

JNC TJ9400 2001-021

鉛スペクトロメータを用いた
ヨウ素-129の中性子捕獲断面積測定

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)



2002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 319-1184

Japan

©核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2002

2002年2月

鉛スペクトロメータを用いた ヨウ素-129の中性子捕獲断面積測定

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

小林捷平 *

要 旨

我々は従来より電子線型加速器(ライナック)を用いた飛行時間(TOF)分析法や鉛スペクトロメータ(KULS)を用いてマイナーアクチニド(MA)の核分裂／中性子捕獲断面積、長寿命核分裂生成物(LLFP)の中性子捕獲断面積測定を行ってきた。本研究では、その一環として、ライナックTOF法によるI-129核種の中性子捕獲断面積の測定を行う。

本研究では、まず、LLFPの代表的核種であるI-129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結果、ENDF/B-VI、JENDL-3.2、JEF-2.2の評価済核データには収納されているが、その中性子全断面積及び捕獲断面積の測定データは極めて少なく、実測データの現状としてはデータの数、質ともに不十分な状況にある。

次に、京都大学原子炉実験所の46MeVライナックを用いたTOF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0.004eV～10keV領域における $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積を測定した。本実験では、NaI-129を試料として、その中性子捕獲ガンマ線を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(0.0253 eV)の標準的な断面積値(27.04 b)に規格化した。3～400keVでのMacklinによる測定値及びENDF/B-VIの評価値は、本実験値と誤差の範囲内において全体に一致している。しかし、数eVから約60eVの領域では、JENDL-3.2、JEF-2.2の評価値は本実験値及びENDF/B-VIデータに比べ明らかに低い。

0.0253eVの熱中性子断面積を除けば、3keV以下のエネルギー領域において $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の測定データは報告されていなかったが、我々は今回この低エネルギー領域において新しいデータを提供することができた。

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 中性子工学グループ

* 京都大学原子炉実験所

February 2002

Neutron Capture Cross Section Measurement of I-129 with Lead Slowing-down Spectrometer

Katsuhei Kobayashi *

Abstract

Making use of the neutron time-of-flight (TOF) method with an electron linear accelerator (linac) and of a lead slowing-down spectrometer (KULS), we have measured nuclear data of minor actinides (MAs) and/or long-lived fission products (LLFPs). In the present study, we have carried out the capture cross section measurement of ^{129}I by the linac TOF method as a part of experimental series for LLFP.

At first, the experimental data and the evaluated data (ENDF/B-VI, JENDL-3.2, and JEF-2.2) of ^{129}I have been reviewed. As a result, it has been found that the present status of the ^{129}I data is not enough in quality and quantity.

Secondly, by using the NaI-129 sample, the $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ cross section has been measured from 0.004 eV to 10 keV relative to the $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)$ reaction with a pair of C₆D₆ scintillation detectors. After the background subtraction and the self-shielding correction, the cross section has been normalized to the well-known reference cross section (27.04 b) at 0.0253 eV. The data measured by Macklin from 3 to 400 keV and the data evaluated in ENDF/B-VI are in good agreement with the present measurement in general. However, the evaluated values from a few eV to about 60 eV in JENDL-3.2 and JEF-2.2 are obviously low comparing to the measurement and the ENDF/B-VI values.

We could provide the interesting and the useful data for the $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ reaction in the lower/resonance energy region.

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
ヨウ素-129の中性子捕獲断面積測定

目 次

	ハ° - シ°
1. 序論	----- 1
2. I-129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I-129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 I-129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 捕獲断面積の測定法	----- 13
3.3.2 エネルギー分解能	----- 15
3.3.3 中性子捕獲断面積の測定	----- 16
3.3.4 バックグラウンドの測定	----- 17
3.3.5 $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の導出	----- 19
3.3.6 中性子自己遮蔽効果の補正	----- 21
3.4 測定結果	----- 22
4. まとめと今後の課題	----- 24
4.1 まとめ	----- 24
4.2 今後の課題	----- 25

参考文献

26

付 錄

29

付録 A : CINDAに掲載のデータ

31

付録 B : ^{99}I (n, gamma)反応断面積の実験データの現状
===== EXFORより引用 =====

35

付録 C : 京都大学鉛スペクトロメータ

39

付録 D : Measurement of Neutron Capture Cross Section of
 ^{237}Np by Linac Time-of-Flight Method and with
Linac-driven Lead Slowing-down Spectrometer

55

付録 E : Measurement of Neutron Capture Cross Section of
 ^{99}Tc Between 0.007 eV and 47 keV

65

付録 F : Neutron Capture Cross Section Measurements of
Tc-99 and Rh at Energies below 40 keV by Linac
Time-of-Flight Method

73

鉛スペクトロメータを用いた
ヨウ素-129の中性子捕獲断面積測定

図のリスト

	^o - ジ
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 I-129 の中性子全断面積の既存実験データ	8
図2.2 I-129 の中性子全断面積の評価済核データ	8
図2.3 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の既存実験データ	9
図2.4 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の評価済核データ	9
図3.1 飛行時間分析実験の配置図	12
図3.2 NaI-129試料の飛行時間スペクトル測定の例	17
図3.3 $^{127}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{128}\text{I}$ 反応断面積の評価済核データ	18
図3.4 NaI-129試料のガンマ線スペクトル測定	18
図3.5 ダミー試料NaI-127の飛行時間スペクトル測定の例	20
図3.6 バックグラウンド測定用のチタン試料による飛行時間測定の例	20
図3.7 $^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応断面積の評価済核データ	21
図3.8 NaI-129試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数	22
図3.9 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の測定結果と既存の実験値、 評価値の比較	23

鉛スペクトロメータを用いた
ヨウ素-129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 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応の熱中性子断面積(2200m/s値)(八一シ)	7
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 ヨウ素-129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33,000MWd/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）の主なものについてその生成量を示す/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研究・開発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、FPやMA核種のように長半減期／長寿命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/。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。MAやFPに中性子を吸収させると核変換／核分裂消滅への期待がもてるとともに、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すエネルギー源にもなる。また、MAやFPは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/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が強いアルファ放射体で自発核分裂性核種を含んでおり、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

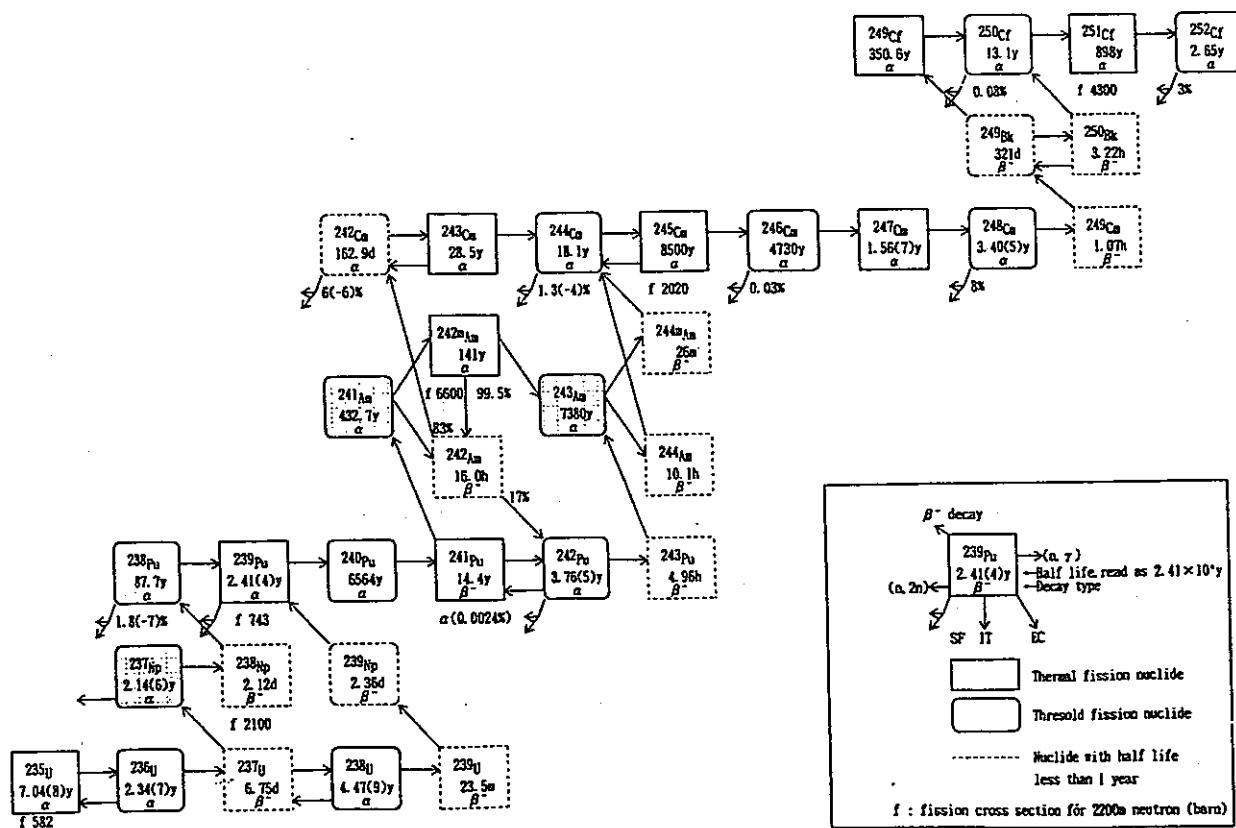


図1.1 アクチニド核種の生成と崩壊の図

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 %

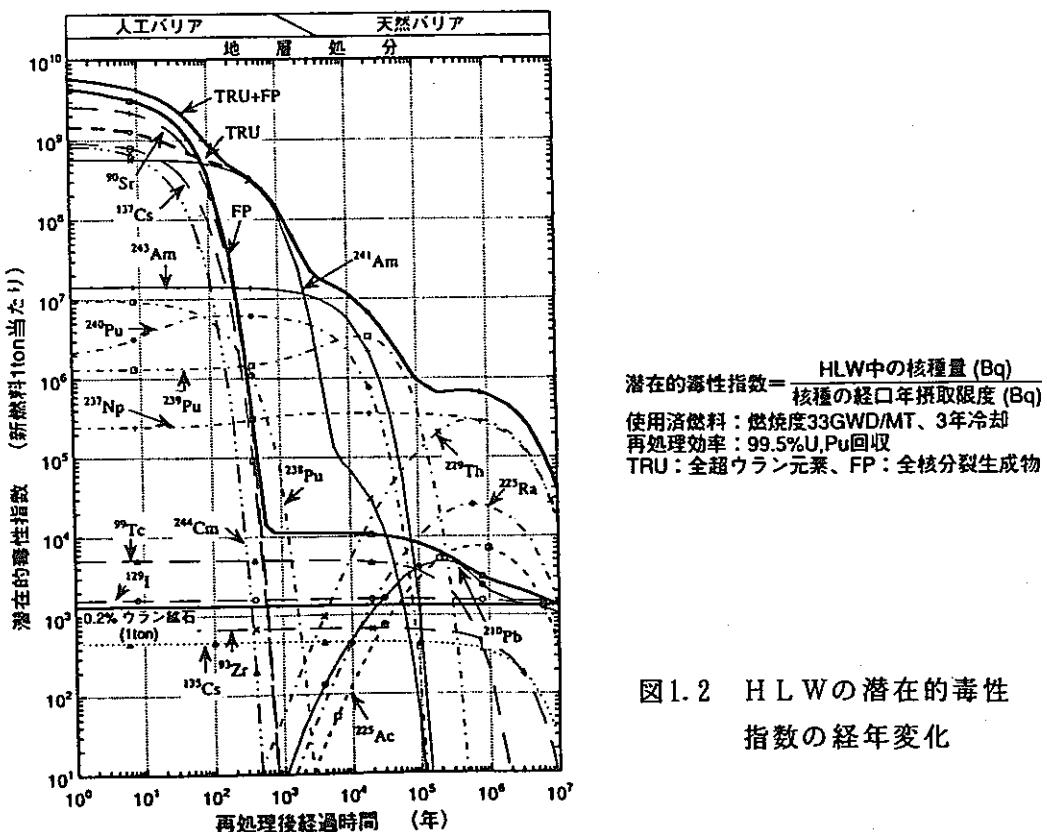


図1.2 HLWの潜在的毒性指數の経年変化

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) 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

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、信号／バックグラウンド計数比が下がるため、これを高めるための強力な中性子源が必要になる。しかし、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。また、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測定を広いエネルギー範囲にわたり行うことも容易な問題ではない。実際の実験においては、各実験者／あるエネルギー領域毎の測定結果が与えられることが多く、核データ評価においてはこれらの実測データをつなぎ合わせて断面積評価が行われたり、理論モデルによる計算が行われている。しかし、一部のエネルギー領域、核反応における実測データの欠落、及びこれら不十分な実験データなどの問題もあって、これらに基づく理論モデル／パラメータ／計算値による評価済み核データは実測値との間に差異を生じる原因となっている。

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核種の中から、表1.2に見られる I-129 を取り上げ、その中性子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電子線型加速器を用いた中性子飛行時間分析法によって $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の測定を試み、得られた結果について既存実験データや評価済核データファイルと比較、評価を行うことにある。最後に、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に関する資料、及び本研究の課題に関連する研究成果のレポートを付録として示す。

2. I-129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／構造材による散乱や吸収、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もつ輸送計算(決定論的計算手法)/10/や連続エネルギー減速モンテカルロ計算(確率論的計算手法)/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／パラメータ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(General Purpose File)の他に、ある特定の利用目的のための Dosimetry File、Gas-Production Cross Section File、Activation Cross Section File、FP Decay Data 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 に登録され、最近のCINDA/14/やEXFOR/15/から作成されたNESTOR-2/16/を見ても、F P 及び M A 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に比べ、一般に測定上の難しさが伴うこともあって、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、 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の測定を取り上げることから、まず I-129 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 及び付録 B は、CINDA 及び EXFOR に登録されている I-129 に関する実験データについて、その現状をまとめたものである。図2.1～図2.4は、I-129 に関する中性子全断面積及び捕獲断面積データの実験値、評価値の現状を示す。表2.1には、0.0253eVでの熱中性子断面積データ(2200m/s値)をまとめた。これらを見ると、I-129 に関する実測データは乏しく、核データの現状として極めて不十分である。中性子捕獲断面積では熱中性子領域の実測データ/17-20/を除くと、keV～数100keVにおけるMacklinのデータ/21/、14MeV近辺でのNakanoらのデータ/22/が存在するのみである。極く最近ではGeelにおいて $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積が測定されたという報告もあるが/23/、まだ公表されていない。また、井頭らのグループも keV領域で測定を行っている/24/。評価済核データ ENDF/B-VI/25/、JENDL-3.2/12/、JEF-2.2/26/に関しては、図2.4に見られるように、数10eV領域においてJENDL-3.2とJEF-2.2が ENDF/B-VIと著しい違いを示している以外は全般に一致の傾向にある。このような状況から見ても $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の現状は、その核変換／消滅処理の問題を適切に検討評価する上において十分であるとは言い難く、新たな核データの測定、評価が望まれるところである。

表2.1 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応の熱中性子断面積(2200m/s値) (バーン)

26.7 ± 2	Roy (1958)
24	Wilkey (1966)
28.0 ± 2.0	Pattenden (1963)
35	Purkayastha (1956)
27 ± 2	Mughabghab (1981)
27.0	ENDF/B-VI (1991)
27.0	JENDL-3.2 (1998)
33.9	JEF-2.2 (1994)

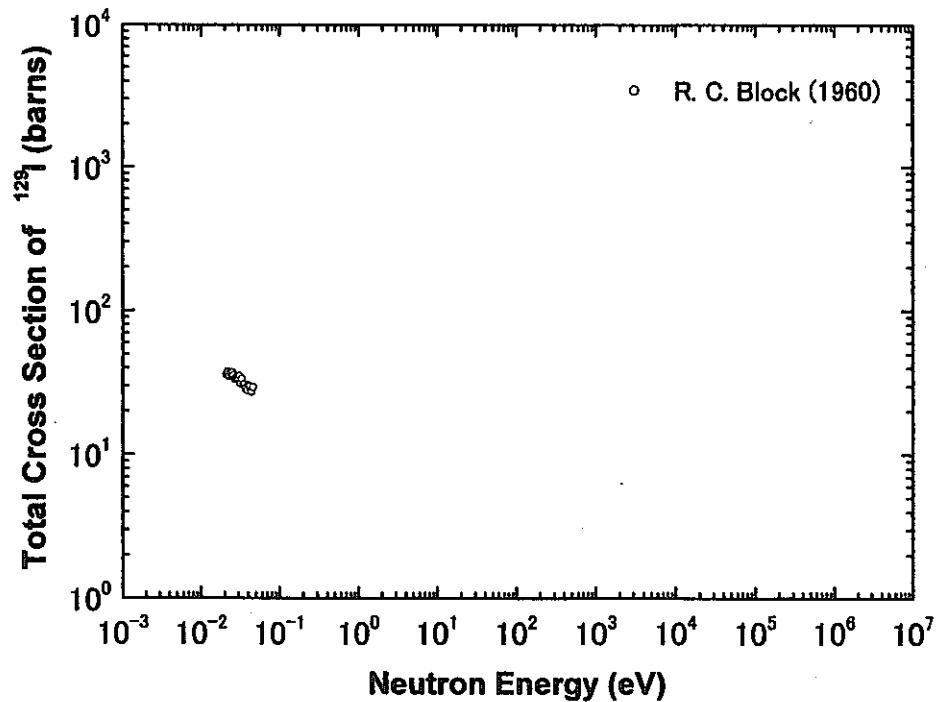


図2.1 I-129 の中性子全断面積の既存実験データ

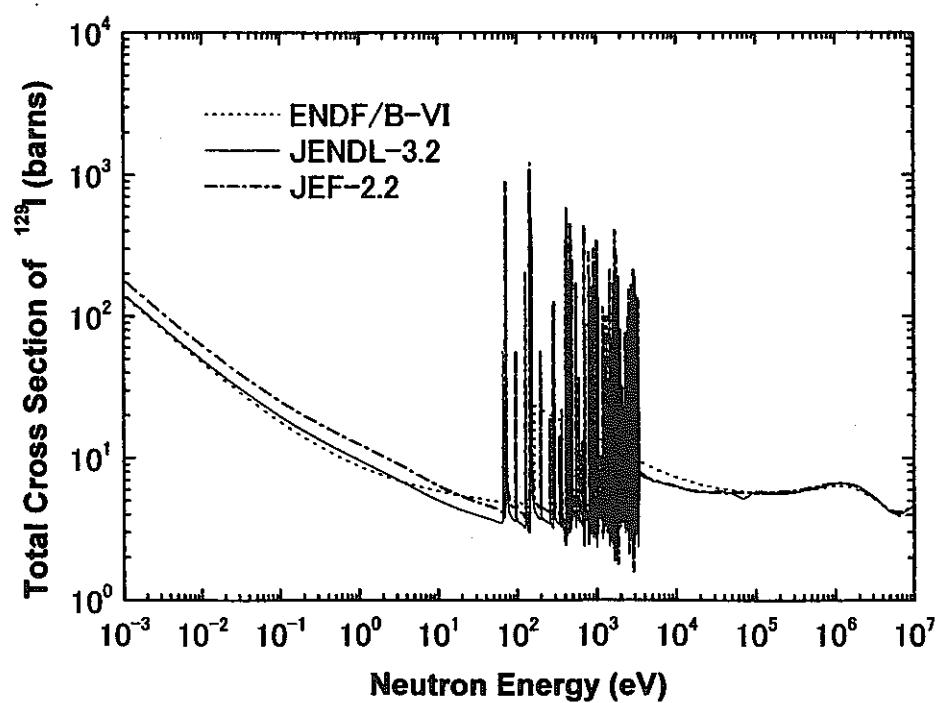


図2.2 I-129 の中性子全断面積の評価済核データ

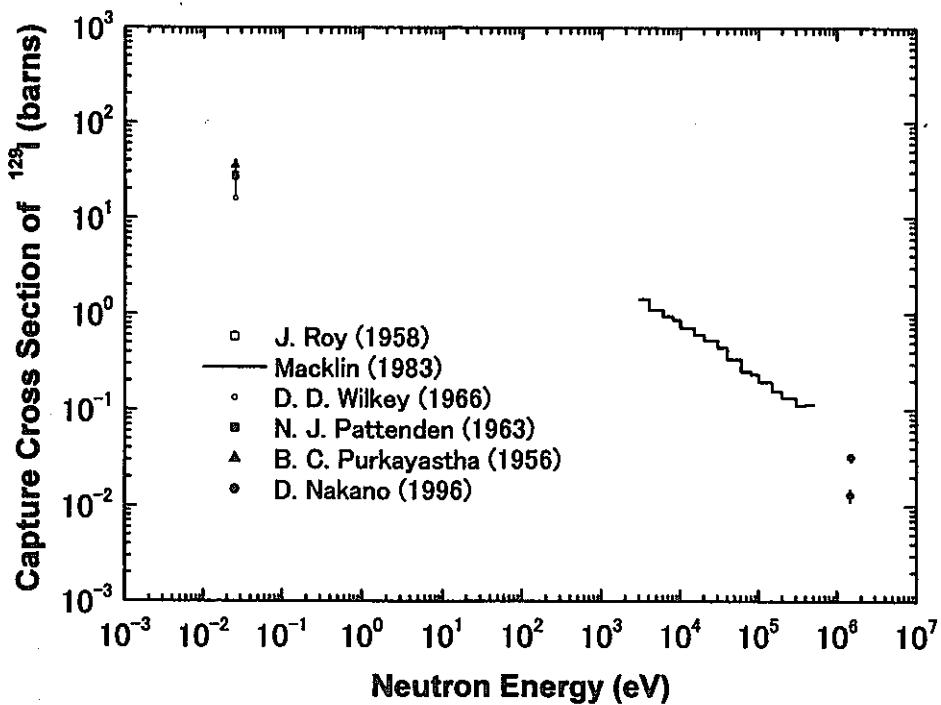


図2.3 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の既存実験データ

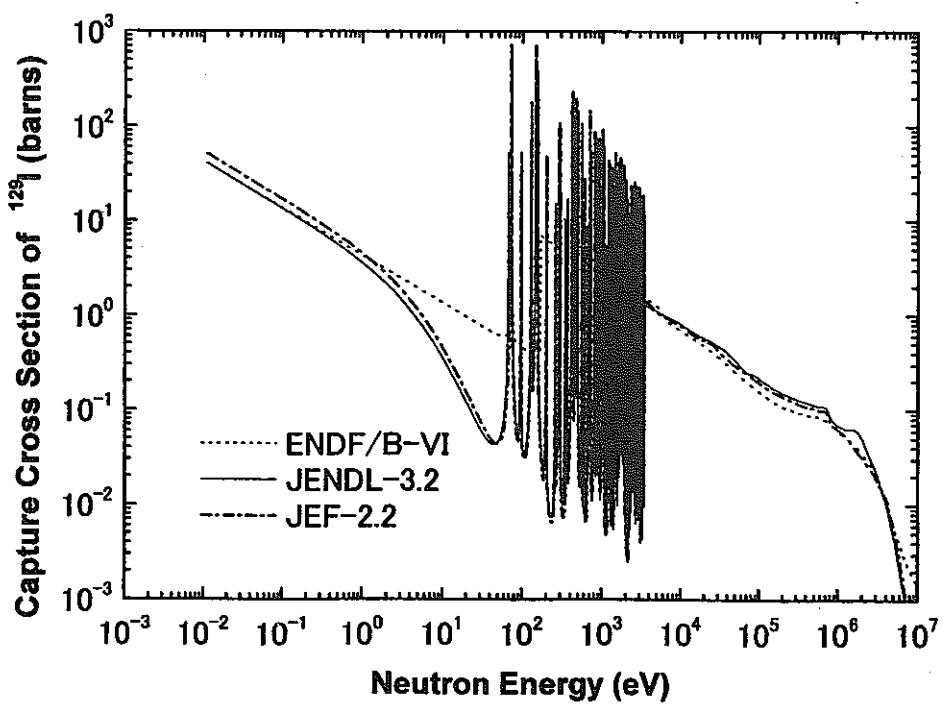


図2.4 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の評価済核データ

3. 飛行時間分析法によるI-129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)元素やマイナーアクチニド(MA)核種のみならず、長寿命の核分裂生成物(LLFP)核種がかなり生成蓄積されている。ヨウ素(I)-129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 1.59×10^7 年である。このようなLLFPやMAは、高レベル放射性廃棄物(HLW)、あるいは強力なアルファ放射体であるため、これらを処理処分する方法、減量・消滅させる方法が検討されている^{1, 2/}。I-129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、これらの処理処分に関する技術的研究開発法として、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変換させる方法が検討されている。I-129は中性子を捕獲すると半減期が約8.9分の¹³⁰I^mまたは半減期が約12.4時間の¹³⁰I^sを経てXe-130の安定核に至る。¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I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0.1~10バーン程度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、70eV付近からレベル密度の詰まった鋭い共鳴ピークを持ち、数keV領域に至ると非分離領域に入る。

I-129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殆んどなく、熱中性子領域(0.0253eV)における数点の実測データ^{/17~20/}とMacklinの測定値^{/21/}、14MeV中性子源を使った測定データ^{/22/}が存在する程度である(図2.3、表2.1)。極く最近では、ベルギーのGeelのグループが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4eVから400eV領域における実験を行ったと言われているが^{/23/}、まだそのデータは公表されていない。また、井頭らもペレトロン加速器を用いてkeV~数100keV領域における¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積の測定を開始している^{/24/}。図2.4の評価済核データは、数10eV領域においてJENDL-3.2とJEF-2.2の評価値がENDF/B-VIのそれに比べ著しく小さくなっていることを除けば、互いにオーバラップする傾向を示している。このように実測データは極めて不十分ではあるが、評価値としては実験データが存在している領域において概ねこれらを再現している。

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、0.004eV~10keV領域における¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I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}B (n, α)反応断面積に対する ^{129}I (n, γ) ^{130}I 反応断面積の相対値を求め、I-129試料における中性子自己遮蔽の効果を補正した後、得られたエネルギー依存断面積を0.0253eVの熱中性子標準断面積(27.04 b、ENDF/B-VI/25/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 I-129試料

I-129試料は、AEA Technology QSA GmbHより購入したもので、ヨウ化ナトリウム(NaI-129)の密封線源として円盤状のチタン製容器に封入したものである。製造元の分析データによると、ヨウ素量は404mg、ガンマ線測定ではI-129に関わる不純物は<0.00005%とされるが、NaI(I-129:404mg、Na:369mg)試料の酸化を避ける目的でイオウ(208mg)の他に酸素(311mg)が混入している。しかし、実際に測定を行った結果では、後に述べるように、僅かに天然のヨウ素(I-127)が含まれているようである。

I-129試料の放射能は約2.7MBqで、NaI-129がチタン製の円盤状容器(窓の厚さ0.4mm)に封入されている。その外径は30mm、厚さ4.9mm、I-129試料は円盤の中央部に封入されており、その内径は20mm、厚さ4.1mmである。I-129試料としての厚さは0.128グラム/cm²である。

また、本実験では、NaI-129試料中のNaの効果を実験的に補正するため、NaI-129に代わってNaI(天然のヨウ素:I-127)を封入したダミー試料も用意した。これもチタン容器に封入されており、寸法、充填量は実験用試料(NaI-129)とほぼ同じである。

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/27/。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実験用の中性子源として使用する。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(直径5cm)と中性子ビームを取り出す方向に、断面が直径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meV～keV領域と(2)～0.5eV近辺以上の高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)低エネルギー領域の場合；パルス幅：3μs、繰り返し：50Hz、電子の加速エネルギー：～30MeV、ピーク電流値：500mA、(2)高エネルギー領域の場合；パルス幅：33ns、繰り返し：300Hz、電子の加速エネルギー：～30MeV、ピーク電流値：4A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心部に配置した減速材タンク(直径30cm、高さ35cm)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±0.02mの飛行距離にセット

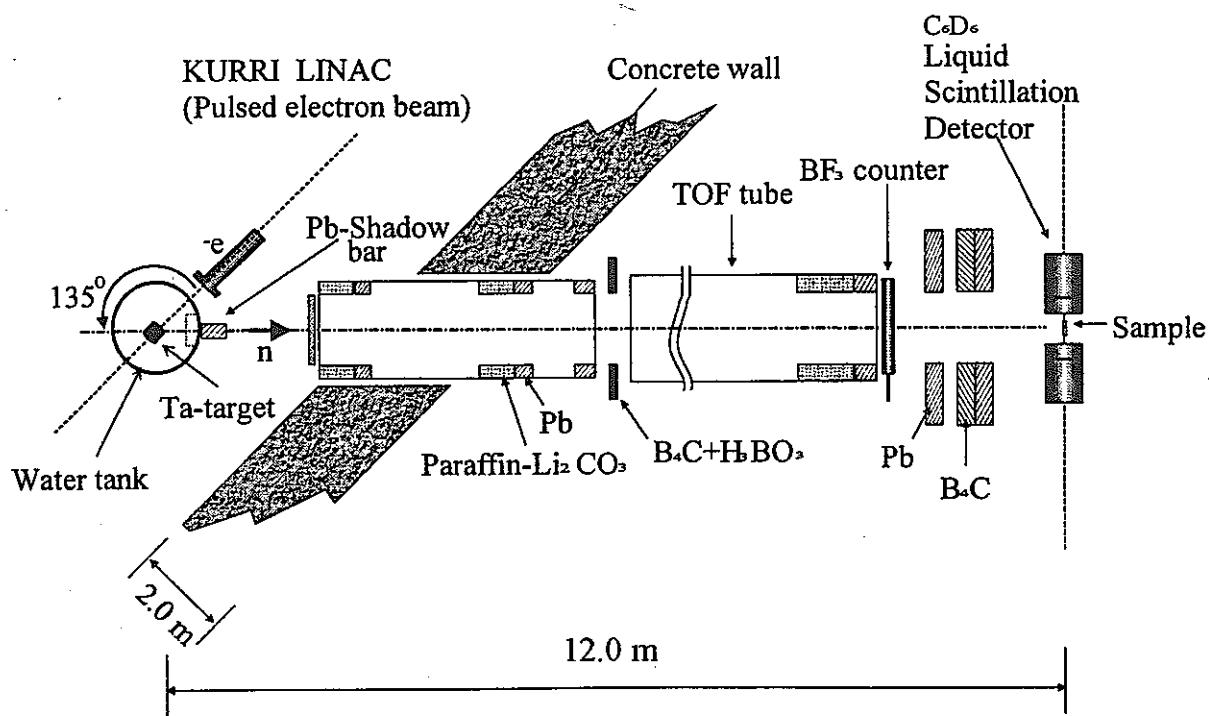


図3.1 飛行時間分析実験の配置図

された実験試料に導かれる。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 C_6D_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。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。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BF₃比例計数管が取り付けられている。

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(即発ガンマ線)を測定する方法により中性子捕獲断面積の測定を行う。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 C_6D_6 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、試料からの捕獲ガンマ線の信号を增幅器、パルス波高弁別器を通してTOF分析実験用の信号として取得、収集した。

3.3 測定と解析

3.3.1 捕獲断面積の測定法

中性子飛行時間測定法は、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めることになる。中性子のエネルギーと飛行時間、飛行距離の関係は(本実験においては相対論に関わる項は無視できる)、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、 $t(\mu s)$ 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I-129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。

$$C_I(E) = \varepsilon_I Y_I(E) \phi(E) \quad (2)$$

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

ここで、 $C_I(E)$ は中性子エネルギーEにおけるI-129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_I 、 ε_B は C_6D_6 シンチレータのI-129、B-10に対する検出効率、 $Y_I(E)$ 、 $Y_B(E)$ はI-129、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/28/。

$$Y_I(E) = \frac{C_I(E)}{C_B(E)} \frac{\varepsilon_B}{\varepsilon_I} Y_B(E) \quad (4)$$

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、 $^{129}I(n, \gamma)^{130}I$ 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、 $\varepsilon_B / \varepsilon_I$ 項は定数扱いとする。ここで、 ε_I は入射中性子エネルギーに依存しないものと仮定した。 C_6D_6 検出器は液体シンチレータであり、容積は必ずしも大きくなないことから、捕獲ガンマ線に対する検出効率 ε_I の中性子エネルギーに対する依存性が心配されるところであるが、従来の実験結果/28, 29/を参考にして本報告では ε_I を定数とみなすこととした。 ε_B は入射中性子エネルギーの如何を問わず480keVガンマ線が1本放出されるので定数とみなした。

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めることとした/28/。

$$Y_I(E) = (1 - \exp(-N_I \sigma_{II}(E) t)) \frac{\sigma_{IC}(E)}{\sigma_{II}(E)} f_I(E) \quad (5)$$

ここで、 N_I はI-129試料の原子密度、 $f_I(E)$ 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。

$$\sigma_{\text{rc}}(E) = \frac{Y_i(E)}{N_i t f_i(E)} \quad (6)$$

3.3.2 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 (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。

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

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

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_M 、 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、

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

によって与えられる。

本実験では、 $dF = 2\text{cm}$ 、 $dL_F = 0.0017t$ 、 $dM = 10\text{cm}$ 、 $dL_M = 0.008t$ 、 $dS = 1.9\text{mm}$ 、 $dL_S \sim 0$ 、 $dL_F = 0.1 \sim 3(\mu s)$ 、 $dL_T = 0.25 \sim 4(\mu s)$ 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。

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, 30, 31/。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/31/。

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(eV)	0.1	1.0	10	100	1,000	10,000
12mのTOF(μs)	2744	867.6	274.4	86.76	27.44	8.676
エネルギー分解能(%)	1.71	1.84	1.71	1.81	2.60	6.43

3.3.3 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。NaI-129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／バックグラウ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。バックグラウンド測定用に用意したダミー試料NaI-127及びチタン試料／板の場合も同様に、同時計数法を用いてそれぞれの捕獲ガンマ線測定を行った。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。実験試料NaI-129及びB-10のフォアグランド測定、ダミー試料NaI-127、Ti及びB-10のバックグラウンド測定のそれについて30～90分毎に繰り返し実験を行った。

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ソコン用コンピュータシステムによりデータを取得、収集した。その後、オフラインとしてデータ処理・解析を行った。本ライナックTOF法による低エネルギー実験では、一連のフォアグランド、バックグラウンド実験に要した総時間は約54時間で、高エネルギー用の実験では約58時間を費やした。

ライナックTOF法による低エネルギー領域(0.004eV～keV領域)の¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積の相対値を0.0253eVの熱中性子標準断面積値27.04b(ENDF/B-VIより引用)に規格化した。続いて高エネルギー領域(~0.5eV近辺以上の領域)のデータを低エネルギー領域のデータとオーバラップしているエネルギー領域0.5～10eVにおいて規格化し、本実験の¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積のデータとした。両エネルギー領域のデータについては、何れも規格化を行う前に、後に述べる中性子自己遮蔽効果の補正を行っている。

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検出器による試料測定と同時にBF₃比例計数管によるTOF測定を行い、測定対象としたエネルギー領域におけるモニターの計数値を積分して、測定データ間の比較・規格化を行った。

図3.2は、本実験において使用したI-129試料(チタン製容器に封入されたNaI-129)のTOFスペクトルをC₆D₆検出器にて測定した例である。製造元のレポートでは、天然ヨウ素(I-127)の混入は問題なしと記載されているものの、図3.2には、図3.3に示す¹²⁷I(n, γ)¹²⁸I反応断面積の共鳴ピーク(20.4, 31.2, 37.7, 45.4, 64-78eVなど)が観測されていることから、I-127がI-129試料中に不純物として混入していると思われる。

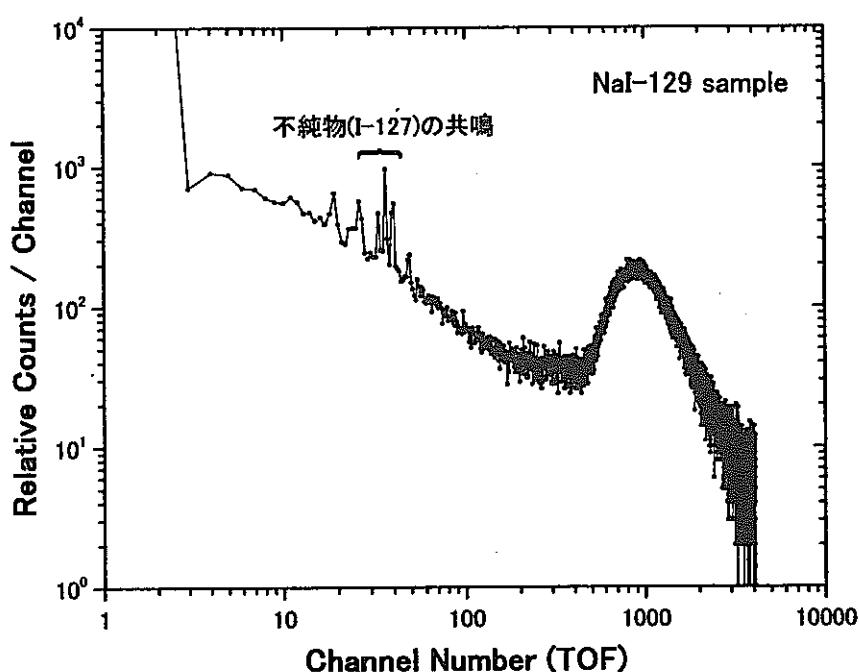


図3.2 NaI-129試料の飛行時間スペクトル測定の例

3.3.4 バックグラウンドの測定

I-129試料からは高エネルギーをもつ誘導放射能のガンマ線放出はなく、図3.4のように高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器による測定の結果、I-129の低エネルギーガンマ線(39.6 keV)が一本観測されているのみである。このことから、他の放射性不純物の混入は殆んど問題ないものと思われる。C₆D₆検出器では、パルス波高弁別レベルを約200keVに設定しているので、I-129試料からの誘導放射能によるバックグラウンドは本実験において十分弁別されており、実験上の問題はない。しかし、C₆D₆シンチレータは中性子に対して殆んど感

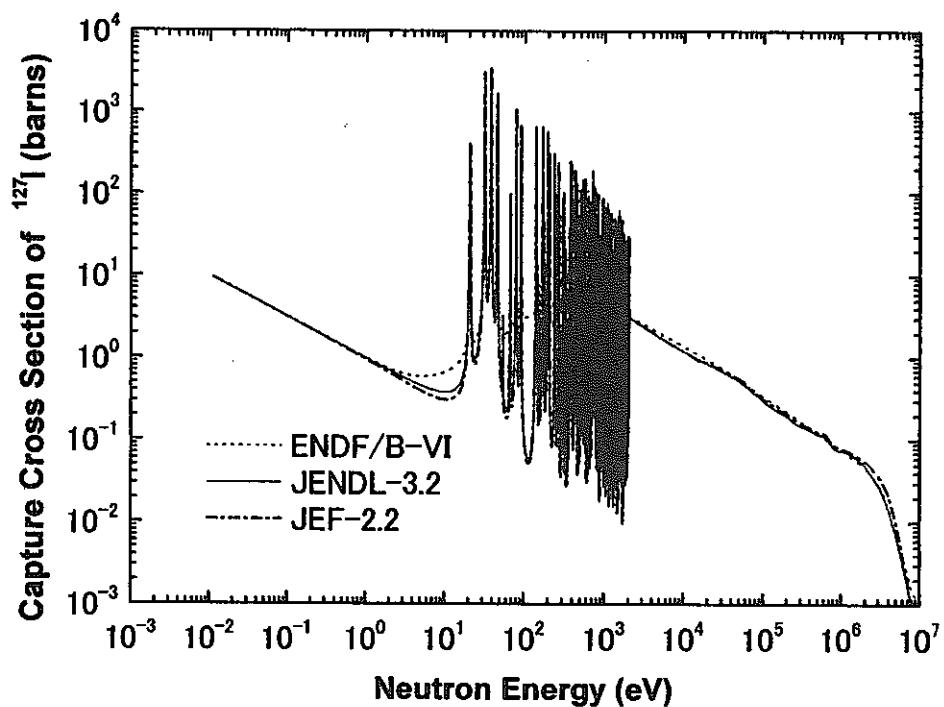


図3.3 $^{127}\text{I}(n, \gamma)^{128}\text{I}$ 反応断面積の評価済核データ

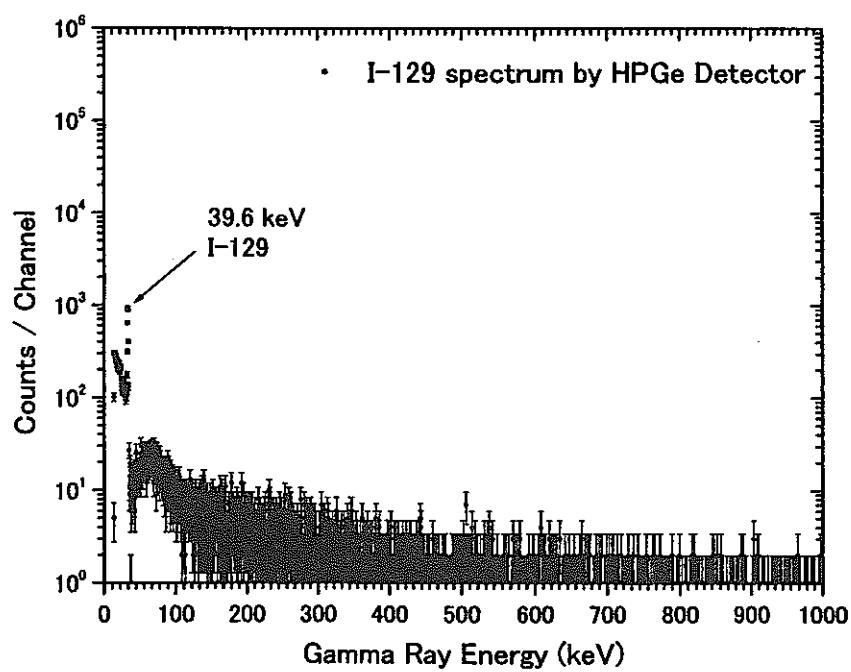


図3.4 NaI-129試料のガンマ線スペクトル測定

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発生するため、これが実験上のバックグラウンドとなる。本実験ではバックグラウンドを低減する手法の一つとして、一対のC6D6検出器に対し同時計数法を採用した。

さらに、チタン容器に封入されているNaI-129試料実験のバックグラウンド測定を目的として、NaI-129試料に代わるNaI-127試料を封入したダミー試料を用意した。これは実験上のバックグラウンドのみならず、混入しているNaの効果を実験的に差し引き／補正するためにも有用な試料である。図3.5はダミー試料(NaI-127)によるTOFスペクトルの測定例であるが、これにはI-127の共鳴ピークが観測されている。このピークが図3.2のNaI-129試料測定においても観測されていることから、NaI-129試料にはI-127が不純物として混入していることが予想される。また、実験的に試料容器の効果を差し引き／補正するためのバックグラウンド測定として、容器と等価な反応率を示すように準備されたチタン試料／板についても測定を行った。図3.6はチタン試料によるバックグラウンド測定の一例であるが、これにはもちろんI-129, I-127の共鳴ピークは観測されていない。

3.3.5 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の導出

本実験において使用した試料はチタン容器入りのNaI-129であるため、 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積測定においてはNaとTiの混在が問題となる。そこで、これらの核種による影響を差し引き／補正するために、本実験においては以下のようにして $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応の断面積を導出することとした。

- 1) まず、チタン容器に封入したNaI-129試料のフォアグランド測定を行う。
- 2) 次にチタン容器と等価なチタンを試料としたバックグラウンド測定を行う。
- 3) 両データを中性子モニター計数値に規格化した後、差し引き／補正を行うとチタン容器の効果及び実験上のバックグラウンドは差し引かれ、NaI-129に起因するデータが残る。これにホウ素Bのプラグを用いて求めた中性子束／スペクトルを適用すれば、NaI-129の実効的な中性子捕獲断面積が求まる： $\sigma \{(I-129)+(不純物I-127)+(Na)\}$ 。
- 4) 続いてダミー試料(NaI-127)についても同様に実験と解析を進め、NaI-127に関する実効的な中性子捕獲断面積を導出する： $\sigma \{(I-127)+(Na)\}$ 。
- 5) 次の関係式のように、3)と4)の結果から3)のデータ中に見られる不純物I-127の共鳴構造がなくなるよう定数Fを決定する。この段階では $^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応断面積の寄与／項は $F' \times \sigma (\text{Na})$ として残ることになる。

$$\sigma \{(I-129)+(不純物I-127)+(Na)\} - F \times \sigma \{(I-127)+(Na)\} = \sigma (I-129) + F' \times \sigma (\text{Na})$$

- 6) I-127は不純物であることから、Fは小さい値であることが予測できる。
- 7) さらに $^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応断面積は比較的よく求められており、2.85keVに大きな共鳴をもつが図3.7に見られる様に、 $^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応断面積は $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ や $^{127}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{128}\text{I}$

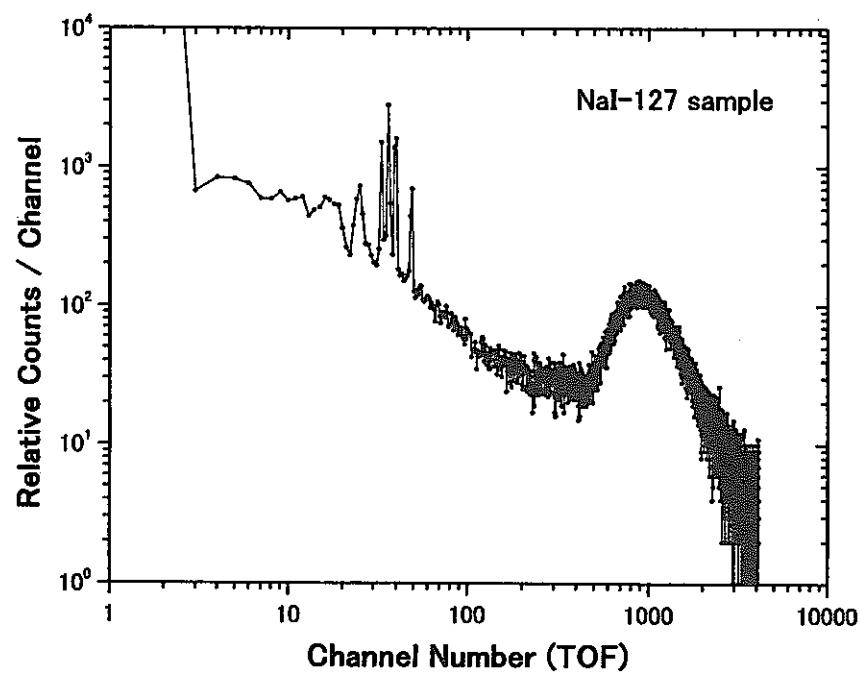


図3.5 ダミー試料NaI-127の飛行時間スペクトル測定の例

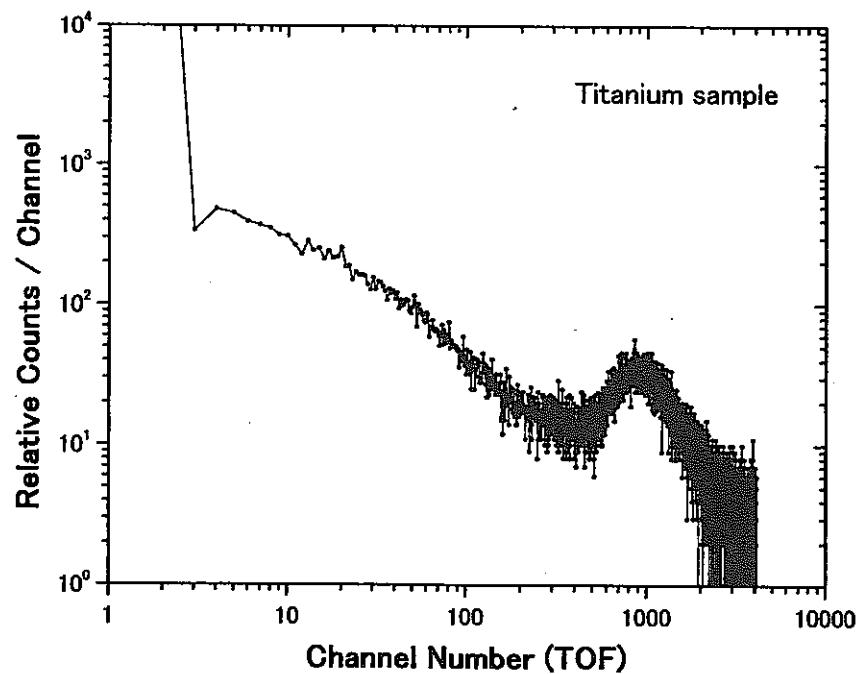


図3.6 バックグラウンド測定用のチタン試料による飛行時間測定の例

反応断面積に比べて1~2桁も小さいことから、 $\sigma(\text{Na})$ の効果の補正に伴う誤差は十分実験誤差(主として統計誤差)内に収まるものとなり、5)に示した式において $\{F \times \sigma(\text{Na}) = 0\}$ とみなすことができる(即ち $\sigma(\text{Na}) = F' \times \sigma(\text{Na})$)として、 $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応断面積の寄与分を差し引き／補正し $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応の断面積を導出した。NaI-129試料中のI-129量に対するNa量について、ENDF/B-VIの評価済データを用いて補正計算を行った。

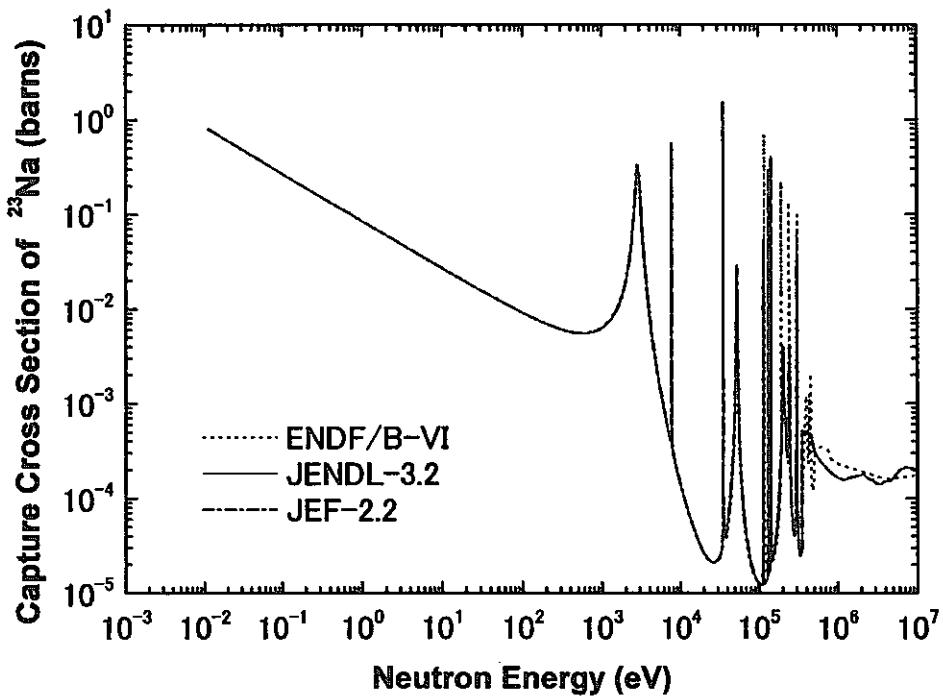


図3.7 $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応断面積の評価済核データ

3.3.6 中性子自己遮蔽効果の補正

本実験に使用したI-129は、比較的薄いNaI試料(厚さ4.1mm、 $0.128\text{グラム}/\text{cm}^2$)をチタン製容器に封入したものである。I-129は図3.2に見るように数10eVからkeV領域において鋭い共鳴ピークが存在しているので、これらによる中性子の自己遮蔽効果の他に、NaI試料中のNaやチタン容器による中性子の吸収・散乱効果も検討しておく必要がある。本研究では、従来行ってきた補正計算法である連続エネルギー減速モンテカルロコードMCNP/11/によって、試料中における中性子の自己遮蔽及び散乱の効果を計算し、測定結果に対して補正を行った。中性子TOFビームが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)を計算した。次に、対象とするNaI-129について十分希釈された状態(密度を6桁落とした)の計算を行い、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 $f_1(E)$ を算出し、これを実験試料NaI-129の補正関数とした。図3.8は、その補正関数を示している。この図はI-129の自己遮蔽効果を見るために、Naの自己遮蔽・散乱による(2.85keVなどの)効果は既に補正した結果である。100eV前後の共鳴は共鳴幅が狭いこともあるって、補正係数は約2%と従来のもの/28, 29/に比べ予想外に小さいが、熱中性子領域でも僅かに補正を要することが分かる。

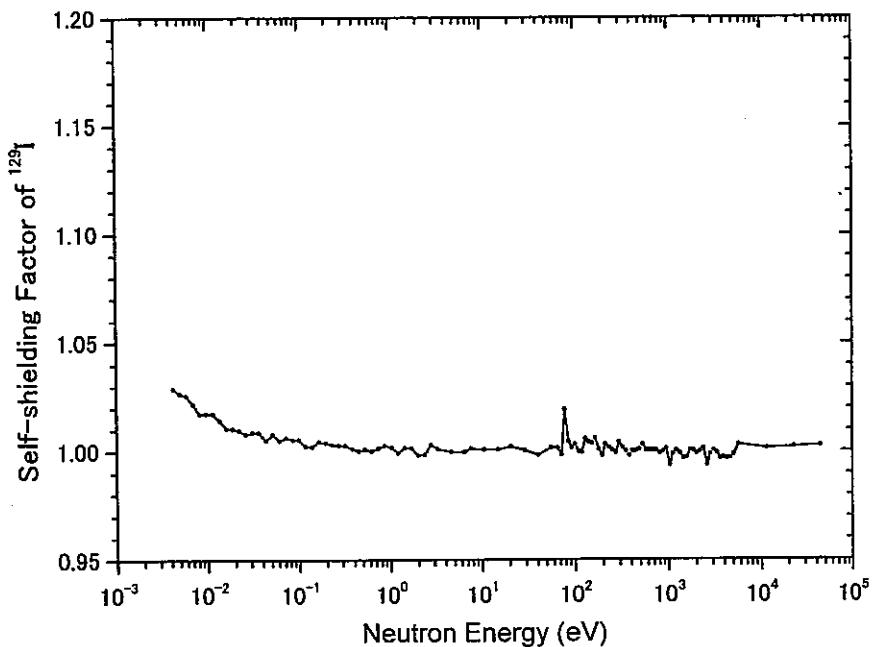


図3.8 NaI-129試料に対する中性子自己遮蔽の補正関数

3.4 測定結果

ライナックTOF法を用いて0.004eVから10keV領域における $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積を $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応断面積に対する相対値として測定した。本実験に用いたNaI-129における中性子自己遮蔽の効果とNaの寄与分について補正を行った後、0.0253eVの熱中性子標準断面積値27.04 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3.9に示す。主な実験誤差は、①統計誤差として0.5%~180%、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4.1%~180%になる。試料容器も含めたバックグラウンドの差し引きに関する誤差は①に含まれるが、NaI-129試料中のNa、不純物I-127の補正に関わる定量的な誤差は含まれていない。しかし、これらは統計誤差の範囲内に十分収まるものと思われる。

図3.9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。3keV以上の非分離共鳴領域において、Macklin/21/が求めた測定値は、本実験値と誤差の範囲内において一致している。表2.1に見られるように、 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応の熱中性子(0.0253eV)断面積はいくつか求められているが、これ以外では低エネルギー領域、特に3keV以下のエネルギー領域では $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の測定例は報告されていない。最近、Geelのグループが $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積を測定したと言われているが/23/、まだ公表されていないようである。また、我が国においては東京工大の井頭らのグループがペレトロン加速器を使ってkeV～数100keV領域で実験を行っている/24/。

$^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の評価済核データは、ENDF/B-VI、JENDL-3.2、JEF-2.2に収納されている。これらを図3.8に示す。ENDF/B-VIは全体に本実験値に近いが、JENDL-3.2およびJEF-2.2の評価値は数eVから60eV近辺までの領域で大きな凹みを示し、本実験値及びENDF/B-VIデータに比べて明らかに低い。今回我々は $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積について、従来では求められていなかったエネルギー領域において新しいデータを提供することができた。

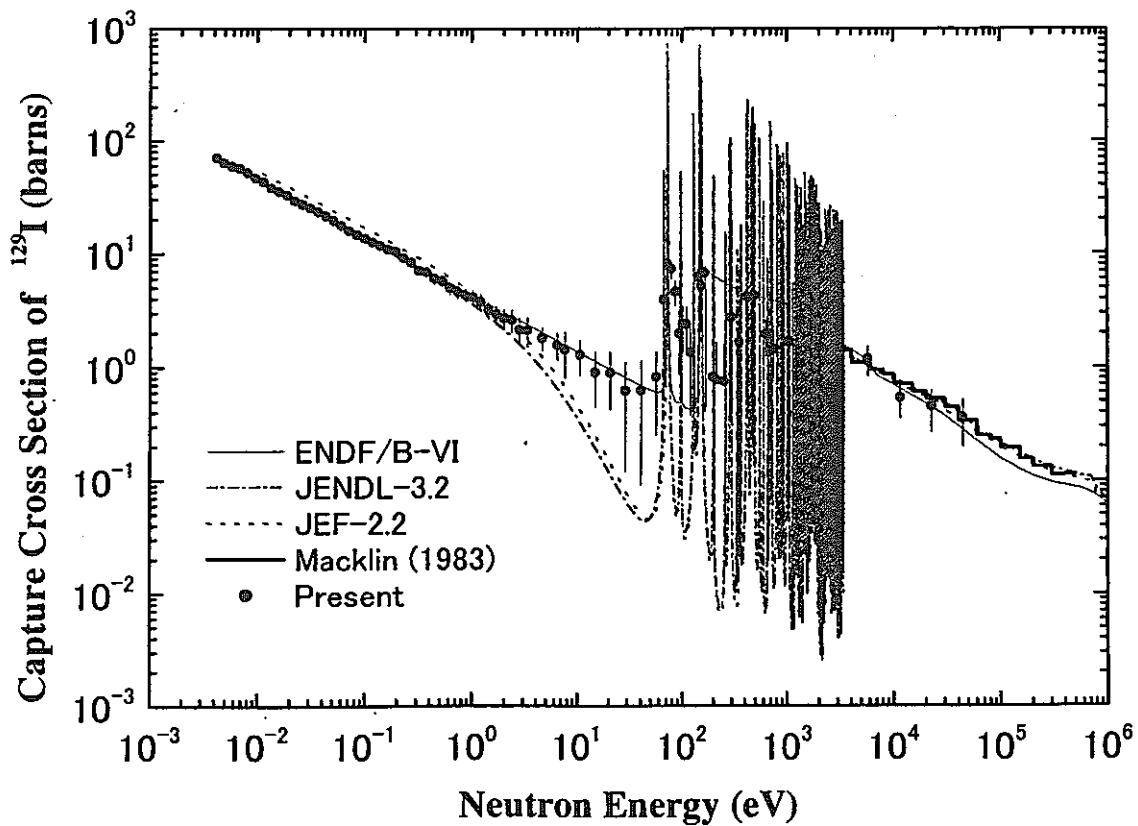


図3.9 $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ 反応断面積の測定結果と既存の実験値、評価値の比較

4. まとめと今後の課題

4.1 まとめ

我々は、ここ数年来、鉛スペクトロメータ(KULS)や電子線型加速器(ライナック)を用いてマイナーアクチニド(MA)核種及び長寿命核分裂生成物(LLFP)核種の核変換／消滅に関する基礎的な核データの測定を試みて来たが、本研究では、これらの核データに関する実験研究の一環としてLLFPであるヨウ素(I)-129を取り上げ、その中性子捕獲断面積を~0.004 eVから10keV領域において測定した。本実験の方法は、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(TOF)分析法と一対のC₆D₆検出器による捕獲ガンマ線の測定によった。得られた実験結果をもとに、従来の実験データ、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)まず、I-129の中性子全断面積、中性子捕獲断面積に関する核データの現状を調査した結果、これらの実測データについては殆んど求められていないのが実状である。中性子捕獲断面積については、0.0253eVにおけるデータ、3keV~400keVでのMacklinのデータおよびNakanoらによる14MeV中性子源を用いたデータが存在するのみである。
- (2)次に、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、I-129試料より放出される中性子捕獲ガンマ線を一対のC₆D₆液体シンチレータを用いて測定した。
- (3)I-129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0.004eVから10keV領域における¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積を測定した。得られた結果に対し、NaI-129試料の中性子自己遮蔽効果、²³Na(n, γ)²⁴Na反応断面積の寄与部を補正した後、0.0253eVにおける標準的な断面積値(27.04 b、ENDF/B-VI値)に規格化した。
- (4)3keV~400keVにおけるMacklinの測定結果は、本実験値と誤差の範囲内においてよい一致を示した。しかし低エネルギー領域においては、熱中性子断面積を除き、実測データが存在していない。
- (5)評価済核データJENDL-3.2, JEF-2.2は、数10eV領域でENDF/B-VIの評価値より著しく低くなっているが、他の領域では3評価データは一致の傾向にある。本実験値との比較では、ENDF/B-VIは全体に一致しているが、JENDL-3.2, JEF-2.2では数10eV領域で明らかに低いことが分かる。

4.2 今後の課題

我々は、従来よりライナックによるTOF実験法や鉛スペクトロメータを用いて、数10keV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I-129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、これらの捕獲ガンマ線をC₆D₆液体シンチレータによって測定し、捕獲断面積の相対測定を行った。今後は測定手法の充実／開発とそれに適した試料を準備して絶対測定を実施することが望まれるところである。

本実験では、放射性同位元素試料としてNaI-129を使用することになったが、これに混在しているNaとI-129の不純物I-127の影響を差し引く／補正する必要があった。幸い²³Na(n, γ)²⁴Na反応断面積は、I-129やI-127の(n, γ)反応断面積に比べて1～2桁小さいことと、比較的信頼のおけるデータが得られていることから、これらの補正における誤差はそれ程問題とはならないことが期待できる。

次に、C₆D₆検出器は容積が直径11cm、厚さ5cmの液体シンチレータであることから、捕獲ガンマ線測定における検出効率のエネルギー依存性について予め検討しておく必要がある/28/。我々は、²³⁷Np(n, γ)²³⁸Npや⁹⁹Tc(n, γ)¹⁰⁰Tc反応断面積の測定において、この問題を実験的に検証してきたが/28, 29/、これらの場合には検出効率を定数扱いとすることに大きな問題がないことを確認した/28, 29/。C₆D₆検出器を用いる場合(一般的に他の実験試料の場合も同様であるが)、¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積の測定においても、その検出効率のエネルギー依存性について、特に中性子共鳴ピークが観測される領域においては定量的な評価を行う必要があろう。将来は¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積測定におけるこの問題を実験的に明らかにするとして、本報告では検出効率は定数／一定であると仮定することとした。¹⁰B(n, α)反応の測定では、入射中性子の如何を問わず480keVガンマ線1本の放出となるので、その検出効率は定数／一定とみなすことができる。

今回は¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I反応断面積の測定に鉛スペクトロメータを利用するまでには至らなかった。鉛スペクトロメータでは、数10keV以下のエネルギー領域においてエネルギー分解能が35～40%程度にもなるが、中性子束がTOF法に比べ一万倍にもなる強力なスペクトロメータとして利用できるので、その特徴を生かした実験を行うことができる。全く異なるこれら両実験手法による測定結果を比較検討することができれば、より信頼度の高いデータを取得する上でも有益となろう。

【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. Res. A, 385, 145-156 (1997) (付録C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/ CINDA : The Index to Literature and Computer Files on Microscopic Neutron Data, Published on Behalf of USA National Nuclear Data Center, NEA Data Bank, and IAEA Nuclear Data Section, IAEA, Vienna, 1990 and 2000.
- /15/ C. Nordborg and M. Salvatores, "Status of the JEF Evaluated Data Library, " Proc. Int'l Conf. Nucl. Data Science and Technology, Gatlinberg, Tennessee, Vol. 2, ANS, 680 (1994).
- /16/ T. Nakagawa, "Neutron Data Storage and Retrieval System", JAERI Nuclear Data Center (1995).

- /17/ B. C. Purkayastha and G. R. Martin, Canadian J. Chem., 34, 293 (1956).
- /18/ J. Roy and D. Wuschke, Canadian J. Chem., 36, 1424 (1958).
- /19/ N. J. Pattenden, Nucl. Sci. Eng., 17, 371 (1963).
- /20/ D. D. Wilkey and J. E. Willard, J. Chem. Phys., 44, 970 (1966).
- /21/ R. L. Macklin, Nucl. Sci. Eng., 85, 350 (1983).
- /22/ D. Nakano et al., JAERI-97-004, p.177 (1996).
- /23/ F. Gunsing, Private communication (Jan. 2002).
- /24/ 井頭政之、私信(2月, 2002)。
- /25/ 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).
- /26/ 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).
- /27/ K. Kobayashi et al., Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., 22, 142 (1987).
- /28/ K. Kobayashi et al., J. Nucl. Sci. Technol., in print (付録D参照).
- /29/ K. Kobayashi et al., J. Nucl. Sci. Technol., to be published (付録E参照).
- /30/ 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).
- /31/ R. E. Slovacek et al., Nucl. Sci. Eng., 62, 455 (1977).

付 錄

付録A : CINDAに掲載のデータ

- - - - - 31

付録B : ^{129}I (n, gamma)反応断面積の実験データの現状
===== EXFORより引用 =====

- - - - - 35

付録C : 京都大学鉛スペクトロメータ

- - - - - 39

付録D : Measurement of Neutron Capture Cross Section
of ^{237}Np by Linac Time-of-Flight Method and with
Linac-driven Lead Slowing-down Spectrometer

- - - - - 55

付録E : Measurement of Neutron Capture Cross Section
of ^{99}Tc Between 0.007 eV and 47 keV

- - - - - 65

付録F : Neutron Capture Cross Section Measurements of
 Tc-99 and Rh at Energies below 40 keV by Linac
Time-of-Flight Method

- - - - - 73

付録A

CINDA (1935-1987) に掲載のデータ

53 Iodine 129

Quantity	Energy (ev)	Lab	Type	Documentation Ref Vol Page	Author, Comments	Date	Data
	Min	Max					
Evaluation	1.0 - 3	1.5 + 7	AUA Eval	Rept AAEC/TM - 549 Rept AAEC/E - 214 Rept AAEC/TM - 587	Jun 70 Cook.TOT,EL,INEL,NONE,L,CAPT SIGS,NDG Jun 71 Bertram + GROUP SIGMAS SAME QUANTS,NDG	+ + +	
Evaluation	1.0 - 3	1.5 + 7	BOL Eval	Data AUSTR - DFN 110.	Mar 71 DESCRIPTION OF LIBRARY		
Evaluation	1.0 + 3	1.0 + 7	BOL Eval	Rept CEC(71) - 2	Nov 71 POINT(223) AND GROUP(127) SIGMAS		
Evaluation	1.0 + 3	1.0 + 7	BOL Eval	Data BENZI - DFN 540A	71 Benzi + STAT+EVAP MDS,INEL,N2N,NG,TBL	+ +	
Evaluation	1.0 + 2	1.5 + 7	JAE Eval	Rept JAERI - M - 5752	Mar 71 4 QUANTITIES. UK FORMAT		
Evaluation	1.0 - 5	1.5 + 7	JAE Eval	Rept JAERI - 1268	Jul 74 Igarasi + JNDC FPND WG.TOT,EL,N,CAP		
Evaluation				Jour NST 14 161	Feb 81 Kikuchi + TOT,SEL,SIN,NG,RES,JENDL - 1	+ +	
Evaluation				Conf 75Wash. 320	Mar 77 Iijima + STAT+OPTMOD.EVALS COMPARED.		
Evaluation				Data JENDL - 1	Mar 75 Igarasi + EVAL METHOD.MODEL PARAMS.		
Evaluation	1.0 - 5	1.5 + 7	JAE Eval	Data JNDC - FFP - WG	Nov 77 TOT,EL,INEL,NG,AV SCT ANGLE,RES I		
Evaluation	1.0 - 3	1.5 + 7	RCN Eval	Rept ECN - 33	Jul 77 TOT,EL,INEL,CAPTURE,AV SCT ANGLE	+ +	
Evaluation	1.0 - 3	1.5 + 7	RCN Eval	Data RCN - 2	Oct 77 Gruppelaar.RCN - 2 EVL.VOL 2.FP.TBL.		
Evaluation	1.0 - 3	1.5 + 7	RCN Eval	Rept RCN - 3	Apr 78 DATA FILE,KEDAK FORMAT		
Evaluation	- 5	2.0 + 7	FEI Eval	Book BROND 119	82 Gruppelaar + DATA FILE, KEDAK FORMAT		
Evaluation				Rept INDC(CCP) - 283	86 Ignatyuk + SUMMARY OF EVALUATION	+ +	
Evaluation				Data BROND - 5391	Mar 88 ENGL. TRANSLATION OF BROND - SUMMARY		
Evaluation	+ 0	2.0 + 7	RCN Eval	Rept ECN - 86 - 152	85 COMPLETE EVALUATION		
Total	2.0 - 2	4.5 - 2	ORL Expt	Jour NSE 8 112	86 Van Der Kamp + NEW EVAL FOR JEF - 2		
Total		- 2	1.0 + 2	Conf 58Geneva 16 150	Aug 60 Block +,FC SIG(0.253EV)=35 + - 4B TABLE	+ +	
Total	2.0 - 2	4.5 - 2		Data EXFOR12024.003	Sep 58 Harvey +,PPR673,TRANSMISSION CURV GVN		
Total	1.0 - 3	1.5 + 7	AUA Eval	Data AUSTR - DFN 110.	Jun 76 24 PTS. SIGMA.		
Total	1.0 - 3	1.5 + 7	RCN Eval	Rept ECN - 33	Nov 71 COOK + POINT(223) + GROUP(127)SIG.CF EVL	+ +	
Total	1.0 - 3	1.5 + 7		Data RCN - 2	Oct 77 Gruppelaar.RCN - 2 EVL.VOL 2.FP.TBL.		
Total	1.0 - 5	1.5 + 7	JAE Eval	Rept JAERI - 1268	Apr 78 DATA FILE,KEDAK FORMAT		
Elastic	1.0 - 3	1.5 + 7	AUA Eval	Data AUSTR - DFN 110.	Feb 81 Kikuchi + TABLE AND FIG GIVEN,JENDL - 1		
Elastic	1.0 - 3	1.5 + 7	RCN Eval	Rept ECN - 33	Nov 71 COOK + POINT(223) + GROUP(127)SIG.CF EVL	+ +	
Elastic	1.0 - 3	1.5 + 7		Data RCN - 2	Oct 77 Gruppelaar.RCN - 2 EVL.VOL 2.FP.TBL.		
Elastic	1.0 - 5	1.5 + 7	JAE Eval	Rept JAERI - 1268	Apr 78 DATA FILE,KEDAK FORMAT		
Tot Inelastic	2.8 + 4	1.0 + 7	BOL Eval	Rept CEC(71) - 2	Feb 81 Kikuchi + TABLE GIVEN		
Tot Inelastic	2.8 + 4	1.0 + 7		Data BENZI - DFN 540A	71 Benzi + STAT MODEL. TBL GIVEN.	+ +	
Tot Inelastic	5.0 + 5	1.5 + 7	AUA Eval	Data AUSTR - DFN 110.	Mar 71 51 PNTS		
Tot Inelastic	Fast		NIG Revv	Conf IAEA - 213 1 279	Nov 71 COOK + POINT(11) + GROUP(127)SIG.CF EVL		
Tot Inelastic	2.8 + 4	1.5 + 7	JAE Eval	Rept JAERI - 1268	78 Iijima. 3LIBRARS,2FORMULA,VALUES GVN		
Diff Inelast	2.8 + 4	1.0 + 7	BOL Eval	Rept CEC(71) - 2	Feb 81 Kikuchi + TABLE AND FIG GIVEN,JENDL - 1		
Diff Inelast	2.8 + 4	2.0 + 5		Data BENZI - DFN 540A	71 Benzi + DISCRETE INELASTIC. 1 LVL	+ +	
Diff Inelast	2.0 + 5	1.0 + 7		Data BENZI - DFN 540A	Mar 71 IST LVL +ANGDIST+E DIST		
Diff Inelast	1.0 - 3	1.5 + 7	RCN Eval	Rept ECN - 33	Mar 71 TO CONTINUUM, 39PNTS +ANGDIST+E DIST		
Diff Inelast	1.0 - 3	1.5 + 7		Data RCN - 2	Oct 77 Gruppelaar.RCN - 2 EVL.VOL 2.FP.TBL.	+ +	
Nonelastic	1.0 - 3	1.5 + 7	AUA Eval	Data AUSTR - DFN 110.	Apr 78 DATA FILE,KEDAK FORMAT		
Absorption	2.5 - 2		ORL Expt	Jour NSE 8 112	Nov 71 COOK + POINT(223) + GROUP(127)SIG.CF EVL		
Absorption	2.5 - 2			Data EXFOR12024.002	Aug 60 Block +,FC 31 + - 4B SIG(TOT) - SIG(SCT)	+ +	
Absorption	4.1 - 1	1.0 + 7	GA Eval	Rept GA - 2451	Jun 76 1 PT. SIGMA. TOT - SEL.		
Absorption	1.0 - 3	1.0 + 7	JUL Eval	Rept JUEL - 678 - RG	Aug 61 Joanou + .68GROUP DATA FOR GAM - I		
Absorption	2.5 - 2		IJI Eval	Conf 77Kiev 4 94	Jul 70 Liu. EVALUATION+CALC,GRPH,FN OF E		
Res Int Abs	5.0 - 1		CRC Expt	Jour CJC 36 1424	Apr 77 Fedorova + RECOM SIG+ERROR GIVEN		
Res Int Abs	5.0 - 1			Conf 58Geneva 16 54	Oct 58 Roy + ACT NRX CD RATIO, =36 + - 4B	+ +	
Res Int Abs				Data EXFOR12005.004	Sep 58 SUPERSEDED		
Res Int Abs	None		ORL Eval	Rept ORNL - 2869	Jun 76 1 PT.		
Res Int Abs	+ 3	+ 5	BOL Theo	Conf 61Vienna 1 179	Mar 60 Nephew.I/V UP +TO100EV, ALSO 3 ES - UP		
Res Int Abs	5.0 - 1		BOL Eval	Conf 61Vienna 1 179	Aug 61 Benzi +,PPR11,VAL GVN,L=0,L=1,CAPT.		
Res Int Abs	5.5 - 1		GA Eval	Jour NSE 12 115	Aug 61 Benzi + TBL TOTAL CAPT RES INTS.		
Res Int Abs	Maxwl	+ 2	ORL Expt	Jour NSE 17 371	Jan 62 Garrison +,R1 = 39 + - 10 B, FROM RES.PAR		
Res Int Abs	None		CRC Eval	Rept AECL - 2111	Nov 63 Pattenden.22 + - 7B		
Res Int Abs	5.0 - 1		BOL Eval	Rept RT/FI - 4	Nov 64 Walker.REDUCED RESONANCE INTEGRAL		
					Jan 67 Palmucci. CALC FROM (N,G) RES PARAMS		

53 Iodine 129

Quantity	Energy (ev)	Lab	Type	Documentation	Author, Comments	Date	Data
	Min	Max		Ref Vol Page			
Res Int Abs	None	GA	Eval	Rept GA - 12071	Sep 71 Mathews+. RECOMMENDED VALUES		
Res Int Abs	5.5 - 1	CRC	Eval	Rept AECL - 3037 1	Jan 72 Walker.REDUCED RES INT,DETAILED TBL		
Res Int Abs	5.0 - 1	AUA	Eval	Rept AAEC/TM - 619	Sep 72 Clayton.CALC FROM SIG LIBRARY, TABLE		
Res Int Abs	4.6 - 1	1.0+6	RCN	Theo Rept RCN - 191	Jul 73 Lautenbach.CAPT INT FROM GROUP SIGMA		
Res Int Abs	5.5 - 1	+6	SAC	Revv Conf IAEA - 169 1 235	74 Ribon.CAPTURE,STATUS CFD REQUEST,TBL		
Res Int Abs	+0	+5	WIN	Revv Conf IAEA - 169 3 163	74 Pope+ DATA FILE CALC CFD XPTAL VALUE		
Res Int Abs	5.0 - 1	JAE	Eval	Jour NST 14 161	Mar 77 Iijima+ RES INTEGRAL.CAPTURE.		
				None	Mar 75 Igarasi+ TBL REC CAPTURE INTEGRAL		+
				5.0 - 1	Jul 74 - + CAPTURE INT. I/V+RES TERMS		
				5.0 - 1	Nov 77 IPNT.CAPTURE		
Res Int Abs	5.5 - 1	MUNComp	Jour	JRC 42 181	Jan 78 Gryntakis+,12 VALUES+STANDARDS GIVEN		
Res Int Abs	5.0 - 1	IAE	Eval	Book OKAMOTO 199	Apr 87 Gryntakis+.ACTIV.TBL:INCLUD I/V PART		
(n, γ)	Pile	LAS	Expt	Jour PR 71 826	Jun 47 Katcoff.FROM U FISS,AND II31 ACT.		
(n, γ)	Maxwl	DUR	Expt	Jour CJC 34 293	Mar 56 Purkayastha+ NRX 35B		
(n, γ)	Maxwl	DUR	Expt	Data EXFOR21393.002	Feb 80 IPNT.SIGMA.		
(n, γ)	2.5 - 2	CRC	Expt	Jour CJC 36 1424	Oct 58 Roy+ ACT 26.7 AND 27.7B EFFECTIVE		
				Conf 58Geneva 16 54	Sep 58 Eastwood+		
				Data EXFOR12005.003	Jun 76 1 PT. SIGMA.		
(n, γ)	+3	+5	BOL	Theo Conf 61Vienna 1 179	Aug 61 Benzi+.PPR11, TABLE FOR 3ES		
(n, γ)	2.5 - 2	ORL	Expt	Jour NSE 17 371	Nov 63 Pattenden.28.0+ - 2B		
				Data EXFOR12025.006	Jun 76 1 PT. SIGMA. FROM FIT TO TOT.		
(n, γ)	Maxwl	CRC	Eval	Rept AECL - 2111	Nov 64 Walker.		
(n, γ)	Maxwl	WIS	Expt	Jour JCP 44 970	Feb 66 Wilkey+		
				Data EXFOR12014.	Jun 76 3 PTS. SIG TO GND,META,ISOM RAT M/G		
(n, γ)	2.5 - 2	BOL	Eval	Rept RT/FI - 4	Jan 67 Palmucci. CALC FROM RES PARAMETERS		
(n, γ)	Maxwl	AUA	Theo	Jour NSE 31 234	Feb 68 Cook+ STATISTICAL CALC CFD EXPT		
(n, γ)	5.0+3	1.0+5	AUA	ExTh Rept AAEC/E - 198	May 69 Musgrove,S+P+D WAVE SIGMAS CALC,TBL		
(n, γ)	1.0+3	1.0+7	BOL	Eval Rept CEC(71)-2	71 Benzi+ OPTMOD EVAL.TBL GIVEN.		
				Conf 66Paris 1 537	Oct 66 - +,PPR.115,STATIST MOD +XPT D,WG		
				Jour NC 38 216	Jul 65 - + THEORY FOR CAPTURE EVALUATION		
	1.0+3	1.0+7		Data BENZI - DFN 540A	Mar 71 62 PNTS		
(n, γ)	Maxwl	GA	Eval	Rept GA - 12071	Sep 71 Mathews+. RECOMMENDED VALUES		
(n, γ)	1.0 - 3	1.5+7	AUA	Eavl Data AUSTR - DFN 110.	Nov 71 COOK + POINT(223)+ GROUP(127)SIG.CF EVL		
(n, γ)	Maxwl	CRC	Eval	Rept AECL - 3037 1	Jan 72 Walker.RECOMMENDED SIG,DETAILED TBL		
(n, γ)	2.5 - 2	AUA	Eavl	Rept AAEC/TM - 619	Sep 72 Clayton.CALC FROM SIG LIBRARY, TABLE		
(n, γ)	1.1+7	RCN	Theo	Rept RCN - 191	Jun 73 Lautenbach. GROUP CONSTANTS TBL		
(n, γ)	Fast	MTR	Expt	Prog USNDC - 9 6	Dec 73 Harker+.ACT. CFRMF. NO DATA GIVEN.		
(n, γ)	2.5 - 2	3.0+4	SAC	Revv Conf IAEA - 169 1 235	74 Ribon.STATUS SIG CFD REQUESTS, TABLE		
(n, γ)	Maxwl	Fiss	WIN	Revv Conf IAEA - 169 3 163	74 Pope+ MAXW+FIS - SPEC AVG DATA CFD XPT		
		Fiss		Conf IAEA - 169 3 137	74 Dean. POINT DATA AVG OVER STAND SPEC		
(n, γ)	1.0+3	1.0+6	SAC	Eavl Rept CEA - N - 1832	Dec 75 Ribon + EXP+TH ANAL,STAT MOL,CURVE		
(n, γ)	Fast	RCN	Expt	Rept ECN - 10	Oct 76 Veenema+ STEK REACTIVITY WORTHS TBL.		
(n, γ)	1.0 - 3	1.5+7	RCN	Eavl Rept ECN - 33	Oct 77 Gruppelaar.RCN - 2 EVL.VOL 2.FP.TBL.		
	1.0 - 3	1.1+7		Rept ECN - 30	Oct 77 Dekker. ADJ.RCN - 2A.VOL 2.FP,TBL,GRPH		
		Fast		Jour ANS 27 876	77 Gruppelaar+ AVG SIG,RCN - 2,2A CF END4		
	1.0 - 1	1.0+7		Prog ECN - 7 10	Nov 76 - .RCN - 2 EVALUATION GRPH		
	1.0 - 3	1.5+7		Data RCN - 2	Apr 78 DATA FILE,KEDAK FORMAT		
(n, γ)	2.5 - 2	IJI	Eavl	Conf 77Kiev 4 94	Apr 77 Fedorova+ RECOM ACTIV SIG+ERROR GIVN		
(n, γ)	1.0 - 3	1.1+7	RCN	Eavl Rept ECN - 28	Aug 77 Dekker+ STEK+CFRMF ADJ.DATA,FP,TBL.		
(n, γ)	1.0 - 1	1.0+7	RCN	Revv Rept ECN - 24	Sep 77 Gruppelaar+ IMPACT INTEGRAL DATA SIG.		
(n, γ)	Fast	RCN	Revv	Conf IAEA - 213 2 627	78 Bustraan+ SNR - 300 SPEC.EVAL SIGS,TBL		
				Rept ECN - 27	Sep 77 - + REVIEW INTEGRAL DATA		
(n, γ)	Maxwl	CAD	Revv	Conf IAEA - 213 1 139	78 Fort. COMPARISON OF EVAL DATA, TABLE		
	1.0+3	4.0+6		Conf IAEA - 213 1 139	78 Fort. EVALS COMPARED,NO EXPTS.GRAPH		
(n, γ)	Fast	NIG	Revv	Conf IAEA - 213 1 279	78 Iijima. 2REACT-SPECS.EVAL SIGS, TABLE		
	3.0+4			Conf IAEA - 213 1 279	78 - . EVAL VALUES COMPARED, TABLE		
(n, γ)	2.5 - 2	MUNComp	Jour	JRC 42 181	Jan 78 Gryntakis+, 5 VALUES FOR GND + META		
(n, γ)	Fast	JAE	Revv	Conf 79Bologna 317	Dec 79 Iijima+ 1 GROUP JENDL/ENDF4/CFRMF		
(n, γ)	1.0+0	4.0+2	KIL	Expt Conf 79Bologna 77	Dec 79 Priesmeyer+ FAST CHOPPER RES ANALYS		
(n, γ)	Fast	RCN	Revv	Conf 79Bologna 299	Dec 79 Gruppelaar+ 1 GROUP RCN2/C - IV/CEA		
(n, γ)	1.0 - 5	1.5+7	JAE	Eavl Rept JAERI - 1268	Feb 81 Kikuchi+ TABLE AND FIG GIVEN.JENDL - 1		
		Maxwl		Jour NST 14 161	Mar 77 Iijima+ CAPTURE XSECTION. TBL.		
	1.0 - 5	2.0+7		Conf 75Wash. 320	Mar 75 Igarasi+ TBL REC VALUE		
	1.0 - 5	1.5+7		Rept JAERI - M - 5752	Jul 74 - + THERMAL VAL AND EVAL CURVE		
				Data JENDL - 1	Nov 77 IPNT.THERMAL VAL + D/DE		

53 Iodine 129

Quantity	Energy (ev) Min Max	Lab	Type	Documentation Ref Vol Page	Author, Comments	Date	Data
(n, γ)	1.0+3 1.0+6	FEI	Eval	Jour AE 57 243 Conf 83Kiev 2 92 Jour SJA 57 694	84 Belanova + SIG(E),H - F - M MDL CALC,GRPH 83 ~ + THEO MDL CALC,GRAPH,CFD		
(n, γ)	2.5 - 2	MUNExpt	Jour	RCA 33 4 177	Apr 85 ENGLISH OF AE 57 243		
(n, γ)	3.0+3 5.0+5	ORL Expt	Jour	NSE 85 350	83 Friedmann + ACTIVATION METHOD		
	3.0+3 5.0+5		Data	EXFOR12806.005	Dec 83 Macklin.TBL. AVG.SIG,GRPHS.	+	
(n, γ)	Fast	FEI	Eval	Jour AE 57 243 Jour SJA 57 694	84 Belanova + ESTIMATE FROM POINTSIG,TBL		
(n, γ)	6.0+3 4.0+5	HED	Eval	Rept DOE - NDC - 33 46	Apr 85 ENGLISH OF AE 57 243		
(n, γ)	Fast	RCN Theo	Conf	85Santa Fe 2 1537 Jour RE 96 195	Apr 84 Mann + GRPH. CFD MEAS. CS. May 85 Gruppelaar + TBL CFD EXPT.(E/C) VALUE		
(n, γ)	1.0 - 5 2.0 + 7	RCN Revw	Rept	ECN ~ 176	Mar 86 IDENTICAL TO 85 SANTA.		
(n, γ)	1.0+3 1.0+6	FEI	Eval	Jour YK 1987 1 3	Nov 85 Janssen + COMPARISON OF INTEG VALUES		
(n, γ)	2.5 - 2	IAE	Eval	Book OKAMOTO 199	Mar 87 Ignatyuk + SIG(E),EVALS,GRPH,CFD		
(n, γ)	1.0+4 5.0+4	KFK	Eval	Jour AND 36 411	Apr 87 Gryntakis + .ACTIV.TBL:2200 M/S SIG		
Spect (n, γ)	Pile	LIN	Expt	Conf 86Kharkov 101 Conf 85Leningrd 83	May 87 Bao + GRPH,TBL.30 KEV MAXW.AVG.SIG. 86 Egorov + G - SPEC,TBL 85 ~ + G - SPEC,GRPH		
(n,2n)	Fiss	CRC	Eval	Rept CRC - 1003	Dec 60 Roy +,ESTIMATED AVG SIG = 1.0MB		
(n,2n)	8.9+6 1.0+7	BOL	Eval	Rept CEC(71) - 2 Data BENZI - DFN 540A	71 Benzi + STAT + EVAP MODELS.TBL GIVEN.	+	
(n,2n)	8.9+6 1.0+7						
(n,2n)	1.5+7	STR	Expt	Jour RRL 15 29	Sep 73 Kuhry + D - T NS. REL CU63(N2N).	+	
	1.5+7			Data EXFOR20365.002	Sep 74 IPNT.SIGMA.		
(n,2n)	1.4+7 1.5+7	FEI	Eval	Rept YK - 35(4) 21 Rept INDC(CCP) - 146	79 Bychkov + EXPL + RECOMMENDED SIG, TABLE		
(n,p)	Fiss	CRC	Eval	Rept CRC - 1003	Jul 80 PG 123.ENGLISH OF YK - 35(4) 21		
(n,a)	Fiss	MUNComp	Jour	JRC 52 219	Dec 60 Roy +,ESTIMATED AVG SIG = 0.05MB		
Reson Params	6.6+1 1.5+2	ORL	Expt	Conf 58Geneva 16 150	Jan 79 Gryntakis., 1 VALUE GIVEN.		
	6.6+1 1.5+2			Data EXFOR12012.004	Sep 58 Harvey + .PPR673,PARAMS FOR 6 RESONNCS	+	
Reson Params	2.0+1 1.7+2	ORL	Expt	Jour NSE 17 371	Jun 76 6 RES, E0,WNO		
	7.2+1 1.5+2			Data EXFOR12025.004	Nov 63 Pattenden.	+	
Reson Params		GRN	Expt	Jour NP 66 323	Jun 76 5 RES, E0,WNO		
Reson Params	+3 +6	AUA	Theo	Jour AUJ 20 477	May 65 Pancholi. - 1 DATA INDEX LINE		
Reson Params	None	AUA	Theo	Rept AAEC/E - 211	Oct 67 Cook. TBL OF AVG LVL SPACING D,L=0,1		
Reson Params	1.0+3 1.0+6	SAC	Eval	Rept CEA - N - 1832	Nov 70 Musgrove. CALCULTD D+GAM WIDTH GIVEN		
Reson Params	1.0+5	CAD	Revw	Conf IAEA - 213 1 139	Dec 75 Ribon + EXP+TH ANAL,RES PAR,TBL		
Reson Params	1.0+5	NIG	Revw	Conf IAEA - 213 1 279	78 Fort. SHORT REVIEW.TABLE AVG D,G - WID		
Reson Params	+2	KIL	Expt	Prog NEANDC(E) - 212	78 Iijima. D(S - WAV),G - WID.EVALS CFD,TBL		
	2.0+1 1.0+3			Conf 79Bologna 77	Jun 80 Priesmeyer + P5 P.41. TRANSMISSN, SRES		
					Dec 79 ~ + FAST CHOPPER,TBP.		

付録A (つづき)

CINDA (1988-2000) に掲載のデータ

53 Iodine 129

Quantity	Energy (ev) Min	Energy (ev) Max	Lab	Type	Documentation Ref Vol Page	Date	Author, Comments	Data
Evaluation	1.0-5	2.0+7	HED	Eval	Priv SCHENTER ENDFB-6-5331	Feb 80	Schenter+ EVAL FOR ENDF/B WITH RCN	+
	1.0-5	2.0+7			Data	Feb 90	FISSION PRODUCT	
Evaluation	+0	2.0+7	RCN	Eval	Rept ECN-86-152	86	Van Der Kamp+ NEW EVAL FOR JEF-2	+
	1.0-5	2.0+6			Data JEF-2-5331	89	COMPLETE EVALUATION, ALL SIGS	
Evaluation	-5	2.0+7	FEI	Eval	Book BROND 119	86	Ignatyuk+ SUMMARY OF EVALUATION	+
	1.0-5	2.0+7			Rept INDC(CCP)-283	Mar 88	ENGL. TRANSLATION OF BROND-SUMMARY	
	-5	2.0+7			Data BROND-2-5329	Sep 85	IGNATYUK+.	
	1.0-5	2.0+7			Data BROND-5391	85	COMPLETE EVALUATION	
Evaluation	1.0-5	2.0+7	NDC	Eval	Data JEF-1 4534	Jun 90	ENDF-5 FMT, RES.PARAMS+POINTWISE DATA	+
Evaluation	1.0-5	2.0+7	JAE	Eval	Data JENDL-3FP 5302	Jan 91	FISS PROD FILE, FULL EVAL, ENDF-5 FMT.	+
Absorption	2.0+7	1.0+8	OIE	Theo	Jour AE 73 300	Oct 92	Konobeev+, TRANSMUTATN CS CALC TBL	
					Jour AE/T 73 813	Apr 93	ENGLISH OF AE 73 300	
(n, γ)	1.0+5	2.0+6	RI	Eval	Jour YK 1989 3 63	Sep 89	Trofimov, SYSTEMATIC, SIG(E), GRPH	
(n, γ)	1.5+7		OSA	Expt	Conf JAERI-C-97-004	Mar 97	Murata+. P177. ACT SIG=32+-3 MB.	+
	1.5+7				Conf JAERI-C-97-005	Mar 97	Nakano+. P216. ACT. SIG=13+-2 MILLIBARN	
Spect (n, γ)	2.5-2		ILL	Expt	Jour NP/A 494 36	Nov 97	2 PTS SIG	
	Maxwl				Data EXFOR22347.	Feb 89	Sakharov+ TBL ENERG, INTENS, MLTPOLAR	+
Spect (n, γ)	2.5-2		LIN	Expt	Data EXFOR22149.	Sep 90	241 PTS EG	
(n,2n)	1.0+7	3.0+7	OIE	Theo	Jour NP/A 494 36	Mar 89	Sakharov+ G ES, INTS, LVL SCHEME	
					Jour AE 73 300	Oct 92	Konobeev+, MOD CALC TBL	
					Jour AE/T 73 813	Apr 93	ENGLISH OF AE 73 300	
(n,2n)	1.5+7		OSA	Expt	Conf JAERI-C-97-004	Mar 97	Murata+. P177. ACT SIG=1.1+-0.1 BARN.	+
					Conf JAERI-C-97-005	Mar 97	Nakano+. P216. ACT. SIG=0.92+-0.11 BARN	
(n,2n)	1.5+7		OSA	Expt	Data EXFOR22347.	Nov 97	5 PTS SIG	
(n,2n)	1.4+7		OSA	Expt	Prog INDC(JPN)-177U	Mar 97	Murata+. ACT SIG=0.92+-0.11 BARN	
(n,2n)	1.3+7	1.5+7	OSA	Expt	Prog INDC(JPN)-181U	Mar 98	Murata+. ACT METH. SIG GIVEN	
(n,2n)	1.4+7	1.5+7	OSA	Expt	Conf JAERI-C-98-003	Mar 98	Nakano+. P210. ACT SIG(E) IN TBL+FIG	+
					Conf 97Trieste 21338	May 97	Murata+. OKTAVIAN, ACTIV, SIG TBL	
	1.4+7	1.5+7			Data EXFOR22398.002	Aug 98	3 PTS SIG	
(n,xn) x>2	1.7+7	4.0+7	OIE	Theo	Jour AE 73 300	Oct 92	Konobeev+, N3N CS MOD CALC, TBL	
					Jour AE/T 73 813	Apr 93	ENGLISH OF AE 73 300	
(n,xn) x>2	2.0+6	5.0+7	FEI	Theo	Jour YK 1992 2 4	Nov 92	Lunev+ EXC.FUNC.CALC., X=1.5, TBL, GRPH	
(n,p)	6.0+6	5.0+7	FEI	Theo	Jour YK 1992 2 4	Nov 92	Lunev+ CAL, NKPXN, K=1,3, X=0.5, TBL, FIG	
(n,p)	1.4+7		RI	Eval	Jour AE 75 33	Jul 93	Trofimov. MDL EVAL. SIG= 4.5+-0.6 B	
(γ ,n)	9.0+6	2.5+7	FEI	Eval	Jour YK 1995 2 157	Apr 96	Shubin+. EVAL (GAMMA,N) SIG, TBL, GRPH	
(γ ,n)	9.0+6	5.0+7	II	Theo	Conf 96Budapest 2 797	Oct 96	Safar. GRPH CALC SIG FOR (G,XN), X=1-5	

付録 B

$^{129}\text{I}(\text{n},\text{gamma})$ 反応断面積の実験データの現状

==== EXFOR より引用 ===

AUTHOR	(J.ROY, D.WUSCHKE)	
INSTITUTE	(1CANCRC)	
REFERENCE	(J,CJC,36,1424,58)	
TITLE	NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION OF I129 AND I130	
METHOD	(ACTIV)	
MONITOR	(27-CO-59(N,G)27-CO-60,,SIG、(27-CO-59(N,G)27-CO-60,,RI)	
DATA	EV	B
	0.0253	B(ERR)
		± 2.0

AUTHOR	(D.D.WILKEY, J.E.WILLARD)	
INSTITUTE	(1USAWIS)	
REFERENCE	(J,JCP,44,970,66)	
TITLE	ISOMER OF I130	
DETECTOR	(NAICR)	
DATA	MEV	B
	2.53-08	24.

AUTHOR	(N.J.PATTENDEN)	
INSTITUTE	(1USAORL)	
REFERENCE	(J,NSE,17,371,63)	
TITLE	NEUTRON CROSS SECTION MEASUREMENTS ON FISSION PRODUCT	
SAMPLE	SAMARIUM AND IODINE	
FACILITY	(CHOPF) FAST CHOPPER AT ORR	
METHOD	(TOF) TIME-OF-FLIGHT	
DATA	EV	B
	0.0253	B
		$\pm 2.$

AUTHOR	(R.L.MACKLIN)	
INSTITUTE	(1USAORL)	
REFERENCE	(J,NSE,85,350,8312)	
TITLE	NEUTRON CAPTURE CROSS SECTIONS AND RESONANCES OF IODINE-127 AND IODINE-129	
FACILITY	(LINAC) ORELA	
SAMPLE	FISSION PRODUCT IODINE (83 PERCENT 129-I) IN PB(I)2	
SAMPLE	20.2+0.6 WEIGHT PERCENT 129-I WITH SIGNIFICANT AMOUNTS OF PBC(O)3, PBS(O)3 AND PBS(O)4. SAMPLE WAS PRESSED TO 26X52X1.6 MM AND WEIGHED 18.76 GRAMS.	
	NATURAL PB(I)2 SAMPLE WAS 26X52X1.6 MM AND WEIGHED 11.91 GRAMS.	

METHOD (TOF) 40.12 METER FLIGHT PATH
 DETECTOR (SCIN) 2 NON-HYDROGENOUS LIQUID SCINTILLATORS FOR
 GAMMA RAY DETECTION (SCIN) 6-LI GLASS SCINTILLATOR
 FOR NEUTRON DETECTION
 MONITOR (3-LI-6(N,T)2-HE-4,,SIG)
 CORRECTION DATA WERE CORRECTED FOR DEAD TIME, BACKGROUND,
 ELECTRONIC GAIN SHIFT AND GAMMA LOSS IN SAMPLE.
 CORRECTION DATA WERE CORRECTED FOR 127-I, PB AND S IMPURITIES,
 FOR RESONANCE SELF-PROTECTION AND PB(I)2 ELASTIC AND INELASTIC
 SCATTERING
 ERR-ANALYS STATISTICAL UNCERTAINTIES LESS THAN .9 PERCENT BELOW
 500 KEV.
 SYSTEMATIC UNCERTAINTIES ARE 5 PERCENT BELOW 200 KEV AND 6
 PERCENT FROM 200 TO 500 KEV.
 DATA REGION 3~400keV

AUTHOR (B.C.PURKAYASTHA, G.R.MARTIN)
 INSTITUTE (2UK DUR)
 REFERENCE (J,CJC,34,293,56)
 TITLE -THE YIELDS OF I-129 IN NATURAL AND IN NEUTRON
 INDUCED FISSION OF URANIUM -
 FACILITY (REAC) BEPO REACTOR AT A.E.R.E. HARWELL
 INC-SOURCE (REAC) REACTOR NEUTRONS AND SPONTANEOUS FISSION
 SAMPLE . IODINE EXTRACTED FROM PITCHBLENDE AND FROM PILE
 IRRADIATED URANIUM METAL
 METHOD (ACTIV) ACTIVATION
 DETECTOR (GEMUC) GEIGER-MULLER TUBE
 CORRECTION . CORRECTED FOR CONTAMINATIONS WITH SIMILAR HALF-
 LIVES SUCH AS NA-24, K-42 ETC. ALSO CORRECTED FOR
 LOSSES DUE TO FINITE RESOLVING POWER OF COUNTER,
 SELF ABSORPTION IN SAMPLE, RADIOACTIVE DECAY, AND
 CHEMICAL YIELD IN SEPERATION PROCEDURES.
 ERR-ANALYS NO ERRORS GIVEN
 MONITOR (29-CU-63(N,G)29-CU-64,,SIG,,MXW) FOR FLUX MONITOR
 DECAY-DATA (53-I-130-G,12.6HR,B-)
 DATA EV B
 2.5300E-02 3.5000E+01

AUTHOR (D.NAKANO, I.MURATA, A.TAKAHASHI)
 INSTITUTE (2JPNOSA) DEPARTMENT OF NUCLEAR ENERGY
 REFERENCE (S,JAERI-97-004,177,199604),
 (S,INDC(JPN)-178/U,177,199604))
 TITLE MAIN REFERENCE - PROCEEDINGS OF THE 1-ST INTERNET
 SYMPOSIUM ON NUCLEAR DATA, APRIL 8 - JUNE 15, 1996,
 JAERI
 DATA ARE GIVEN ((S,JAERI-98-003,210,199711),
 (S,INDC(JPN)-180/U,210,199811))
 FACILITY MEASUREMENT OF REACTION CROSS-SECTIONS OF FISSION
 PRODUCTS INDUCED BY DT NEUTRONS
 INC-SOURCE (CCW,2JPNOSA) THE INTENSE 14 MEV NEUTRON SOURCE
 OKTAVIAN AT OSAKA UNIVERSITY.
 (D-T) THE NEUTRON SOURCE IS DC-LINE OF OKTAVIAN

THE MEAN NEUTRON FLUX AT THE SAMPLE POSITION APPROX. 1.0E+9 N/CM²/SEC
INC-SPECT THE EFFECTIVE NEUTRON ENERGY WAS DETERMINED WITH ZR/NB REACTION ACTIVATION RATIO
SAMPLE 1.8 CM OF DIAMETER, 1.5 CM THICKNESS, 3.7 KILO-BQ OF I-129 WITH CADMIUM FILTER AND WITHOUT IT
METHOD (ACTIV) FOIL ACTIVATION METHOD
DETECTOR (HPGE)
MONITOR (13-AL-27(N,A)11-NA-24,,SIG)
DECAY-DATA (53-I-129,1.6E+07YR,DG,39.6)
CORRECTION CORRECTION FOR NEUTRON MULTIPLE SCATTERING AND GAMMA-RAY ATTENUATION WERE MADE
ERR-ANALYS (ERR-T) TOTAL ERROR CONSISTING OF QUADRATIC SUM OF CONSTITUENTS
DATA MEV B B
14.8 3.200E-02 3. E-03
DATA MEV B B
14.6 0.013 0.002

付録 C

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いく。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る、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 マイクロバーソ(μ b)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「 $1 \mu g b$ 」と言う表現を使っている/2/。即ち、 $1 \mu g$ 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 $1 \mu b$ 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、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 \times 外ローマ内 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 $\sim 10^{12} \text{n/s}$ $\sim 10^{18} \text{n/n}^\circ \text{ルス}$	$\sim 10^{14} \text{n/cm}^2/\text{s}$
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、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衝突当たりのレサージーの平均増加量： $\xi = 0.0096$ ）、多數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になった/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

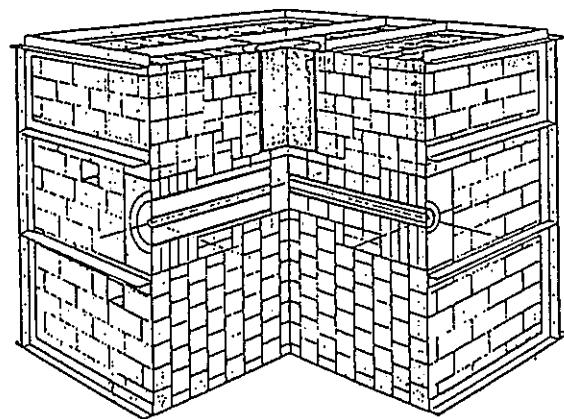
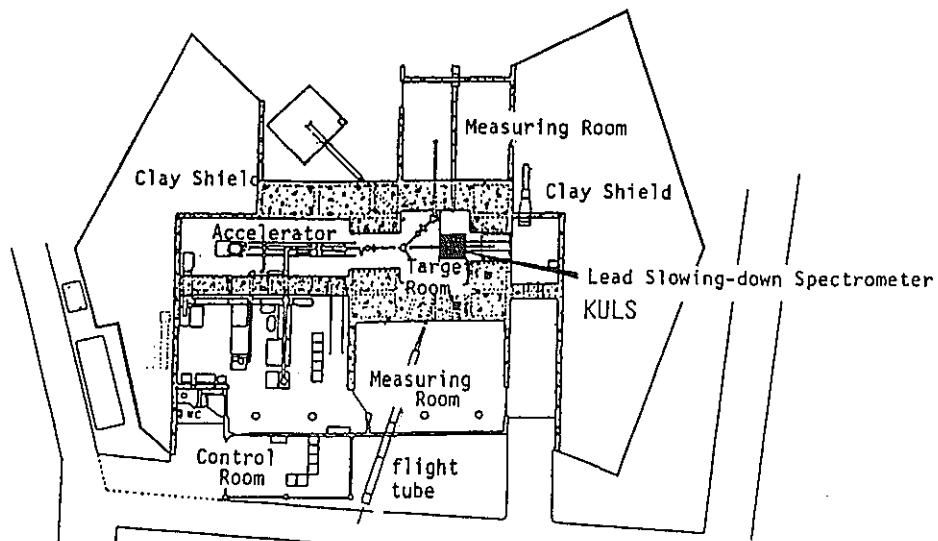
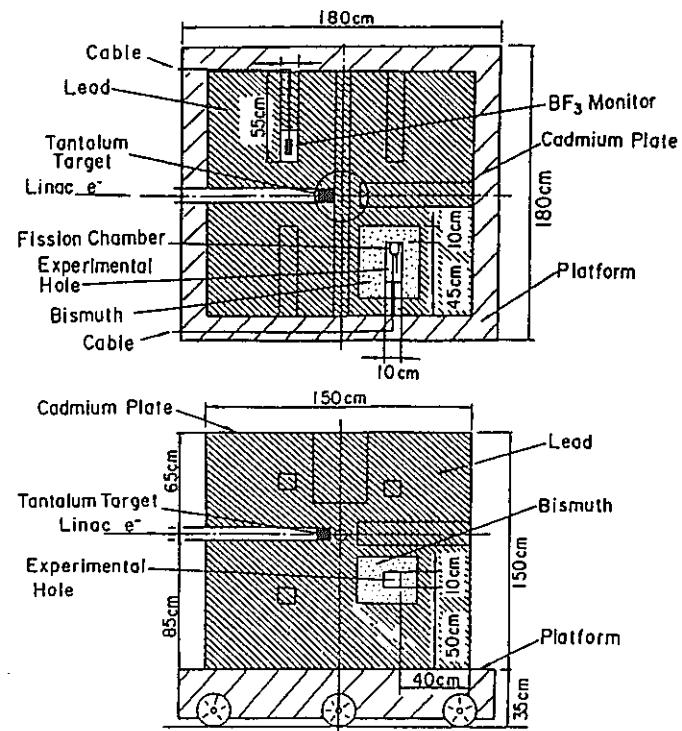


図 1 鉛スペクトロメータ KULS の断面図

-43-

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

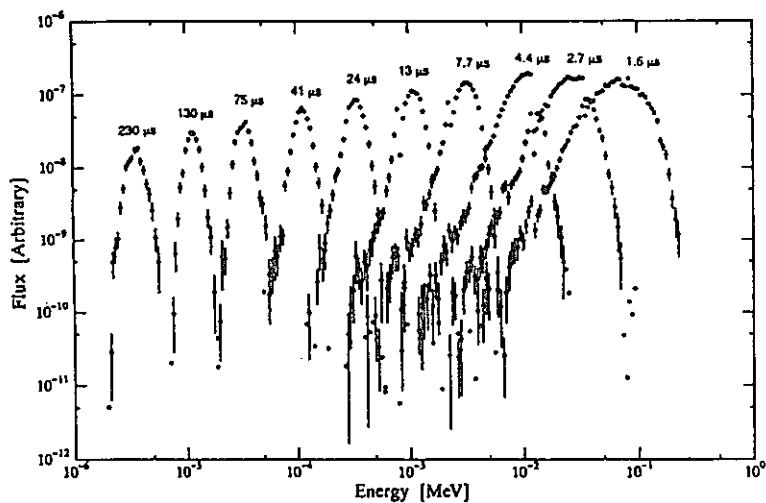
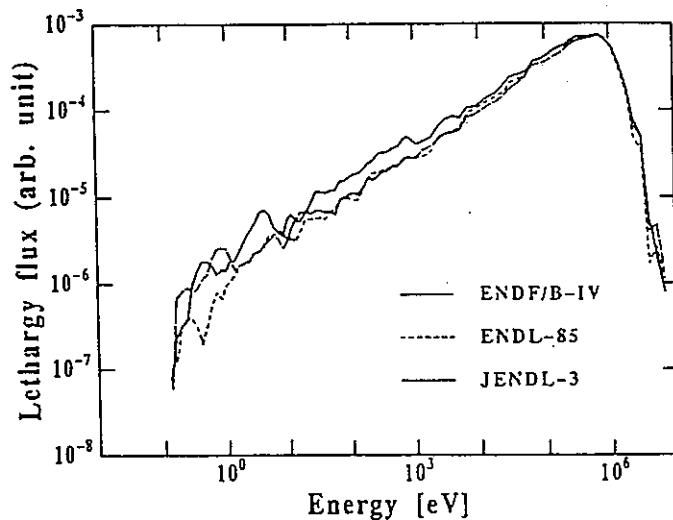


図4 KULSのビスマス実験孔における中性子の時間依存スペクトル

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 $156 \pm 2(\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ が得られ、BF₃比例計数管による測定結果 $191 \pm 3(\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ 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（ $191 \pm 3(\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ ）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 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

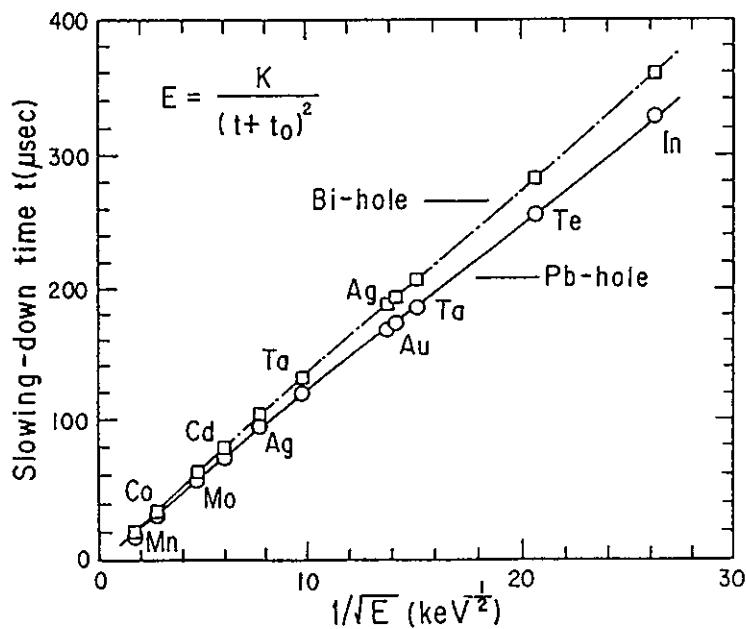


図 6 KULSのビスマス実験孔と鉛実験孔における
中性子減速時間とエネルギーの関係

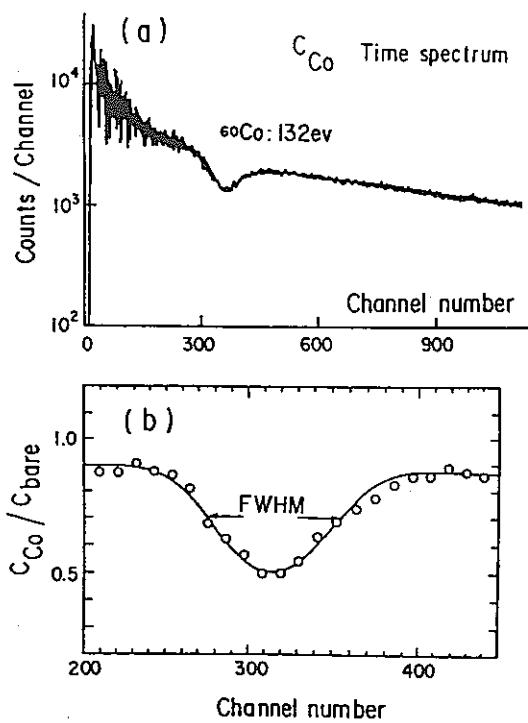


図 7 中性子透過法によって測定された
時間スペクトルの例

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

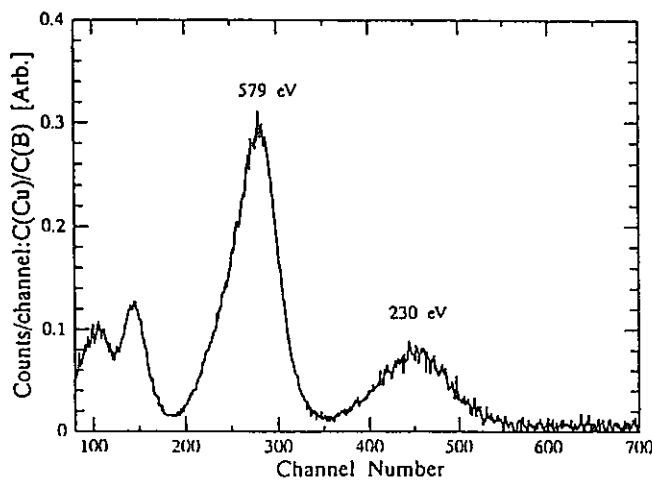
図 8 共鳴捕獲 γ 線測定によるエネルギー分解能測定の例

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	

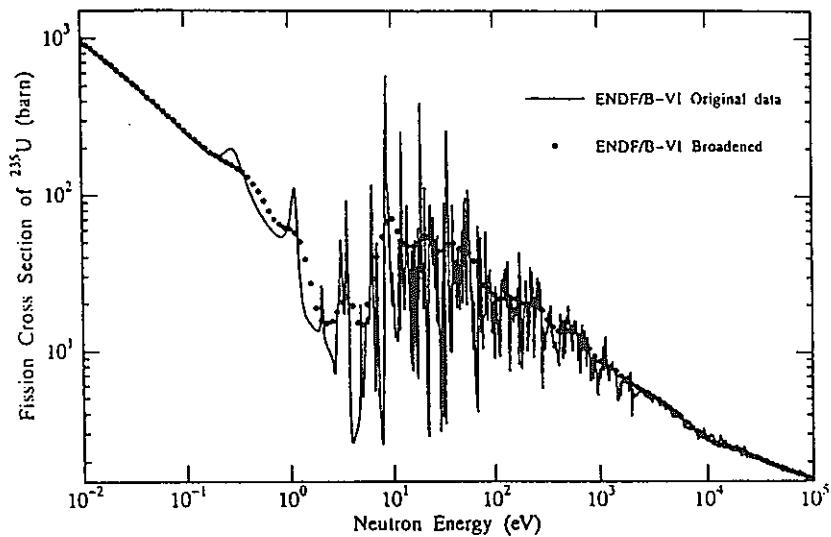


図 9 $^{235}\text{U}(\text{n}, \text{f})$ 反応の ENDF/B-VI 評価値と、
KULS の分解能関数でなました結果

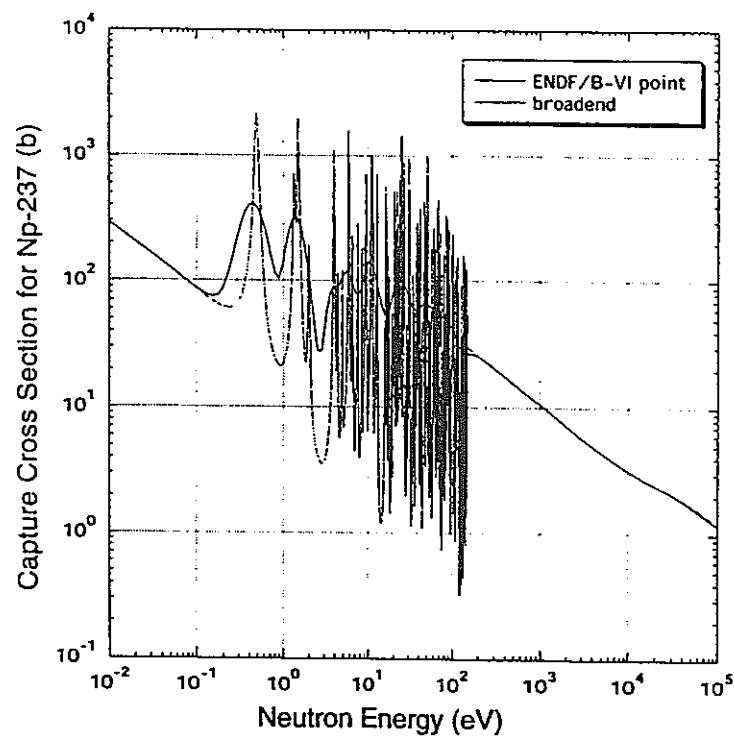


図 10 $^{237}\text{Np}(\text{n}, \gamma)$ 反応の ENDF/B-VI 評価値と、
KULS の分解能関数でなました結果

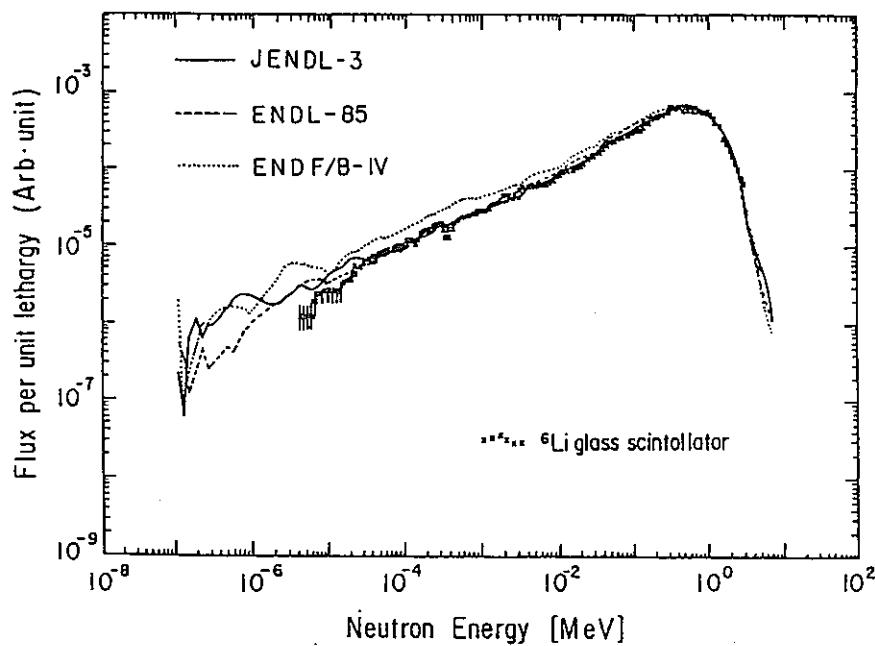


図 1-1 ^{6}Li ガラスシンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較

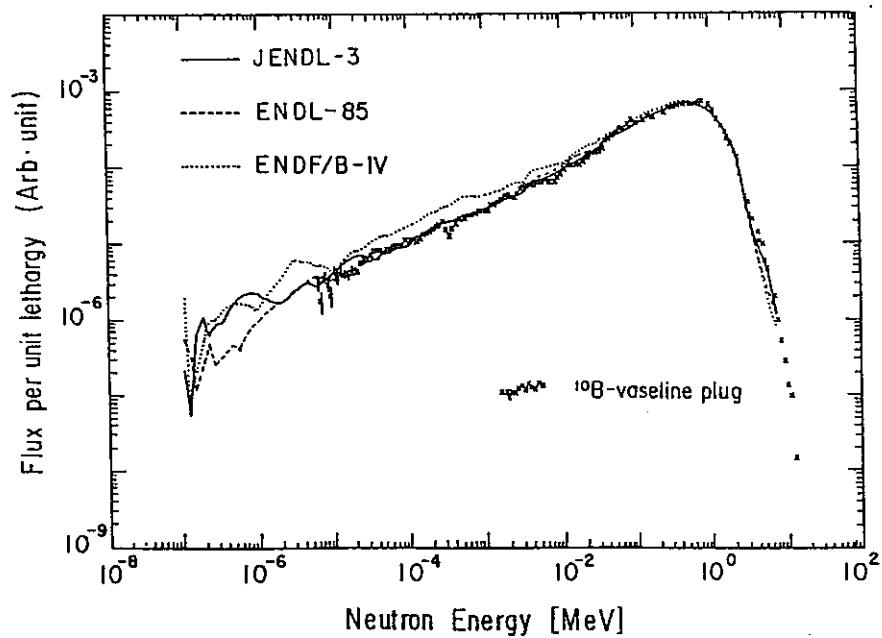


図 1-2 ^{10}B -vaseline plug NaI(Tl)シンチレータを用いて飛行時間分析法により測定した鉛スペクトロメータ内の中性子スペクトルとMCNPコードによる計算値の比較

それぞれの検出器を用いて測定したKULS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)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 ± 2 (keV·μs²)、鉛実験孔で 156 ± 2 (keV·μs²)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 μg 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 D

Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 39, No. 2, p. 111-119 (February 2002)

Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np by Linac Time-of-Flight Method and with Linac-driven Lead Slowing-down Spectrometer

Katsuhei KOBAYASHI*, Samyol LEE, Shuji YAMAMOTO, Hyun Je CHO[†] and Yoshiaki FUJITA

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

(Received September 13, 2001 and accepted in revised form December 19, 2001)

The neutron capture cross section of ^{237}Np has been measured relative to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ standard cross section by the neutron time-of-flight (TOF) method in the energy range of 0.005 eV to 10 keV using a 46 MeV electron linear accelerator (linac) at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). In order to experimentally prove the result obtained, the supplementary cross section measurement has been made from 0.15 eV to 1 keV using the Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS) coupling to the linac. The relative measurement by the TOF method has been normalized to the reference value (181 b) at 0.0253 eV and the KULS measurement to that by the TOF method.

The existing experimental data and the evaluated capture cross sections in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 have been compared with the current measurements by the linac TOF and the KULS experiments. The energy dependency of the KULS data is close to that of the TOF data which are energy-broadened by the resolution function of the KULS.

It has been found that the data measured by Weston and Todd and evaluated in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are in general agreement with each current measurement, although those data are systematically lower by about 15% above about 0.2 eV. However, the data by Hoffman *et al.* are low obviously in the relevant energy region.

KEYWORDS: neptunium 237, neutron capture cross section, measurement, 0.005 eV to 10 keV energy range, time-of-flight method, neutron reactions, $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ cross section, lead slowing-down spectrometer, C_6D_6 liquid scintillators, argon-gas counter

I. Introduction

The neptunium-237, which is abundantly produced in spent-fuels of light water reactors (LWRs), is one of the minor actinides with a long half-life.¹⁾ The nuclear data are of great importance for investigating the production and the burn-up characteristics of ^{237}Np in LWR cores. Neutron capture by ^{237}Np produces an intense α -emitter of ^{238}Pu through the β -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.¹⁻⁸⁾ The fission and the capture cross sections for ^{237}Np are indispensable to research and development of the nuclear transmutation technology.

The fission cross section of ^{237}Np shows a few barns in the MeV region and is about 10 mb below about 200 keV.⁹⁾ To the contrary, the capture cross section is higher, and the thermal neutron cross section is 181 b at 0.0253 eV and the resonance integral is 655 b, according to the ENDF/B-VI file.¹⁰⁾ Most of the cross sections for the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ reaction have been measured in the higher energy region above about 100 keV,^{9,11)} although some of the cross sections have been obtained at 0.0253 eV before.¹²⁾ A few experimental groups have measured the capture cross sections in the eV or resonance energy region. Hoffman *et al.* measured the capture cross section from 20 eV to 0.255 MeV by an underground nuclear explosion using a Moxon-Rae detector.¹³⁾ Weston

and Todd measured the cross section between 0.01 eV and 210 keV by the neutron time-of-flight (TOF) method using an Oak Ridge electron linear accelerator (linac) and NE-226 liquid scintillation detectors.¹⁴⁾ Very recently, the experimental group of Igashira *et al.*¹⁵⁾ measured the capture cross sections at energies of 22 to 60 keV making use of a 3 MV Pelletron accelerator and a large anti-Compton NaI(Tl) γ -ray spectrometer at the Tokyo Institute of Technology (TIT) in Japan.

The evaluated capture cross sections of ^{237}Np are compiled in ENDF/B-VI¹⁰⁾ and JENDL-3.2.¹⁶⁾ Both of the evaluated data are close to each other and are in general agreement with the data by Weston and Todd¹⁴⁾ and the TIT group.¹⁵⁾ The data by Hoffman *et al.*¹³⁾ are obviously lower in general than the experimental and the evaluated data.

Since a lead slowing-down spectrometer can give us an intense neutron flux/spectrum in the eV or resonance energy region, a good signal-to-noise ratio can be achieved in the cross section measurement using even radioactive materials.^{17,18)} However, the energy resolution of the spectrometer is poor and about 30 to 35% at full width at half maximum (FWHM).^{18,19)} Recently, lead slowing-down spectrometers have been successfully applied to the cross section measurements for ^{99}Tc , ^{241}Am and ^{243}Am .^{17,20,21)}

In the current study, we measure first the neutron capture cross section of ^{237}Np from 0.005 eV to 10 keV by the neutron TOF method using a 46 MeV linac at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). A pair of C_6D_6 liquid scintillators is used for the capture γ -ray measurement, and a natural-boron (B) plug is utilized for the neutron flux/spectrum determination using the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ standard cross section. For the experimental investigation of the result obtained, the cross section measurement is also per-

*Corresponding author, Tel. +81-724-51-2346, Fax. +81-724-51-2602, E-mail: koba@rii.kyoto-u.ac.jp

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

formed from 0.15 eV to 1 keV with the Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS)¹⁸⁾ coupling to the linac. In this experiment, an argon (Ar)-gas proportional counter is applied to the capture γ -ray measurement from the sample, and a BF₃ proportional counter to the neutron flux/spectrum measurement. The relative measurement with the C₆D₆ detectors is normalized to a reference value of the thermal neutron cross section at 0.0253 eV, and the result measured with the KULS is normalized to the energy-broadened TOF measurement in the relevant energy region. Both of the current measurements are compared with each other and with the earlier experimental data and the evaluated ones in ENDF/B-VI and JENDL-3.2.

II. Experiment by Linac Time-of-Flight Method

1. Experimental Arrangement

The neutron capture cross section measurement for ²³⁷Np has been carried out by the TOF method using the linac at KURRI. The experimental arrangement is shown in Fig. 1. The flight path used in the experiment is in the direction of 135° to the linac electron beam. Bursts of fast neutrons were produced from a water-cooled photoneutron target,²²⁾ which was set at the center of a water tank, 30 cm in diameter and 35 cm high, as a neutron moderator. A lead block, 5 cm × 5 cm and 10 cm long, was placed in front of the Ta target to reduce the γ -flash generated by the electron burst from the target. The neutron collimation system was mainly composed of B₄C, Li₂CO₃ and Pb materials, and tapered from about 12 cm in diameter at the entrance of the flight tube to about 2 cm in diameter at the capture sample, which was placed at a distance of 12.0 ± 0.02 m from the Ta target.

2. Samples and Detectors

Neptunium oxide (NpO₂) powder of 1.13 g, whose sample was packed in an aluminum disk container of 30 mm in diameter and 1.4 mm in thickness, was purchased from Amersham. The purity of the sample is 99.6% by weight and the major impurities are Ga, K, P, Rb and S of about 4 mg in total weight. The γ -rays of 86.5 keV from ²³⁷Np and 300, 312 and

341 keV from ²³³Pa, which was produced through the α -decay of ²³⁷Np, were measured with a high-purity germanium detector (HPGe). No peak from the impurities was found in the pulse height distribution data.

A pair of C₆D₆ liquid scintillators, each 11 cm in diameter and 5 cm thick, was used for the measurement of capture γ -rays from the sample, which was put in the neutron beam between the scintillators, as seen in Fig. 1. The detectors are adequate to the present capture γ -rays measurement because of less sensitivity to scattered neutrons. Moreover, the discrimination level was set at about 400 keV not to detect the γ -rays from the ²³³Pa isotope in the ²³⁷Np sample, although the 478 keV γ -ray from the ¹⁰B(n, α) reaction can be measured with the detection system.

For the measurement of the incident neutron flux/spectrum on the capture sample, a B plug of 1.8 cm × 1.8 cm, 0.5 cm (1.102 g/cm²) in thickness, which was made of natural boron powder and encapsulated in a thin aluminum case, was inserted into the neutron beam instead of the ²³⁷Np sample.

3. Electronics and Data Taking

In the case of the capture γ -ray measurement with the ²³⁷Np sample, we have employed a coincidence method between the C₆D₆ detectors to reduce the background counts, although the counts from the B plug have been measured with an anti-coincidence method. Signals from the C₆D₆ detectors were fed into the time digitizer, which was initiated by the linac electron burst, through the amplifiers and the discriminators. The data acquisition system stored two sets of 4096-channel TOF data: one was for the measurement with the ²³⁷Np sample or the B plug and the other was for the neutron intensity monitor with a BF₃ counter during the TOF experiment.

The linac was operated in two different modes: one was for the measurement below about 10 eV with a repetition rate of 30 Hz, a pulse width of 3 μ s, a peak current of 0.4 A and an electron energy of 30 MeV using a channel width of 4 μ s in each set of the 4096-channel measurement, and the other is for the measurement above about 0.2 eV with a repetition rate of 100 Hz, a pulse width of 33 ns, a peak current of 3 A

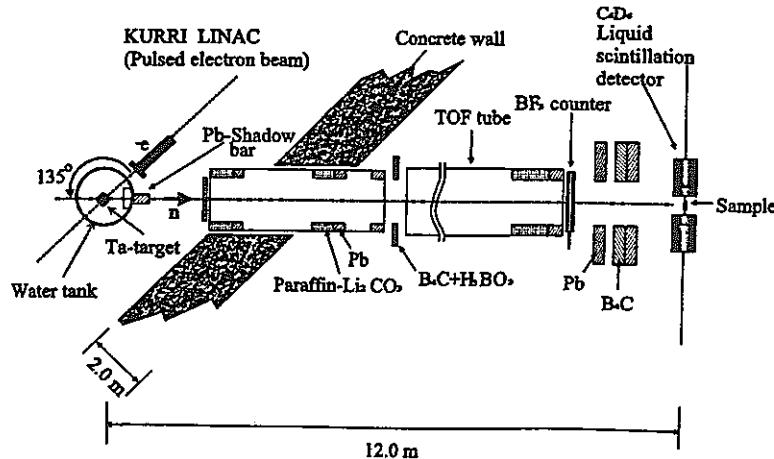


Fig. 1 Experimental arrangement for the time-of-flight method with the KURRI linac

Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np

and an electron energy of 30 MeV using a channel width of $0.5 \mu\text{s}$ in each 4096-channel measurement. The total amount of measuring time was about 26 h for the low energy runs and about 24 h for the high energy runs, respectively.

4. Cross Section Measurement and Corrections

The relative capture yield for the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ reaction to that for the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ reaction is obtained by the following relations:^{20,23)}

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

$$Y_i(E) = \{1 - \exp(-N_i \sigma_i^t(E) t_i)\} \frac{\sigma_i^c(E)}{\sigma_i^t(E) F_{C_i}(E)} \quad (i = \text{Np, B}), \quad (2)$$

where the subscript "i" means neptunium (Np) or boron (B) data. $C_{\text{Np}}(E)$ and $C_{\text{B}}(E)$ are the counting rates at energy E for the ^{237}Np and the B plug samples, respectively, $Y_{\text{B}}(E)$ is the energy dependent capture yield for the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ standard cross section, N_i is the atomic density of the sample, $\sigma_i^t(E)$ is the neutron total cross section, t_i is the sample thickness, $\sigma_i^c(E)$ is the neutron capture cross section, and $F_{C_i}(E)$ is the correction function for neutron scattering and self-shielding in the sample.²⁰⁾ When t_i is thin enough, Eq. (2) can be assumed as $Y_i(E) = N_i \sigma_i^c(E) t_i$ and $F_{C_i}(E) = 1.0$. The reference cross section values of $\sigma_i^t(E)$ and $\sigma_i^c(E)$ for the correction calculation were taken from ENDF/B-VI.¹⁰⁾

In a neutron capture cross section measurement, the effect of single and/or multiple neutron scattering in the sample is quite important for determination of the capture cross section.²⁰⁾ Instead of the calculation with Eq. (2), we have employed the Monte Carlo code MCNP²⁴⁾ to perform the detailed calculations considering the neutron transport in the sample. Then we rewrite Eq. (2) as follows for the derivation of the ^{237}Np capture cross section:

$$\sigma_{\text{Np}}^c(E) = \frac{Y_{\text{Np}}(E)}{N_{\text{Np}} t_{\text{Np}}} F_{C_{\text{Np}}}(E), \quad (3)$$

where $F_{C_{\text{Np}}}(E)$ is obtained by the Monte Carlo calculation. In the calculation, we have assumed that the capture sample is irradiated by the collimated neutron beam. The correction function obtained is shown in Fig. 2. The random history number of the Monte Carlo calculation was 3,000,000. It is found that the correction is larger at the resonance peaks and is smaller before and behind the resonance. The correction function for the B sample was calculated by using Eq. (2).²³⁾

The background measurement has been made with an empty capsule/plug of aluminum for each of the ^{237}Np and B samples. The background level has been confirmed by using the notch-filters of Ag, Co and Mn and by the block-off method with a thick ^{10}B plug (4.54 g/cm^2) in the neutron beam. In addition, since graphite has a very small capture cross section and its scattering cross section takes major part of the total, the background level due to neutrons scattered by the sample has been experimentally investigated with the graphite sample and has been corrected using the scattering cross section equivalent to that of the ^{237}Np sample.

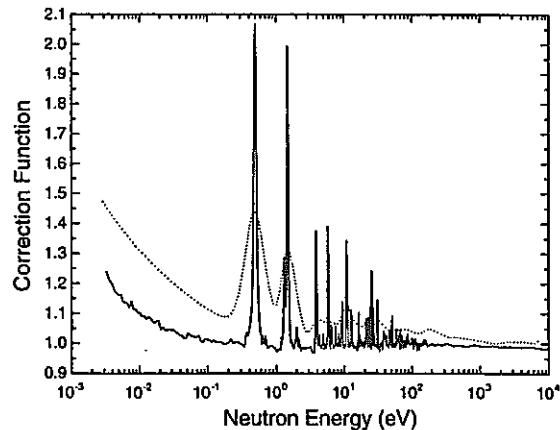


Fig. 2 Correction functions for the neutron multiple scattering and/or self-shielding in the ^{237}Np sample

—: Correction function for the TOF experiment
---: Correction function for the KULS experiment
(energy-broadened by the resolution function)

III. Experiment with Lead Slowing-down Spectrometer

1. Lead Slowing-down Spectrometer

Lead (Pb) is one of the heavy mass elements and most of its neutron total cross section is the elastic scattering cross section below a few MeV. When pulsed fast neutrons are put into the central region of a large Pb assembly, the neutrons exhibit convergence behavior and keep an asymptotic form at each energy corresponding to the slowing-down time. There exists a relation $E = K/t^2$ between the mean neutron energy E in keV and the slowing-down time t in μs ,^{25,26)} where K is the slowing-down constant. The energy resolution of the slowing-down spectrometer is theoretically given as the FWHM by^{19,25,26)}

$$\begin{aligned} (\Delta E/E)_{\text{FWHM}} &= 2.35(\Delta\sigma/\sigma)_{\text{Gaussian}} = 2.35(8/(3A))^{\frac{1}{2}} \\ &= 26.7\%, \end{aligned} \quad (4)$$

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

The KULS was installed in coupling to the 46 MeV linac at KURRI, and Pb blocks were piled up to make a cube of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$ (about 40 t in weight) without any structural materials,¹⁸⁾ as shown in Fig. 3. At the center of the KULS, an air-cooled photoneutron target of tantalum (Ta) is set to generate pulsed fast neutrons. One of the experimental holes in the KULS is covered by bismuth (Bi) layers of 10 to 15 cm in thickness to shield a detector from high energy capture γ -rays (6 to 7 MeV) produced by the $\text{Pb}(n, \gamma)$ reaction in the spectrometer.¹⁸⁾

Characteristics of behavior of neutrons in the KULS have been studied by the Monte Carlo calculations and the experimental method using resonance filters.¹⁸⁾ Figure 4 shows the calculated time-dependent neutron spectra in the Bi hole after the pulsed neutrons were driven into the neutron production target.¹⁸⁾ The slowing-down time constant K was determined

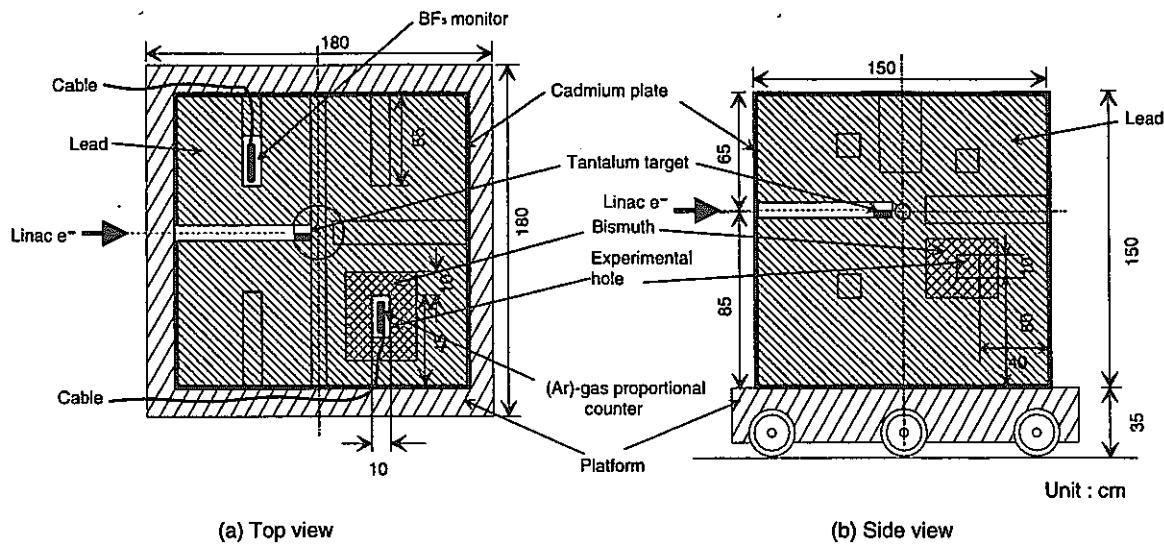


Fig. 3 Cross sectional view of the KULS

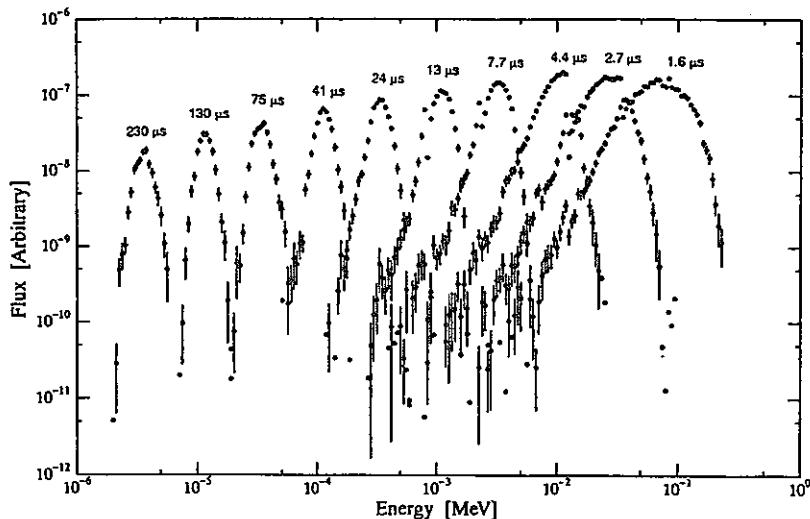


Fig. 4 Calculated time-dependent neutron spectra in the Bi hole of the KULS after the pulsed neutrons were produced

to be 190 ± 2 (keV·μs²) in the relation of $E = K/t^2$. The energy resolution for the experimental hole was also deduced to be about 40% from the measured and the calculated data. The details are described in the literature.¹⁸⁾

2. Samples and Detectors

We have used the same ²³⁷Np sample as used in the linac TOF experiment, and an Ar-gas proportional counter has been employed for the measurement of capture γ-rays from the sample in the Bi hole. The counter, which was filled with a mixed gas of 97% Ar and 3% CO₂ at a pressure of 0.1 MPa, was of a cylindrical type, 12.7 mm in diameter and 6.3 cm in effective length. The ²³⁷Np sample was put together by side of the counter at the distance of about 45 cm from the neu-

tron target. A BF₃ proportional counter, 12.7 mm in diameter and 5.8 cm in effective length was also used to measure the neutron flux/spectrum in the Bi hole. In order to monitor the neutron intensity during the experimental run, another BF₃ counter was placed in an experimental hole of the KULS.

3. Electronics and Data Taking

The signals from the Ar-gas counter were fed into the time digitizer through the amplifiers and the discriminators as done in the linac TOF measurement. For the relative measurement to the ¹⁰B(n, α) standard cross section, a BF₃ counter was employed for the neutron flux/spectrum monitor instead of the Ar-gas counter, and the data obtained were stored in almost the same way as for the measurement with the C₆D₆

Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np

detectors. Two sets of 4096 channels with a channel width of $0.5\ \mu\text{s}$ were allotted to the measurements for the Ar-gas counter or the BF_3 counter and another BF_3 counter for the neutron intensity monitor during the experiment.

The linac 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 by using an empty aluminum disk container without the NpO_2 powder. We have assumed that we may neglect the background due to neutrons scattered by the sample, because the Ar-gas counter is practically insensitive to neutrons. The total amount of the linac operating time was about 54 h.

4. Cross Section Measurement and Corrections

The relative measurement of the capture cross section was made with the relations of Eqs. (1) to (3). The counting rate $C_{\text{Np}}(E)$ was obtained from the ^{237}Np sample measurement with the Ar-gas counter and $C_B(E)$ from the BF_3 counter for the neutron flux/spectrum measurement. The correction function for neutron scattering and self-shielding has been also obtained by the Monte Carlo calculation. The calculation procedure is the same as that for the measurement by the linac TOF method except that the capture sample is isotropically irradiated in the Bi hole of the KULS. The correction function, which is already energy-broadened by the resolution function of the KULS, is also shown in Fig. 2. It is seen that the correction is larger in the resonance region.

IV. Results

Making use of the linac TOF method and a pair of C_6D_6 liquid scintillators, the neutron capture cross section of ^{237}Np has been measured relative to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ standard cross section at energies from 0.005 eV to 10 keV. The measure-

ment from the high energy run has been normalized to that between 0.3 eV and 3 eV in the low energy run, whose result obtained was normalized to the reference value of 181 b at 0.0253 eV in the ENDF/B-VI file. The current measurement is shown in Fig. 5. The experimental uncertainties are in the range of 4.2 to 75% and summarized in Table 1. We had poor counting statistics, especially in the resonance region where the cross section curves showed up and down sharp resonance/non-resonance structures. The major uncertainties are due to the statistical errors of about 0.8 to 75% and the uncertainties of about 2% (deviation from the $1/v$ form) for the reference cross section, about 1% caused by the background subtraction and 1.7 to 1.9% in the corrections for the neutron self-shielding and/or the neutron scattering effects in the sample. We have assumed that the uncertainty for the data normalization is 3%, because the standard deviation among the reported thermal neutron cross section values is about 3%.¹²⁾

The existing experimental data for the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ reaction are compared with the current measurement in Fig. 5. We have divided the relevant energy region into four energy sections and have calculated the average values of the measured and the evaluated cross sections to compare them with the current measurement in each energy section. Table 2 shows the ratios of the average values from the data measured by Weston and Todd¹⁴⁾ and/or Hoffman *et al.*¹³⁾ to the average value from the current measurement. As seen in Fig. 5 and Table 2, general agreement can be seen between the current measurement and the data by Weston and Todd, although the values by them seem to be lower at energies more than 0.2 eV. The values measured by Hoffman *et al.* are obviously low comparing to the current measurement. The data obtained by the Igashira group¹⁵⁾ may be close to the extrapolated values of the current data in the higher energy region. Figure 6 shows the current measurement and the evaluated cross sections in ENDF/B-VI and JENDL-3.2. The ratios of the av-

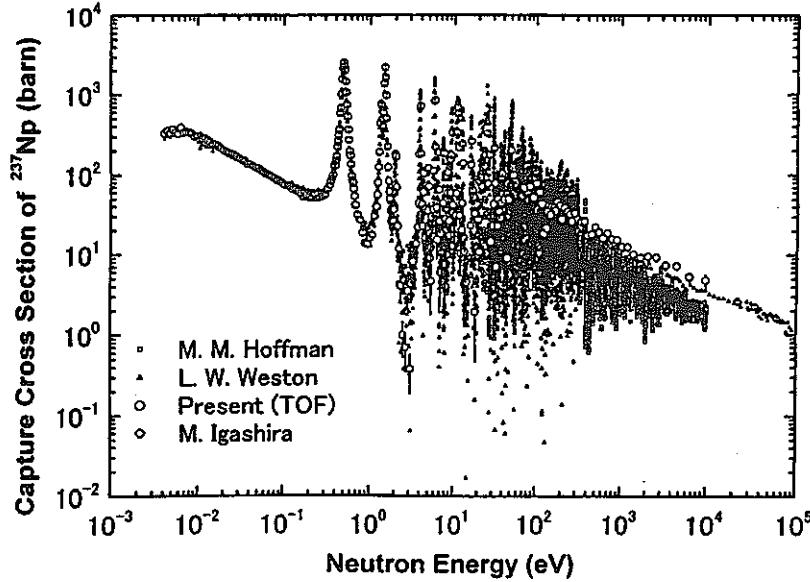


Fig. 5 Comparison of the experimental capture cross sections of ^{237}Np with the current measurement obtained by the linac TOF method

Table 1 Experimental uncertainties for the current measurements

Uncertainties due to	Experimental error (%)			
	TOF		KULS	
Statistical error	E_n (min)	Error (%)	E_n (min)	Error (%)
	0.04 eV	0.8–3.4	0.1 eV	8.1–49
	0.2 eV	3.3–38	0.3 eV	1.9–7.2
	2.3 eV	3.9–75	2.3 eV	0.7–6.3
	100 eV	8.4–17	35 eV	0.6–1.5
	10 keV	—	1 keV	—
Normalization to the reference value		3		3
Deviation from the $1/v$ form in the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ cross section		~2		~2
Background subtraction		~1		~1
Correction for the neutron self-shielding and/or neutron scattering effects		1.7–1.9		4.4–5.6
Total uncertainty		4.2–75%		5.8–49%

Table 2 Comparison of the ratios of the average values with the data by Weston and Todd¹⁴⁾ and Hoffman *et al.*¹⁵⁾ to that with the current measurement in each energy section

Energy range (eV)	Ratio of the integrated data	
	Weston and Todd Current (TOF)	Hoffman <i>et al.</i> Current (TOF)
0.01–0.2	1.02	—
0.2–3	0.883	—
3 ^{a)} –300	0.876	0.430
300–10,000	0.840	0.387

^{a)} 20 eV in case of Hoffman *et al.*¹⁵⁾

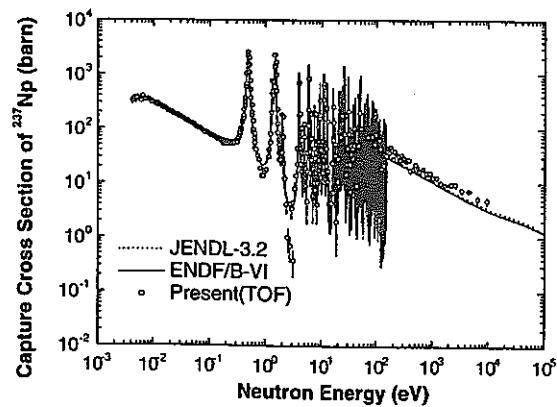
verage value of the evaluations to that of the measurement are shown in **Table 3**. The evaluations are in general agreement with the measurement, although both of the evaluated files show lower values in the higher energy region. This tendency is same as the relation between the current measurement and the data by Weston and Todd.

In order to experimentally prove the measurement obtained above, the supplementary capture cross section measurement of ^{237}Np has been also made relative to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ cross section with the linac-driven lead slowing-down spectrometer, KULS, making use of quite a different experimental method. An Ar-gas counter was used for the measurement of prompt capture γ -rays from the sample. **Figure 7** shows the measured result from 0.15 eV to 1 keV. In case of the KULS experiment, we could not get enough counts with the counter below 0.1 eV and above 1 keV because of its low detection efficiency and less neutron fluxes in the lower and higher energy regions.¹⁸⁾ The experimental uncertainties are summarized in **Table 1** and the total uncertainties are in the range of 5.8 to 49%. We have considered the uncertainties due to the statistical error, the normalization value, the reference cross section, background subtraction and the data corrections, as we took them into account in the TOF experiment. The data obtained by the linac TOF method are energy-broadened by the resolution function of the KULS and are also shown in the figure. The KULS data have been normalized to the energy-

Table 3 Comparison of the ratios of the average values with the evaluated data of ENDF/B-VI¹⁰⁾ and JENDL-3.2¹⁶⁾ to that with the current measurement in each energy section

Energy range (eV)	Ratio of the integrated data	
	ENDF/B-VI Current (TOF)	JENDL-3.2 Current (TOF)
0.01–0.2	1.31	1.16
0.2–3	0.868	0.873
3–150	0.896	0.892
150–10,000	0.752	0.825

broadened TOF data by integrating the data from 0.15 eV to 1 keV. The energy-broadened data obtained by Weston and Todd and by the TOF method are in general agreement with each other except for the higher energy region. The data by Hoffman *et al.* are clearly lower than the others in the relevant energy region. Both of the current results by the KULS and the TOF method are practically close to each other, although slight discrepancies are found between them in the resonance

**Fig. 6** Comparison of the evaluated capture cross sections of ^{237}Np in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 with the current measurement obtained by the linac TOF method

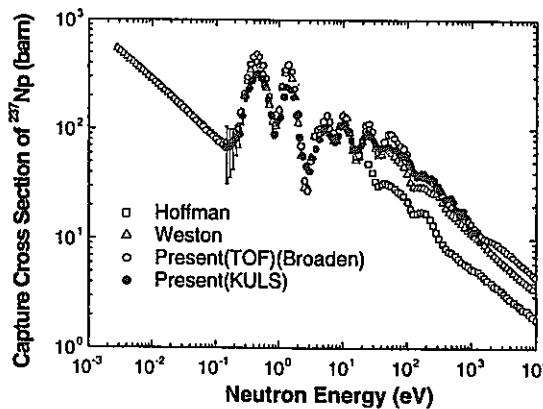
Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np 

Fig. 7 Comparison of the experimental capture cross sections of ^{237}Np with the current measurement obtained with the KULS

The data by Weston and Todd, Hoffmann *et al.* and the linac TOF data are energy-broadened by the resolution function of the KULS.

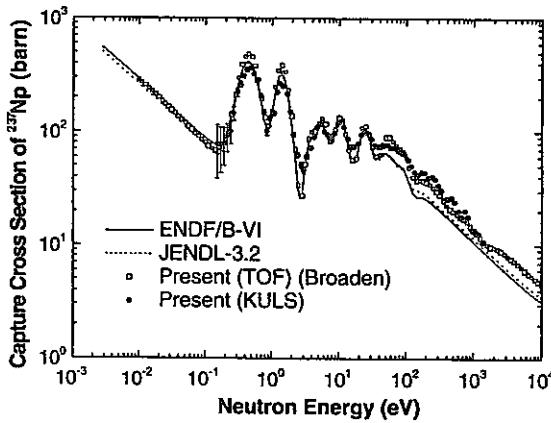


Fig. 8 Comparison of the evaluated capture cross sections of ^{237}Np in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 with the current measurement obtained with the KULS

The data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 and the linac TOF data are energy-broadened by the resolution function of the KULS.

structure region. In Fig. 8, the energy-broadened evaluation data of ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are illustrated and compared with the KULS and the energy-broadened TOF data. Both of the evaluated data are in good agreement with each other and are close to the KULS and the TOF measurements in general, although the evaluations seem to be a little lower than the measurements above 35 eV. The discrepancies in the resonance structure region are in the same tendency as the relation between the TOF data and the KULS data, as seen in Fig. 7.

V. Discussion

It is said that the efficiency of a small scintillation detector may be sensitive to the fluctuation in the spectrum and multiplicity of the prompt capture γ -ray cascades.²⁷⁾ Since we

have applied the C_6D_6 liquid scintillators (11 cm in diameter and 5 cm in thickness) to the relative measurement of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ cross section using the linac TOF method, we have tried to measure and check the pulse height spectrum from the ^{237}Np sample using the following neutrons: (1) neutrons from 0.01 to 0.2 eV, (2) neutrons from 0.2 to 1 eV in the first resonance region of ^{237}Np , (3) neutrons from 1 to 3 eV in the second resonance region and (4) neutrons from 0.01 to 1,000 eV in the relevant energy region. These measurements were performed by setting the time-gate corresponding to each energy region. The pulse height distributions obtained are shown in Fig. 9. As seen in the figure, the respective spectrum shapes are in good agreement with each other, although the counting rates are different and a little distortion is observed in the pulse height spectrum above about 4.5 MeV. Making use of the weighting function of the C_6D_6 detectors²⁸⁾ and the pulse height weighting technique,²⁹⁾ we have estimated the effect of the pulse height spectrum problem. As a result, it can be said that the effect of the pulse height distortion may be less than about 5%, which is within the range of the statistical error. In addition, the capture cross section obtained with the C_6D_6 detectors, as seen in Fig. 7 or 8, is close to that measured by the Ar-gas counter, which is said to have sensitivity proportional to the incident capture γ -ray energy.³⁰⁾

Neptunium-237 is a radioactive isotope emitting 86.5 keV γ -ray, and ^{233}Pa , which is produced through the α -decay of ^{237}Np , radiates intense γ -rays. Most of the γ -ray energies from ^{233}Pa are in the range of 300 to 341 keV. To reduce the γ -rays' background, we have set the discrimination level at about 400 keV for the current measurements with the C_6D_6 detectors and the Ar-gas counter. In case of the TOF experiment, good signal-to-background data could be obtained by the intense linac bursts and the signal coincidence method between the scintillators, although the counting rate was low. The KULS was also applicable to the current measurement

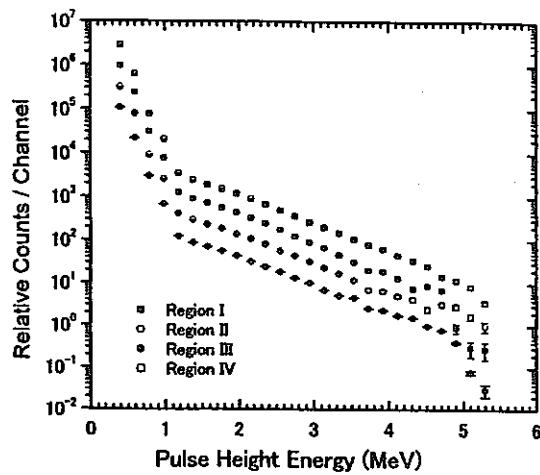


Fig. 9 Pulse height spectra from the ^{237}Np sample measured with the C_6D_6 liquid scintillators using the following neutrons;

Region I: Neutrons from 0.01 to 0.2 eV, Region II: Neutrons from 0.2 to 1 eV, Region III: Neutrons from 1 to 3 eV, Region IV: Neutrons from 0.01 to 1,000 eV

since intense neutron fluxes could be available¹⁸⁾ because of a short distance (about 40 to 50 cm) between the neutron source and the counter/sample. Then we could perform the cross section measurements by the TOF method and with the KULS.

In the data processing of the current measurement, it may be important to correct the effects caused by the neutron self-shielding or the neutron scattering in the capture sample. The correction calculations have been performed with the Monte Carlo code, MCNP.²⁴⁾ The uncertainty for the correction has been also obtained from the MCNP calculations. In the case of the background due to the fission γ -rays from ^{237}Np , it could be neglected because the subthreshold fission cross section is much lower comparing to the capture cross section in the relevant energy region. With the KULS experiment, moreover, the ^{237}Np sample was inserted into the Bi hole to reduce the background due to the photo-fission events.¹⁸⁾

We have compared the KULS data with those obtained by energy-broadening the TOF and the evaluated data using the resolution function of the KULS. We have employed a Gaussian function for the energy-broadening procedure.¹⁸⁾ Though it may be difficult to discuss the adequacy of the function, general agreement can be seen between the KULS data and the energy-broadened TOF data, as shown in Fig. 7 or 8. However, agreement between the KULS and the energy-broadened TOF or evaluated data is not always satisfied in the neutron energy regions of the cross section minimum and the resonance peak. The discrepancy would be due to the fact that the resolution function may not be appropriate to reproduce the KULS measurement.²⁰⁾ Although the energy-broadening problem remains in the comparison of the energy-broadened data with the KULS data, the energy-broadened TOF or evaluated data and the KULS data are in practical agreement with each other within the experimental error. Then it could be said that a significant systematic error may not exist in both of the current results.

Kobayashi *et al.* have measured the thermal neutron cross section and the resonance integral for the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ reaction by the activation method.¹²⁾ They pointed out that the thermal neutron cross section of 181 b in ENDF/B-VI was larger by about 15% than their measurement, although the resonance integral in ENDF/B-VI was in good agreement with theirs. Instead of the ENDF/B-VI value of 181 b, if we take the normalization value of 158 ± 3 b at 0.0253 eV obtained by Kobayashi *et al.*,¹²⁾ the current measurement becomes systematically lower by about 15% and is close to the data by Weston and Todd and in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 above about 0.2 eV. Then the ratio values in Tables 2 and 3 will be improved to be larger by about 15% and be closer to unity except for the energy region below 0.2 eV. That means that there are something wrong with the values of the energy dependent capture cross sections by Weston and Todd and both of the evaluated data below about 0.2 eV and they are larger by about 15% than the currently measured data which are normalized to 158 b at 0.0253 eV. If we try to normalize the integral value of the linac TOF measurement from 0.2 eV to 10 keV to that of the ENDF/B-VI values, the current value at 0.0253 eV becomes 160 b.

VI. Conclusion

The neutron capture cross section of ^{237}Np has been measured relative to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ standard cross section from 0.005 eV to 10 keV by the linac TOF method using a pair of C_6D_6 detectors. The relative measurement has been normalized to the reference value of 181 b at 0.0253 eV in ENDF/B-VI. The experimental data obtained by Weston and Todd and the evaluated data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 seem to be lower by about 15% in the energy region above about 0.2 eV, although good agreement is seen below 0.2 eV. The data by Hoffman *et al.* are lower by about 60% in the relevant energy region.

If we normalize the TOF data to the recent value of 158 b at 0.0253 eV, the data by Weston and Todd and the evaluated data mentioned above are in better agreement with the current measurement, except for the energy region below 0.2 eV. In other words, it may be said that the values of the capture cross sections by Weston and Todd and the evaluated data have something wrong below about 0.2 eV and are higher in general by about 15% in the relevant energy region.

The supplementary cross section measurement has been also made from 0.15 eV to 1 keV with the lead slowing-down spectrometer, KULS, whose energy resolution is 35 to 40% at FWHM, and the result has been normalized to the TOF data. The KULS data are close to both of the energy-broadened TOF data and the energy-broadened evaluation data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2. The tendency between the KULS data and the previous experimental and evaluated data is almost same as that for the TOF measurement. It has been found that the energy dependency of the KULS data is in agreement with that of the energy-broadened TOF data within the experimental error. Therefore, there may not be a systematic problem between the current results.

Acknowledgments

The authors would like to express their thanks to the linac staff of the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI) for making it possible to operate the accelerator steadily. They are also indebted to the Nuclear Data Center, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) for supplying the evaluated nuclear data.

This study was performed by the Grant-in-Aid (No.: 10480119) for Scientific Research from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan. A part of this study has been carried out under the financial support (100D0121) of the Japan Nuclear Cycle Development Institute.

References

- 1) T. Mukaiyama, *et al.*, *Nihon-Genshiryoku-Gakkai Shi* (J. At. Energy Soc. Jpn.), 37[3], 159 (1995).
- 2) D. Lancaster, *Proc. Int. Conf. and Technol. Exposition on Future Nuclear System: Global '93*, Seattle, Washington, Sept. 12-17, 1993, ANS, La Grange Park, Illinois, p. 609 (1993).
- 3) J. Tommasi, *et al.*, *Proc. Int. Conf. and Technol. Exposition on Future Nuclear System: Global '93*, p. 1252 (1993).

Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np

- 4) T. Wakabayashi, *et al.*, *Proc. Int. Conf. Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle System: Global '95*, Versailles, France, Sept. 11–14, 1995, Commissariat a L'Energie Atomique, p. 800 (1995).
- 5) J. L. Kloosterman, J. M. Li, *Proc. Int. Conf. Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle System: Global '95*, p. 1106 (1995).
- 6) J. Tommasi, *et al.*, *Proc. Int. Conf. on Future Nuclear System: Global '97*, Yokohama, Japan, Oct. 5–10, 1997, Vol. 1, p. 224 (1997).
- 7) K. Yokoyama, *et al.*, *Proc. Int. Conf. on Future Nuclear System: Global '97*, Vol. 1, p. 230 (1997).
- 8) J. L. Kloosterman, *et al.*, *Proc. Int. Conf. on Future Nuclear System: Global '97*, Vol. 1, p. 338 (1997).
- 9) V. McLane, *et al.*, *Neutron Cross Sections*, Vol. 2, *Neutron Cross Section Curves*, Academic Press, (1988).
- 10) P. F. Rose (Ed.), *ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation*, BNL-NCS-17541, 4-th Ed. MOD1 New evaluation (ENDF/B-VI), Brookhaven National Laboratory (1991); and V. McLane and Members of the Cross Section Working Group, *ENDF-201 ENDF/B-VI Summary Documentation Supplement I ENDF/HE-VI Summary Documentation*, BNL NCS-17541, 4-th Ed. MOD3, Revision 2, [ENDF/B-VI] Supplement 1 (1996).
- 11) A. B. Author, *et al.*, *J. Nucl. Phys.*, **12**, 345 (1979). Data retrieved from EXFOR Experimental Nuclear Reaction Data File 12345.002, a database compiled, exchanged and distributed by a worldwide network of Nuclear Reaction Data Centers.
- 12) K. Kobayashi, *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**[12], 1239 (1994).
- 13) M. M. Hoffman, *et al.*, *Bull. Am. Phys. Soc.*, **21**, 655 (1976).
- 14) L. W. Weston, J. H. Todd, *Nucl. Sci. Eng.*, **79**, 184 (1981).
- 15) 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 Advanced Reactors, *Bull. Res. Lab. Nucl. Reactors*, Special Issue 3, 208–213 (2000).
- 16) S. Shibata, T. Narita (Eds.), *Descriptive Data of JENDL-3.2*, JAERI-Data/Code 98-006, part II, (1998).
- 17) J. C. Chou, H. Werle, *J. Nucl. Energy*, **27**, 811 (1973).
- 18) K. Kobayashi, *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **385**, 145 (1997).
- 19) R. E. Slovacek, *et al.*, *Nucl. Sci. Eng.*, **62**, 455 (1977).
- 20) S. Yamamoto, *et al.*, *Nucl. Sci. Eng.*, **126**, 201 (1997).
- 21) K. Kobayashi, *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **36**, 20 (1999).
- 22) K. Kobayashi, *et al.*, *Annu. Rep. Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.*, **22**, 142 (1987).
- 23) H. W. Schmitt, ORNL-2883, 1-28-60 (1960).
- 24) J. F. Briesmeister (Ed.), *MCNP—A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport*, Version 4A, LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory, (1997).
- 25) K. H. Beckurts, K. Wirtz, *Neutron Physics*, Springer-Verlag, p. 357 (1964).
- 26) A. A. Bergman, *et al.*, *Proc. 1st Int. Conf. on Peaceful Uses for Atomic Energy*, United Nations, P/642, Vol. 4, p. 135 (1955).
- 27) J. A. Harvey (Ed.), *Experimental Neutron Resonance Spectroscopy*, Academic Press, New York and London, p. 235 (1970).
- 28) T. Sekiya, Master thesis of Tokyo Institute of Technology, (1979).
- 29) N. Yamamuro, *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods*, **113**, 531 (1976).
- 30) H. Bradt, *et al.*, *Helv Phys. Acta*, **19**, 77 (1946).

付録 E

Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{99}Tc Between 0.007 eV and 47 keV

Samyol LEE, Katsuhei KOBAYASHI *, Shuji YAMAMOTO and Yoshiaki FUJITA

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

* Corresponding author, Tel. +81-724-51-2346, Fax. +81-724-51-2602,
E-mail: koba@rri.kyoto-u.ac.jp

(Received)

KEYWORDS: capture cross section, $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction, neutron time-of-flight, measurement, 0.007 eV to 47 keV energy range, C_6D_6 scintillators, $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ standard cross section, lead slowing-down spectrometer, Ar-gas proportional counter

The nuclear cross section data of long-lived fission products (LLFPs) are of great importance for the assessment of reactor safety and the investigation of fuel-burn-up characteristics. In recent years, a great interest has been taken in the capture cross sections of LLFPs from the points of research and development of the nuclear transmutation technology.¹⁾

Although the cross section of the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction has been measured by a few experimental groups²⁻⁵⁾, no data has been reported below 3 eV, except for the data at the thermal neutron energy.⁶⁻⁸⁾ Chou and Werle have measured the data from 3 eV to 50 keV by using a lead slowing-down spectrometer.²⁾ Resonance peaks of the cross section are energy-broadened due to the poor energy resolution of the spectrometer. In the keV energy region, Little and Block³⁾ and Macklin⁴⁾ measured the cross section by the neutron time-of-flight (TOF) method using an electron linear accelerator (linac). An experimental group of Igashira has also obtained the data with a Pelletron accelerator.⁵⁾ Very recently, the capture cross section has been measured from 3 to 400 eV at the Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM) using the Geel linac GELINA and the resonance parameters obtained have been analyzed.^{9,10)} The evaluated cross section of the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction has been compiled in ENDF/B-VI¹¹⁾, JENDL-3.2¹²⁾ and JEF-2.2¹³⁾.

1. Experimental

The capture cross section measurement has been carried out by the neutron TOF method using a 46 MeV linac at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). The experimental arrangement is shown in Fig. 1. The neutron collimation system was mainly composed of B_4C , Li_2CO_3 and Pb materials and tapered from 12 cm in diameter at the entrance of the flight tube to about 2 cm in diameter at the capture sample. The experimental arrangement is similar to the previous one.¹⁴⁾

Technetium sample was made of oxide powder (TcO_2 , chemical purity of Tc: 95%) of 72.8 mg, which was packed in an aluminum disk-container of 30 mm in diameter and 1.9 mm in thickness. No other γ -ray

peak has been observed from the sample with a high purity Ge detector. A boron (B) plug of $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$, 0.5 cm in thickness (1.102 g/cm^2) was used for the neutron flux/spectrum measurement.

A pair of the C_6D_6 liquid scintillators (11 cm in diameter and 5 cm in thickness), which was placed at a distance of $12.0 \pm 0.02 \text{ m}$ from the pulsed neutron source of Ta, was employed for the capture cross section measurement of ^{99}Tc , and the sample was put in the neutron beam between the scintillators. The scintillators are less sensitive to neutrons in scattered from the sample/surroundings. The background measurement has been made with an empty disk-container for the sample. The background level has been also confirmed by the block-off method with a thick ^{10}B plug (4.54 g/cm^2) putting into the neutron beam.

We have employed a coincidence method between the C_6D_6 detectors to reduce the background counts, although an anti-coincidence method has been applied to the B measurement. Through the amplifiers and the discriminators, signals from the detectors were fed into a time digitizer, which was started by the linac electron burst. The discrimination level was set at about 200 keV to detect the γ -rays from the ^{99}Tc and the B samples. Two sets of 4096 channels with a $0.5 \mu\text{s}$ channel-width were allotted to the C_6D_6 detectors and a BF_3 proportional counter as a neutron intensity monitor during the experiment. These signals were stored in a data-acquisition system for each measurement.

The linac was operated in two different modes: one was for the measurement below about 20 eV with a repetition rate of 50 Hz, a pulse width of $3 \mu\text{s}$, a peak current of 0.4 A and an electron energy of 30 MeV, and the other is for the measurement above about 2 eV with a repetition rate of 200 Hz, a pulse width of 100 ns, a peak current of 6 A and an electron energy of 30 MeV.

The relative capture yield for the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction to that for the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ reaction is obtained by the following relations:^{14,15)}

$$Y_X(E) = \frac{C_X(E)}{C_B(E)} \cdot Y_B(E) , \quad (1)$$

where the subscripts X and B are for the ^{99}Tc and the B samples, respectively. $C_X(E)$ and $C_B(E)$ are the counting rates at energy E for each sample. $Y_B(E)$ is the energy dependent capture yield for the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ standard cross section. There is a following relation between the capture cross section $\sigma_C(E)$ and the yield $Y(E)$:^{14,15)}

$$Y(E) = \left\{ 1 - \exp(-N \cdot \sigma_T(E) \cdot t) \right\} \frac{\sigma_C(E)}{\sigma_T(E) \cdot Fc(E)} , \quad (2)$$

where $\sigma_C(E)$ and $\sigma_T(E)$ are the neutron capture and the total cross sections, N and t are the atomic density and the thickness of the sample, and $Fc(E)$ is a correction function for the neutron scattering and/or self-shielding in the sample. In the current data analysis, we have employed the Monte Carlo code MCNP¹⁶⁾ to derive the correction function $Fc(E)$.

Using a lead slowing-down spectrometer, the capture cross section can be also obtained in principle with the above Eqs.(1) and (2), although the energy resolution is broadened to be about 35 %.¹⁴⁾ We have made a supplementary measurement of the $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)$ cross section by the Kyoto University Lead slowing-down Spectrometer (KULS)¹⁷⁾ using an Ar-gas proportional counter for the capture γ -ray measurement, as we have measured before.¹⁴⁾

2. Results and Discussion

Making use of the C₆D₆ detectors and the 46 MeV electron linac at KURRI, the capture cross section of ^{99}Tc has been measured relative to that of the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ reaction from 0.007 eV to 47 keV and the result has been normalized to the reference cross section value of 19.57 b at 0.0253 eV in ENDF/B-VI. The measurement of the high energy run has been normalized to that between 3 eV and 10 eV in the low energy run. The major uncertainties are due to the statistical error, which is especially larger in the resonance region and the worst case is more than 100 %, deviation from the 1/v form in the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ standard cross section, the data normalization with the reference value and the error related to the corrections by the neutron self-shielding and/or in-scattered neutrons, as shown in Table 1. The correction for the neutron self-shielding and/or the neutron scattering in the capture sample was made by using the Monte Carlo code MCNP, as we did before.¹⁴⁾ In the off-resonance energy region, we have summed up some of the channel-data to give better statistics. However, we have not added the measured data in the resonance peak region to keep the energy resolution better. As we have done before,¹⁴⁾ we have investigated the detection efficiency of the C₆D₆ detection system, by measuring the pulse height spectra with neutrons (1) from 0.007 to 2 eV, (2) from 2 to 15 eV in the first resonance and (3) from 15 to 150 eV. The results processed by the weighting function method showed that the effect on the relative efficiency might be 3 % to 10 % at most in the resonance cross section region and that the factor was within the experimental uncertainty.

The capture cross section obtained by the linac TOF method is presented in Fig. 2. Since the data measured by Chou and Werle²⁾ are energy-broadened by a lead slowing-down spectrometer, we cannot directly compare the data with the TOF measurement. However, their data are discrepant from the energy-broadened evaluation values and the current data at the resonance energy region. Above 200 eV, the cross sections measured by Chou and Werle²⁾, Little and Block³⁾, Macklin⁴⁾ and the Igashira's group⁵⁾ are close to the current measurement in general, although it seems that the data by Little and Block are a little higher at energies of 4 to 30 keV and that the data by Chou and Werle are a little lower above 10 keV. The evaluation data in ENDF/B-VI¹¹⁾, JENDL-3.2¹²⁾ and JEF-2.2¹³⁾ are almost similar to each other. They are in general agreement with the current measurement in the relevant energy range. In the cross section minimum region from 10 eV up to 200 eV, the measured values are close to the evaluations, although the statistical errors are pretty larger. The uncertainties may be caused by poor signal-to-background ratio due to the limited amount of ^{99}Tc sample.

The supplementary capture cross section of the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction has been also measured relative to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ cross section, using the KULS¹⁷⁾. Figure 3 shows the measured result from 0.3 eV to 1 keV. The

experimental uncertainties, which are mainly due to the statistical ones, are from 0.3 to 23 %. The KULS data have been normalized to the energy-broadened TOF data by integrating them in the relevant energy region. The data by the KULS are practically close to the energy-broadened TOF data, although slight discrepancies are found between the data in the resonance structure region. As we have discussed before¹⁴⁾, the discrepancies would be due to the fact that there may exist some problems in the resolution function to reproduce the KULS measurement. In the cross section minimum region, the data by Chou and Werle seem to be higher compared to the KULS data and the energy-broadened TOF data, which are closer to the energy-broadened evaluations in ENDF/B-VI and JENDL-3.2.

3. Conclusion

The existing experimental data by Little and Block, Macklin and the Igashira's group and the evaluation data in ENDF/B-VI and JENDL-3.2 are close in general above 200 eV to the current measurement from 0.007 eV to 47 keV by the linac TOF method. In the resonance energy region, the supplementary measurement has been also made from 0.3 eV to 1 keV with the lead slowing-down spectrometer, KULS, and the result is close to the data by Chou and Werle and to the energy-broadened TOF and the evaluation data, although some discrepancies among them are seen in the resonance cross section minimum region. We could provide the interesting data for the capture cross section, especially in the lower or resonance energy region.

This study was performed by the Grant-in-Aid (No.:13680588) for Scientific Research from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan. A part of this study was carried out under the financial support (JNC TJ9400 2001-003) of the Japan Nuclear Cycle Development Institute.

References

- 1) T. Mukaiyama et al., *Nihon-Genshiryoku-Gakkai Shi (J. At. Energy Soc. Jpn.)*, 37(3), 159 (1995).
- 2) J. C. Chou and H. Werle, *J. Nucl. Energy*, 27, 811 (1973).
- 3) R. C. Little and R. C. Block, *Am. Nucl. Soc.*, 26, 574 (1977).
- 4) R. L. Macklin, *Nucl. Sci. Eng.*, 81, 520 (1982).
- 5) T. Matsumoto, M. Igashira et al., "Japan-Korea Seminar on Advanced Reactors", *Bull. Res. Lab. for Nuclear Reactors*, Special Issue 3, 208 (2000).
- 6) V. McLane, C. L. Dunford and P. F. Rose, "Neutron Cross Sections", Vol.2, *Neutron Cross Section Curves*, Academic Press, Inc. New York (1988).
- 7) A. B. Author et al., *J. Nucl. Phys.* 12, 345 (1979). Data retrieved from EXFOR Experimental Nuclear Reaction Data File 12345.002, a database compiled, exchanged and distributed by a worldwide network of Nuclear Reaction Data Centers.
- 8) N. E. Holden, "Neutron Scattering and Absorption Properties", CRC Handbook of Chemistry and Physics, 78-th Ed., CRC Press (1998).

- 9) C. Raepsaet *et al.*, *Proc. Nucl. Data for Sci. Technol.*, Vol.59, pp.1289-1292, by G. Reffo *et al.* (Eds.) SIF, Bologna, 1977.
 - 10) F. Gunsing, *Private Communication* (Jan. 2002).
 - 11) P. F. Rose (Ed.), "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation," BNL-NCS-17541, 4th Ed., MOD1 New Evaluation (ENDF/B-VI) Brookhaven National Laboratory (1991), and V. McLane and Members of the Cross Section Working Group "ENDF-201 ENDF/B-VI Summary Documentation Supplement 1 ENDF/HE-VI Summary Documentation," BNL NCS-17541, 4-th Ed., MOD3 Revision 2, [ENDF/B-VI] Supplement 1 (1996).
 - 12) K. Shibata and T. Narita (Eds.): "Descriptive Data of JENDL-3.2," JAERI-Data/ Code 98-006 (part II) (1998).
 - 13) C. Nordborg and M. Salvatores, "Status of the JEF Evaluated Data Library," *Proc. Int'l Conf. Nucl. Data Science and Technology*, Gatlinberg, Tennessee, Vol.2, ANS, 680 (1994).
 - 14) K. Kobayashi *et al.*, To be published in *J. Nucl. Sci. Technol.*
 - 15) S. Yamamoto *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 33(12), 815 (1996).
 - 16) J. F. Briesmeister (Ed.), "MCNP-A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport", Version 4B, LA-12625-M (1997).
 - 17) K. Kobayashi *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 385, 145 (1997).
-

Table 1. Experimental uncertainties for the current time-of-flight measurement.

Uncertainties due to	Experimental Error (%)
Statistical error	
E_n (min)	Error (%)
0.07 eV	5.8 ~ 6.7
1.0 eV	3.8 ~ 25
7.0 eV	8.0 ~ >100
300 eV	17 ~ 47
47 keV	—
Normalization to the reference value	3
Deviation from the $1/v$ form in the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ cross section	~2
Background subtraction	~1
Correction for the neutron self-shielding and/or neutron scattering effects	1.5 ~ 2.3
Total uncertainty	5.6 ~ >100 (%)

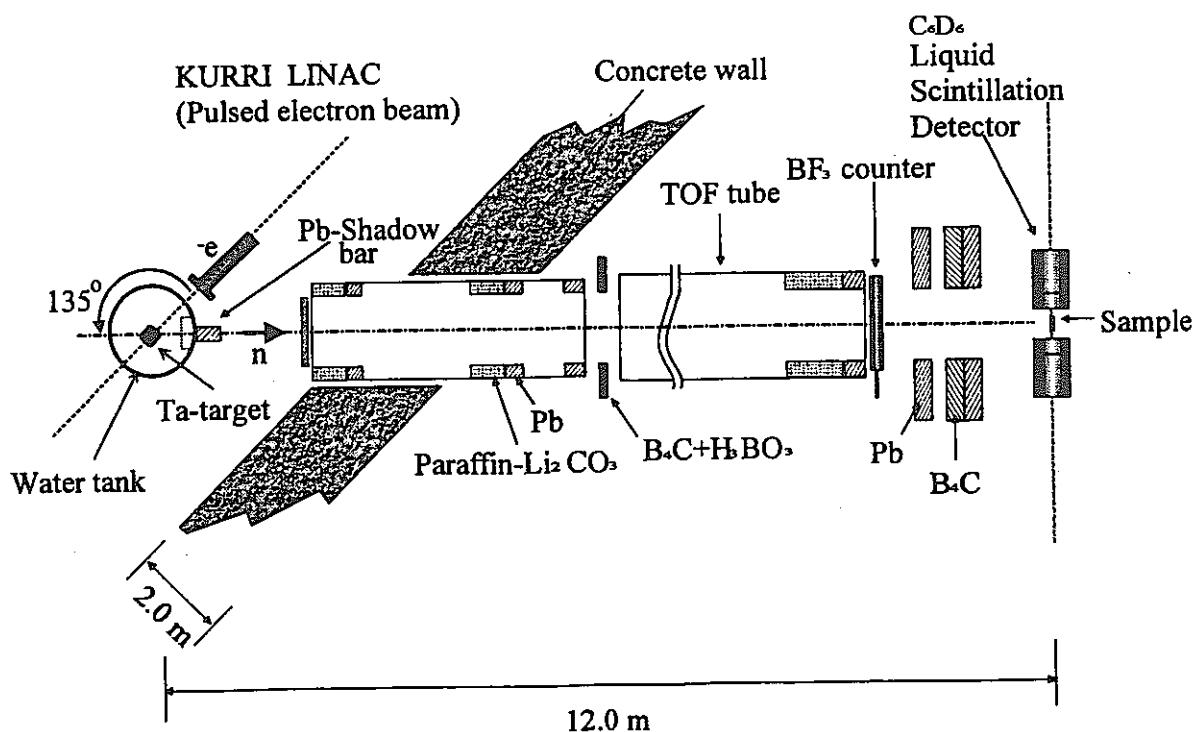


Figure 1 Experimental arrangement for the linac time-of-flight method.

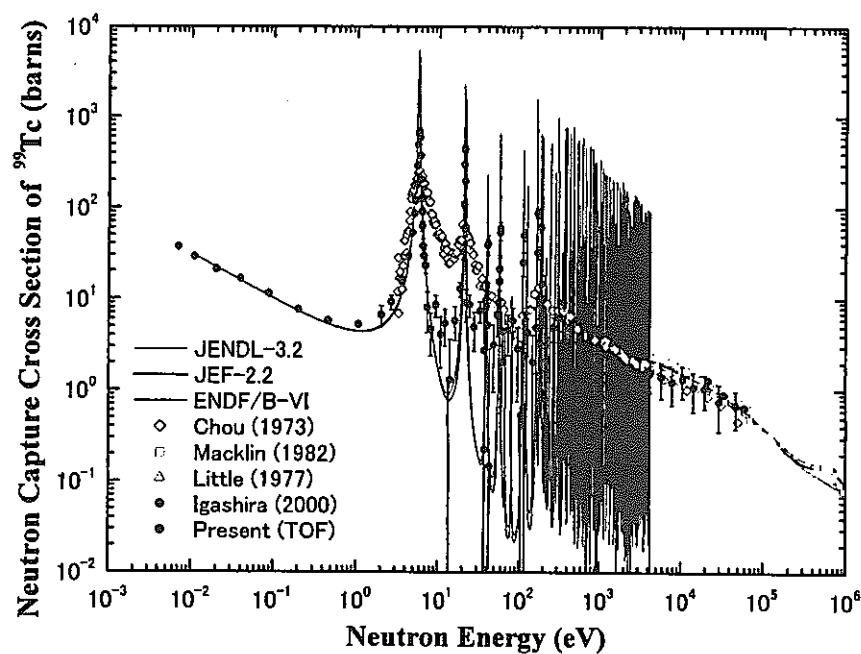


Figure 2 Comparison of the current measurement and the experimental/evaluated cross sections of the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction.

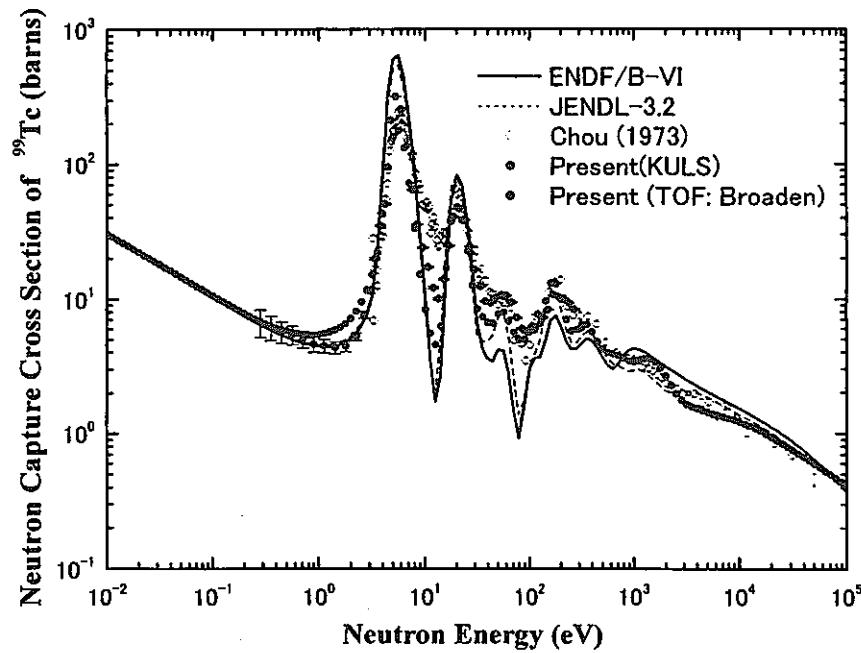


Figure 3 Comparison of the measured data by the linac TOF method and the KULS and the evaluated cross sections in ENDF/B-VI and JENDL-3.2. The evaluated data and the linac TOF data are energy-broadened by the resolution function of the KULS.

付録 F

Neutron Capture Cross Section Measurements of Tc-99 and Rh at Energies below 40 keV by Linac Time-of-Flight Method

Katsuhei KOBAYASHI ^{1,*}, Samyol LEE ¹, Shuji YAMAMOTO ¹, Takaaki YOSHIMOTO ¹, Yoshiaki FUJITA ¹,
Guinyun KIM ², Youngseok LEE ³ and Jonghwa CHANG ⁴

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

² Center for High Energy Physics, Kyungpook National University, 1370 Sankyuck-dong, Buk-gu, Taegu 702-701, Korea

³ Pohang Accelerator Laboratory, Pohang University of Science and Technology, San 31, Hyoja-dong, Nam-gu, Pohang 790-784, Korea

⁴ Korea Atomic Energy Research Institute, P. O. Box 105, Taejeon 305-600, Korea

The neutron capture cross sections of ⁹⁹Tc and Rh have been measured relative to the ¹⁰B(n, α) standard cross section at energies below about 40 keV by the neutron time-of-flight (TOF) method using a 46 MeV electron linear accelerator (linac) at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). A pair of C₆D₆ scintillation detectors has been used for the relative measurement of the ⁹⁹Tc(n, γ) cross section, and the result has been normalized to the reference cross section value (19.57b) at 0.0253 eV in ENDF/B-VI. A total energy absorption detector, which was composed of 12 pieces of Bi₄Ge₃O₁₂ (BGO) scintillators, was employed for the absolute capture cross section measurement of Rh. Both of the measured cross sections have been compared with the existing experimental data and the evaluated data in ENDF/B-VI, JENDL-3.2 and JEF-2.2.

KEYWORDS: capture cross section, Tc-99, Rh, neutron time-of-flight, measurement, C₆D₆ scintillators, BGO scintillators, total energy absorption detector, ¹⁰B(n, α) standard cross section

I . Introduction

The nuclear cross section data of long-lived fission products (LLFPs) are of great importance for the assessment of reactor safety and the investigation of fuel-burn-up characteristics. In recent years, a great interest has been taken in the capture cross sections of LLFPs from the points of research and development of the nuclear transmutation technology.¹⁾

Although the cross section of the ⁹⁹Tc(n, γ) reaction has been measured by a few experimental groups²⁻⁵⁾, no data has been reported below 3 eV, except for the data at the thermal neutron energy.^{6,7)} Chou and Werle have measured the data from 3 eV to 50 keV by using a lead slowing-down spectrometer.²⁾ Due to the poor energy resolution of the spectrometer, the resonance peaks of the cross section are energy-broadened. In the keV energy region, Little and Block³⁾ and Macklin⁴⁾ measured the cross section by the neutron time-of-flight (TOF) method using an electron linear accelerator (linac). Recently an experimental group of Igashira has obtained the data with a Pelletron accelerator.⁵⁾ The evaluated cross section of the ⁹⁹Tc(n, γ) reaction has been compiled in the ENDF/B-VI⁸⁾, the JENDL-3.2⁹⁾ and the JEF-2.2¹⁰⁾ files.

Most of the reported experimental cross sections of the Rh(n, γ) reaction are in the energy range of keV to MeV.^{6,7)} Macklin and Halperin¹¹⁾, Hockenbury et al.¹²⁾, Fricke and Carlson¹³⁾ and Moxon and Rae¹⁴⁾ measured the cross section by the linac TOF method. Block et al.¹⁵⁾ used a fast chopper and Poenitz¹⁶⁾ made the measurement with a fast neutron generator. Reffo et al.¹⁷⁾, Bokhovko et al.¹⁸⁾ and

Wissak et al.¹⁹⁾ obtained the data with a pulsed Van de Graaff accelerator. However in the lower or resonance energy region, the capture cross section is rather deficient except for the thermal neutron energy data^{6,7)}. In the relevant energy region, Popov and Shapiro measured the data from 0.4 eV to 34 keV with a lead slowing-down spectrometer and the energy resolution was pretty poor.²⁰⁾ No other experimental data have been reported below 100 eV. The evaluated data of the Rh(n, γ) cross section are compiled in ENDF/B-VI⁸⁾, JENDL-3.2⁹⁾ and JEF-2.2¹⁰⁾.

An electron linac is a powerful tool to measure an energy dependent cross section in the wide energy range from a milli-electron-volt to hundreds of kilo-electron-volts, and is usable for the present measurements. Making use of the linac TOF method, the capture cross section of ⁹⁹Tc is measured with a pair of C₆D₆ liquid scintillators, and the cross section of the Rh(n, γ) reaction is measured with a total energy absorption detector which is composed of 12 pieces of Bi₄Ge₃O₁₂ (BGO) scintillators^{21,22)}. The incident neutron flux/spectrum is determined with a boron (B) plug using the ¹⁰B(n, α) standard cross section. Both of the cross sections obtained are compared with the previous measurements and the evaluated data in ENDF/B-VI, JENDL-3.2 and JEF-2.2.

II . Experimental Method

1. Experimental Arrangement

The capture cross section measurements have been carried out by the neutron TOF method using the 46 MeV linac at the Research Reactor Institute, Kyoto University (KURRI). The experimental arrangement is shown in Fig. 1. Pulsed neutrons were produced from a water-cooled Ta target in a

*Corresponding author, Tel. +81-724-51-2346, Fax. +81-724-51-2602, E-mail: koba@mri.kyoto-u.ac.jp

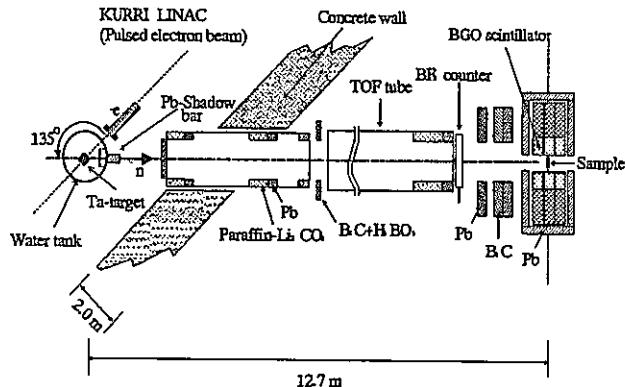


Fig. 1 Experimental arrangement for the capture cross section measurement using BGO detectors. In case of the measurement with C_6D_6 detectors, they were set at 12.0 m instead of the BGO detectors.

water tank as a neutron moderator. A lead block, 5 cm \times 5 cm and 10 cm long, was placed in front of the Ta target to reduce the γ -flash by the electron burst. The neutron collimation system was mainly composed of B_4C , Li_2CO_3 and Pb materials and tapered from 12 cm in diameter at the entrance of the flight tube to about $1.8 \times 1.8\text{ cm}^2$ at the capture sample. The experimental arrangement is similar to the previous ones.^{22,23)}

2. Samples and Detectors

Technetium oxide (TcO_2) powder of 72.8 mg, whose sample was packed in an aluminum disk-container of 30 mm in diameter and 1.9 mm in thickness, was purchased from the Amersham. The purity of the sample is more than 95 %. No other γ -ray peak has been observed from the sample with a high purity Ge detector, except for the 1461 keV γ -ray peak due to ^{40}K . In case of the Rh sample, we used a thin foil (18mm \times 18mm, 0.25mm thick). Rh powder (purity:99.98%), which was packed in a plug of 18mm \times 18mm, 10mm thick (4.31 g/cm^3), was also utilized for the measurement in the capture cross section minimum region from a few eV to ~ 100 eV. A boron (B) plug, which was made by natural boron powder packed in a thin aluminum case, was used for the neutron flux/spectrum measurement.

A pair of the C_6D_6 liquid scintillators (11 cm in diameter and 5 cm in thickness), which was placed at a distance of 12.0 ± 0.02 m from the Ta target, was employed for the capture cross section measurement of ^{99}Tc , and the sample was put in the neutron TOF beam between the scintillators. The scintillators are less sensitive to neutrons in scattered from the sample/surroundings. For the measurement of the $Rh(n,\gamma)$ cross section, twelve pieces of BGO scintillators were assembled and used as a total energy absorption detector to measure the absolute capture cross section using the neutron flight-path of 12.7 ± 0.02 m from the neutron source. The detection efficiency of the BGO assembly is described in the literatures.^{21,22)}

3. Electronics and Data Taking

Through the amplifiers and the discriminators, signals

from the C_6D_6 detectors or the BGO detectors were fed into a time digitizer, which was started by the linac electron burst. Two sets of 4096 channels with a $0.5\text{ }\mu s$ channel width were allotted to the C_6D_6 detectors or the BGO detectors and a BF_3 counter as a neutron intensity monitor during the experiment. These signals were stored in a data-acquisition system for each measurement.

The typical operating conditions were as follows. The pulse repetition rate was 50 to 100 Hz, the pulse width was 3 to $0.1\text{ }\mu s$, the electron peak current was 0.5 to 6 A and the electron energy was ~ 30 MeV for the ^{99}Tc cross section measurement with the C_6D_6 detectors. The operating conditions for the Rh cross section measurement with the BGO detectors were almost same as those for the ^{99}Tc measurement.

4. Cross Section Measurement and Corrections

The capture yield for the $^{99}Tc(n,\gamma)$ or the $Rh(n,\gamma)$ reaction is obtained by the following relation:²²⁾

$$Y_X(E) = \frac{C_X(E)}{C_B(E)} Y_B(E), \quad (1)$$

where the subscripts X and B are for the ^{99}Tc or Rh and for the B sample, respectively. $C_X(E)$ and $C_B(E)$ are the counting rates considering the detection efficiency at energy E for each sample. $Y_B(E)$ is the energy dependent capture yield for the $^{10}B(n,\alpha)$ standard cross section. There is a following relation between the capture cross section $\sigma_c(E)$ and the yield $Y(E)$ for each sample:²²⁾

$$Y(E) = \frac{\{1 - \exp(-N\sigma_T(E)t)\}\sigma_c(E)F_c(E)}{\sigma_T(E)}, \quad (2)$$

where, $\sigma_c(E)$ and $\sigma_T(E)$ are the neutron capture and the total cross sections, respectively, N and t are the atomic density and the thickness of the sample, and $F_c(E)$ is a correction function for the neutron scattering and/or self-shielding in the sample. In the present data analysis, we have employed the Monte Carlo code MCNP²⁴⁾ to derive the correction function $F_c(E)$.

The background measurement has been made with an empty disk-container or plug for each sample. The background level has been also confirmed by using the notch-filters of Ag, Co and Mn and by the block-off method with a thick ^{10}B plug (4.54 g/cm^3) putting into the neutron TOF beam.

III. Results and Discussion

Making use of the C_6D_6 detectors, the measurement of the $^{99}Tc(n,\gamma)$ reaction has been made from 0.01 eV to 40 keV and normalized to the reference cross section value of 19.57

b at 0.0253 eV in ENDF/B-VI. In the off-resonance region, the TOF channel data have been summed up to improve the statistical error. The major uncertainties are due to the statistical error (0.7 to ~200 % because of poor signal-to-background ratio in the cross section minimum region), deviation from the $1/v$ form in the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ standard cross section, the data normalization with the reference value and the error related to the corrections by the neutron self-

shielding and/or in-scattered neutrons. The total uncertainties are in the range of 5.6 to 200 %, and the result obtained is shown in Fig. 2. The efficiency of the C_6D_6 detection system has been experimentally investigated as we have done before²³⁾, and it has been found that the effect on the relative efficiency may be 3 % to 10 % at most in the resonance energy region and that the factor is within the experimental uncertainty.

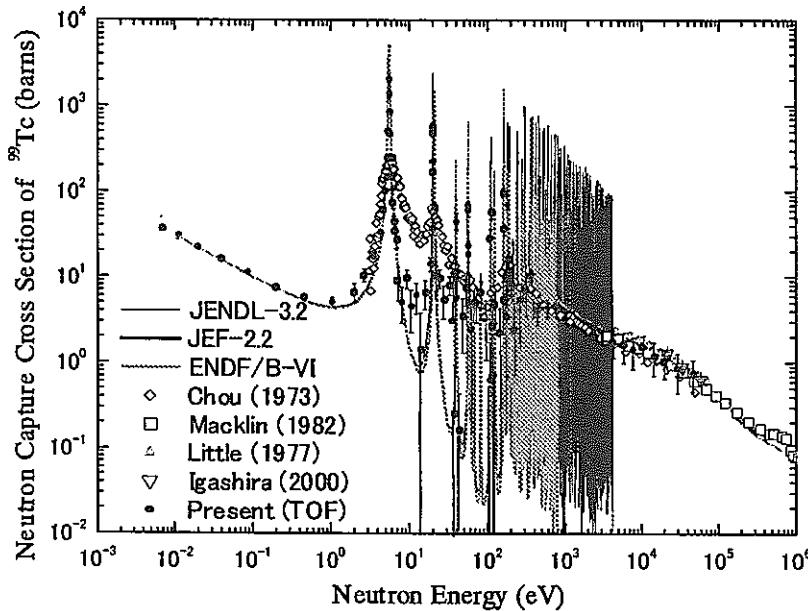


Fig. 2 Comparison of the present measurement and the experimental/evaluated cross sections of the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction.

Since the data obtained by Chou and Werle are energy-broadened by the lead slowing-down spectrometer, we cannot directly compare the data with the present measurement. However, their data show higher values, especially at the big resonance region. Above 100 eV, the cross sections measured by Chou and Werle, Little and Block, Macklin and the Igashira's group are close to the measurement in general,²⁻⁵⁾ although it seems that the data by Little and Block are a little higher in the lower energy region and that the data by Chou and Werle are a little lower in the higher energy region. The evaluated data in ENDF/B-VI, JENDL-3.2 and JEF-2.2 are almost similar to each other. They are in general agreement with the present measurement, although it seems that the experimental values are rather smooth compared with the evaluated data in the sharp resonance region, due to the finite experimental energy resolution.

The cross section of the $\text{Rh}(n,\gamma)$ reaction has been measured from 0.003 eV to 40 keV with the total energy absorption detector.²¹⁾ The experimental errors are caused by almost the same factors as mentioned in the ^{99}Tc measurement, and the total uncertainties are 3 to 58 %. Most of the previous measurements have been made above about 100 eV, and they are in general agreement with the present measurement in the range of the

uncertainties.¹¹⁻¹⁷⁾ It may be said that the data by Bokhovko et al.¹⁸⁾ and Wissak et al.¹⁹⁾ are lower a little than the measurement. The energy-broadened data by Popov and Shapiro²⁰⁾ are pretty higher than in the resonance energy region of 3 to 100 eV, as shown in Fig. 3. Good agreement can be seen between the present values and the data in ENDF/B-VI, JENDL-3.2 and JEF-2.2, although it seems that the evaluations in JENDL-3.2 and JEF-2.2 are a little lower in the cross section minima.

IV. Conclusion

The neutron capture cross sections of ^{99}Tc and Rh have been measured from 0.01 eV to 40 keV and from 0.003 eV to 40 keV, respectively, by the linac TOF method. For the $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$ reaction, no data have been reported below 3 keV before, except for the measurement from 3.2 eV to 50 keV with the lead slowing-down spectrometer by Chou and Werle. For the $\text{Rh}(n,\gamma)$ reaction, no data have been obtained below about 100 eV before, except for the measurement from 0.4 eV to 34 keV with the lead slowing-down spectrometer by Popov and Shapiro. We could provide the interesting data for both reactions, especially in the lower or resonance energy region.

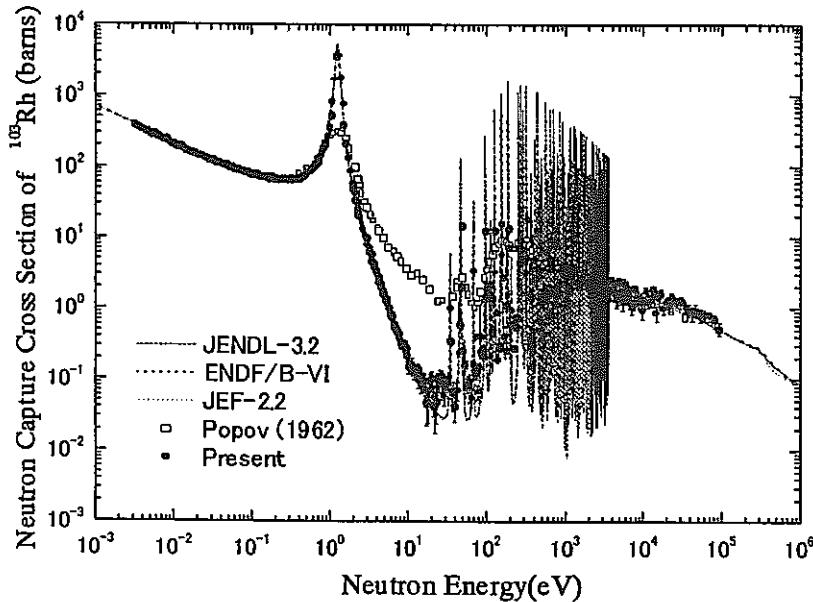


Fig. 3 Comparison of the present measurement and the data measured by Popov et al. and evaluated in the files.

Acknowledgment

A part of this study has been carried out under the financial support (120D0152) of the Japan Nuclear Cycle Development Institute.

References

- 1) T. Mukaiyama et al., *Nihon-Genshiryoku-Gakkai Shi (J. At. Energy Soc. Jpn.)*, 37(3), 159 (1995).
- 2) J. C. Chou, H. Werle, *J. Nucl. Energy*, 27, 811 (1973).
- 3) R. C. Little, R. C. Block, *Am. Nucl. Soc.*, 26, 574 (1977).
- 4) R. L. Macklin, *Nucl. Sci. Eng.*, 81, 520 (1982).
- 5) T. Matsumoto, M. Igashira et al., "Japan-Korea Seminar on Advanced Reactors", *Bull. Res. Lab. for Nuclear Reactors*, Special Issue 3, 208 (2000).
- 6) V. McLane, C. L. Dunford, P. F. Rose, "Neutron Cross Sections", Vol.2, *Neutron Cross Section Curves*, Academic Press, Inc. New York (1988).
- 7) A. B. Author et al.: *J. Nucl. Phys.* 12, 345 (1979). Data retrieved from EXFOR Experimental Nuclear Reaction Data File 12345.002, a database compiled, exchanged and distributed by a worldwide network of Nuclear Reaction Data Centers.
- 8) P. F. Rose (Ed.), "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation," BNL-NCS-17541, 4th Ed., MOD1 New evaluation (ENDF/B-VI) Brookhaven National Laboratory (1991), and V. McLane and Members of the Cross Section Working Group "ENDF-201 ENDF/B-VI Summary Documentation Supplement 1 ENDF/HE-VI Summary Documentation," BNL NCS-17541, 4-th Ed., MOD3 Revision 2, [ENDF/B-VI] Supplement 1 (1996).
- 9) K. Shibata, T. Narita (Eds.), "Descriptive Data of JENDL-3.2," JAERI-Data/ Code 98-006 (part II) (1998).
- 10) C. Nordborg, M. Salvatores, "Status of the JEF Evaluated Data Library," *Proc. Int'l Conf. Nucl. Data Science and Technology*, Gatlinberg, Tennessee, Vol.2, ANS, 680 (1994).
- 11) R. L. Macklin, J. Halperin, *Nucl. Sci. Eng.*, 73, 174 (1980).
- 12) R. W. Hockenbury et al., 4-th Conf. on Nuclear Cross Sections and Technology, Washington D.C., Vol.2, 905 (1975).
- 13) M. Fricke, A. Carlson, *Am. Nucl. Soc.*, 14, 352 (1971).
- 14) M. C. Moxon, E. R. Rae, NP-17644 (1968).
- 15) R. C. Block et al., *Time of Flight Method Conf.* in Saclay, 203 (1961).
- 16) W. P. Poenitz, *Specialists' Meeting* in Bologna, Publ. RIT/FIS-LDN(80)1., 85 (1979).
- 17) G. Reffo et al., *Nucl. Sci. Eng.*, 80, 630 (1982).
- 18) M. V. Bokhovko et al., *Int'l Conf. on Nucl. Data for Sci. and Technol.* in Juelich, 62 (1991).
- 19) K. Wissak et al., *Phys. Rev. C*, Vol.42. No.4, 1731 (1990).
- 20) Ju. P. Popov, F. L. Shapiro, *Soviet Phys.*, Vol.42, No.4, 988 (1962).
- 21) S. Yamamoto et al., *Nucl. Instrum. Meth.*, A249, 484 (1986).
- 22) S. Yamamoto et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 33(12), 815 (1996).
- 23) S. Lee et al., JAERI-Conf 2001-006, p.141 (2001).
- 24) J. F. Briesmeister (Ed.), "MCNP-A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport", Version 4B, LA-12625-M (1997).