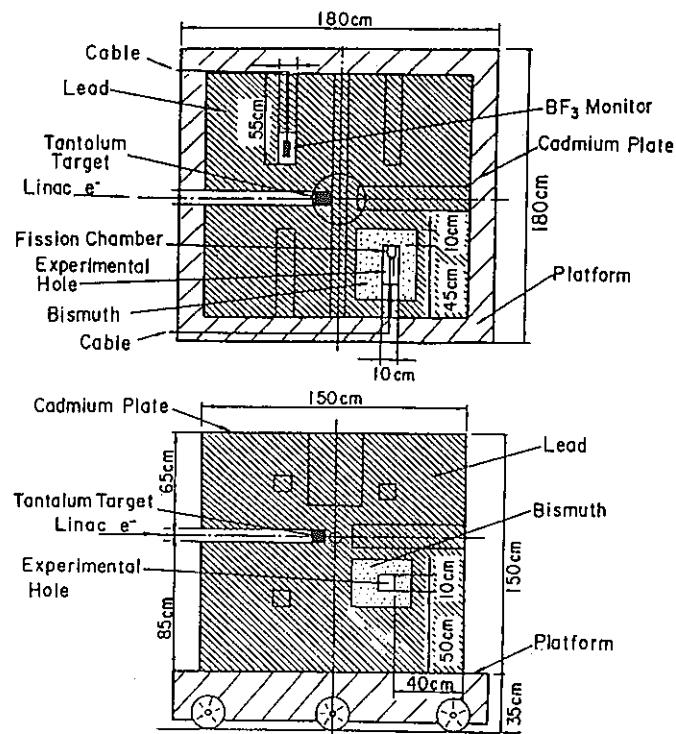


図 3 鉛スペクトロメータ KULS の
平面図(上)と垂直断面図(下)

え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1MeV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1MeV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46MeV 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、中性子の時間的变化を 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が、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

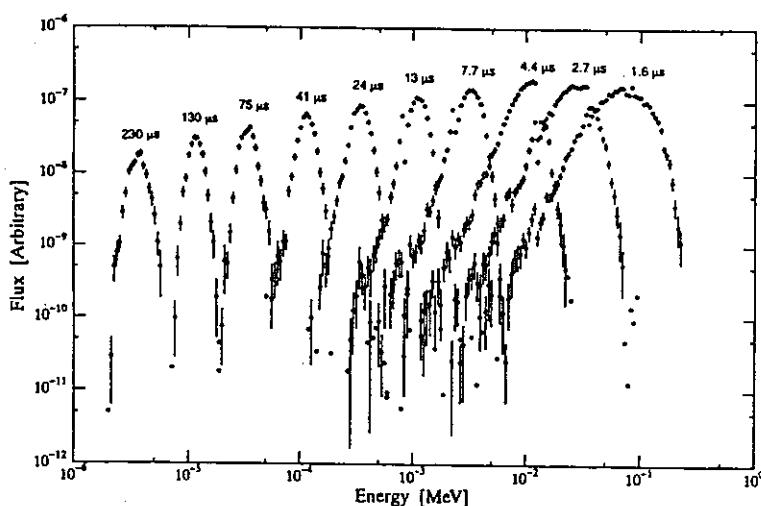


図 4 KULSのビスマス実験孔における中性子の時間依存スペクトル

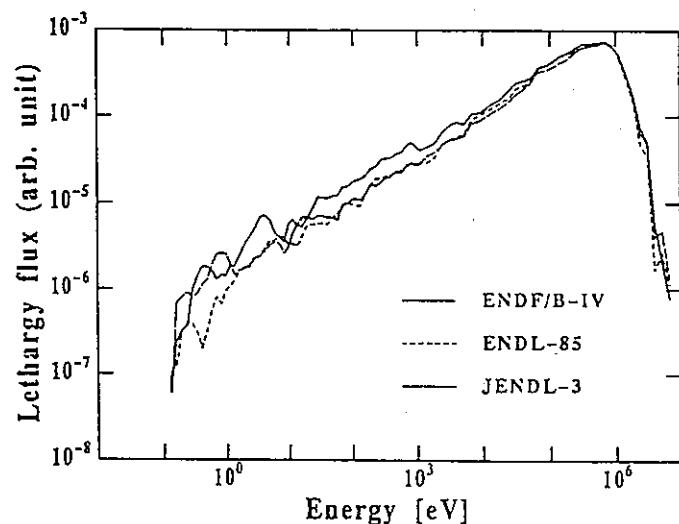


図 5 KULS内の(定常)中性子スペクトルの計算結果

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

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 K U L S 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に用い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 (keV·μs²)が得られ、BF₃比例計数管による測定結果 191 ± 3 (keV·μs²)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 (keV·μs²)）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 (keV·μs²)/15/ともよい一致を示した。

3.3.2 K U L S 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

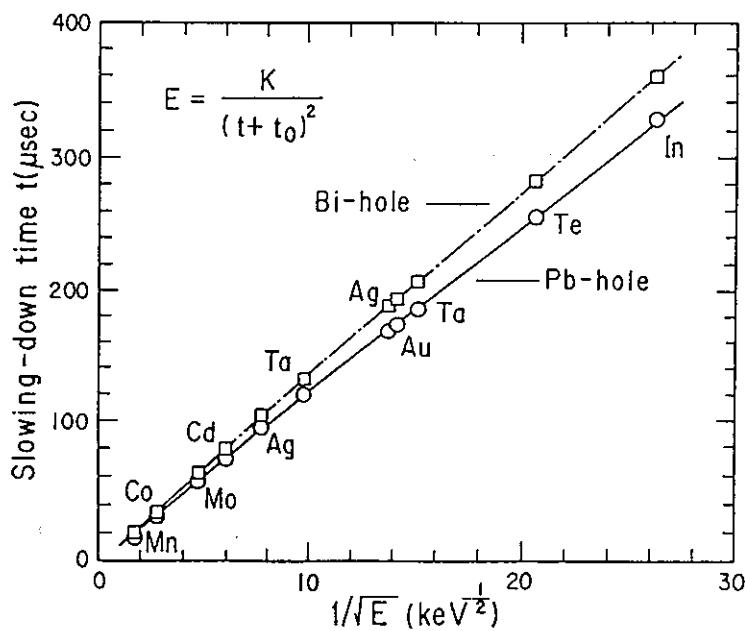


図 6 KULSのビスマス実験孔と鉛実験孔における
中性子減速時間とエネルギーの関係

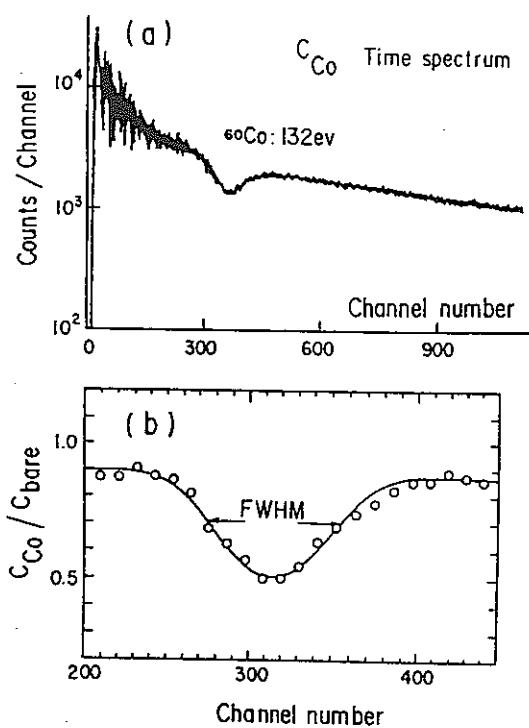


図 7 中性子透過法によって測定された
時間スペクトルの例

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考えると、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%)よりも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する影響について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かった原因是、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¹⁰B-vaseline plug NaI(Tl)検出器/18/を用いた。図11、図12は、そ

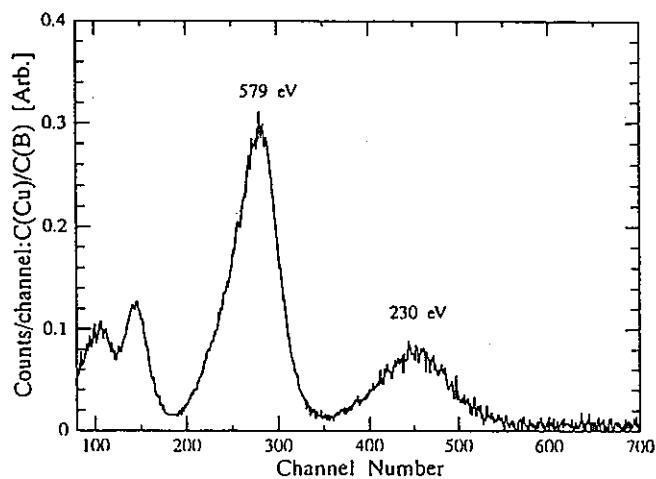
図 8 共鳴捕獲 γ 線測定によるエネルギー分解能測定の例

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)	BF ₃ counter Bi hole	Ar gas counter Bi hole	Pb hole	Energy (eV)	MCNP code 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

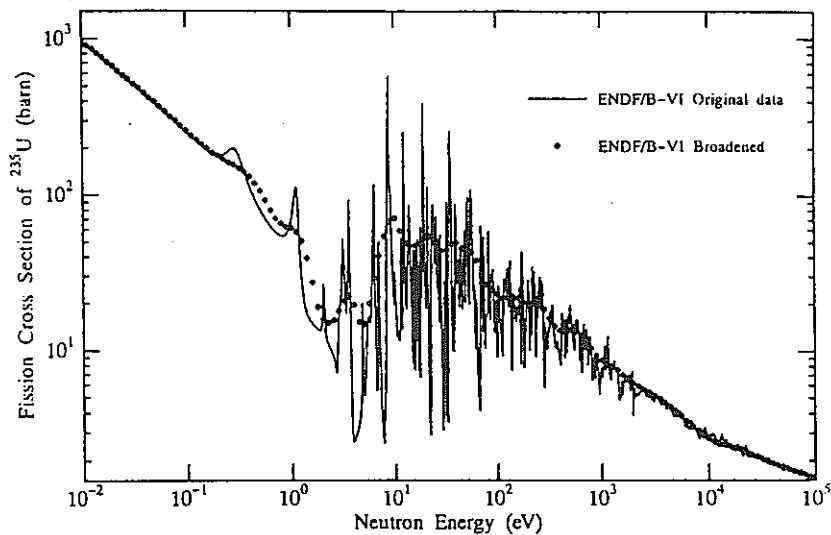


図 9 $^{235}\text{U}(\text{n}, \text{f})$ 反応の ENDF/B-VI 評価値と、
KULS の分解能関数でなました結果

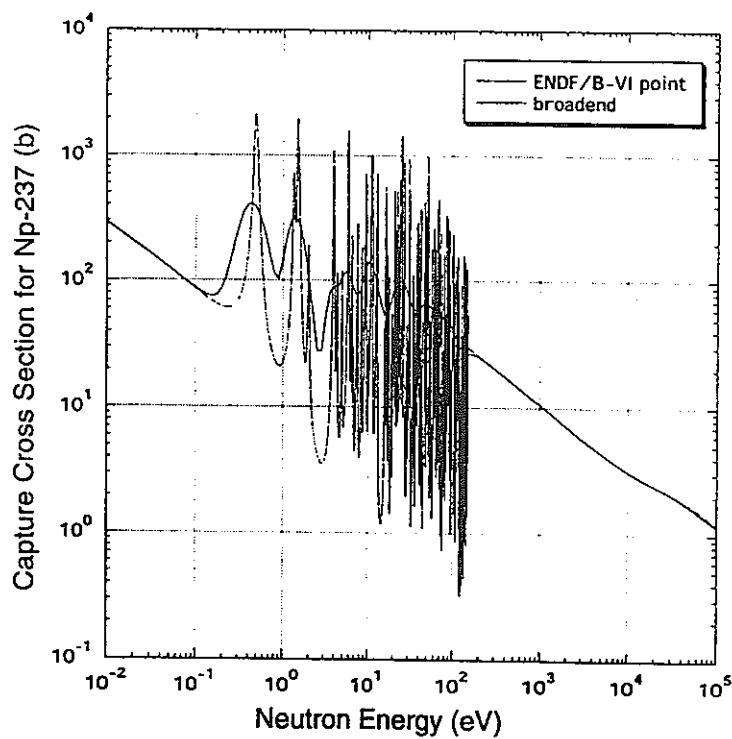


図 10 $^{237}\text{Np}(\text{n}, \gamma)$ 反応の ENDF/B-VI 評価値と、
KULS の分解能関数でなました結果

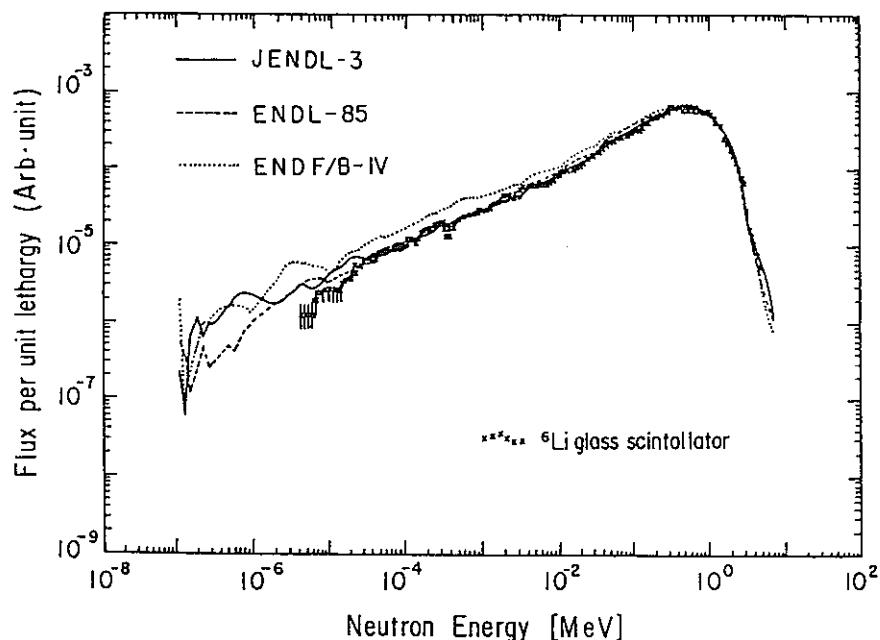


図 1-1 ^{6}Li ガラスシンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較

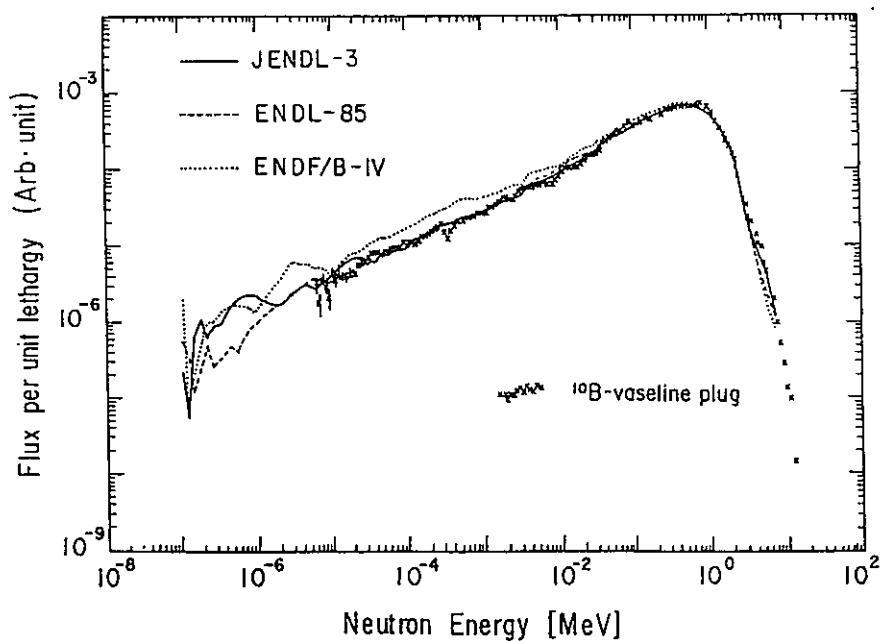


図 1-2 ^{10}B -vaseline plug $\text{NaI}(\text{Tl})$ シンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較

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、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、準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) BF_3 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つたが、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. Kobayashi, 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 C

Neutron Capture Cross Section Measurement of Np-237 below 10 keV by Linac Time-of-Flight Method

Samyol Lee¹, Shuji Yamamoto¹, Hyun-Je Cho^{1*}, Takaaki Yoshimoto¹,
Katsuhei Kobayashi¹, Yoshiaki Fujita¹, and Yasushi Ohkawachi²

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

² O-arai Engineering Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute,
4002, O-arai-machi, Higashi-ibaraki-gun, Ibaraki 311-1393, Japan

* Present address: Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 105, Taejeon 305-600, Korea

The neutron capture cross section of ^{237}Np has been measured in the energy region from 0.01 eV to 10 keV by using the neutron time-of-flight (TOF) method with a 46 MeV electron linear accelerator (linac) at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). A pair of C_6D_6 scintillation detectors, which was placed at a distance of 12.0 ± 0.02 m from the pulsed neutron source, was employed for the prompt capture gamma-ray measurement from the ^{237}Np sample. The measured result has been normalized to the reference value of the $^{237}\text{Np}(\text{n},\gamma)^{238}\text{Np}$ reaction in ENDF/B-VI at 0.0253 eV.

The existing experimental and the evaluated capture cross sections in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 have been compared with the present measurement. For the neutron capture cross section of ^{237}Np , the data by Weston et al. and the evaluated data are in good agreement with the present measurement. However, the data by Hoffman et al. are obviously lower in the relevant energy region.

The data, which were measured before using a lead slowing-down spectrometer at KURRI, have been in good agreement with the data obtained by energy-broadening the present TOF measurement.

1. Introduction

The ^{237}Np , which is one of the minor actinides with a long half-life, is abundantly produced in light water reactors. The nuclear data are of great importance for investigating the generation and the burn-up characteristics of ^{237}Np in the reactor. Neutron capture by ^{237}Np produces an intense alpha-emitter of ^{238}Pu through the beta-decay of ^{238}Np . In order to decrease an undesirable inheritance or a risk of these high level radioactive materials, in recent years, a great interest has been taken in the nuclear transmutation using conventional or advanced reactors and accelerator-driven subcritical reactors [1, 2, 3]. Accurate determinations of the fission and the capture cross sections for ^{237}Np are indispensable to research and development of the nuclear transmutation technology.

Although several measurements for the capture cross section of ^{237}Np have been reported at higher energies and thermal energy, the cross section has rarely been measured in the low/resonance energy region [4]. Weston et al. measured the capture cross section between about 0.01 eV and 0.2 MeV by the neutron

TOF method using an Oak Ridge Electron Linear Accelerator [5]. Hoffman et al. measured the neutron capture cross section of ^{237}Np by the neutron time-of-flight (TOF) method using a Moxon-Rae detector [6].

In the present work, the neutron capture cross section of ^{237}Np has been measured in the energy region from 0.01 eV to 10 keV by using the neutron TOF method with a 46 MeV electron linear accelerator (linac) of the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). The present result is compared with the previous experimental and the evaluated data in ENDF/B-VI [8] and JENDL-3.2 [9].

The capture cross section was measured before using the lead slowing-down spectrometer (KULS) at KURRI. The result obtained by the KULS is compared with the present TOF measurement, which is energy-broadened by the resolution function of the KULS.

2. Experimental Procedure

2.1. Capture Samples

Neptunium oxide (NpO_2) powder of 1.13 g was purchased from Amersham, which was packed in an aluminum disk container of 20 mm in inner-diameter and 1.4 mm in thickness (outer-diameter: 30 mm and thickness: 2.2mm). The purity of the sample is 99.6% by weight and the major impurities are about 41 g in total weight of Ga, K, P, Rb, and S. The gamma-rays of 86.5 keV from ^{237}Np and 300, 312, 341 keV from ^{233}Pa which was produced through the α -decay of ^{237}Np , were measured with a high-purity germanium detector (HPGe). No peak from the impurities except for ^{233}Pa was found in the pulse height distribution data.

The enriched ^{10}B powder of 90.4% was put into a thin Al (0.2 mm in thickness) plug of $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ and 8mm in thickness, and the sample thickness was 1.102 g/cm^2 .

2.2. Experimental Arrangement

The neutron capture measurement was performed in the neutron energy region of 0.01 eV to 10 keV using the 46 MeV electron linac at KURRI. The experimental arrangement is shown in Fig. 1. Pulsed fast neutrons were produced from a water-cooled Ta target. The flight path, which is 12.0 ± 0.02 m from the neutron source to the sample, is located at an angle of 135° with respect to the linac electron beam direction. The target is consists of twelve sheets of Ta plates of 5 cm in diameter and 2.9 cm long in effective thickness [10]. The target was set at the center of the cylindrical water tank, which was 30 cm in diameter and 1 cm in tank wall thickness, to moderate fast neutrons. A shadow bar made of Pb block (size: $5 \times 5 \text{ cm}^3 \times 10$ long) was placed in the neutron flight path in front of the Ta target to reduce the γ -flash generated by the electron burst in the target.

The linac was operated with a pulse width of $3\mu\text{s}$, a repetition rate of 30 Hz, electron peak current of 400 mA and the electron energy of 22 MeV for the measurement in the lower energy region, and with a pulse width of 33 ns, a repetition rate of 100 Hz, electron peak current of $3 \mu\text{A}$ and the electron energy of 20 MeV in the higher energy region, respectively.

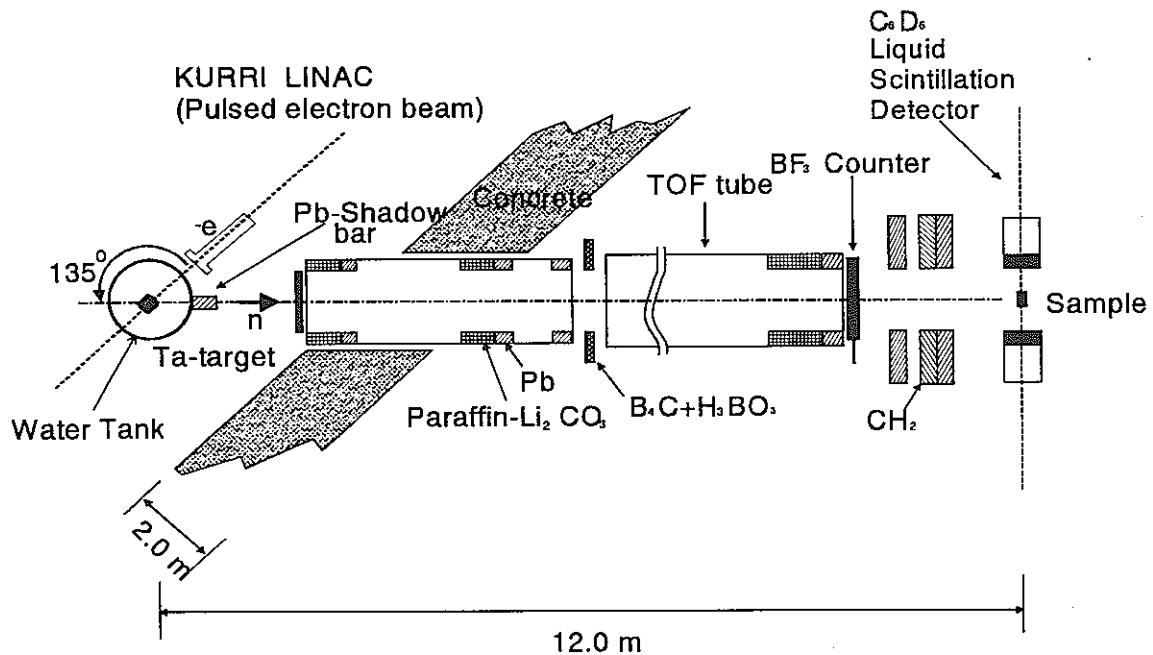


Fig. 1. Experimental arrangement for the capture cross section measurement.

2.3. Detectors and Data Taking

A pair of C_6D_6 liquid scintillation detectors was used for detection of γ -rays from the sample. The ^{237}Np sample was inserted into the neutron TOF beam between the detectors, each 11cm in diameter and 5cm thick. The detectors are adequate to the capture γ -rays measurement because of less sensitive to scattered neutrons. For the measurement of the incident neutron flux/spectrum on the sample, a ^{10}B plug (1.102 g/cm^2) was inserted into the TOF beam instead of the ^{237}Np sample. A background run was carried out with an aluminum disk container without the ^{237}Np sample. In the background measurement, a thick ^{10}B plug (4.54 g/cm^2) was placed in front of the collimator before the C_6D_6 detectors to black-out the neutron beam. The background level was also confirmed by those measured with a 0.5 mm thick Cd sheet and notch-filters of Ag, Co and Mn. The neutron beam intensity during the experiment was monitored with a BF_3 counter, as shown in Fig. 1. In order to monitor the neutron intensities during the experimental runs, the BF_3 counter was placed in the neutron beam. Through the amplifiers and the discriminators, signals from a pair of C_6D_6 liquid scintillation detectors 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. The multi-channel data were stored as two sets of 4096-channel data with a channel width of $4\mu\text{s}$.

3. Data Analysis

3.1. Neutron Capture Cross Section

The relative neutron capture yield of the $^{237}Np(n,\gamma)$ reaction is given by the following relation:

$$Y_{Np}(E) = \frac{C_{Np}(E)}{C_B(E)} Y_B(E), \quad (1)$$

$$Y_{Np}(E) = (1 - \exp(-N\sigma_t(E)t)) \frac{\sigma_c(E)}{\sigma_t(E)} f_c, \quad (2)$$

where $C_{Np}(E)$ is capture counts of ^{237}Np at energy E , $C_B(E)$ is capture counts of ^{10}B at energy E , N is atomic density of the ^{237}Np sample, f_c is the correction factor for the neutron scattering in the sample, $\sigma_c(E)$ is the neutron capture cross section, $\sigma_t(E)$ is the total cross section, t is thickness of the ^{237}Np sample, and $Y_B(E)$ is the capture yield of ^{10}B . Since the cross section of the $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)$ reaction is a well-known reference one, it has been used to determine the neutron flux/spectrum in the present measurement. When t is thin enough, Eq. (2) can be written as follows:

$$\sigma_c(E) = \frac{Y_{Np}(E)}{Ntf_c} \quad (3)$$

3.2. Self-shielding Correction

The self-shielding effect 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 irradiated by the neutron TOF beam. The self-shielding correction in the ^{237}Np sample has been calculated by the Monte Carlo code MCNP [11]. The correction factor has been obtained from the ratio of the effective capture cross section for the ^{237}Np sample to that for the infinite diluted one that is obtained by multiplying the atomic density by 10^{-6} . The result has been applied to the neutron scattering and self-shielding correction for the present cross section measurement of the $^{237}\text{Np}(\text{n}, \gamma)^{238}\text{Np}$ reaction.

4. Results and Discussion

The neutron capture cross sections have been measured relative to that of the $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)$ reaction at the energy region from 0.01 eV and 10 keV. The result obtained has been normalized to the reference value of the thermal neutron cross section of 181 b of ENDF/B-VI at 0.0253 eV. The experimental uncertainties are in the range of 0.05% to 44%, and the major uncertainties are due to the statistical error and that in the reference cross section for the $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)$ reaction. Since the ^{237}Np sample was almost free from impurities, no correction was made for the impurity effect.

The capture cross sections measured by Weston et al. [5] are in good agreement with the present measurement as seen in Fig. 2, but the data measured by Hoffman et al. [6] are remarkably lower than the present values [6]. The evaluated data in ENDF/B-VI [8] and JENDL-3.2 [9] are also in good agreement with the present measurement in the relevant energy region, as shown in Fig. 3.

We measured the capture cross section before using the lead slowing-down spectrometer (KULS) at KURRI. The measured data are in good agreement with the data that the present TOF measurement is broadened by the resolution function of the spectrometer, as shown in Fig. 4.

5. Conclusion

The neutron capture cross section of ^{237}Np has been measured in the energy region from 0.01 eV and

10 keV by using the neutron TOF method and the C₆D₆ liquid scintillation detectors. 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. The data measured with the lead slowing-down spectrometer have been in good agreement with the data which were obtained by energy-broadening the present TOF measurement.

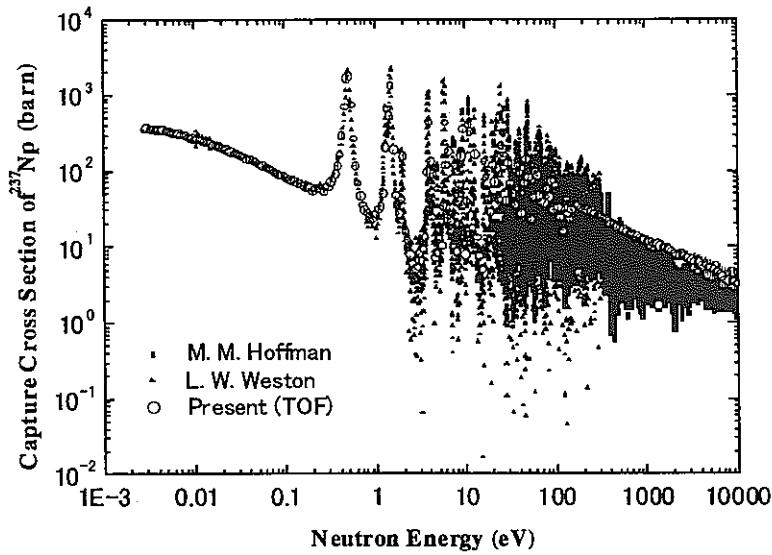


Fig. 2. Comparison of the experimental capture cross sections of ^{237}Np and the present measurement obtained by the linac TOF method.

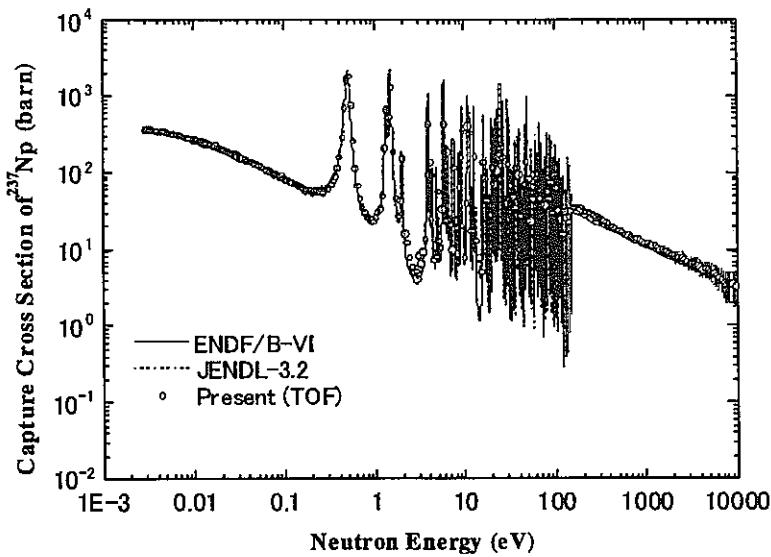


Fig. 3. Comparison of the evaluated capture cross sections of ^{237}Np and the present measurement obtained by the linac TOF method.

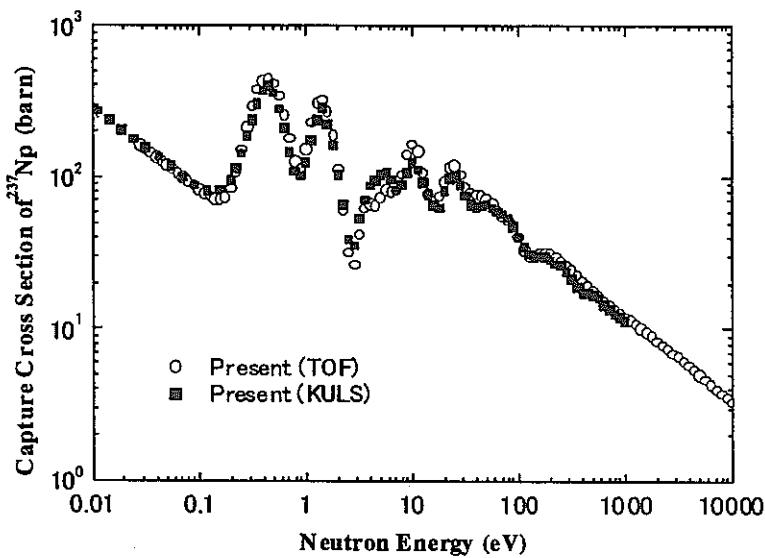


Fig. 4. Comparison of the measurement obtained with the KULS and the linac TOF data broadened by the KULS resolution.

Reference

- [1] T. Mukaiyama, et al., "Conceptual Study of Academic Burner Reactors", Proc. of the 1988 Int. Reactor Phys. Conf., Jackson Hale, Vol. IV, 369 (1988).
- [2] D. H. Berwald and J. J. Duderstadt, *Nucl. Technol.*, Vol. 42, 34 (1979).
- [3] H. Takano, et al., "Concept of Actinide Transmutation with Intense Proton Accelerator", 6th Int. Conf. On Emerging Nuclear Energy System, Monterey, USA (1991).
- [4] K. Kobayashi et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 31, 1239 (1994).
- [5] L. W. Weston & J. H. Todd, *Nucl. Sci. Eng.*, 79, 184 (1981).
- [6] M. M. Hoffman et al., *Bull. Am. Phys. Soc.*, 21, 655 (1976).
- [7] K. Kobayashi et al., JAERI-Conf 2000-005, p. 119 (1999).
- [8] P. F. Rose (Ed.), "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation," BNL-NCS-17541, 4th Ed. (ENDF /B-VI) (1991), and "ENDF/B-VI MOD2 Evaluation," by P. G. Young (1996).
- [9] T. Nakagawa et al., "Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision 2: JENDL-3.2", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 32, 1259 (1995), and K. Shibata and T. Narita, "Descriptive Data of JENDL-3.2", JAERI-Data/Code 98-006 (1998).
- [10] K. Kobayashi, G. Jin, S. Yamamoto, K. Takami, Y. Kimura, T. Kozuka and Y. Fujita: *Annu. Rep. Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.*, 22, 142 (1987).
- [11] "MCNP-A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A", LA-7396-M, Rev. 2, Los Alamos National Laboratory (1986).