

Tc-99の中性子捕獲断面積測定

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

1999年 3月

東京工業大学

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

〒 319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 4 9

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section.

Technology Management Division.

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1194, Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
1999

Tc-99の中性子捕獲断面積測定

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

井 頭 政 之*

要 旨

高速炉を用いた長寿命核分裂生成物 (LLFP) 消滅処理研究のためには、消滅性能等の炉心特性を詳細に検討する必要があり、従って、LLFPの精度良い中性子核反応断面積データが必要となる。そこで本研究では、重要なLLFPであるTc-99についてkeV中性子捕獲反応断面積の精度良い測定を行うため、測定に用いるTc-99試料の検討・調査及び我々の実験装置を用いた測定の詳細検討を行った。

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

契約番号： 100D0271

機構担当部課室： 大洗工学センター
システム技術開発部炉心技術開発グループ

*： 東京工業大学原子炉工学研究所

Measurement of Neutron Capture Cross Sections of Tc-99

Masayuki Igashira *

Abstract

For studies on incineration of long-lived fission products(LLFPs) in a fast reactor, detailed characteristics of reactor core such as incineration performance have to be investigated. Therefore, accurate neutron cross section data of LLFPs become necessary. In the present study, in order to perform the precise measurements of keV-neutron capture cross sections of Tc-99, which is one of most important LLFPs, the details of the Tc-99 sample and the measurements with our experimental facilities were investigated.

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

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

* : Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology

目 次

1	はじめに	1
2	^{99}Tc のkeV中性子捕獲反応断面積の測定と評価の現状	3
3	捕獲反応断面積測定の詳細検討	6
3.1	^{99}Tc 試料の特質	6
3.2	測定に必要な ^{99}Tc 試料の量	6
3.3	目標とする測定誤差	11
4	^{99}Tc 試料の検討	12
4.1	入手可能な高純度 ^{99}Tc 試料と化学形の調査	12
4.2	測定可能な ^{99}Tc 試料の化学形の決定	12
4.3	^{99}Tc 試料の純度確認	12
4.4	科学技術庁への ^{99}Tc 試料の承認使用に係わる承認申請と承認の取得	13
5	まとめ	14
	参考文献	15
	付録 ^{237}Np のkeV中性子捕獲反応断面積の追加測定	16

表リスト

表 1 質量数 99 の独立核分裂収率 8

表 2 質量数 99 の累積核分裂収率 9

図リスト

図 1	^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の測定データ	4
図 2	^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の評価データと測定データ	5
図 3	Tc 付近の核種の半減期と独立核分裂収率	7
図 4	^{99}Tc の崩壊図	10

1 はじめに

中性子核反応断面積は原子力開発に必要な不可欠なデータの一つであり、これまでに非常に多数の研究者が膨大な時間を費やしてこのデータベースの整備を行ってきた。その集大成が我国のJENDL-3 (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) であり、米国のENDF/B-VI (Evaluated Nuclear Data File) 等である。これまでの軽水炉の実用化及び高速増殖炉の開発に限れば、異論もあろうが、これらのデータベースに格納されている核種の種類及びデータの精度は充分と考えられる。

しかし、格納されているデータの精度が全て良いわけではなく、一般に、測定が容易でない断面積に対する格納データの精度は悪い。測定が容易でない断面積とは、小さい断面積、天然同位体存在比の小さい(即ち、純度の良い測定用試料の調達が難しい)核種の断面積、及び放射性核種の断面積等である。精度の悪かった極端な例としては、核分裂生成物(FP)で半減期28.8年の放射性核種 ^{90}Sr の熱中性子捕獲断面積がある。JENDL-3.1では1960年代の測定値 $0.9 \pm 0.5 \text{ b}^{1)}$ を採用していたが、1994年春に公開されたJENDL-3.2では、最近の測定結果 $^{2,3)}$ を採用し、 0.015 b と修正された。実に1/60の値である。

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

しかし、LLFP及びMAは全て放射性核種であり、また、実験用の純度の良い試料の調達が容易でないため、前述のように、これらの核反応断面積測定は容易ではない。従って前述のように、JENDL-3.2あるいはENDF/B-VI等のデータ・ライブラリに格納されているLLFP及びMAに関するデータの精度は良くないと考えられる。このことから、LLFP及びMAに関するこれらの核反応断面積を精度良く測定することは、LLFP及びMAの消滅処理研究に必要な精度の良いデータ・ベースの構築のために非常に重要である。

keV領域におけるMAの核分裂反応断面積とLLFP及びMAの捕獲反応断面積の測定データを比較すると、実効しきいエネルギー以下の核分裂反応断面積が非常に小さい領域を除いて、核分裂反応断面積データの方が精度が良いと考えられる。これは、核分裂反応実験においては、

- (1) 必要な測定用試料の量が 1 mg 以下(捕獲実験の場合の $1/1000$ 以下)であり、純度の良い試料を比較的調達し易く、
- (2) 測定しようとする核分裂事象を、放射性試料の自然崩壊から放出される放射線から弁別し易い、

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

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

本研究の対象核種である⁹⁹Tcは核分裂生成物として原子炉内で生成され、その累積核分裂収率が大きく(²³⁵Uの熱中性子核分裂で6.11%⁴⁾、²³⁹Puの高速中性子核分裂で5.98%⁴⁾)、また、半減期が21万年と長いので、LLFP消滅処理研究の中で最も重要な核種の一つであり、中性子捕獲反応断面積の精度良い測定が望まれている。

本研究では、我々の実験装置を用いて、⁹⁹Tcの中性子捕獲反応断面積を入射中性子エネルギー10～600 keVの領域で精度良く測定することを最終目的とし、以下の項目について調査・検討を行った。

- (1) ⁹⁹TcのkeV中性子捕獲反応断面積測定の現状調査。
- (2) ⁹⁹TcのkeV中性子捕獲反応断面積評価の現状調査。
- (3) 我々の実験装置を用いた⁹⁹TcのkeV中性子捕獲反応断面積測定の詳細検討。
- (4) 入手可能な⁹⁹Tc試料の純度、化学形の調査。
- (5) 測定に用いる⁹⁹Tc試料の化学形の決定。
- (6) 科学技術庁への⁹⁹Tc試料の承認使用に係わる変更の承認申請と承認の取得。
- (7) ⁹⁹Tc試料の純度確認。

この内、(7)の純度確認に長期間を要したため、本年度内には試料入手が不可能となり、最終目標の中性子捕獲反応実験には至らなかった。本報告書では、上記の調査・検討の結果について報告する。

2 ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の測定と評価の現状

現在までの ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の測定データを図1に示す。Chou and Werle⁵⁾の測定はドイツのカールスルーエ研究所で行われ、コッククロフト・ワルトン型加速器による14MeV中性子源と鉛スペクトロメータ及び比例計数管ガンマ線検出器を用いている。Little and Block⁶⁾の測定は米国のランセラー工科大学で行われ、電子線型加速器による中性子源と液体シンチレーション・ガンマ線検出器を用いている。Macklin⁷⁾の測定は米国のオークリッジ研究所で行われ、電子線型加速器による中性子源と C_6F_6 液体シンチレーション・ガンマ線検出器を用いている。中性子エネルギー60keV以下でこれら3種類のデータを比較すると、Little and BlockのデータはMacklinのデータより約20%大きく、Chou and WerleのデータはMacklinのデータより平均で約10%小さい。従って60keV以下の現在の3種類の測定値は、約30%の不確定の幅の中にあると言える。しかし、中性子エネルギー70keV以上では、Macklinのデータしか存在していないので、不確定の幅についての情報は得られない。

^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積のJENDL-3.2及びENDF/B-VIの評価値を測定データと比較して図2に示す。JENDL-3.2では、100keV以下はMacklinの測定データを採用し、100keV以上では統計モデルによる計算値を用いている。その結果、図から分かるように、JENDL-3.2の評価値は700keV以下ではMacklinの測定値と非常に良く一致している。一方、ENDF/B-VIの評価値は、60keV以下ではMacklinの測定値より約10%大きく、200~700keVでは10~30%小さい。また、Macklinの測定値に現れている700keV付近の勾配の変化を、ENDF/B-VIの評価では取り入れていない。

以上のことから、 ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の現在の測定データは不十分であり、データベースの精度向上のために、精度が良く、且つ、入射中性子エネルギー範囲の広い新たな測定が必要であると言える。

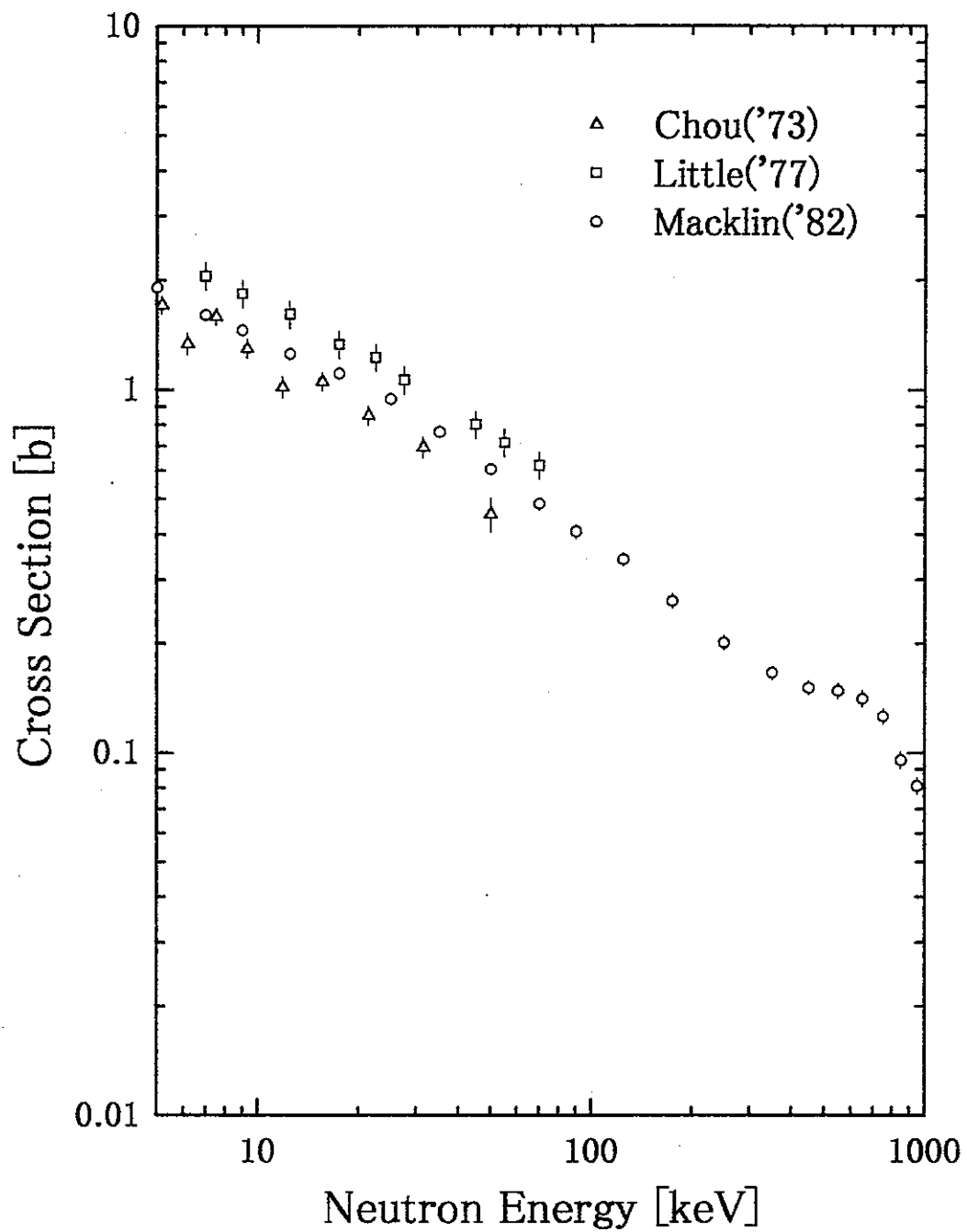


図1 ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の測定データ

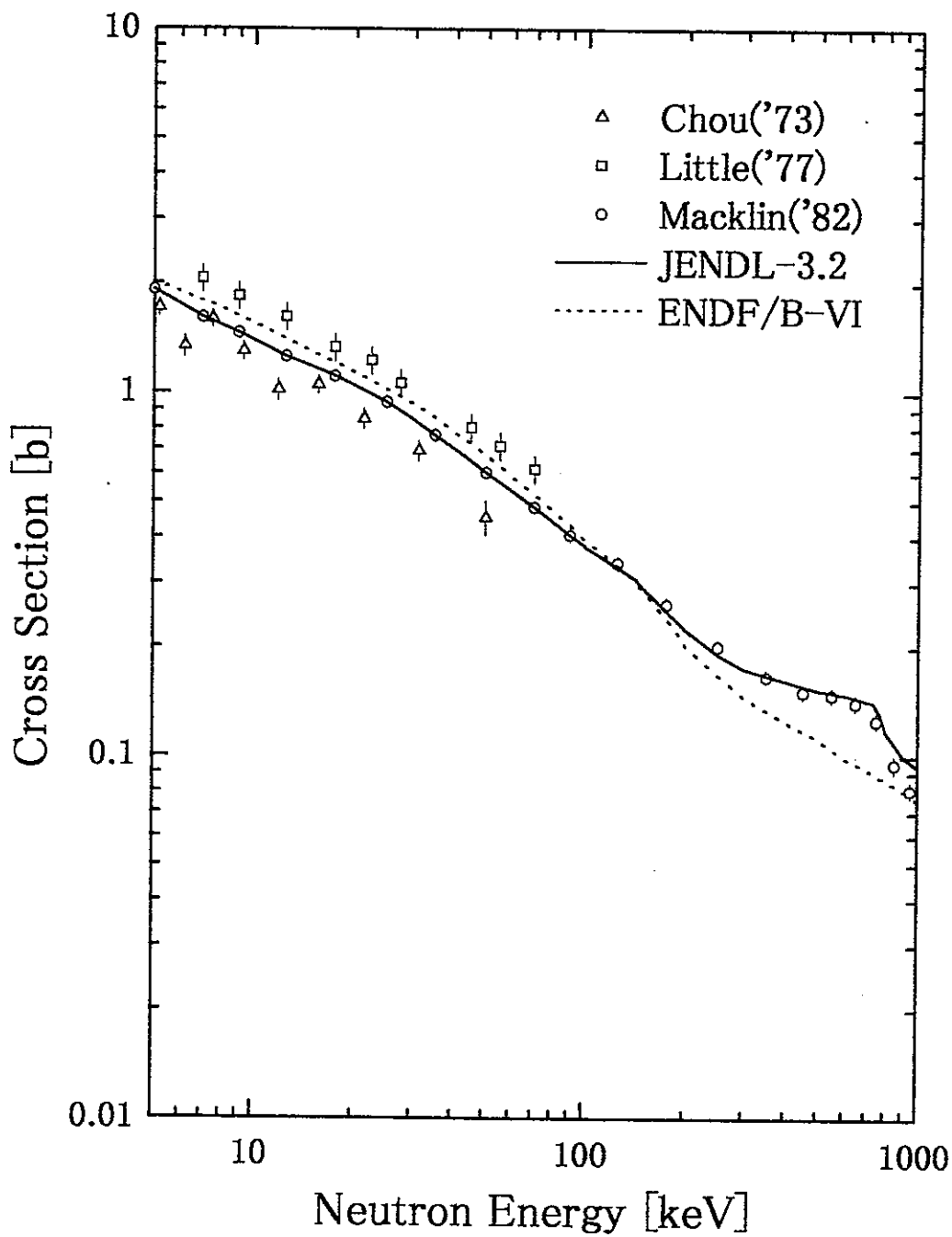


図2 ^{99}Tc のkeV中性子捕獲反応断面積の評価データと測定データ

3 捕獲反応断面積測定の詳細検討

3.1 ^{99}Tc 試料の特質

化学的にも同位体的にも純度の高い ^{99}Tc 試料、即ち、 ^{99}Tc 単体の金属プレート試料を用意することが理想的であるが、酸化物あるいは他の化合物であっても、試料に含まれる他の元素が測定にあまり大きな影響を及ぼさず、且つ、その影響を補正できるものであるならば、試料として用いることができる。しかし、 Tc の他の同位体が%オーダーで含まれていると、測定にかなりの影響をおよぼし、且つ、 ^{99}Tc 以外の他の同位体の中性子核反応断面積データは皆無なので、その影響を補正することは困難である。従って、 ^{99}Tc 試料中に他の Tc 同位体が含まれる可能性を検討することは非常に重要である。

^{99}Tc の製造方法は幾つかあるが、グラム・オーダーの量の製造には核分裂生成物からの化学分離法が用いられる。従って、核分裂生成物中に ^{99}Tc 以外の半減期の長い Tc 同位体、即ち、 ^{97}Tc 及び ^{98}Tc が存在するか否かを検討する必要がある。図3に、 Tc 付近の質量数97から101までの核種の半減期と(^{239}Pu の高速中性子核分裂に対する)独立核分裂収率を示す。また、表1に質量数99の独立核分裂収率⁴⁾、表2に質量数99の累積核分裂収率⁴⁾を示す。表1及び表2から分かる様に、 ^{99}Tc は核分裂生成物の ^{99}Y 及び ^{99}Zr を主な起源とするベータ崩壊によって生成される。質量数97及び98についても同様に、 Y 及び Zr が独立核分裂収率の大部分を占める。しかし、図3から分かるように、 ^{97}Tc 及び ^{98}Tc は安定核種である ^{97}Mo 及び ^{98}Mo に各々ブロックされ、ベータ崩壊によっては生成されない。また、図3から分かるように、 ^{97}Tc 及び ^{98}Tc の独立核分裂収率は非常に小さい。従って、核分裂生成物からの化学分離によって製造された Tc は、実質的には全て ^{99}Tc と考えられ、 ^{99}Tc 試料の同位体純度は非常に高いと考えられる。

放射性の試料を用いる際には、試料から放射されるガンマ線の影響を検討する必要がある。図4に、 ^{99}Tc の崩壊の様子を示す。図から分かるように、 ^{99}Tc は殆ど純粋なベータ・エミッターであり、且つ、極微量放射するガンマ線のエネルギーは90keVであり、我々のガンマ線検出器のディスクリミネーション・レベル以下である。従って、 ^{99}Tc 試料から放射されるガンマ線は、測定に実質的影響を及ぼさないものと考えられる。

3.2 測定に必要な ^{99}Tc 試料の量

前節の検討から、 ^{99}Tc 試料から放射されるガンマ線は、測定に実質的な影響を及ぼさないことが分かった。従って、十分な量の試料を用意することが精度が良い測定につながる。しかし、 ^{99}Tc 試料は高価と予想されるので、可能な限り少量の試料で測定を行う必要がある。第1章で述べたように、我々の実験装置は0.2b・g程度の感度を有している。一方、図1から分かるように、 ^{99}Tc の捕獲反応断面積は10keVで約1b、600keVで約0.15bと予想される。従って、0.2~1.3g程度の試料が測定に必要となる。このことと、我

^{97}Rh 46.2 m N.A. 30.7 m N.A.	^{98}Rh 8.7 m N.A. 3.5 m N.A.	^{99}Rh 16.1 d N.A. 4.7 h N.A.	^{100}Rh 20.8 h $1.60 \times 10^{-14} \%$ 4.6 m $5.58 \times 10^{-14} \%$	^{101}Rh 3.3 y $1.93 \times 10^{-12} \%$ 4.34 d $9.60 \times 10^{-12} \%$					
	^{97}Ru 1.643 h N.A.	^{98}Ru Stable $2.15 \times 10^{-12} \%$	^{99}Ru Stable $2.79 \times 10^{-16} \%$	^{100}Ru Stable $1.83 \times 10^{-8} \%$	^{100}Ru Stable $9.42 \times 10^{-7} \%$				
		^{97}Tc $2.20 \times 10^6 \text{ y}$ $2.6 \times 10^6 \text{ y}$	^{98}Tc $1.60 \times 10^7 \text{ y}$ $4.2 \times 10^6 \text{ y}$	^{99}Tc $2.11 \times 10^5 \text{ y}$ $3.66 \times 10^6 \text{ y}$ 6.01 h $1.14 \times 10^{-6} \%$	^{100}Tc 1.33 s $1.33 \times 10^{-8} \%$	^{101}Tc 2.42 m $2.42 \times 10^{-3} \%$			
			^{97}Mo Stable $4.86 \times 10^{-3} \%$	^{98}Mo Stable $9.77 \times 10^{-4} \%$	^{99}Mo 2.75 d $1.14 \times 10^{-2} \%$	^{100}Mo Stable $8.39 \times 10^{-2} \%$	^{101}Mo 14.61 m $5.06 \times 10^{-1} \%$		
				^{97}Nb 1.20 h $2.36 \times 10^{-2} \%$ 52.7 s $4.74 \times 10^{-3} \%$	^{98}Nb 51.3 m $3.62 \times 10^{-2} \%$ 2.86 s $1.26 \times 10^{-1} \%$	^{99}Nb 2.6 m $5.58 \times 10^{-1} \%$ 15.0 s $1.12 \times 10^{-1} \%$	^{100}Nb 2.6 m $3.66 \times 10^{-1} \%$ 15.0 s $1.27 \times 10^0 \%$	^{101}Nb $4.53 \times 10^0 \%$	

図3 Tc付近の核種の半減期と独立核分裂収率

表1 質量数99の独立核分裂収率

Mass No. 99													Mass Yield	
	⁹⁹ Br	⁹⁹ Kr	⁹⁹ Rb	⁹⁹ Sr	⁹⁹ Y	⁹⁹ Zr	⁹⁹ Nb	⁹⁹ Mo	⁹⁹ Tc	⁹⁹ Ru				
λ (1/sec)	4.8135E+01	6.6809E+00	1.1748E+01	2.6056E+00	4.9610E-01	3.3007E-01	4.8210E-02	4.4439E-03	2.9184E-08	1.0264E-13	3.1989E-05	0.0		
Q-value (MeV)	1.3680E+01	1.2660E+01	1.0489E+01	8.8800E+00	6.3900E+00	4.4680E+00	3.8240E+00	3.9892E+00	1.9687E+00	2.9980E-01	4.9829E-01	0.0		
E-beta (MeV)	4.6720E+00	4.2990E+00	3.6640E+00	3.0410E+00	2.3750E+00	1.4090E+00	1.2746E+00	1.1760E+00	3.8622E-01	8.4690E-02	0.0	0.0		
E-gamma (MeV)	3.9200E+00	3.6310E+00	2.8660E+00	2.1060E+00	1.1470E+00	1.1841E+00	8.2179E-01	1.7166E+00	2.7168E+00	4.3900E-09	1.2608E-01	0.0		
E-I.C (MeV)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.8800E-03	1.8767E-02	8.8460E-08	1.8826E-02	0.0		
Spin						1/2+	9/2+	1/2-	1/2+	9/2+	1/2-	5/2+		
Independent Yield	²³² Th (F)	2.2385E-11	1.1991E-07	3.8276E-04	3.1624E-01	1.2798E+00	1.2676E+00	2.8448E-02	6.3239E-03	1.3409E-04	7.7186E-09	1.6637E-09	6.6378E-14	2.8859E+00
	²³² Th (H)	3.8581E-12	7.2727E-09	6.8606E-06	6.6819E-02	9.6674E-01	8.9126E-01	6.7822E-02	7.2384E-03	2.9001E-04	6.2310E-08	6.6710E-09	2.1128E-13	2.01204E+00
	²³³ U (T)	1.1269E-14	3.7169E-11	2.2391E-06	2.2448E-02	7.6388E-01	3.6181E+00	4.6686E-01	1.0637E-01	1.8842E-02	1.1317E-06	2.8170E-09	9.4281E-10	4.87227E+00
	²³³ U (F)	2.3073E-16	4.3529E-11	3.0004E-08	2.2872E-02	8.0270E-01	3.1704E+00	6.6613E-01	1.1176E-01	1.6300E-02	8.7478E-06	1.9822E-06	8.6801E-10	4.87793E+00
	²³³ U (H)	1.8512E-15	3.5185E-11	2.8890E-06	1.7097E-02	7.2572E-01	2.2802E+00	5.1108E-01	8.4201E-02	1.0468E-02	8.5378E-06	1.0725E-06	4.3300E-10	3.88878E+00
	²³⁶ U (T)	8.7401E-13	1.1274E-09	3.9630E-06	3.6300E-01	2.0183E+00	3.2677E+00	3.3686E-01	7.7616E-02	7.7778E-02	1.1794E-06	2.7132E-07	4.3190E-11	8.19308E+00
	²³⁶ U (F)	7.0884E-13	6.1628E-09	8.6236E-06	1.7160E-01	2.0812E+00	3.2279E+00	2.0430E-01	4.1126E-02	1.8051E-03	3.7782E-07	7.8076E-08	8.1184E-12	6.72802E+00
	²³⁶ U (H)	4.6866E-14	2.4317E-10	1.2712E-06	4.6607E-02	1.3684E+00	3.1042E+00	6.0960E-01	8.3280E-02	7.1884E-03	3.8234E-08	4.9286E-07	1.3401E-10	6.08016E+00
	²³⁸ U (F)	1.5370E-12	1.3189E-08	1.6648E-04	2.3028E-01	2.3154E+00	3.1410E+00	1.8728E-01	3.3876E-02	1.3500E-03	2.1152E-07	4.2679E-08	3.7800E-12	5.88998E+00
	²³⁸ U (H)	1.0761E-10	6.2360E-07	1.3442E-03	6.6616E-01	2.8171E+00	2.3891E+00	4.2991E-02	8.6641E-03	1.6021E-04	8.3007E-09	1.8708E-09	6.6284E-14	8.21488E+00
	²³⁷ Np (F)	7.6861E-14	6.7901E-10	2.8022E-06	7.6704E-02	1.9131E+00	3.6104E+00	4.6949E-01	9.4600E-02	6.7481E-03	2.6381E-08	6.1092E-07	7.3201E-11	6.62267E+00
	²³⁹ Pu (T)	8.0272E-16	6.7127E-11	6.3098E-06	3.7408E-02	1.1609E+00	4.1734E+00	8.2637E-01	1.4461E-01	1.6893E-02	8.6084E-08	1.9870E-08	6.8418E-10	8.16893E+00
	²³⁹ Pu (F)	1.4651E-14	1.8487E-10	8.4476E-06	4.7060E-02	1.3120E+00	3.9631E+00	6.6781E-01	1.1228E-01	1.1966E-02	6.8823E-08	1.1988E-08	2.7808E-10	6.99340E+00
	²³⁹ Pu (H)	1.2641E-15	8.1876E-10	1.3377E-06	1.1809E-02	6.6967E-01	2.8030E+00	7.3983E-01	8.2911E-02	1.9760E-02	2.2266E-06	2.7888E-08	1.6201E-09	4.12087E+00
	²⁴⁰ Pu (F)	6.6484E-14	1.1268E-09	2.7689E-06	8.8840E-02	1.6310E+00	3.9849E+00	3.2089E-01	4.4686E-02	6.3205E-03	1.3746E-08	2.7888E-07	6.3606E-11	6.88691E+00
	²⁴¹ Pu (T)	1.0346E-12	1.1746E-08	1.4021E-04	2.3634E-01	3.4738E+00	3.4738E+00	1.7883E-01	4.1362E-02	1.6286E-03	2.3073E-07	6.3363E-08	4.7413E-12	8.24888E+00
²⁴¹ Pu (F)	1.2228E-12	9.2810E-09	1.2497E-04	1.8280E-01	2.1464E+00	2.8688E+00	1.7983E-01	3.4891E-02	1.4198E-03	2.6172E-07	6.0870E-08	4.8198E-12	6.60629E+00	
²⁴² Pu (F)	3.3097E-12	2.1716E-08	1.6628E-04	2.8034E-01	1.8172E+00	3.1476E+00	1.0786E-01	2.1711E-02	1.0710E-03	1.0830E-07	2.1801E-08	2.3900E-12	6.37688E+00	
²⁶² Cf (S)	1.2479E-14	1.9018E-10	6.9869E-06	2.8202E-02	7.2928E-01	1.8272E+00	2.1170E-01	4.8962E-02	3.1941E-03	1.3926E-08	3.2198E-07	6.0066E-11	2.84860E+00	

表2 質量数99の累積核分裂収率

Mass No. 99													Mass Yield	
	⁹⁹ Br	⁹⁹ Kr	⁹⁹ Rb	⁹⁹ Sr	⁹⁹ Y	⁹⁹ Zr	⁹⁹ Nb	⁹⁹ Nb	⁹⁹ Mo	⁹⁹ Tc	⁹⁹ Tc	⁹⁹ Ru		
λ (1/sec)	4.8136E+01	6.6809E+00	1.1748E+01	2.6058E+00	4.9510E-01	3.3007E-01	4.8210E-02	4.4433E-03	2.9184E-08	1.0284E-13	3.1983E-06	0.0		
Q-value (MeV)	1.3580E+01	1.2650E+01	1.0489E+01	8.8800E+00	8.3900E+00	4.4580E+00	3.8240E+00	3.9882E+00	1.3567E+00	2.8980E-01	4.3823E-01	0.0		
E-beta (MeV)	4.6720E+00	4.2990E+00	3.6640E+00	3.0410E+00	2.3750E+00	1.4090E+00	1.2746E+00	1.1760E+00	3.8522E-01	8.4590E-02	0.0	0.0		
E-gamma (MeV)	3.9200E+00	3.5310E+00	2.8680E+00	2.1080E+00	1.1470E+00	1.1841E+00	8.2173E-01	1.7166E+00	2.7158E-01	4.3800E-08	1.2500E-01	0.0		
E-I.C (MeV)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.8600E-03	1.8757E-02	9.8460E-09	1.8826E-02	0.0		
Spin						1/2+		9/2+		1/2-		1/2-	5/2+	
Cumulative yield	²³² Th (F)	2.2385E-11	1.1993E-07	3.9287E-04	3.1659E-01	1.6957E+00	2.8411E+00	1.8447E+00	1.0281E+00	2.8730E+00	2.4995E+00	2.8730E+00	2.8730E+00	
	²³² Th (H)	3.8561E-12	7.2766E-08	8.8513E-05	8.8892E-02	1.0554E+00	1.9388E+00	1.2984E+00	7.0620E-01	2.0039E+00	1.7434E+00	2.0039E+00	2.0039E+00	2.88586E+00
	²³³ U (T)	1.1289E-14	3.7170E-11	2.2381E-08	2.2460E-02	7.7828E-01	4.2865E+00	3.1980E+00	1.6485E+00	4.8863E+00	4.8684E+00	4.2337E+00	4.8684E+00	2.01204E+00
	²³³ U (F)	2.3079E-16	4.3631E-11	3.0005E-08	2.2875E-02	8.2632E-01	3.9895E+00	3.1084E+00	1.6480E+00	4.8718E+00	4.8718E+00	4.0843E+00	4.8718E+00	4.87227E+00
	²³³ U (H)	1.8512E-15	3.5186E-11	2.8891E-08	1.7100E-02	7.4276E-01	3.0188E+00	2.4419E+00	1.1503E+00	3.8026E+00	3.8026E+00	3.1343E+00	3.8026E+00	4.87793E+00
	²³⁵ U (T)	8.7401E-13	1.1283E-09	3.8531E-05	3.6303E-01	2.3703E+00	6.8194E+00	3.9321E+00	2.1008E+00	6.1105E+00	6.1105E+00	5.3181E+00	6.1105E+00	3.68879E+00
	²³⁵ U (F)	7.0884E-13	6.1595E-09	9.6241E-05	1.7158E-01	2.2624E+00	6.4688E+00	3.7829E+00	2.0091E+00	6.7139E+00	6.7139E+00	4.9711E+00	6.7139E+00	6.13008E+00
	²³⁵ U (H)	4.8856E-14	2.4322E-10	1.2713E-06	4.6518E-02	1.4018E+00	4.4946E+00	3.3801E+00	1.6813E+00	6.0888E+00	6.0888E+00	4.4087E+00	6.0888E+00	6.72802E+00
	²³⁸ U (F)	1.5370E-12	1.3191E-08	1.5549E-04	2.3040E-01	2.6454E+00	5.6708E+00	3.7988E+00	2.0762E+00	6.8731E+00	6.8731E+00	5.1095E+00	6.8731E+00	6.08016E+00
	²³⁸ U (H)	1.0761E-10	5.2361E-07	1.3447E-03	8.6871E-01	3.7729E+00	6.1439E+00	3.8781E+00	2.2204E+00	6.1967E+00	6.1967E+00	5.9809E+00	6.1967E+00	5.88998E+00
	²³⁹ U (H)	2.0143E-11	1.0857E-07	7.1821E-04	4.0954E-01	3.6108E+00	6.6010E+00	3.6070E+00	1.8912E+00	6.6965E+00	6.6965E+00	4.8707E+00	6.6965E+00	6.21486E+00
	²³⁷ Np (F)	7.5651E-14	6.7808E-10	2.8022E-06	7.5728E-02	1.8887E+00	6.6881E+00	4.0446E+00	2.1066E+00	6.1568E+00	6.1568E+00	6.3568E+00	6.1568E+00	6.62267E+00
	²³⁹ Pu (T)	8.0272E-16	8.7135E-11	5.3039E-06	3.7413E-02	1.1882E+00	6.3534E+00	4.0518E+00	2.0718E+00	6.1403E+00	6.1403E+00	6.3420E+00	6.1403E+00	6.1688E+00
	²³⁹ Pu (F)	1.4851E-14	1.8488E-10	9.4477E-06	4.7058E-02	1.3590E+00	6.3028E+00	3.9513E+00	2.0212E+00	6.9898E+00	6.9898E+00	6.2059E+00	6.9898E+00	6.14883E+00
	²³⁹ Pu (H)	1.2641E-15	6.1878E-10	1.3983E-08	1.1811E-02	8.8595E-01	3.2831E+00	2.8280E+00	1.2878E+00	4.1154E+00	4.1154E+00	3.6804E+00	4.1154E+00	6.98340E+00
	²⁴⁰ Pu (F)	6.6484E-14	1.1258E-09	2.7584E-05	9.8865E-02	1.8902E+00	5.5897E+00	3.8843E+00	2.0747E+00	6.9743E+00	6.9743E+00	6.1978E+00	6.9743E+00	4.12067E+00
	²⁴¹ Pu (T)	1.0346E-12	1.1748E-08	1.4022E-04	2.3546E-01	2.6536E+00	6.0118E+00	4.0283E+00	2.2056E+00	6.2336E+00	6.2336E+00	5.4231E+00	6.2336E+00	6.98581E+00
²⁴¹ Pu (F)	1.2228E-12	9.2822E-09	1.2498E-04	1.9282E-01	2.3980E+00	6.2808E+00	3.5538E+00	1.9581E+00	6.4911E+00	6.4911E+00	4.7772E+00	6.4911E+00	8.24888E+00	
²⁴² Pu (F)	3.3097E-12	2.1718E-08	1.5528E-04	2.8047E-01	2.0972E+00	5.2311E+00	3.4558E+00	1.8048E+00	6.3817E+00	6.3817E+00	4.8847E+00	6.3817E+00	6.50529E+00	
²⁶² Cf (S)	1.2473E-14	1.8019E-10	8.3851E-06	2.8208E-02	7.6744E-01	2.3798E+00	1.7349E+00	9.0673E-01	2.6438E+00	2.6438E+00	2.3001E+00	2.6438E+00	6.37688E+00	

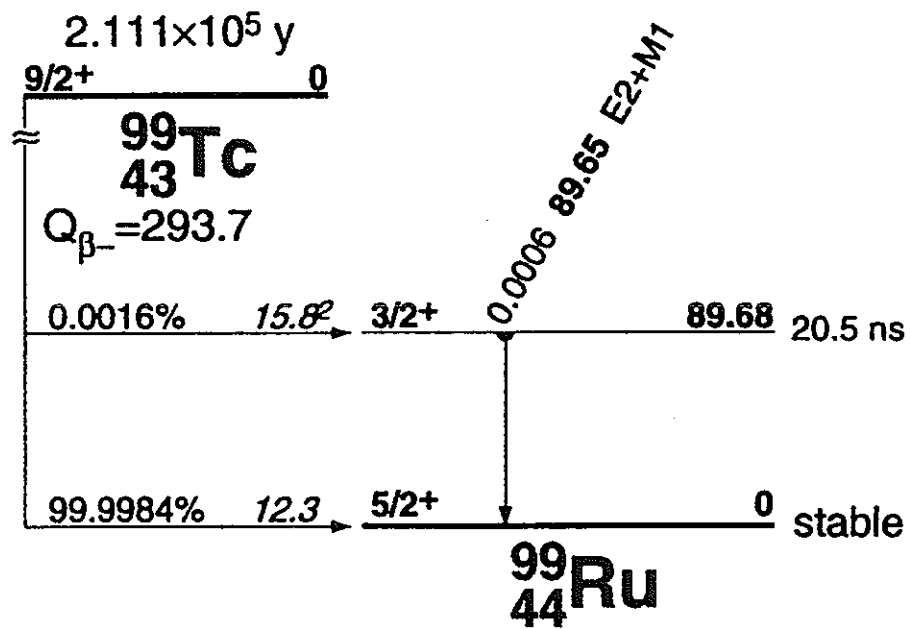


図4 ^{99}Tc の崩壊図

々の17核種に及ぶFP領域の安定核種のこれまでの測定を検討した結果、 ^{99}Tc の量として1gを用意すれば統計誤差2~3%で測定が行えることが分かった。

3.3 目標とする測定誤差

第2章で述べたように、60keV以下の入射中性子エネルギー領域における現在の3種類の測定値は約30%の不確定の幅の中にあると言える。また、前述のように、JENDL-3.2の評価は不確定の幅のほぼ中央を通るMacklinの測定値を採用しているので、現在のデータベースの誤差はおよそ±15%と解釈される。従って、現在の誤差の1/3、即ち、5%を目標測定誤差として設定することは一つの選択と考えられる。

我々の実験方法における主要な誤差としては、統計誤差以外に、標準とする ^{197}Au の中性子捕獲反応断面積の誤差(3%)、波高重み法で用いるガンマ線検出器の重み関数(付録参照)に起因する誤差(1%)、波高重み法適用の際の波高スペクトルのディスクリミネーション・レベル以下への外挿に起因する誤差(2%)である。これに、前述の予想される2~3%の統計誤差を加えると、全体として4.3~4.8%の誤差となり、目標誤差を満足することになる。

このような状況から、今回の目標測定誤差を5%と設定することとした。

4 ^{99}Tc 試料の検討

4.1 入手可能な高純度 ^{99}Tc 試料と化学形の調査

可能な限り高純度の ^{99}Tc 試料として、どの様な化学形のものが入手可能であるかを調査した。その結果、99%以上の純度で入手可能な試料はアンモニウム塩の「 $\text{NH}_4^{99}\text{TcO}_4$ 」のみであることが判明した。しかし、Hは入射中性子の減速効果が大きく、そして減速された中性子は ^{99}Tc に非常に捕獲され易い。しかし、この効果の補正は容易でなく、我々のこれまでの経験から、水分(H_2O)重量比として5%までが精度良い測定の限界であることが分かっている。アンモニア塩中のHは水分換算で40%であり、従って、アンモニア塩試料中のHの影響は極めて大きく、且つ、その補正は困難であり、測定用試料としては不適であることが判明した。

4.2 測定可能な ^{99}Tc 試料の化学形の決定

測定に必要な1gの ^{99}Tc は約700MBqであり、試料を密封された放射性同位元素として取り扱うとしても、科学技術庁へ承認使用の変更承認申請が必要となる。この申請を行うためには、使用する ^{99}Tc 試料のおよその化学形を決定する必要がある。この様な状況の基、純度95%以上の ^{99}Tc 試料として、どの様な化学形が入手可能であるか調査した。

その結果、純度95%程度の「酸化物」が入手可能であることが分かった。酸化物は測定において問題は無いので、この「酸化物」試料を第1候補として、科学技術庁へ変更承認申請を行うと共に、その純度確認、即ち、不純物の分析を依頼することにした。

4.3 ^{99}Tc 試料の純度確認

測定用試料の純度確認、即ち、不純物の分析を行わない限り、信頼性の高い測定結果を得ることは不可能である。従って、「酸化物」の ^{99}Tc 試料の純度確認を依頼した。この純度確認には3カ月の長期を要した。その結果、「酸化物」とは、『 $\text{K}^{99}\text{TcO}_4$ 』であることが判明した。「酸化物」中のKは測定にあまり好ましくないが、補正実験を行うことにより、Kの影響は補正できる。不純物の分析結果の報告は未だ受けていないが、特別に悪影響を及ぼす物が含まれていない限り、この『 $\text{K}^{99}\text{TcO}_4$ 』試料を測定に用いる予定である。勿論、Kを取り除き、「純粋な酸化物」の密封試料の調達の可能性を追求することは非常に重要である。

尚、「純粋な酸化物」よりも『 $\text{K}^{99}\text{TcO}_4$ 』の方が化学的に安定であることを、我々の研究所の富安教授より解説して頂いた。

4.4 科学技術庁への⁹⁹Tc 試料の承認使用に係わる承認申請と承認の取得

測定に必要な1gの⁹⁹Tcは約700MBqであり、試料を密封された放射性同位元素として取り扱うとしても、科学技術庁へ承認使用の変更承認申請を行い、承認を取得することが必要となる。この申請を行うためには、申請書及び遮蔽計算を中心とした別添資料を作成し、科学技術庁の担当官のヒアリングを受け、申請に対する内諾を得る必要がある。また、これと平行して、東京工業大学原子炉工学研究所放射性同位元素等委員会において変更承認申請を行うことに対する承認を得、更に、東京工業大学放射性同位元素等委員会において変更承認申請を行うことに対する承認を得る必要がある。

担当官のヒアリングをパスし、また、所内及び学内委員会での承認を得、平成10年11月16日付けで公式に変更承認申請を科学技術庁に行い、平成11年2月1日付けで変更の承認(10安(放安)第5868号)を得ることができた。

しかし結果的には、4.3で述べた純度確認に予想外の長期間を要したため、本年度は最終目標である『測定』には至らなかった。しかしながら、目標測定誤差の決定、測定の詳細検討の実施、⁹⁹Tc試料の使用の承認の取得、等の全ての測定準備が終了し、⁹⁹Tc試料の入手を待つのみとなった。即ち、現時点において、測定の『90%』は達成したものととらえている。

5 まとめ

本研究の成果を纏めると以下の様になる。

- (1) ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の測定及び評価の現状調査を行った。
- (2) その結果、現在の ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積の精度は、およそ $\pm 15\%$ であることが判明した。
- (3) 我々の実験装置を用いた ^{99}Tc の keV 中性子捕獲反応断面積測定の詳細検討を行った結果、目標測定誤差を 5% に設定することが妥当であることが判明した。
- (4) 入手可能な ^{99}Tc 試料の純度、化学形の調査を行った。
- (5) その結果、測定に用いる ^{99}Tc 試料として、 $\text{K}^{99}\text{TcO}_4$ を第1候補と選定した。
- (6) 科学技術庁への ^{99}Tc 試料の承認使用に係わる変更の承認申請を行い承認を得た。
- (7) ^{99}Tc 試料の純度確認を行った。

しかし、(7) の純度確認に長期間を要したため、本年度内には試料入手が不可能となり、最終目標の中性子捕獲反応実験には至らなかった。しかし、上記の成果から現在の状況は、測定の『 90% 』を達成したものと判断できる。

参考文献

- 1) G. Zeisel: Acta. Phys. Austr., 23, 5223 (1966).
- 2) L. A. McVey, R. L. Brodzinski, and T. M. Tanner: J. Radio. Chem., 76, 131 (1983).
- 3) H. Harada, T. Sekine, Y. Hatsukawa, N. Shigeta, K. Kobayashi, T. Ohtsuki, and T. Katoh: J. Nucl. Sci. Technol., 31, 173 (1994).
- 4) Tables and Figures from JNDC Nuclear Data Library for Fission Products, Version 2, Ed. H. Ihara, JAERI-M 89-204 (1989).
- 5) J. C. Chou and H. Werle: J. Nucl. Energy, 27, 811 (1973).
- 6) R. C. Little and R. C. Block: J. ANS, 26, 574 (1977).
- 7) R. L. Macklin: N.S.E., 81, 520 (1982).

付 録

^{237}Np のkeV中性子捕獲反応断面積の追加測定

平成9年度に引き続いて、 ^{237}Np のkeV中性子捕獲反応断面積の測定を行ったので、この追加測定を含めた全測定結果について報告する。

Chapter 1

序論

中性子核反応データは、原子力開発、原子核物理学、宇宙物理学等広範囲な分野において必要不可欠なデータである。中性子核反応で発生するガンマ線に関するデータは、ガンマ線生成核データと呼ばれる。現在、ガンマ線生成核データ・ライブラリとしては、我が国の *JENDL3.2* や米国の評価済みデータ・ファイル *ENDF/B-VI* などがある。

しかし、現在までのところ十分に広いエネルギー領域で測定されている核種は少なく、未測定の核種も多い。加えて測定精度も不満足のものが多い。また測定データが不十分なため、データベースの評価値の信頼性はさほど高くはない。特に、 1MeV 以下の keV 中性子領域について、測定データの不足が著しい。

この中性子エネルギー領域では、ガンマ線は主に中性子捕獲反応によって放出されるので、中性子捕獲ガンマ線スペクトルの測定が切望されている。

各分野における中性子核反応データの必要性は以下のようにまとめられる。

原子力開発においては、現在盛んに研究が行われている高速増殖炉や核融合炉の核設計、消滅処理研究、遮蔽設計および熱設計の全ての基礎データになる。

原子核物理学においては、様々な核反応模型（例えば、直接捕獲模型、複合核模型）の適用性の検討に大きな役割を果す。

宇宙物理学に於いては、ビッグバン模型における元素合成過程と恒星内の元素合成過程の検証のための重要なデータとなる。

そこでこの要望に答えるため、本研究室では、ガンマ線検出器システムの改良を行い、少ない試料でも十分な精度のデータが得られるようにして、重い核の中性子捕獲断面積と捕獲スペクトルの測定を行ってきた。

近年、超ウラン元素 (TRU) の消滅処理研究が推進されて来ている。マイナー・アクチニド (MA) を含む TRU の全部を使用済核燃料から分離し、現在開発中の高速増殖炉あるいは新しい概念の専焼高速炉の炉心に戻し、その消滅処理をはかる研究が活発に行われている。この際、対象とする高速炉の TRU 消滅性能及び炉心特性を評価するためには、

TRUの核分裂反応断面積及び中性子捕獲反応断面積が重要である。従って、TRUのkeV中性子領域におけるこれらの反応断面積の精度良いデータが必要となる。

しかし、TRUは全て放射性核種であり、また、実験用の純度の高い試料を準備することが容易でないために、これらの核反応断面積測定は容易ではない。従って、前述の通りJENDL3.2およびENDF/B-VI等のデータライブラリに納められているTRUに関するデータの精度は良くないと考えられる。このことから、TRUに関するこれらの核反応断面積を精度良く測定することは、TRUの消滅処理研究に必要な不可欠な精度の良いデータ・ベースの構築のために非常に重要である。

ここで、keV領域におけるTRUの核分裂反応断面積と捕獲反応断面積の測定データを比較すると、実効しきいエネルギー以下の核分裂反応断面積が非常に小さい領域を除いて、核分裂反応断面積データの方が精度が良いと考えられる。これは、核分裂反応においては、

1. 必要な測定用試料の量が1 mg以下(捕獲実験の1000分の1以下)であり、純度の良い試料を比較的調達しやすく
2. 測定しようとする核分裂事象を、放射性試料の自然崩壊から放出される放射線から弁別しやすい、

からである。また、実行しきいエネルギー以下の核分裂反応断面積が小さい領域では、捕獲反応が主たる核変換反応である。従って、TRU消滅処理研究においては、核分裂反応断面積データの精度向上にもまして、捕獲反応断面積データの測定向上が重要と言える。

本研究の対象核種である ^{237}Np は $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U}(\beta^-)^{237}\text{Np}$ 反応及び $^{235}\text{U}(n, \gamma)^{236}\text{U}(n, \gamma)^{237}\text{U}(\beta^-)^{237}\text{Np}$ 反応によって原子炉内で生成されるが、その生成量が多く、また半減期も214万年と長く、また高次TRU生成の原料となる核種なので、TRU消滅処理研究の中で最も重要な核種の1つであり、中性子核反応断面積の精度良い測定が望まれている。

以上のような背景から、本研究では ^{237}Np の中性子反応 γ 線を平均入射中性子エネルギー100keV以下、143keV、207keV、321keV、554keVの5つについて精密測定した。得られた実験データから10～321keVの領域で中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルを導出した。また554keVにおいて核分裂生成 γ 線スペクトルを導出した。

Chapter 2

測定装置

本章では、測定方法についての概要と、測定の際に使用された装置等についての説明を行う。

2.1 概要

本測定は本学原子炉工学研究所の広領域線質放射線照射実験室で行われた。実験室に設置されているペレトロン加速器によって加速されたパルス陽子ビームは中性子発生用の Li ターゲットへ導かれる。そして、ターゲットでの ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応により発生したパルス中性子を測定用試料に入射し、試料の中性子放射捕獲反応等により放出されたガンマ線を、コンプトン抑止型 $\text{NaI}(\text{Tl})$ 検出器で検出した。また、試料に入射した中性子は、 ${}^6\text{Li}$ ガラス・シンチレーション検出器で検出された。測定装置の配置概略図を *fig.2.1* に示す。

2.2 ペレトロン加速器およびビーム輸送系

実験室に設置されている加速器は米国 nec 社製 3UH-HC ペレトロン加速器である。ペレトロン加速器は Van de Graaff 型静電加速器の一種であり、電荷運搬にステンレス製の金属ペレットをナイロンでつないだチェーンを使用している点で、ゴム・ベルトが用いられている Van de Graaff 型加速器と区別される。なお、最大ターミナル電圧は 3MV である。

ビーム輸送系は以下のようなものである。

水素ガスを供給し、点火したデュオ・プラズマトロン・イオン源から発生した $\text{H}^+ \cdot \text{H}_2^+ \cdot \text{H}_3^+$ のイオンは、引き出し電極（エキストラクター）によって引き出され、パルス化装置に入る。ここでは、スイープ・アンプによって左右に、DC バイアス、ポップ・アンプにより上下に振られる。また、その間にはアインツェル・レンズがあり、ビームを収束している。次に、パルスビームの進行方向に対して垂直に、かつ互いに垂直な可変電場と永久磁石による固定磁場とが組み合わされている速度弁別器（ベロシティ・セレクター）に入る。速度弁別器の出口には $2\text{mm}\phi$ のアパーチャーがあり、ここで、電場の強さを調整することにより、 H^+ イオンだけを弁別することができる。また、スイープ・アンプ等で振られ

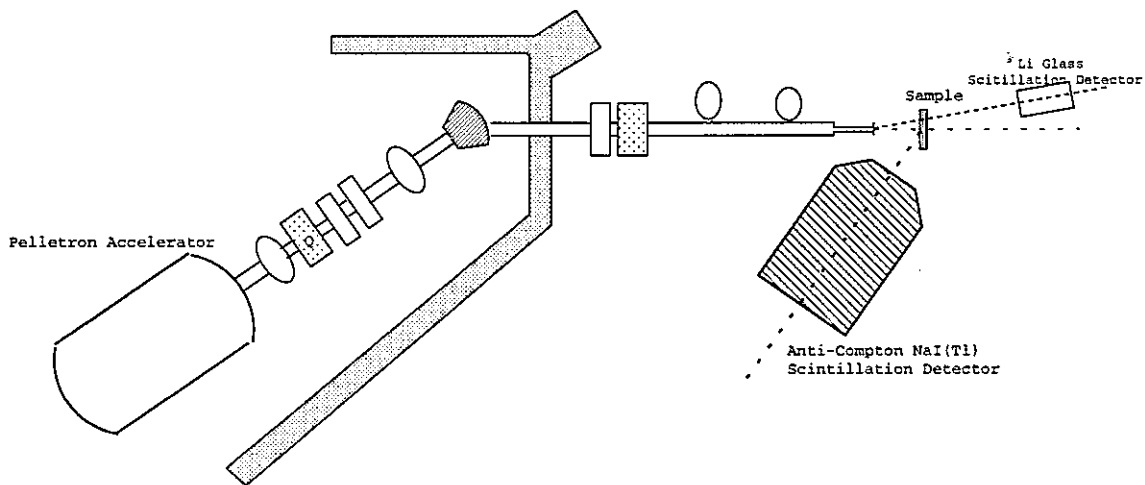


Figure 2.1: 本測定の実験装置配置図

た結果、 H^+ イオン・ビームは $15 \sim 20\text{ns}$ にチョップされる。こうして得られたパルス陽子ビームは、バンチャー・アンプによるクライストロン・バンチングによりさらにバンチングされ、加速管に導かれる。加速されたパルス陽子ビームはビーム延長管に入り、四重極電磁石 (Q-マグネット)、ステアリング電磁石、アナライザー電磁石によって制御されて、 $5\text{mm}\phi$ アパーチャーを経て、ビーム延長管先端に取り付けられている中性子発生用 Li ターゲットへ到達する。この Li ターゲット上でのパルス陽子ビームのパルス幅は約 1.5ns 、繰り返し周波数は、 2MHz もしくは 4MHz である。また、ビーム延長管の途中には、基準時間信号を取り出すためのタイム・ピック・オフ (Time Pick Off) やビーム電流を測定するためのファラデー・カップ (Faraday Cup) など取り付けられている。なお、ビーム輸送ダクト内はターボ分子ポンプとチタン・ゲッター・ポンプによって $10^{-8} \sim 10^{-6}\text{Torr}$ の高真空に保たれている。

2.3 中性子源

ペレットロン加速器によって加速されたパルス陽子ビームを中性子発生用の Li ターゲットに入射し、 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反応によってパルス中性子を発生させた。

Li ターゲットは直径 3cm 、厚さ 0.4mm の銅板に金属 Li を真空蒸着したものである。Li は融点が低いので、パルス陽子ビームによる発熱で Li が蒸発しないように、Li ターゲットをビームダクトの外側から空冷、または水冷した。これにより、Li ターゲットの劣化を抑えることができた。 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反応の Q 値は -1.644MeV であり、しきい値 E_{th} は、

$$E_{th} = -\frac{M_p + M_{Li}}{M_{Li}} Q = 1.881[\text{MeV}] \quad (2.1)$$

となり、この時陽子ビーム方向に発生する中性子のエネルギー E_n は、

$$E_n = \frac{M_p M_n}{(M_n + M_{Be})^2} E_{th} = 29.7[\text{keV}] \quad (2.2)$$

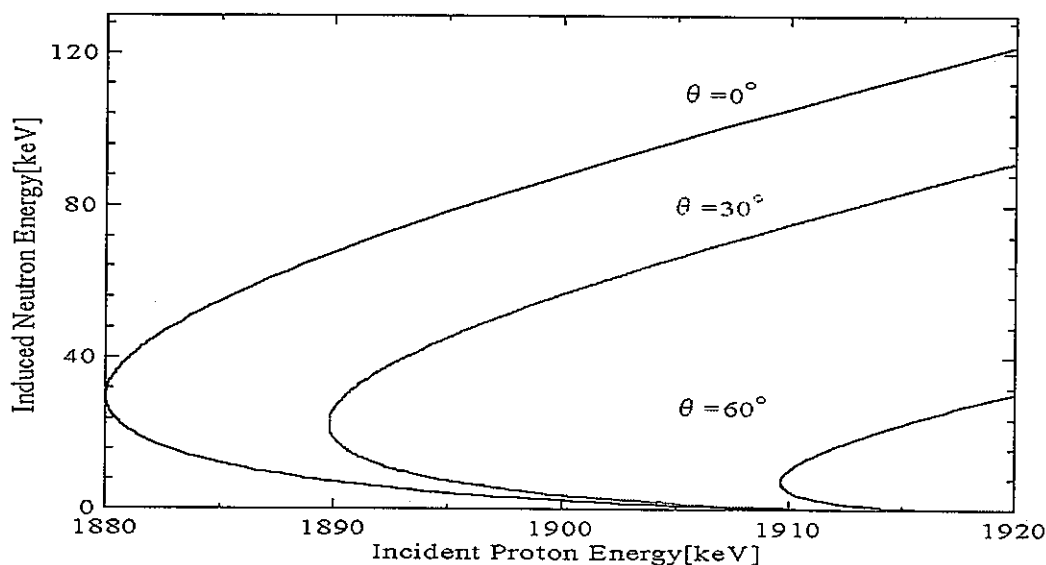


Figure 2.2: $Li(p,n)Be$ 反応における入射陽子と放出中性子の関係

である。また、簡単な運動論より、 Li ターゲット中での陽子ビームのエネルギー損失を考えなければ、入射陽子エネルギーが E_{th} と E_{dual}

$$E_{dual} = -\frac{M_{Be}}{M_{Be} - M_p} Q = 1.920 [MeV] \quad (2.3)$$

との間では、同じ方向に異なったエネルギーを持つ中性子が放出される。この様子を *fig.2.2* に示す。実際に得られる中性子エネルギー分布は、陽子ビームのエネルギー損失のために、約 $30keV$ にピークを持つ連続分布になる。

一方、 E_{dual} [MeV] から 7Be の第一励起状態 ($0.431MeV$) への ${}^7Li(p,n){}^7Be^*$ 反応のしきい値 ($2.378MeV$) までは、単色エネルギーの中性子が放出される。

2.4 中性子検出器および中性子測定回路

本測定では中性子検出器として2種類の 6Li -ガラス・シンチレーション検出器（以下では、 Li 検出器と略称する）を用い、試料に入射した中性子束を測定した。

2.4.1 中性子検出器

入射中性子エネルギー $550keV$ の領域の実験では、中性子の測定に2台の 6Li ガラス・シンチレーション検出器を用いた。一方は試料に入射する中性子のエネルギー分布測定用 Li 検出器（以下、 ϕLi 検出器と呼ぶ）、他方は Li ターゲットからの中性子発生量モニター用小型 Li 検出器（以下、 $M-Li$ 検出器と呼ぶ）である。なお、入射中性子エネルギー10

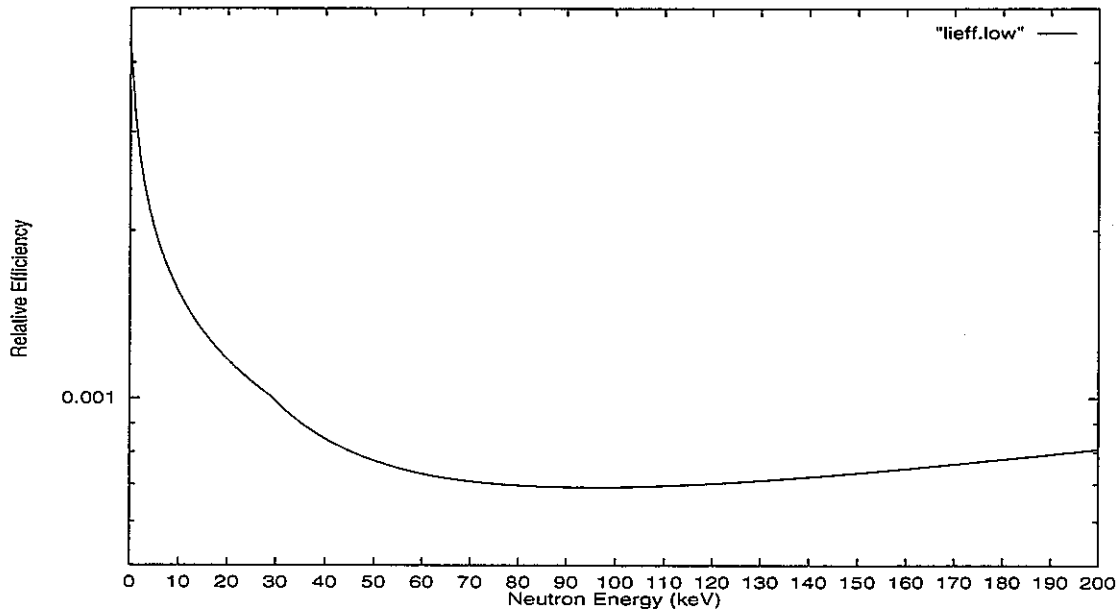


Figure 2.3: $M - Li$ ガラス・シンチレーション検出器の検出効率

～330keVまでの実験では、2つの機能を兼ねて $M - Li$ 検出器のみを用いた。それぞれの検出器の中性子検出効率は、相対測定実験とモンテ・カルロ・シミュレーションによって求められている。これをfig. 2.3,2.4 に示す。

2.4.2 ϕLi 検出器

ϕLi 検出器は、直径102mm、厚さ6.4mmの円盤状 6Li ガラス・シンチレータを口径125mmの光電子増倍管に取り付けたものであり、時間分解能は1.8nsである。 ϕLi 検出器の略図をfig. 2.5 に示す。また、バック、グラウンドからの遮蔽のため、 ϕLi 検出器はボロン入りパラフィンおよびカドミウムで構成された遮蔽体内に収められている。この様子をfig. 2.6 に示す。

2.4.3 $M - Li$ 検出器

$M - Li$ 検出器は、直径5mm、厚さ5mmの円柱 6Li ガラス・シンチレータに12.7mmの光電子増倍管のついた小型検出器であり、時間分解能は2nsである。 $M - Li$ 検出器の形状をfig.2.7 に示す。

2.4.4 中性子測定回路

中性子測定回路をfig.2.8 に示す。 $M - Li$ 検出器の光電子増倍管には-1000V、 ϕLi 検出器の光電子増倍管には-2000Vの電圧を印加し、Dynode 信号と Anode 信号を得た。

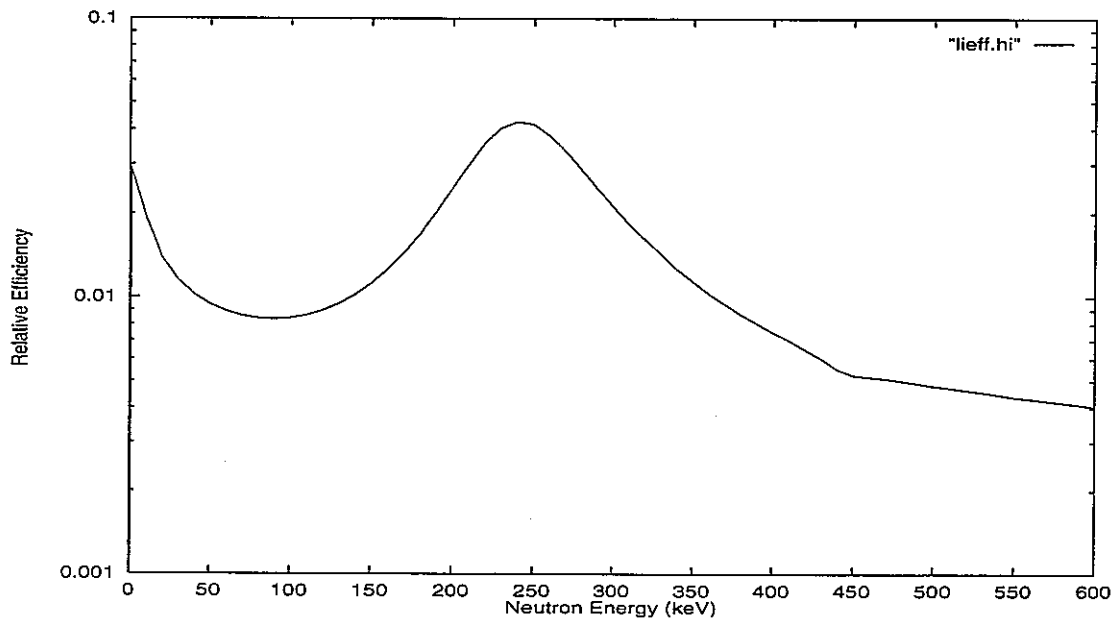


Figure 2.4: ϕ -Li ガラス・シンチレーション検出器の検出効率

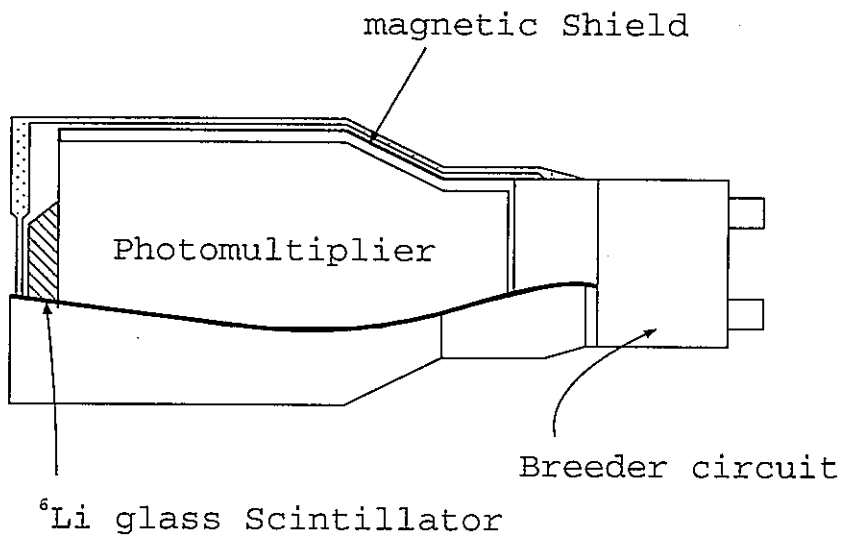


Figure 2.5: ϕ -Li ガラス・シンチレーション検出器

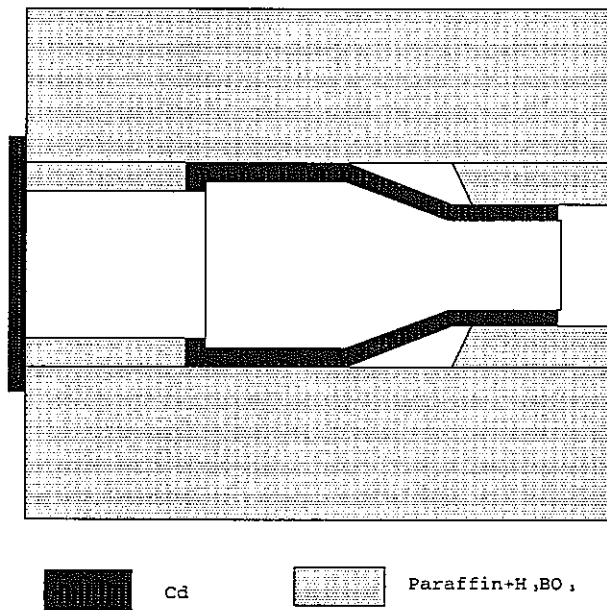


Figure 2.6: ϕ - Li ガラス・シンチレーション検出器の遮蔽体の概略図

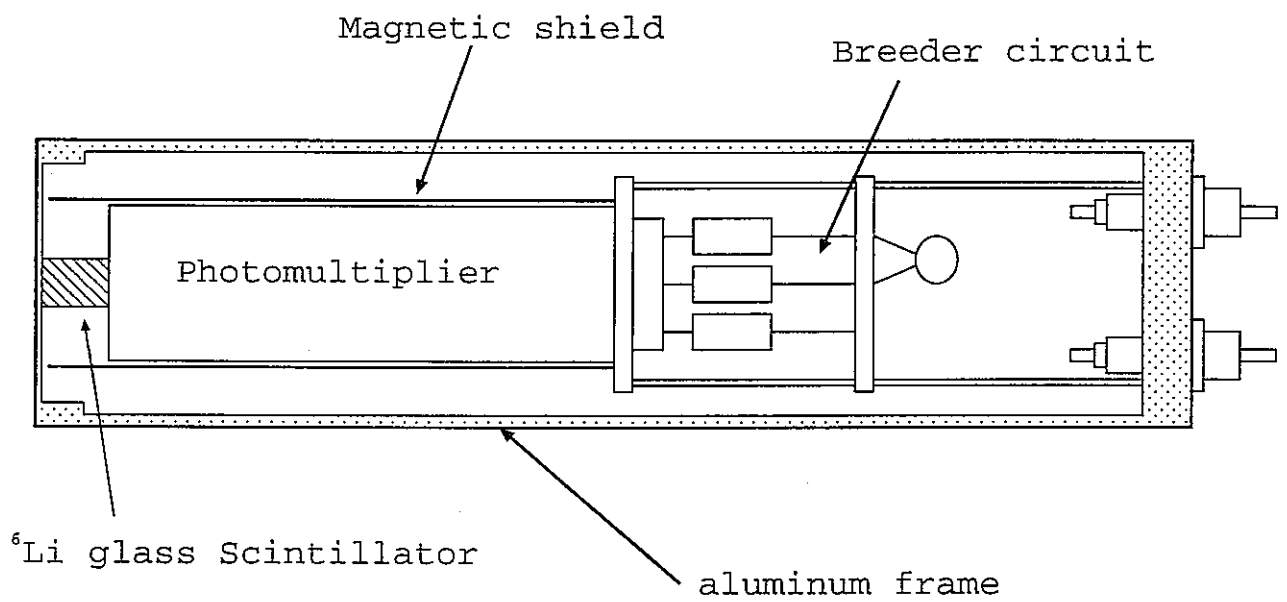


Figure 2.7: M - Li ガラス・シンチレーション検出器

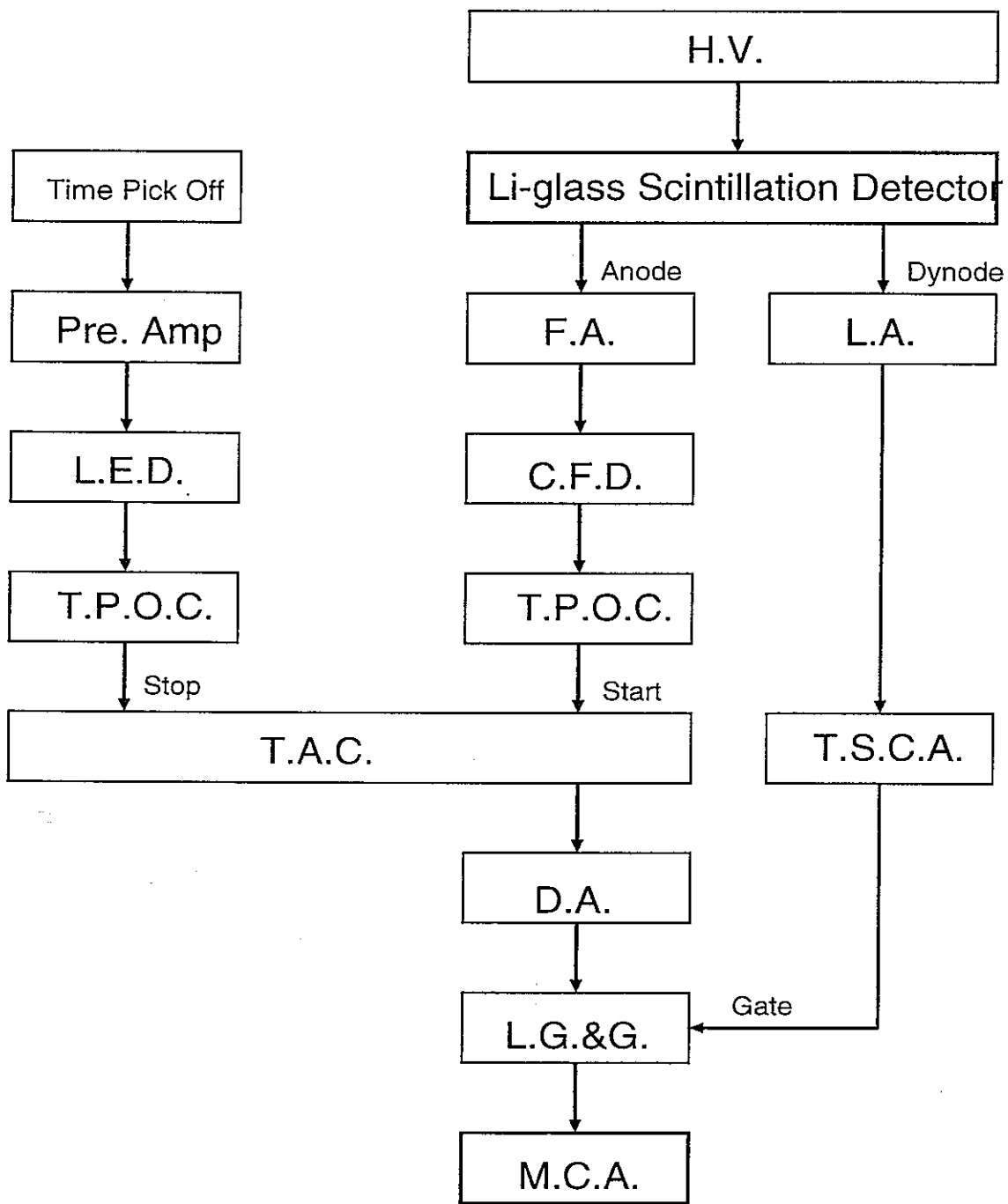


Figure 2.8: 中性子測定回路図

Dynode 信号は L.A.(Linear Amplifier) で増幅・波形整形された後、T.S.C.A. (Timing Single Channel Analyzer) により論理信号に変換される。この際、低エネルギー側にディスタクリがかけられ、ガンマ線による信号の大部分が取り除かれる。そして、主に中性子による出力信号がゲート信号として L.G. & S. (Linear Gate and Stretcher) に送られる。Anode 信号は F.A. (Fast Amplifier) によって増幅された後、C.F.D. (Constant Fraction Discriminator) により論理信号に変換され、T.P.O.C. (Time Pick Off Controller) で信号の減衰が補われて、T.A.C. (Time to Amplitude Converter) のスタート信号となる。一方、パルス陽子ビームが通過する際に T.P.O. (Time Pick Off) から発生する基準時間信号は、F.A. によって増幅され、L.E.D. (Leading Edge Discriminator) で論理信号に変換された後、T.P.O.C で信号の減衰を補い、Delay により Anode 信号とタイミングが取られて、T.A.C. のストップ信号となる。スタート信号とストップ信号との時間差を波高に変換した T.A.C. の出力信号は、D.A. (Delay Amplifier) でタイミングが取られた後 L.G. & S. に送られ、Dynode 信号から得られたゲート信号により主に中性子による信号だけが選択されて、M.C.A. (Multi Channel Analyzer) に送られる。2048 チャンネルで取り込まれたデータは、測定後に P.C. (Personal Computer) に転送される。

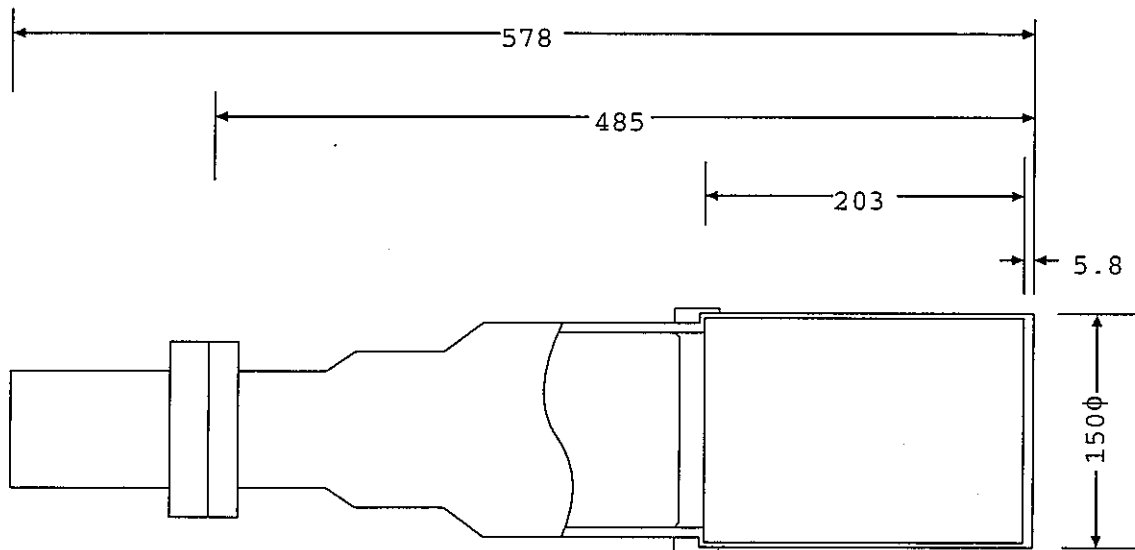
2.5 ガンマ線検出器およびガンマ線測定回路

本測定ではガンマ線検出器としてコンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器を用い、ガンマ線の波高 (Pulse Height : P.H.) スペクトルと飛行時間 (Time Of Flight : T.O.F.) スペクトルとの 2 次元測定を行った。

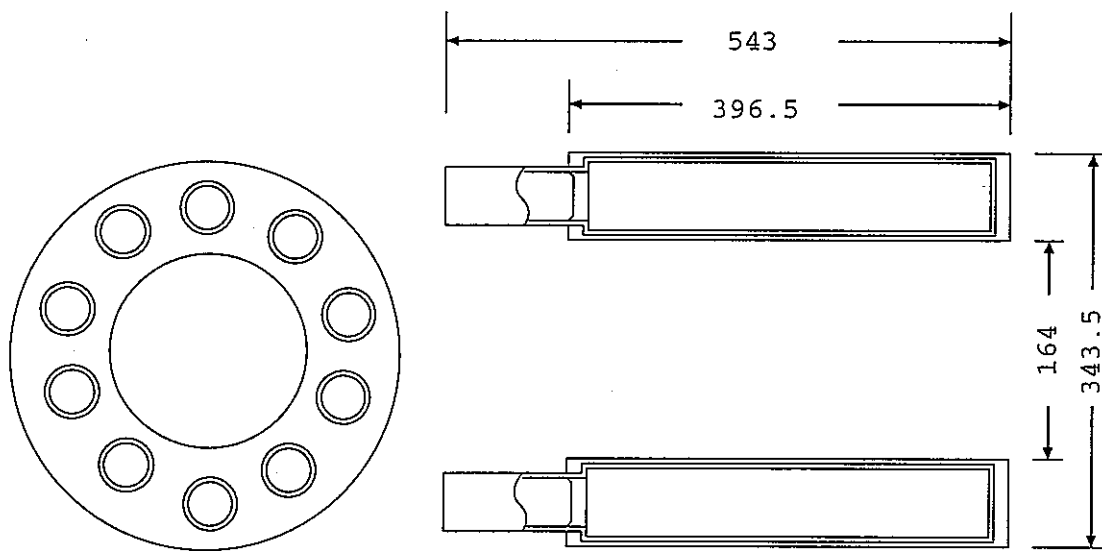
2.5.1 コンプトン抑止型 NaI (Tl) 検出器

コンプトン抑止型検出器は、試料から放出されるガンマ線を検出するための主検出器とそれを取り囲む大型環状検出器から構成されている。この型の検出器の特徴は、主検出器と大型環状検出器との両方の検出器で同時にガンマ線が検出された事象を取り除くことにより、主検出器で得られる波高スペクトルを単純な形にすることである。すなわち、コンプトン散乱や電子対生成により主検出器外に入射エネルギーの一部を持ち出した 2 次ガンマ線を大型環状検出器で検出し、この事象を取り除くことにより、理想的には主検出器に全エネルギーを付与した事象のみが選択できる。したがって、全エネルギー・ピークのみからなる単純な波高スペクトルを得ることができる。また、このコンプトン抑止型検出器は宇宙線の抑止効果も持つ。宇宙線の多くは高エネルギー (GeV 領域) の中間子であり、荷電粒子のために NaI(Tl) 検出器に対する検出効率は 100 % となる。そして、中間子のほとんどは鉛直方向から来るので、主検出器で検出されれば、そのほとんどが大型環状検出器でも検出されることになる。したがって、宇宙線によるバックグラウンドのほとんどが除かれ、長時間の測定を必要とする場合、非常に効果がある。検出器の形状と性能を次の Table 2.1 に示す。また主 NaI(Tl) 検出器と大型環状検出器の略図を fig. 2.9 に示す。

主検出器はともに、円柱型の結晶に光電子増倍管が直接接合されているインテグラル型



Main NaI Scintillation Detector



Annular NaI Scintillation Detector

Figure 2.9: NaI Scintillation 検出器の概略図

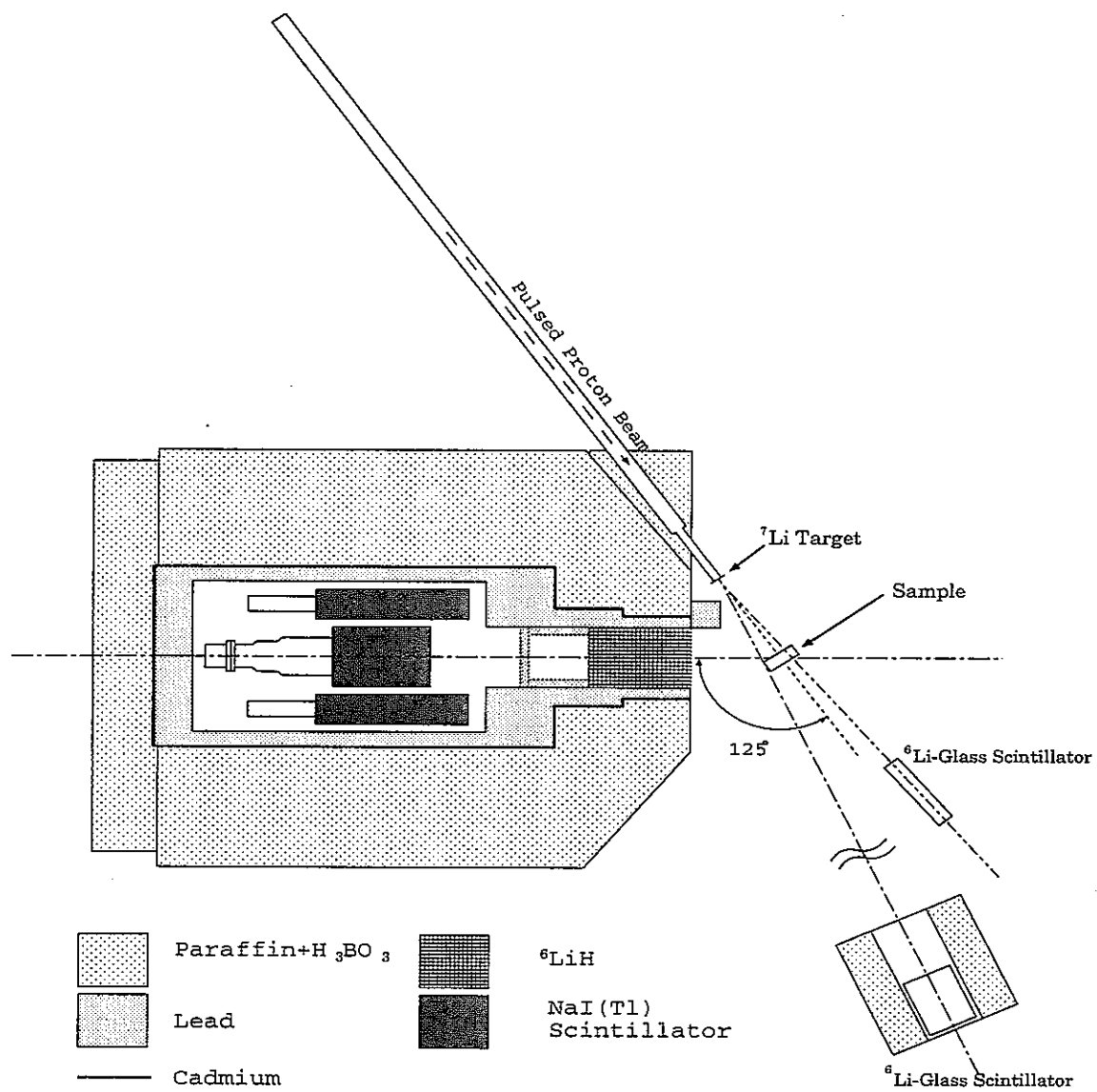


Figure 2.10: γ 線検出器の概略図

主検出器：	
結晶直径	152mm
長さ	203mm
光電子増倍管	5inch
エネルギー分解能 *	7.0 %
時間分解能	4.5ns
大型環状検出器：	
結晶外径	330mm
内径	172mm
長さ	356mm
光電子増倍管	2inch ×10
エネルギー分解能 *	8.3 %

* : 662keV のガンマ線の対する半値幅

Table 2.1: NaI(Tl) 検出器の形状および性能

であり、優れたエネルギー分解能を有するようになっている。また、大型環状検出器も、円筒型の結晶に光電子増倍管が取り付けられており、光電子増倍管の取り外しが可能なディマウンダブル型である。高速中性子実験においては実験室内に充満している中性子からの遮蔽が重要になる。さらに、実験室内の構造物と中性子との反応から発生するガンマ線、および自然バックグラウンドからの遮蔽も重要になる。そのため、コンプトン抑止型 NaI (Tl) 検出器は遮蔽体内に収められた。中性子遮蔽にはホウ酸入りパラフィン、カドミウム、 ${}^6\text{LiH}$ が、ガンマ線遮蔽には鉛が用いられた。

また本測定では、Np 試料から発生する低エネルギー γ 線を遮蔽する必要がある。そこで 5mm 厚の鉛板を、コリメーター内に設置した。fig. 2.10 に、コンプトン抑止型 NaI (Tl) 検出器と遮蔽体を合わせたガンマ線検出器系の概路図を示す。

2.5.2 応答関数

エネルギー E_γ の単色ガンマ線が検出器に入射した時に得られる波高スペクトルは応答関数と呼ばれる。本研究では、試料位置から等方的に発生した 1 個のガンマ線 (エネルギー E_γ) が検出器で検出された時に、波高スペクトルの I チャネル (これは検出された時のエネルギーに対応する。) に計数される確率分布として、応答関数 $R(E_\gamma, I)$ を定義する。ここで、検出器の応答関数は検出器システム (検出器、遮蔽体、幾何条件等) に固有のものである。本測定では Np 試料から発生するガンマ線を遮蔽するため鉛板を追加したため、これまでのシステムに対するものと応答関数は異なる。そのため、新システムに対する応答関数を新たに作成した。ここでは、本研究で用いた新システムに対する応答関数の作成方法を以下に述べる

標準ガンマ線源	測定時の絶対強度 [$\times 10^5 \gamma / \text{sec}$]	ガンマ線エネルギー [MeV]
^{22}Na	0.6904	0.511、1.275
^{137}Cs	3.629	0.662
^{54}Mn	2.025	0.835
^{88}Y	1.079	0.898、1.836
^{60}Co	1.751	1.173、1.333

Table 2.2: 応答関数の作成に用いたガンマ線源 (1)

共鳴反応	共鳴エネルギー [keV]	ガンマ線エネルギー [MeV]
$^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$	935	6.13
$^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$	992	1.779、2.839、4.646* 7.928*、10.763

*は複数のガンマ線による平均エネルギー

Table 2.3: 応答関数の作成に用いたガンマ線源 (2)

本研究では、いくつかのガンマ線エネルギーに対する応答関数を実験的に求め、それを内挿することによって任意のエネルギーでの応答関数を導出した。ガンマ線源としては、絶対強度の分かっている7つの標準ガンマ線源と、ペルトロン加速器からの直流陽子ビーム照射による共鳴反応を用いた。それぞれ、Table.2.2, 2.3 に示す。なお、これらの測定から得られた波高スペクトルは、自然バックグラウンドを差し引いた後、25keV / ch にパンチングされた。得られた波高スペクトルは、全エネルギー・ピーク部分、シングル・エスケープ・ピーク部分、コンプトン部分の3つから形成されていると考えられる（なお、ダブルエスケープピークはコンプトン抑止型検出器のため、ほとんど観測されていない）。ここで、適切な内挿を行うために、波高分布をこれら3つの部分に分離して、各部分の検出効率や形状のガンマ線エネルギー依存性を見出した。各部分についてそれぞれ説明する。

全エネルギー・ピーク部分

全エネルギー・ピーク部分は近似的にガウス関数で表現される。特に、ピークの高エネルギー側はガウス関数と良く一致する。しかし、ピークの低エネルギー側はガウス関数から少しずれてくるので、この部分は補正項として別に考慮するとして、ピークの高エネルギー側を用いて最小2乗法によりガウス関数でフィットした。それにより、エネルギー分解能（ガウス関数の半値幅）と全エネルギー・ピーク面積が得られた。主エネルギー・ピークの幅（エネルギー分解能）は光電子増倍管中の光電子数の統計的揺らぎに主に帰因するので、近似的に $E_\gamma^{0.5}$ に比例すると考えられる。そこで、エネルギー分解能曲線 $FWHM(E_\gamma)$ として、 aE_γ^b を仮定して最小2乗法でフィットした。新システムに対するエネルギー

分解能曲線を次式に示す。ここで、 E_γ 、 $FWHM(E_\gamma)$ はともに keV 単位である。

$$FWHM(E_\gamma) = 1.028E_\gamma^{0.5985} \quad (2.4)$$

一方、全エネルギー、ピーク検出効率 ϵ_f を次のように定義する。

$$\epsilon_f = \frac{S}{I \cdot t} \quad (2.5)$$

ここで、 S はガウス関数でフィットしたピーク面積、 I はガンマ線の放出強度 [γ/sec]、 t は測定時間 [sec] である。標準ガンマ線源に対しては、その放出強度が分かっているので、式 (2.5) より $1.836MeV$ までの絶対検出効率曲線を最小 2 乗法により求めた。 ^{27}Al の共鳴反応から得られた複数のガンマ線からなるピークについては、ガウス関数によるフィットは行えないので、ピークの下のコプトン部分を引き去った全エネルギー・ピーク面積を S として、 $1.779MeV$ 以上の相対検出効率曲線を最小 2 乗法により求めた。両者を $1.779MeV \sim 1.836MeV$ の間で比較し、相対検出効率曲線を絶対値化することにより、全領域における全エネルギー・ピーク検出効率を得た。新システムに対する全エネルギー・ピーク検出効率曲線を次式に示す。ここで、 E_γ は MeV 単位である。

$$\epsilon_f = \exp(aE_\gamma^2 + bE_\gamma + c + \frac{d}{E_\gamma} + \frac{e}{E_\gamma^2}) \quad (2.6)$$

$$a = 4.170 \times 10^{-3}$$

$$b = -1.327 \times 10^{-1}$$

$$c = -7.704$$

$$d = -1.449 \times 10^{-1}$$

$$e = -1.952 \times 10^{-1}$$

シングル・エスケープ・ピーク部分

シングル・エスケープ・ピークは、そのエネルギーでのエネルギー分解能と同じ幅のガウス関数で最小 2 乗法によるフィットを行い、シングル・エスケープ・ピーク面積を求めた。また、シングル・エスケープ・ピークの強度は、全エネルギー・ピークのそれと比べて弱いので、ピークの低エネルギー側でのガウス関数からのずれの補正項を考慮しなかった。全エネルギー・ピーク面積とシングル・エスケープ・ピーク面積の比から求めた、新システムに対するシングル・エスケープ・ピーク検出効率曲線 $\epsilon_s(E_\gamma)$ を次式に示す。ここで、 E_γ は MeV 単位である。

$$\epsilon_s(E_\gamma) = \epsilon_f(E_\gamma) \cdot \exp(aE_\gamma + b + \frac{c}{E_\gamma}) \quad (2.7)$$

$$a = -1.467 \times 10^{-2}$$

$$b = -1.581$$

$$c = -6.836$$

コンプトン部分

コンプトン部分は、波高スペクトルから全エネルギー・ピークとシングル・エスケープ・ピークをガウス型を仮定して引き去り、検出器のエネルギー分解能を考慮して、コンプトン・エッジより高エネルギー側をコンプトン・エッジをピークとするガウス関数で外挿することにより得られた。全エネルギー・ピーク面積とコンプトン部分の面積の比から最小 2 乗法により求めた、新システムに対するコンプトン検出効率曲線 $\epsilon_c(E_\gamma)$ を次式に示す。ここで、 E_γ は MeV 単位である。

$$\epsilon_c = \epsilon_f(E_\gamma) \cdot \exp(aE_\gamma^2 + bE_\gamma + c + \frac{d}{E_\gamma}) \quad (2.8)$$

$$a = 8.97309 \times 10^{-3}$$

$$b = -3.32448 \times 10^{-2}$$

$$c = 3.83562 \times 10^{-1}$$

$$d = -1.92554$$

次に、コンプトン部分の内挿法について説明する。まず、測定から得られたコンプトン部分の内、内挿エネルギーより高いエネルギーでのコンプトン部分をエネルギー軸に沿って圧縮し、内挿エネルギーでのコンプトン・エッジに合わせる。同様に、内挿エネルギーより低いエネルギーでのコンプトン部分をエネルギー軸に沿って引き伸ばし、内挿エネルギーでのコンプトン・エッジに合わせる。そして、この2つのコンプトン部分を内挿エネルギーでのコンプトン検出効率で規格化し、測定から得られた2つのスペクトルをエネルギー差で直線内挿して、内挿エネルギーでのコンプトン部分を求めた。

補正項

前に述べたように、全エネルギー・ピークのピークの低エネルギー側のずれを補正する。測定から得られた波高スペクトルと、今まで述べてきた全エネルギー・ピーク部分、シングル・エスケープ・ピーク部分、およびコンプトン部分を合成したスペクトルとの比較から、この3つの部分では再現できなかった部分を最小2乗法により、 E_γ のみのガウス関数で数式化した。

本研究では、上に述べた3つの各部分を合成したスペクトルに補正項を乗じて、25keVおきに12MeVまでの応答関数を作成した。なお、応答関数の誤差は主に全エネルギー・ピーク検出効率の誤差から3%とした。fig. 2.11からfig. 2.13にエネルギー分解能曲線、および3つの各部分の検出効率曲線を、また、fig. 2.14にいくつかの応答関数を示す。

2.5.3 ガンマ線測定回路

ガンマ線測定回路をfig.2.15に示す。主検出器は-1450Vの電圧が印加され、光電子増倍管からはDynode信号とAnode信号が取り出される。Dynode信号はPre amplifierとL.A.により増幅・波形整形された後、2つに分割される。一方は、T.S.C.A.で論理信号に変換されて、Coincidence信号としてU.C. (Universal Coincidence)に入る。他方は、D.A.によりU.C.からのゲート信号とタイミングが取られ、L.G. & S.に入る。これをP.H.信号と呼ぶ。

Anode信号はT.F.A. (Timing Filter Amplifier)により増幅・波形整形された後、C.F.D.により論理信号に変換され、T.P.O.C.で信号の減衰が補われて、T.A.C.のスタート信号となる。

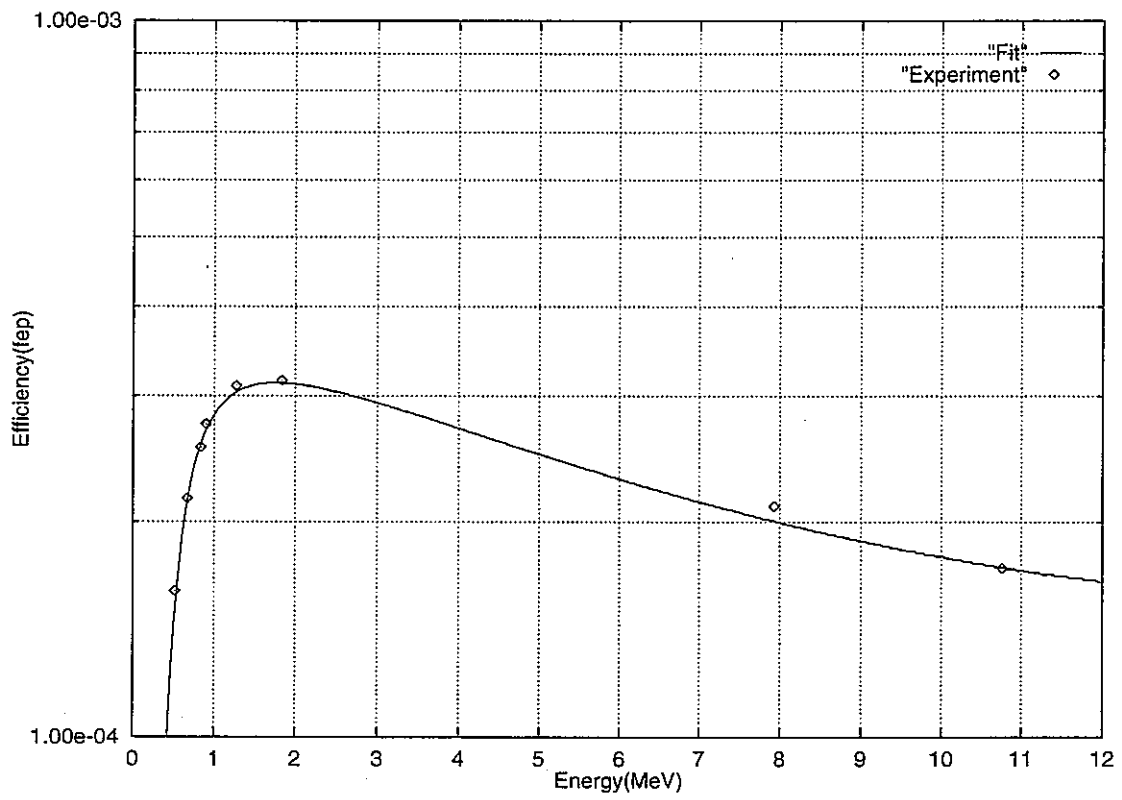


Figure 2.11: 全エネルギー・ピーク検出効率曲線 ϵ_f

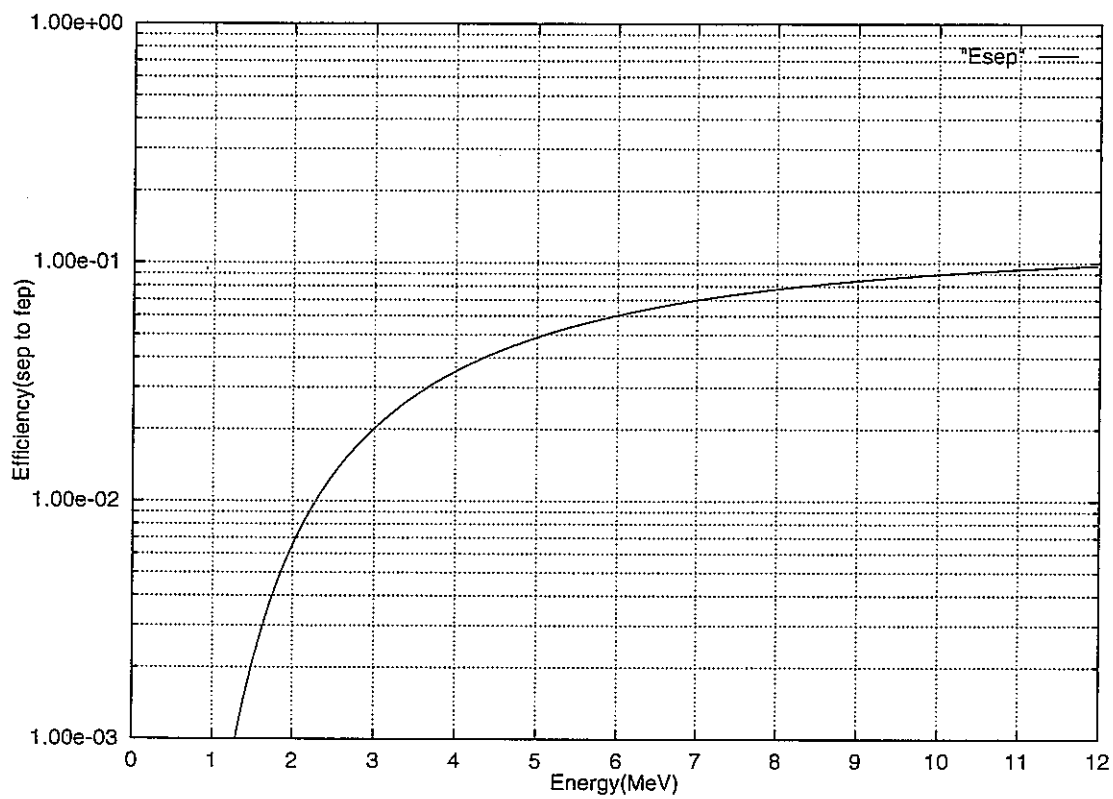


Figure 2.12: シングル・エスケープ・ピーク検出効率曲線 ϵ_s/ϵ_f

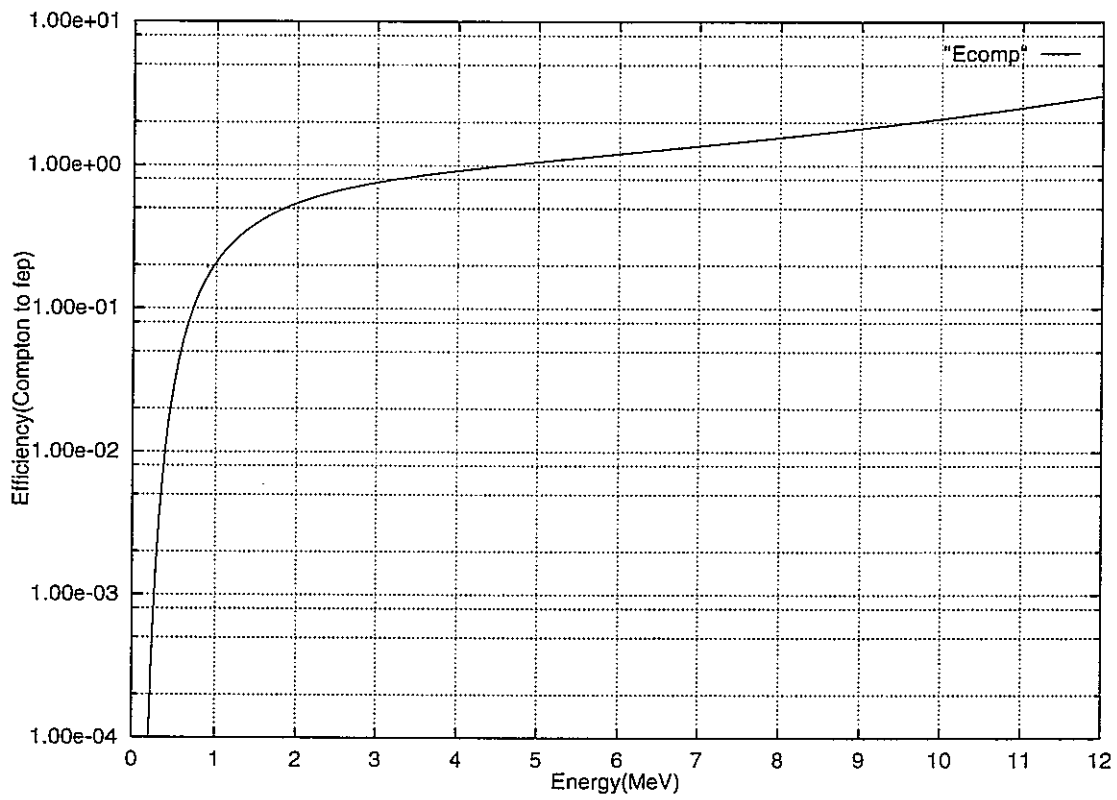


Figure 2.13: コンプトン検出効率曲線 ϵ_c/ϵ_f

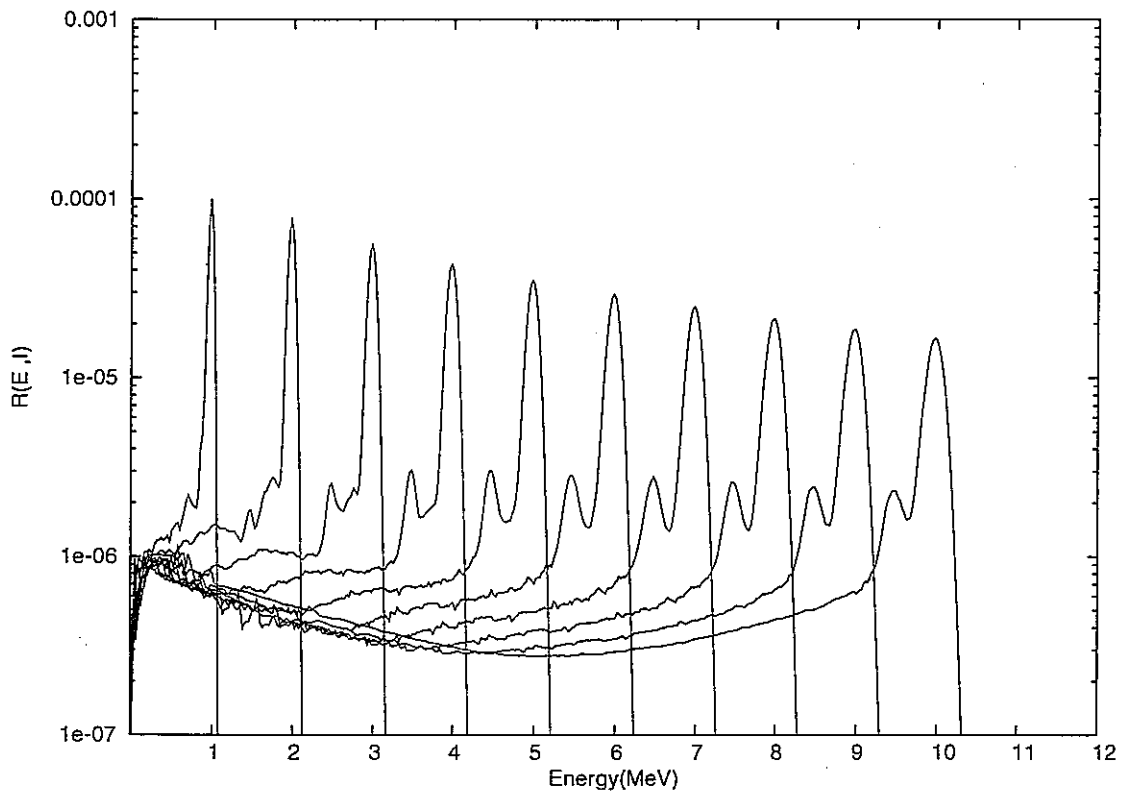


Figure 2.14: コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器の応答関数

T.A.C. のストップ信号は中性子測定回路の場合と同様で、T.P.O. からの基準時間信号が、F.A.、L.E.D.、T.P.O.C. を通り、Delay により Anode 信号とタイミングが取られて、T.A.C. のストップ信号となる。T.A.C. の SCA Out 信号 (ロジック信号) は G.D.G. (Gate and Delay Generator) で上記の Dynode の Coincidence 信号とタイミングが取られて、Coincidence 信号として U.C. に入る。また、T.A.C. の TAC Out 信号 (アナログ信号) は D.A. により U.C. からのゲート信号とタイミングが取られ、L.G. & S. に入る。これを T.O.F. 信号と呼ぶ。

コンプトン抑止用大型環状検出器には約 $-1000V$ の電圧 (それぞれの光電子増倍管からの出力波高が等しくなるように印加電圧で調整しているために、多少のばらつきがある) が印加され、10 本の光電子増倍管からのそれぞれの Dynode 信号は、Mixer によって 1 つの信号に合成され、L.A. で増幅・波形整形される。

そして、Attenuator で信号を減衰させた後、T.S.C.A. で論理信号に変換し、G.D.G. によって主検出器からの 2 つの Coincidence 信号とのタイミングが取られて、Anti Coincidence 信号として U.C. に入る。

U.C. に入った 3 つの信号 (Coincidence 信号としての主検出器からの波高信号と時間信号、および Anti Coincidence 信号としての大型環状検出器からの波高信号) によって、主検出器からの波高信号と時間信号が 1 対 1 対応するように同時計測され、さらにコンプトン抑止用の信号との非同時計測が行われる。

U.C. の出力信号は、P.H. 信号と T.O.F. 信号の入った L.G. & S. にそれぞれゲート信号として入る。それぞれの L.G. & S. からの出力信号は、このゲート信号により選択された 1 対 1 対応した P.H. 信号と T.O.F. 信号となり、共に A.D.C. (Analog To Digital Converter) に送られる。

また、U.C. からのもう 1 つの出力信号は、G.D.G. によってタイミングが取られた後、一方は Strobe 信号として A.D.C. に入り、他方は Dead Time 計測用の Scaler に入る。

A.D.C. からの 2 次元の出力信号 (P.H. 信号と T.O.F. 信号) と Scaler からの信号は、それぞれ CAMAC のクレイト・コントローラー、VME バスを通して WS (Work Station) に取り込まれる。ここで、Dead Time は A.D.C. で解析された信号 (実際に WS に取り込まれた 1 対 1 対応した P.H. 信号と T.O.F. 信号) の数と Strobe 信号の数 (Scaler の計数) との比から求められた。

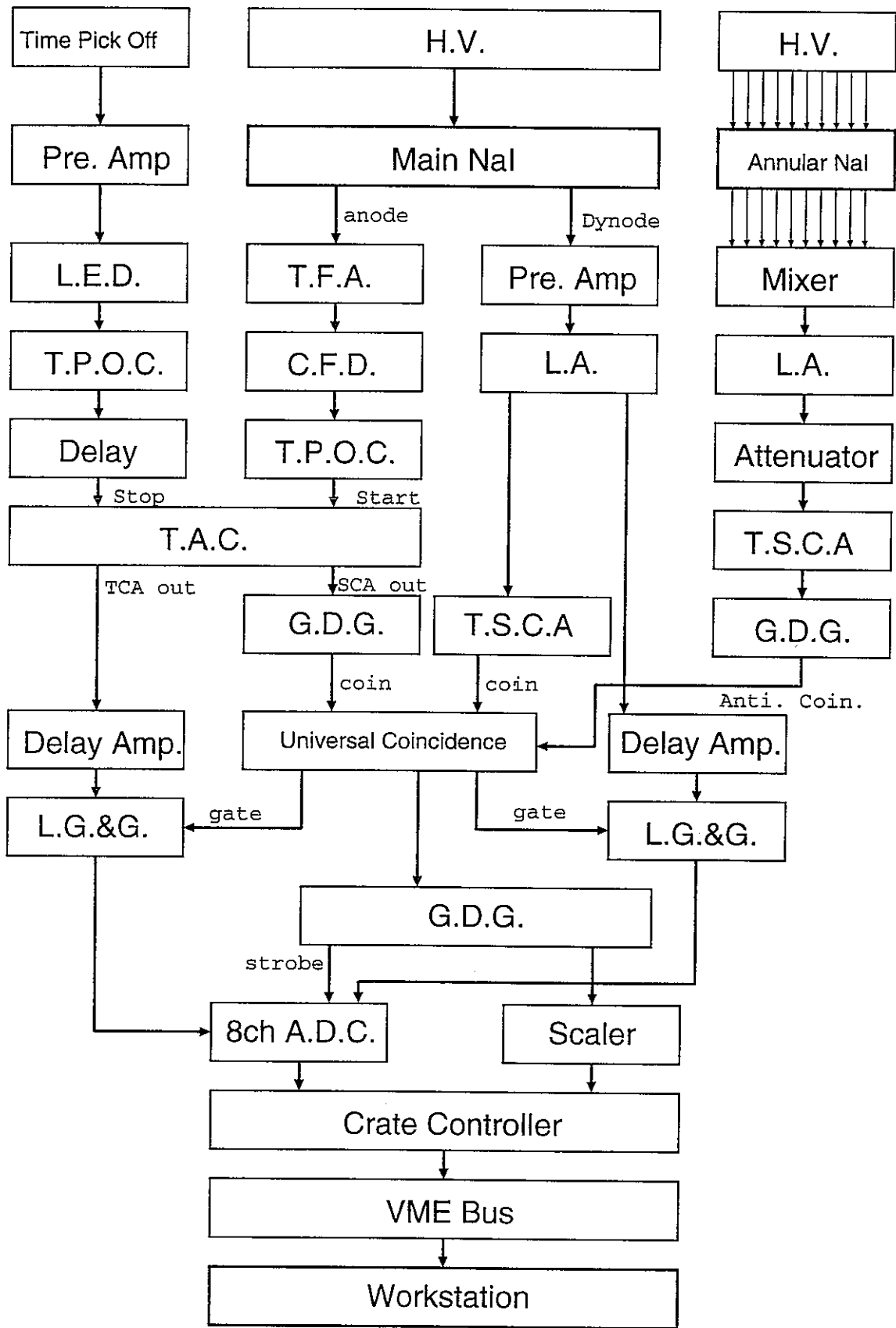


Figure 2.15: $NaI(Tl)$ シンチレーション検出器の回路図

Chapter 3

測定

3.1 試料

測定に用いた試料の、 ^{237}Np についての諸元を *Table3.1, 3.2* に示す。また、標準金試料については、*Table3.3* に示す。また、 Np 試料を封入している ^{27}Al ケースの影響を補正するために、 Al についての測定を行った。 ^{27}Al についての諸元を *Table3.4* に示す。

3.2 測定

測定は、 Np 試料測定、標準金試料測定、中性子束測定のための試料を置かない測定 (以下、OPEN 測定と呼ぶ) をサイクリックに行い、中性子発生用リチウム・ターゲットの劣化など実験条件の変動の影響を少なくした。各実験の最初と最後には、各検出器の時間較正測定、エネルギー較正測定を行った。また、試料の透過率測定のために測定条件の変動を極力なくした 30 分間測定を先に述べた 3 つの測定に対して行った。

また、試料の測定後 Al 試料の測定を行った。以下に各測定を行った手順と各々の測定の目的を示す。

1. 標準線源測定

実験の前後に標準線源 ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{60}Co , ^{88}Y を用いて、 γ 線スペクトルを測定した。この測定は、エネルギー較正を行う目的で行なった。

2. 時間較正測定

実験前後に時間較正器を用いて、 NaI 検出器及び Li 検出器系の TOF スペクトルの時間較正のために行った。

3. 試料測定

Np 試料の中性子捕獲反応によって発生する捕獲 γ 線測定のために行った。

4. ^{197}Au 試料測定

測定用試料に入射した中性子数を得るための基準測定として行った。

5. 試料を置かない測定 (open 測定)

試料に入射する中性子のエネルギー分布を得るために、試料による散乱などの影響を受けない状況の下で測定を行った。

6. 30 分測定

中性子透過率を求めることを目的として ^{237}Np 、 ^{197}Au 、open 測定それぞれに対して実験前後に 30 分の測定を行った。

7. Al 測定

Np ケースに使っている Al の影響を考慮するために、 ^{27}Al の測定を行った。

なお、各測定時間は十分な統計精度でイールドが得られるよう考慮して、各試料のおおまかな断面積を考慮して決定した。

Table. 3.5 に、各試料測定時の測定時間、平均ビーム電流を示す。

化学的純度	99% 以上
同位体組成	^{237}Np (100%)
物理形状	$20\phi \times 1.4\text{T}$
質量 (^{237}Np の量 [g])	0.9915
厚さ (^{237}Np [atoms/barn])	0.000802
Al ケースの形状	$30\phi \times 2.2\text{T}$

Table 3.1: ^{237}Np 試料

組成	酸化物の質量 (g)	原子の質量 (g)	組成比 (%)
NpO_2	1.125335	0.991466	99.8
Fe_2O_3	0.002011	0.001407	0.142
U_3O_8	0.000186	0.000158	0.0159
ZnO	0.000368	0.000295	0.0297

Table 3.2: ^{237}Np 試料の化学的組成

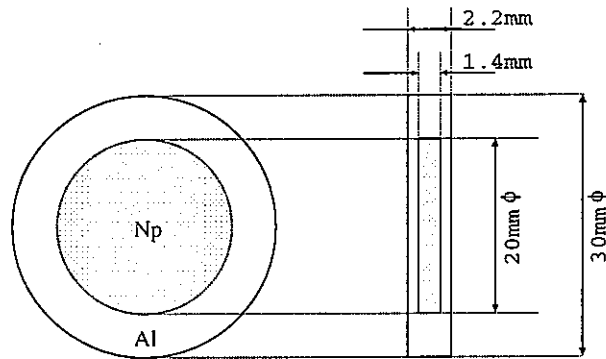


Figure 3.1: ^{237}Np ケースの形状

化学的純度	99.99% 以上
同位体組成	197(100%)
物理形状	20φ×2.0T
質量 (^{197}Au の量 [g])	12.02
厚さ (^{197}Au [atoms/barn])	0.0117

Table 3.3: 金試料

化学的純度	100% 以上
同位体組成	27(100%)
物理形状	55φ

Table 3.4: ^{27}Al 試料

<i>Neutron Energy</i>	^{237}Np	^{197}Au	<i>Open</i>	^{27}Al	平均ビーム電流 (μA)
< 100	26.0	5.0	5.0	16	7.0
143	41.0	9.0	13.0	5	6.3
207	40.0	7.0	26.0	5	5.6
321	27.0	5.0	20.0	5	10.3
554	51	9.5	20.0	5	12.8

Table 3.5: 各実験における中性子エネルギー・測定時間および平均ビーム電流

Chapter 4

データ解析

データ解析のおおよその流れについて fig. 4.1に示す。

4.1 入射中性子数

Li 検出器により得られた T.O.F. スペクトルから、試料に入射した中性子のエネルギー分布を求める。また、コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器で得られた金の P.H. スペクトルから、波高重み法と金の標準捕獲断面積を用いて金試料に入射した中性子数を求める。この値と、Li 検出器のモニターカウントとの比較から測定用試料に入射した中性子数を求める。

4.1.1 入射中性子エネルギー分布

Li 検出器で得られた OPEN 測定での、各測定時の T.O.F. スペクトルを、例として図に示す (fig.4.2,4.3,4.4,4.5,4.6)。

鋭いピークは Li ターゲット内で起こる ${}^7\text{Li}(p, \gamma){}^8\text{Be}$ 反応からの γ 線、大きな盛り上がりがある ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反応からの中性子によるものである。いずれも横軸は時間で、右から左へ進んでいる。なお、 $E_n = 554\text{keV}$ 実験では、中性子飛行時間が長いため、前の周期の (p, γ) ピークが観測される。中性子エネルギースペクトルは、試料による散乱のないこの OPEN 測定から、飛行時間法を用いて求める。以下、飛行時間法について述べる。

中性子の飛行時間とエネルギーの対応は、

$$E_n = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{1}{2}m\left(\frac{l}{t}\right)^2 \quad (4.1)$$

となる。ただし、 l は Li ターゲットから ${}^6\text{Li}$ ガラス・シンチレーションまでの距離、 t はその距離の中性子飛行時間である。

ここで、中性子の飛行時間は次のようにして求められる。Li ターゲットでの γ 線および中性子の発生時刻を時間原点に取る。すると T.O.F. スペクトル上での γ 線のピークの時刻は、Li ターゲットから Li 検出器までの γ 線の飛行時間に対応し、光速を c と書けば l/c

Flow of Data Analysis

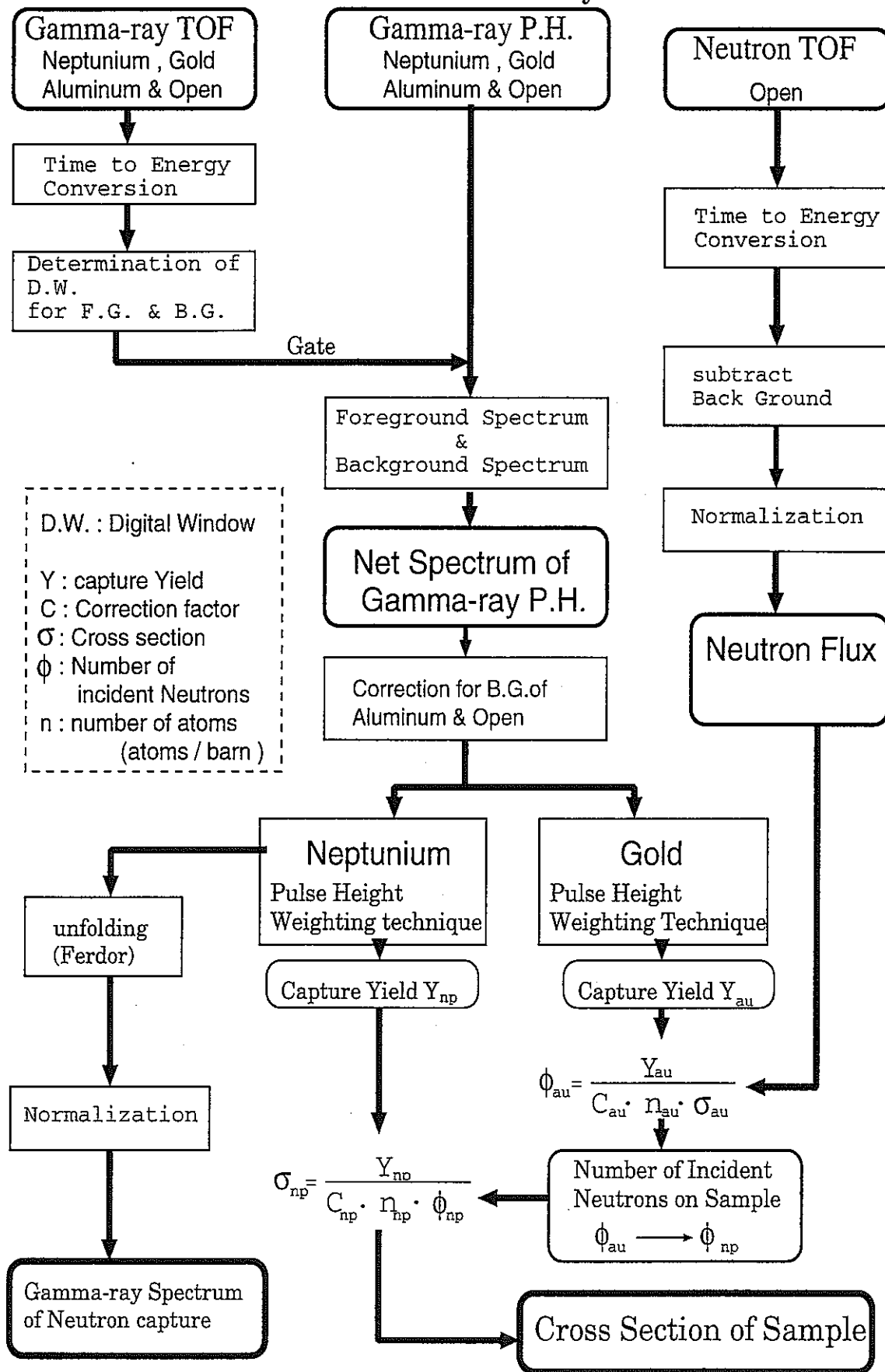


Figure 4.1: 解析の流れ (概略)

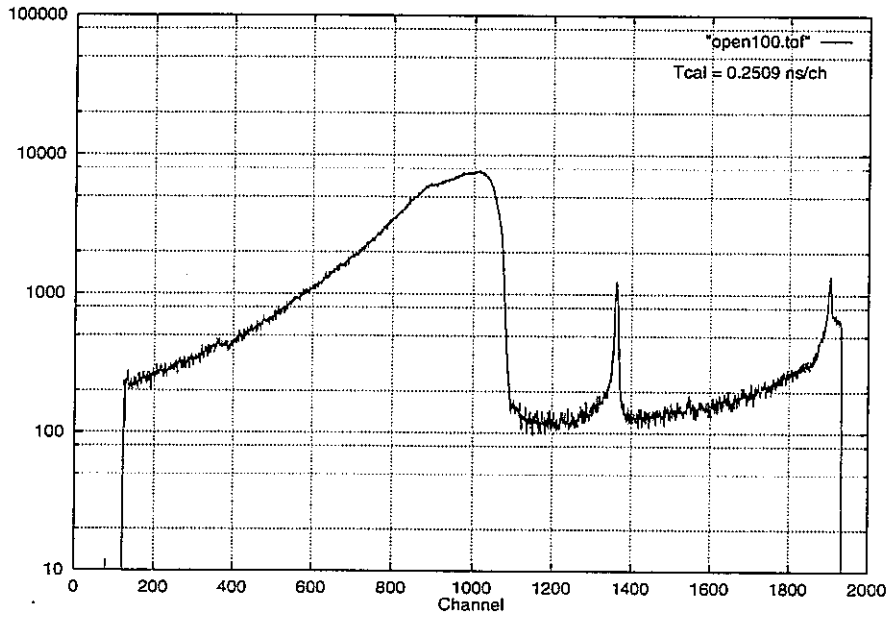


Figure 4.2: $E_n < 100\text{keV}$ での $M - Li$ 検出器の T.O.F スペクトル

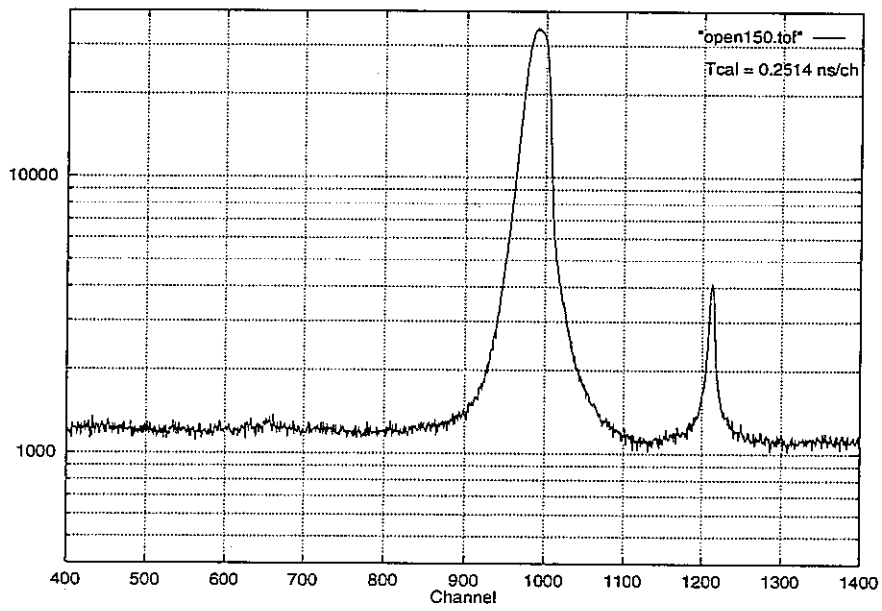


Figure 4.3: $E_n = 143\text{keV}$ での $M - Li$ 検出器の T.O.F スペクトル

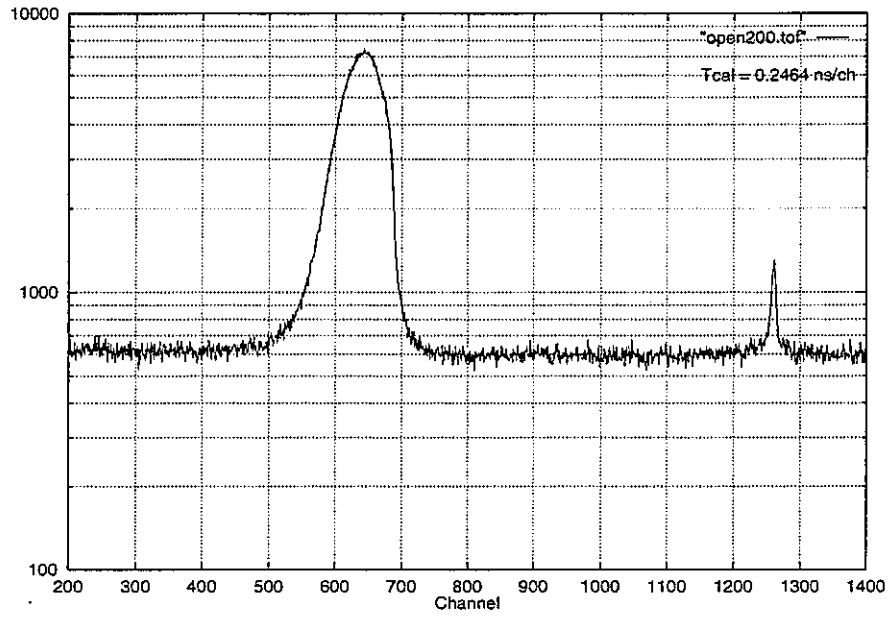


Figure 4.4: $E_n = 207 \text{ keV}$ での $Mn - Li$ 検出器の T.O.F スペクトル

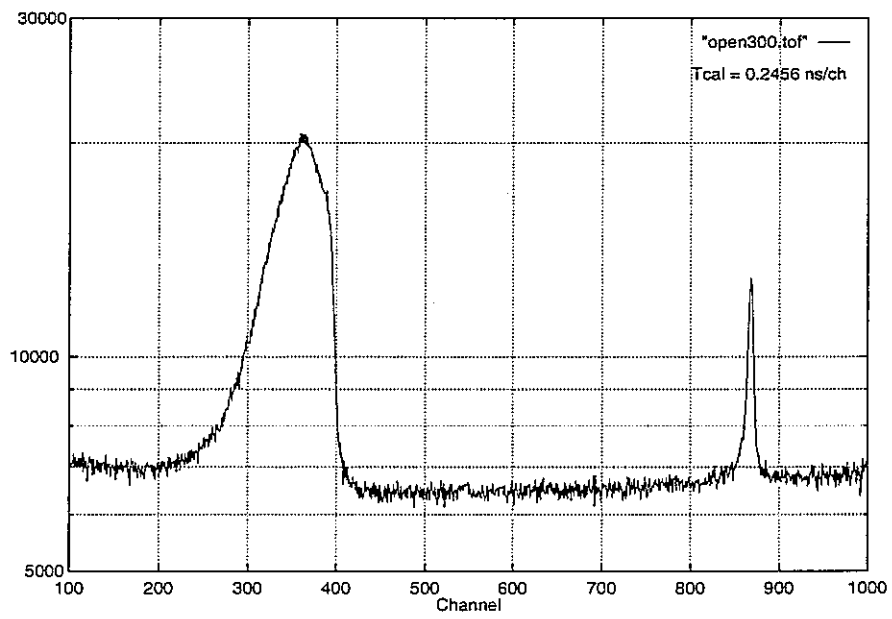


Figure 4.5: $E_n = 321 \text{ keV}$ での $Mn - Li$ 検出器の T.O.F スペクトル

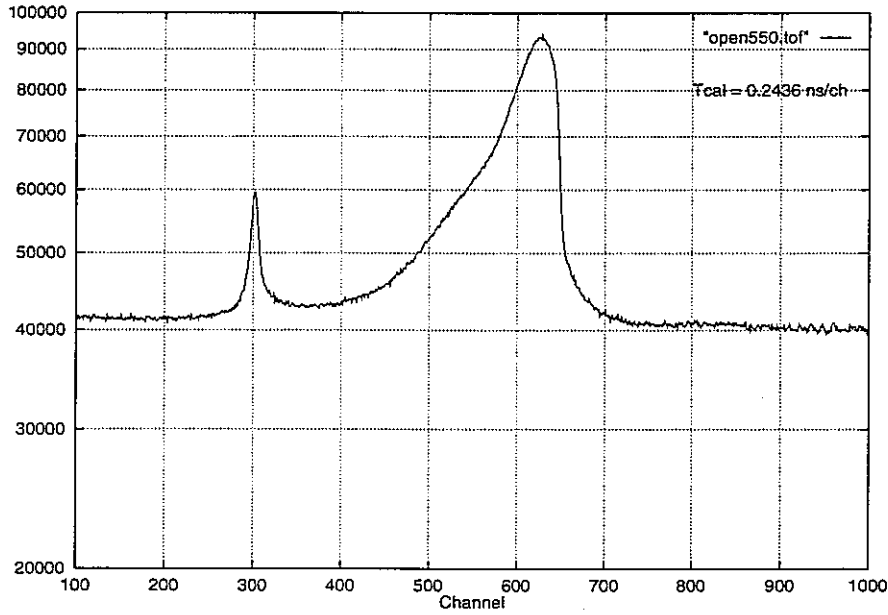


Figure 4.6: $E_n = 554\text{keV}$ での $\phi - \text{Li}$ 検出器の T.O.F スペクトル

である。また、中性子のピーク中の I_n チャンネルでの時刻は、 γ 線の飛行時間に中性子と γ 線の飛行時間の差を加えることで表せる。したがって、中性子の飛行時間 t は、

$$t = t_{cal}(I_\gamma - I_n) + \frac{l}{c} \quad (4.2)$$

と書ける。ここで、 t_{cal} は Li 検出器の時間較正、 I_γ は γ 線ピークチャンネルを表す。式 (4.1) と (4.2) で T.O.F. スペクトルの横軸を中性子のエネルギーに変換し、Li 検出器の相対検出効率で割ることにより、入射中性子のエネルギー分布が得られる。平均入射中性子エネルギー 100keV 以下 $\sim 554\text{keV}$ の測定時の入射中性子エネルギー分布を示す (fig. 4.7,4.8,4.9, 4.10,4.11)。

4.1.2 入射中性子数

次の節で述べる波高重み法を用いて、測定で求めた金の捕獲イールド Y_{Au} から、金試料に入射した中性子数 ϕ_{Au} を求める。 $E_n^{min}[\text{keV}]$ から $E_n^{max}[\text{keV}]$ のエネルギー領域の入射中性子に対する金の中性子捕獲イールドは次式で表せる。

$$Y_{Au} = C_{Au} \cdot n_{Au} \cdot \phi_{Au} \cdot \bar{\sigma}_{Au} \quad (4.3)$$

- C_{Au} : Au に対する補正係数
- n_{Au} : Au 試料の厚さ
- ϕ_{Au} : Au 試料に入射した中性子数
- $\bar{\sigma}_{Au}(E_n)$: Au の平均中性子捕獲断面積

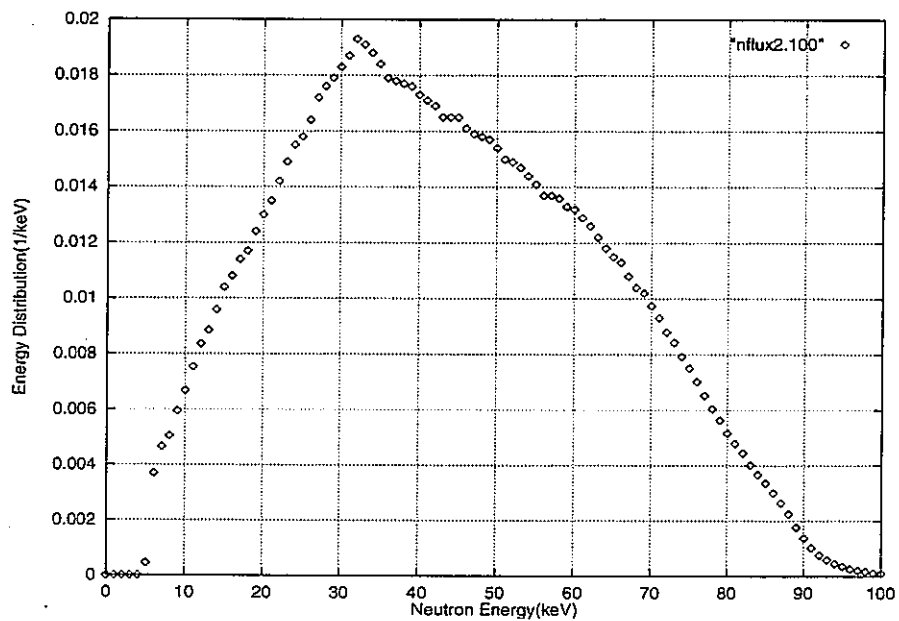


Figure 4.7: $E_n < 100\text{keV}$ での入射中性子エネルギー分布

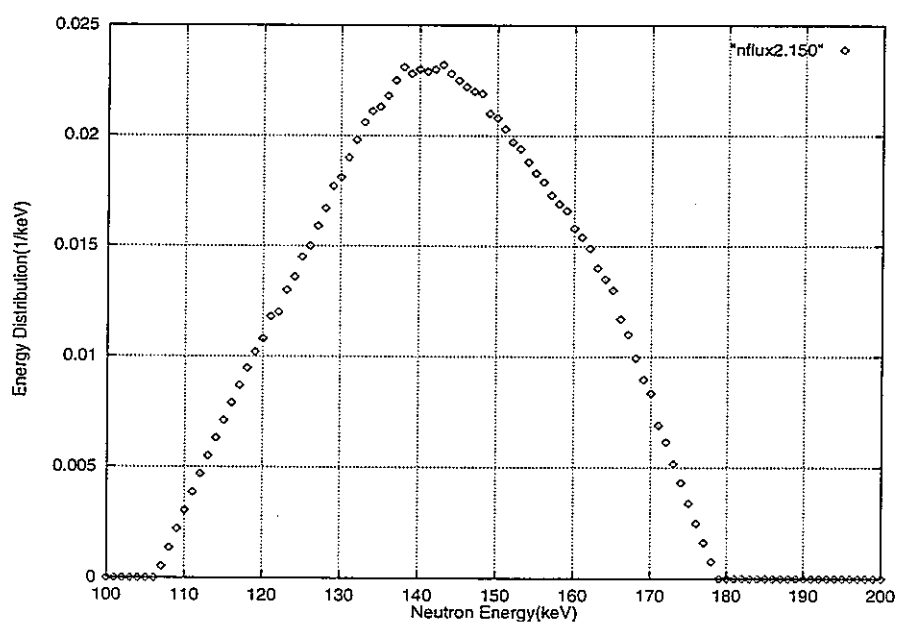


Figure 4.8: $E_n = 143\text{keV}$ での入射中性子エネルギー分布

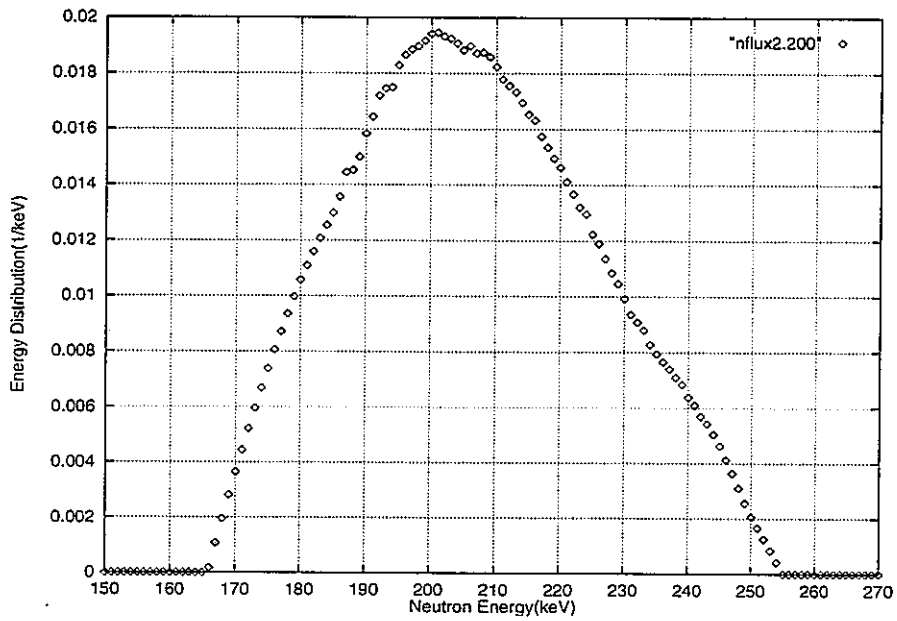


Figure 4.9: $E_n = 207 \text{ keV}$ での入射中性子エネルギー分布

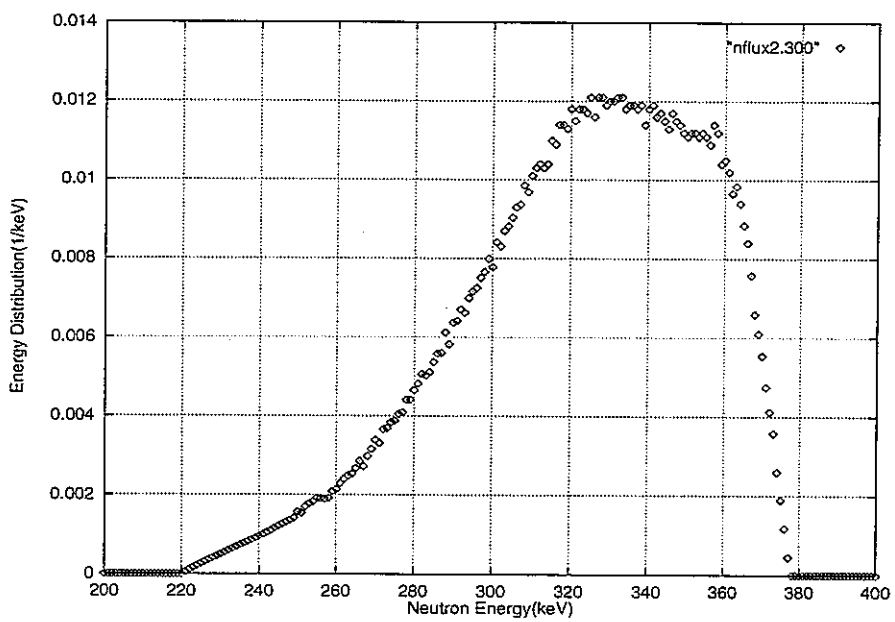


Figure 4.10: $E_n = 321 \text{ keV}$ での入射中性子エネルギー分布

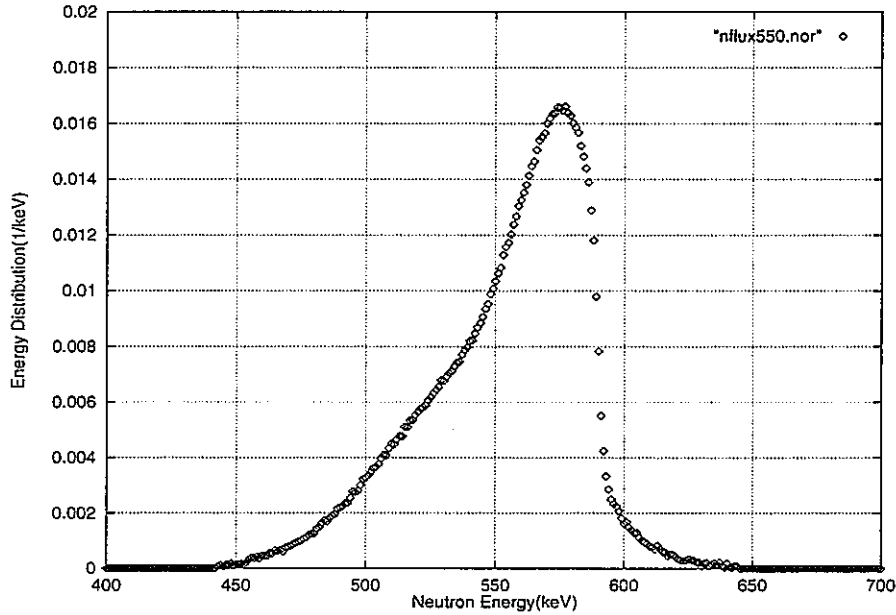


Figure 4.11: $E_n = 554\text{keV}$ での入射中性子エネルギー分布

ここで、 $\bar{\sigma}_{Au}$ は、ENDF/B-VI の中性子捕獲断面積データ $\sigma_{Au}(E_n)$ を次式のように入射中性子エネルギー分布 $\eta(E_n)$ により重みをつけて平均した値を用いた。

$$\bar{\sigma}_{Au} = \frac{\int_{E_n^{min}}^{E_n^{max}} \sigma_{Au}(E_n) \cdot \eta(E_n) dE_n}{\int_{E_n^{min}}^{E_n^{max}} \eta(E_n) dE_n} \quad (4.4)$$

なお、ENDF/B-VI のデータの誤差は 3% とした。また、補正係数については 4.4 章で述べる。

さて、 E_n が 100keV 以下～ 321keV の実験の場合、測定用試料に入射した中性子数 ϕ は、式 (4.3) を用いて求めた ϕ_{Au} との比較から、次式のように求められる。

$$\phi = \phi_{Au} \cdot \frac{T}{T_{Au}} \cdot \frac{t_{Au}}{t} \quad (4.5)$$

ただし、 T 、 T_{Au} はそれぞれ測定用試料、標準金試料測定時の M-Li 検出器の中性子計数で、測定時間の規格化のための因子であり、 t 、 t_{Au} は、入射中性子スペクトルおよび強度が変動しないと仮定した 30 分間測定時の M-Li 検出器の中性子計数で、透過係数の規格化のための因子である。また、 $E_n = 554\text{keV}$ 実験の場合には、M-Li 検出器はターゲットからの中性子を直接観測しているため、

$$\phi = \phi_{Au} \cdot \frac{T}{T_{Au}} \quad (4.6)$$

で表せる。

この解析の結果、各測定における中性子エネルギーと入射中性子数は Table 4.1の様になった。

Table 4.1: 各測定における入射中性子数

入射中性子エネルギー [keV]	エネルギー範囲	入射中性子数 (error)
22(D.W. 1)	15 ~ 27	3.344×10^{10} (3.4%)
34(D.W. 2)	28 ~ 41	4.222×10^{10} (3.4%)
60(D.W. 3)	42 ~ 90	8.799×10^{10} (3.3%)
143	121 ~ 166	6.442×10^{10} (3.4%)
207	186 ~ 229	7.523×10^{10} (3.4%)
321	290 ~ 351	2.823×10^{10} (3.7%)
554	522 ~ 583	19.56×10^{10} (3.5%)

4.2 捕獲イールド

コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器で得られた各実験での ^{237}Np の T.O.F. スペクトルを示す。(fig. 4.12, 4.13, 4.14, 4.15, 4.16)

右側の鋭い大きなピークは Li ターゲット内で起こる $^7\text{Li}(p, \gamma)^8\text{Be}$ 反応からの γ 線、左側のピークもしくは盛り上がりは $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ 反応からの γ 線によるものである。コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器の T.O.F. スペクトルに対しても 4.1 節で述べた飛行時間法により中性子エネルギーを決定できる。T.O.F. スペクトルのフォアグラウンド部分に Table 4.1 に対応した DW(Digital Window) を、また、時間に依存しないと仮定される部分にバックグラウンドの DW を設定する。そして、それぞれの波高スペクトルを 25keV/1ch. にバンディングした後、フォアグラウンドの波高スペクトルから DW の幅で規格化したバックグラウンドの波高スペクトルを差し引き、正味の波高スペクトルを得ることができる。

今回の測定では Np 試料ケースの Al による $^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$ 反応の影響を受ける。そこで、Al について得られた正味の波高スペクトルを用い、 $^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$ 反応による高エネルギー γ 線ピークの面積で規格化して差し引き、補正した。

また $E_n \geq 143\text{keV}$ の実験では、Li ターゲットで発生した中性子が全空間に放出される

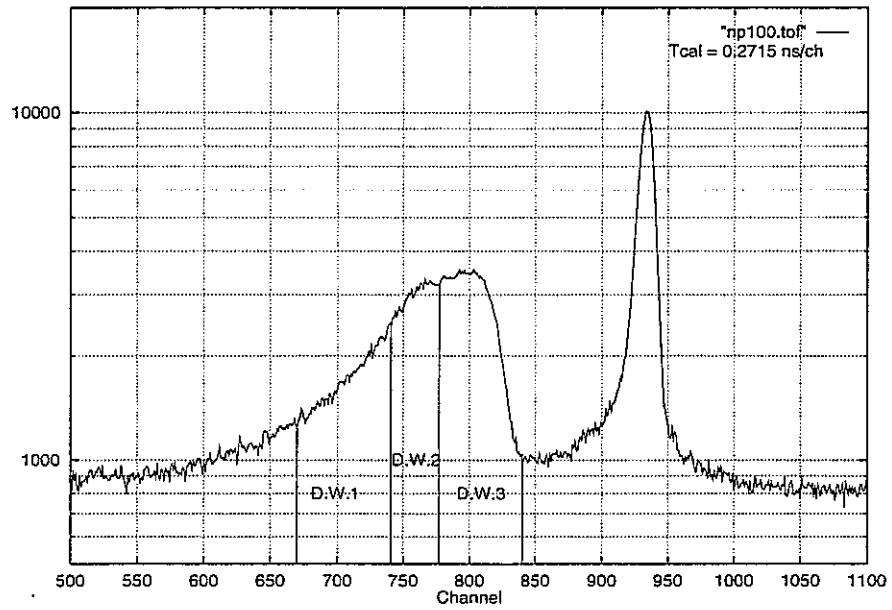


Figure 4.12: $E_n < 100\text{keV}$ での NaI(Tl) 検出器の T.O.F. スペクトル

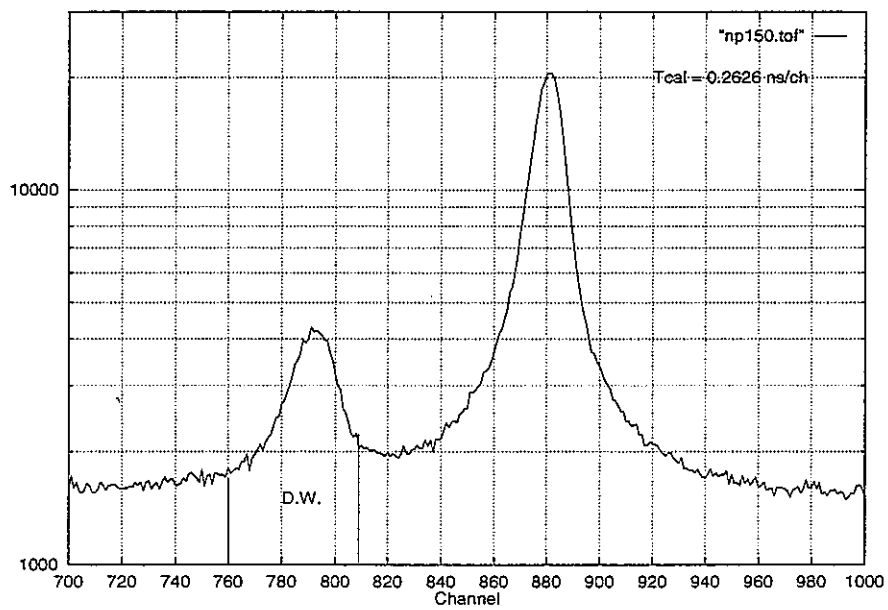


Figure 4.13: $E_n = 143\text{keV}$ での NaI(Tl) 検出器の T.O.F. スペクトル

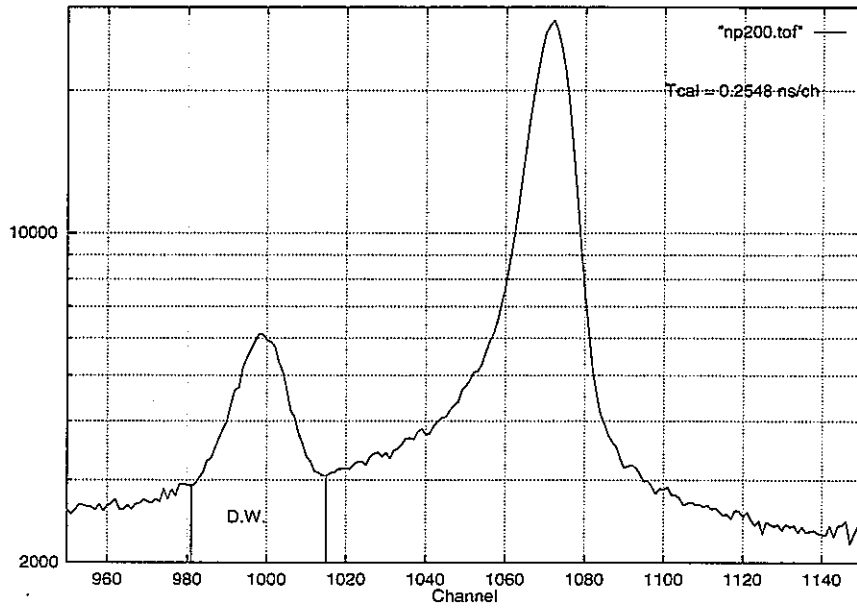


Figure 4.14: $E_n = 207 \text{ keV}$ での NaI(Tl) 検出器の T.O.F. スペクトル

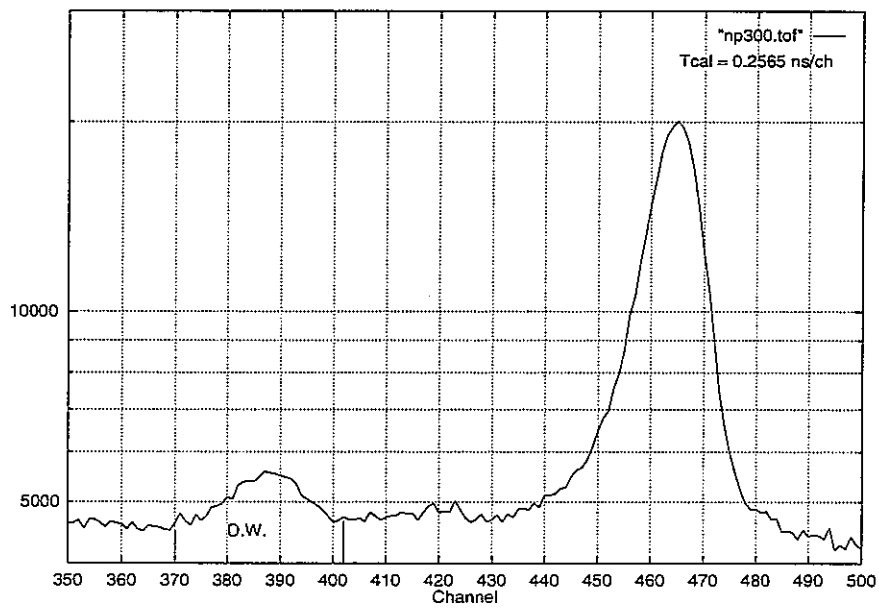


Figure 4.15: $E_n = 321 \text{ keV}$ での NaI(Tl) 検出器の T.O.F. スペクトル

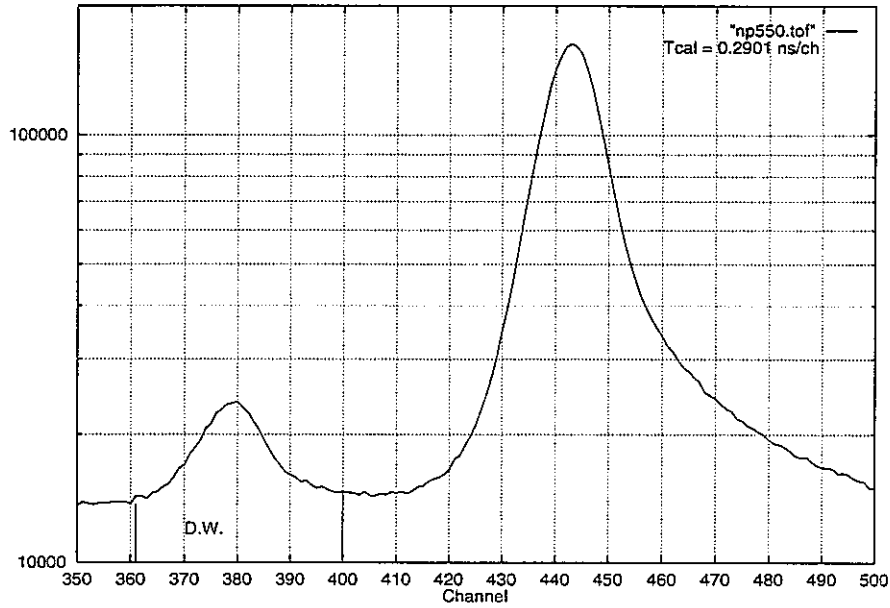


Figure 4.16: $E_n = 554\text{keV}$ での NaI(Tl) 検出器の T.O.F. スペクトル

ため、 γ 線遮蔽体の鉛と (n, γ) 反応を起こし、その影響を受ける。そこで、何も置かない測定 (open) で得られたフォアグラウンド部分の正味の波高スペクトルを用い、鉛の (n, γ) ピークの面積を規格化して差し引き、補正した。

この様にして得られた正味の波高スペクトルに波高重み法を用いて、それぞれの試料の各 DW の中性子捕獲イールドを求めた。以下、波高重み法について述べる。

中性子捕獲によって形成された複合核には様々な γ 線崩壊モードがあり、放出される γ 線の数やエネルギーは各モードによって異なるが、各崩壊モードで放出される γ 線のエネルギーの和は、その原子核の中性子の結合エネルギー ($B.E.$) と入射中性子が持ち込んだ運動エネルギー (E_n) の和と等しくなる。つまり、

$$\sum_{j=1} E_{\gamma ij} = B.E. + E_n \quad (4.7)$$

が成り立つ。ここで、 $E_{\gamma ij}$ は、 i 番目のモードで j 番目に放出される γ 線のエネルギーである。また、崩壊モードの種類が M 個、 i モードが起きた数を S_i とすれば、中性子捕獲イールド Y は次式のように書ける。

$$Y = \sum_{i=1}^M S_i \quad (4.8)$$

さらに、エネルギー $E_{\gamma ij}$ の γ 線に対する検出器の応答関数を $R(E_{\gamma ij}, I)$ とすると、 I チャンネルの計数 $S(I)$ は次式で書ける。

$$S(I) = \sum_i^M S_i \sum_j R(E_{\gamma ij}, I) \quad (4.9)$$

ここで、

$$\sum_I R(E_{\gamma ij}, I)W(I) = E_{\gamma ij} \quad (4.10)$$

を満たすような重み関数 $W(I)$ が定義できるとすると、

$$\begin{aligned} \sum_I S(I)W(I) &= \sum_{i=1}^M S_i \sum_{j=1}^I \sum_I R(E_{\gamma ij}, I)W(I), & (4.11) \\ &= \sum_{i=1}^M S_i \sum_{j=1} E_{\gamma ij}, \\ &= (B.E. + E_n) \sum_{i=1}^M S_i, \\ &= (B.E. + E_n)Y \end{aligned} \quad (4.12)$$

と変形できる。したがって、中性子捕獲イールド Y は次式で表せる。

$$Y = \frac{\sum S(I)W(I)}{B.E. + E_n} \quad (4.13)$$

重み関数は、検出器の応答関数に、 γ 線の自己遮蔽効果、位置依存性効果の補正を加味した合成応答関数(4.4.2.参照)を用いて式(4.10)を満たすように最小二乗法により、 N_p について、

$$W_{Np}(I) = 1580.6\sqrt{I} - 346.20I + 33.217I^{\frac{3}{2}} - 0.79803I^2 \quad (4.14)$$

金について、

$$W_{Au}(I) = 1280.5\sqrt{I} - 223.53I + 19.115I^{\frac{3}{2}} - 0.29723I^2 \quad (4.15)$$

また、 γ 線相互作用の影響を補正をしない場合について、 $W(I) = 954.15\sqrt{I} - 159.34I + 16.012I^{\frac{3}{2}} - 0.29537I^2$ (4.16)

と求めた。なお、この重み関数の誤差は、応答関数の誤差から、3%とした。

$W_{Np}(I)/W(I)$ および $W_{Au}(I)/W(I)$ の比を *fig.4.17* に、示す。

得られた N_p の捕獲 γ 線イールドを *Table. 4.2* に示す。

なお、コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器は波高エネルギー 500~600keV にディスクリを掛けており、それよりも低エネルギーの波高分布は外挿して求めている。波高重み法を用いる場合のこの外挿の妥当性を調べるため、数種類の外挿を行い、その影響を検討した。その結果、それぞれの波高スペクトルで得られる捕獲イールドの差は1%程度であったので、これを誤差として加えることにした。

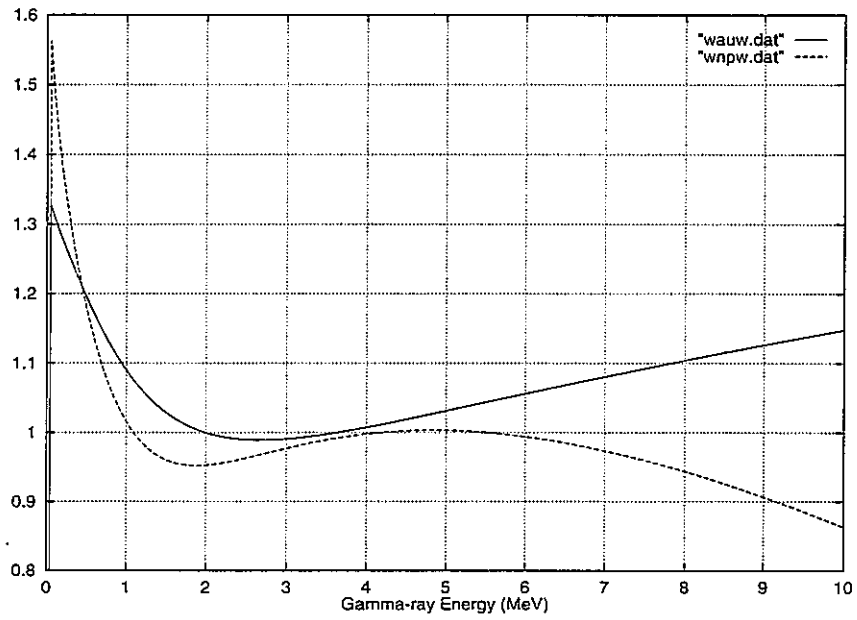


Figure 4.17: $W_{Au}(I)/W(I)$ (実線) と $W_{Np}(I)/W(I)$ (破線)

Table 4.2: 各実験における Np の捕獲 γ 線イールド

E_n	捕獲イールド*	(エラー%)
DW1	7.37×10^7	(3.4)
DW2	8.23×10^7	(3.3)
DW3	12.1×10^7	(3.3)
143	5.40×10^7	(3.6)
207	5.43×10^7	(3.5)
321	1.75×10^7	(5.3)

4.3 中性子捕獲断面積

E_n^{min} [keV] から E_n^{max} [keV] のエネルギーを持つ入射中性子数は式 (4.5) もしくは式 (4.6) で、それに対する中性子捕獲イールドは式 (4.13) で書けるので、その平均中性子エネルギー \bar{E}_n [keV] に対する平均中性子捕獲断面積 $\bar{\sigma}$ [barn] は、次式で表される。

$$\bar{\sigma} = \frac{Y}{C \cdot n \cdot \phi} [\text{barn}] \quad (4.17)$$

C : 測定用試料に対する補正係数
n : 測定用試料の厚さ [atoms/barn]

補正係数 C については次の節で述べる。

4.4 補正係数

補正係数 C は、次のように定義した。

$$C = C_n \cdot C_\gamma = C_{ns} \cdot C_{nm} \cdot C_{\gamma a} \cdot C_{\gamma g} \quad (4.18)$$

ここで、 C_n, C_γ はそれぞれ入射中性子および捕獲 γ 線に対する補正を表している。

4.4.1 中性子の補正

試料内の中性子の振る舞いに対して、2つの補正を考える。

[試料内での中性子の自己遮蔽効果] 中性子束の試料内での散乱、吸収による減衰に対する補正である。試料内での平均的な中性子束 $\bar{\phi}$ を考える。試料の厚さを d [cm]、密度を ρ [atoms/(barn · cm)]、全断面積を σ_{tot} とすれば、 $\bar{\phi}$ は次のように書ける。

$$\begin{aligned} \bar{\phi} &= \frac{\int_0^d \phi \cdot \exp(-\rho\sigma_{tot}x) dx}{\int_0^d dx}, \\ &= \frac{1 - \exp(-\rho\sigma_{tot}d)}{\rho\sigma_{tot}d} \cdot \phi \end{aligned} \quad (4.19)$$

$n = \rho d$ を用いれば、

$$\bar{\phi} = \frac{1 - \exp(-n\sigma_{tot})}{n\sigma_{tot}} \cdot \phi \quad (4.20)$$

と書ける。従って、入射中性子と標的核との第一回目の collision による捕獲イールドは、

$$Y = \int n \cdot \sigma_n \bar{\phi} dE_n \quad (4.21)$$

となる。ここで、 C_{ns} を次の式のように定義する。

$$Y = C_{ns} \cdot n \int \sigma_n \cdot \phi dE_n \quad (4.22)$$

すると、式(4.21)と(4.22)から、

$$C_{ns} = \frac{\int \sigma_n \cdot \bar{\phi} dE_n}{\int \sigma_n \cdot \phi dE_n} = \frac{\int \sigma_n \cdot \frac{1 - \exp(-n\sigma_{tot})}{n\sigma_{tot}} \cdot \phi dE_n}{\int \sigma_n \cdot \phi dE_n} \quad (4.23)$$

と表せる。

[試料内での中性子の多重散乱効果] 試料内での散乱中性子の捕獲に対する補正である。観測された γ 線イールドには試料内で散乱された中性子の捕獲事象も含まれるので、式(4.21)あるいは(4.22)よりも過大評価された捕獲イールドが得られることになる。この効果による補正係数 C_{nm} を、次式のように定義し、モンテ・カルロ・シミュレーションで求めた。

$$C_{nm} = \frac{\text{捕獲事象の総数}}{\text{一度も散乱されずに捕獲された事象の数}} \quad (4.24)$$

式(4.22)にこれを乗じ、捕獲イールドは次式で表せる。

$$Y = C_{ns} \cdot C_{nm} \cdot n \int \sigma_n \cdot \phi dE_n \quad (4.25)$$

この2つの補正係数は計算コードTIM[SEN+ 94]で計算された。

4.4.2 γ 線の補正

試料内での γ 線の振る舞いに対して2つの補正を考える。

[試料内での γ 線の自己遮蔽効果] 試料内、Alケースでの γ 線の散乱、吸収の効果に対する補正である。試料中の原子核から放出された γ 線は、試料・ケース内で散乱、吸収されるために、試料から放出される γ 線スペクトルは捕獲 γ 線スペクトルとは異なる。そこで、 $C_{\gamma a}$ を次の式で定義し、モンテ・カルロ・シミュレーションで計算した。

$$C_{\gamma a}(E_0) = \frac{N_f}{N_i} \quad (4.26)$$

N_f はエネルギー E_0 の捕獲 γ 線がエネルギー E_0 を持ったままで検出器に入った数、 N_i はエネルギー E_0 の捕獲 γ 線が検出器方向に発生した総数である。エネルギーに依存するこの補正係数は波高スペクトルで重みをつけて平均した値を用いた。

[試料内での γ 線の位置依存効果] γ 線の発生した位置の差による補正である。試料は大きさを持つために、試料中の各点から検出器を見込む立体角はそれぞれ異なる。そこで、補正係数 $C_{\gamma g}$ を、試料から発生した γ 線の平均検出効率 ϵ_a の、試料の中心から発生した γ 線の検出効率 ϵ_c に対する比で定義した。

$$C_{\gamma g} = \frac{\epsilon_a}{\epsilon_c} \quad (4.27)$$

なお、試料の平均検出効率はモンテ・カルロ・シミュレーションで計算した。

モンテ・カルロ・シミュレーションについて 上記の二つの計算は、実際には同時におこっている。 $C_{\gamma a}$ の計算を行う際、試料中での γ 線の発生分布が試料内一様分布と仮定し、 $C_{\gamma a}$ を定義にしたがってとめれば、結果として $C_{\gamma g}$ を考慮したことになる。すなわち、

$$C_{\gamma} = C_{\gamma a} \cdot C_{\gamma g} \quad (4.28)$$

で定義される C_{γ} を求めることができる。この計算には、計算コード *sg44cga* [OHS 98] を用いた。

このシミュレーションから得られた、単色の捕獲 γ 線 ($E_{\gamma} = 5\text{MeV}$) に対する N_p 、金試料表面での γ 線のエネルギー分布を、*fig.4.18* に示す。

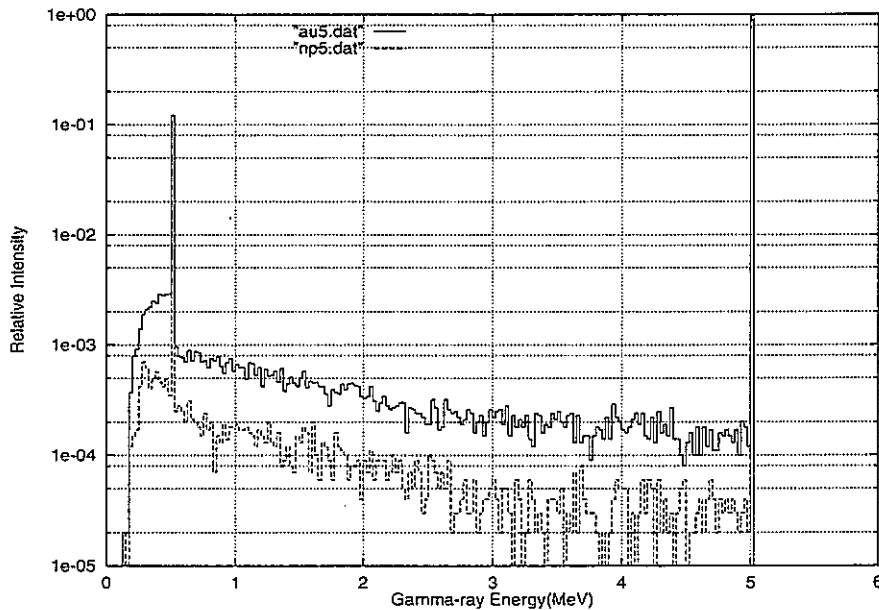


Figure 4.18: 試料表面での γ 線エネルギー分布 (実線 金試料、破線 N_p 試料)

fig. 4.18 から分かるように試料表面から発生する γ 線スペクトル ν は実際に捕獲事象により発生する γ 線スペクトル ν_s とは異なる。 ν と $\nu_s(E_{\gamma})$ とは一種の応答関数を用いて、式(4.29) の様に表すことができる。

$$\nu_s(E_\gamma) = \int \nu(E'_\gamma) \cdot R_s(E'_\gamma, E_\gamma) dE'_\gamma \quad (4.29)$$

また、検出器の I チャンネルで観測される波高スペクトル $H(I)$ は、式 (4.9) で定義した応答関数を、 $R(E_\gamma, I)$ として、式 (4.30) の様に表すことができる。

$$H(I) = \int \nu_s(E_\gamma) \cdot R(E_\gamma, I) dE_\gamma \quad (4.30)$$

式 (4.29) を式 (4.30) に代入することにより、式 (4.31) が導かれる。

$$\begin{aligned} H(I) &= \int \int \nu(E'_\gamma) \cdot R_s(E'_\gamma, E_\gamma) \cdot R(E_\gamma, I) dE'_\gamma dE_\gamma \\ &= \int \nu(E'_\gamma) \cdot \left(\int R_s(E'_\gamma, E_\gamma) \cdot R(E_\gamma, I) dE_\gamma \right) dE'_\gamma \end{aligned} \quad (4.31)$$

ここで、

$$R_{conv} = \int R_s(E'_\gamma, E_\gamma) \cdot R(E_\gamma, I) dE_\gamma \quad (4.32)$$

を合成された応答関数と呼ぶ。

金試料、Np 試料について合成された応答関数を作成した。式 (4.14)、(4.15) で示した重み関数を求める際には、この合成された応答関数を用いた。

γ 線の補正係数 C_γ は、補正を考慮しない重み関数 (4.16) を用いて得られたイールドと、補正を考慮した重み関数を用いたイールドとの比から得られた。

4.4.3 補正係数

本研究で使用した標準金試料、Np 試料の補正係数を table. 4.3、4.4 にまとめて示す。

4.4.4 捕獲断面積の誤差評価

最終結果の捕獲断面積の誤差として以下の誤差を含めた。

1. 統計誤差
2. ^{197}Au の捕獲断面積の標準として用いた ENDF/B-VI の評価値の誤差。(3%)
3. 波高重み法で用いる重み関数の誤差に起因した誤差。(1%)
4. 波高重み法を適当した際、ディスクリ・レベル以下への波高スペクトルの外挿に起因した誤差。(1%)

Table 4.3: 各実験における標準金試料の補正係数

E_n	C_{nm}	C_{ns}	C_n	C_γ	C
DW1	1.213	0.923	1.120	0.963	1.078
DW2	1.187	0.929	1.104	0.963	1.063
DW3	1.157	0.936	1.083	0.963	1.043
143	1.141	0.947	1.080	0.963	1.040
207	1.127	0.952	1.073	0.963	1.033
321	1.099	0.961	1.056	0.963	1.017
554	1.095	0.965	1.056	0.963	1.017

Table 4.4: 各実験における Np 試料の補正係数

E_n	C_{nm}	C_{ns}	C_n	C_γ	C
DW1	1.122	0.962	1.080	0.996	1.076
DW2	1.113	0.963	1.072	0.997	1.068
DW3	1.102	0.965	1.064	0.998	1.061
143	1.103	0.967	1.067	0.998	1.063
207	1.100	0.968	1.065	0.998	1.061
321	1.102	0.967	1.065	0.996	1.056
554	1.106	0.971	1.074	0.960	1.031

4.5 捕獲 γ 線スペクトル

捕獲 γ 線波高スペクトルが全エネルギー・ピークだけで構成されている場合は、それらの計数を全エネルギー・ピーク検出効率で割れば、捕獲 γ 線スペクトルを求めることができる。しかし、波高スペクトルにはコンプトン部分やシングル・エスケープ・ピークも含まれているので、これらのことを考慮する必要がある。捕獲 γ 線波高スペクトルから捕獲 γ 線スペクトルを求めるためにアンフォールディング法を用いたので、以下にその方法について述べる。

4.5.1 アンフォールディング法

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

波高分布を $h(I)$ 、試料表面から放出された γ 線のエネルギースペクトルを $\nu(E_\gamma)$ 、応答関数を $R(E_\gamma, I)$ とすると、波高分布 $h(I)$ は、

$$h(I) = \int \nu(E_\gamma) R(E_\gamma, I) dE_\gamma \quad (4.33)$$

と書ける。なお、 I はチャンネル、 E_γ は γ 線のエネルギーである。これを行列形式で書けば、

$$h = R\nu \quad (4.34)$$

となる。したがって捕獲 γ 線スペクトルは、形式的には、

$$\nu = R^{-1}h \quad (4.35)$$

と得ることができる。一般に応答関数等で畳み込まれた (folding) 結果 (ここでは波高分布) から元のもの (ここでは捕獲 γ 線スペクトル) を引き出す操作をアンフォールディング (unfolding) という。

本研究では、上で述べた合成された応答関数 (4.32) を用いて応答行列を作成し、計算コード FERDOR[KEN+ 70] によってアンフォールディングを行った。

4.5.2 捕獲 γ 線スペクトルの規格化

中性子が標的核に捕獲された状態 (捕獲状態) は、標的核の中性子結合エネルギー (B_n) と入射中性子エネルギー (E_n) を加えた分だけエネルギー的に励起されている。従って、捕獲状態から幾つかの γ 線を放出して残留核の基底状態へ遷移した場合 (普通の捕獲反応に当たる)、放出された全 γ 線のエネルギーの和は捕獲状態の励起エネルギー ($B_n + E_n$) に等しい。そこで、測定用試料が一核種からなる場合、捕獲 γ 線スペクトル $\nu(E_\gamma)$ を γ rays/MeV/Capture 単位で与えると、

$$\int E_\gamma \cdot \nu(E_\gamma) dE_\gamma = B_n + E_n \quad (4.36)$$

という関係式が成り立つ。

本実験で測定される捕獲 γ 線スペクトルは、厳密には、角度 125° に於ける微分捕獲 γ 線スペクトルである。しかし、一次捕獲 γ 線は主に E1 あるいは M1 遷移 γ 線によるから、測定された 125° の微分捕獲 γ 線スペクトルに単に 4π を掛けると全捕獲 γ 線スペクトルが得られる。また、2次 γ 線の放出は等方性が強い。したがって、測定から得られた相対捕獲 γ 線スペクトルを式 (4.36) によって規格化することができる。本研究においては、実験で得られた捕獲 γ 線スペクトルを上記の方法を用いて規格化した。

4.5.3 捕獲 γ 線スペクトルの誤差

捕獲 γ 線スペクトルの誤差として、以下の誤差を考慮した。

1. 統計誤差
2. アンフォールディングの際に発生する際の誤差
3. γ 線検出器の応答関数の誤差。(3%)

4.6 核分裂反応による影響の補正

4.6.1 補正前の結果

今まで述べた方法を用いて得られた Np 試料の正味の波高スペクトルを fig. 4.19,4.20 に示す。

また Table. 4.5 に JENDL3.2 に納められている ^{237}Np の核反応断面積のデータを入射中性子束で加重平均した値を示す。

Table 4.5: JENDL3.2 による ^{237}Np の核反応断面積

$E_n(keV)$	22	34	60	143	207	321	554
σ_{cap} (barn)	2.64	2.20	1.72	0.95	0.73	0.56	0.31
σ_{fis} (barn)	0.023	0.024	0.026	0.034	0.043	0.088	0.641
$\sigma_{cap}/\sigma_{fis}(\%)$	0.87	1.09	1.51	3.58	5.89	15.7	207

^{237}Np では、中性子エネルギーが $500keV$ 以上の領域では核分裂反応による反応が主となる。fig. 4.20 から分かるように、 $E_n = 554keV$ の正味の波高スペクトルは、他の入射

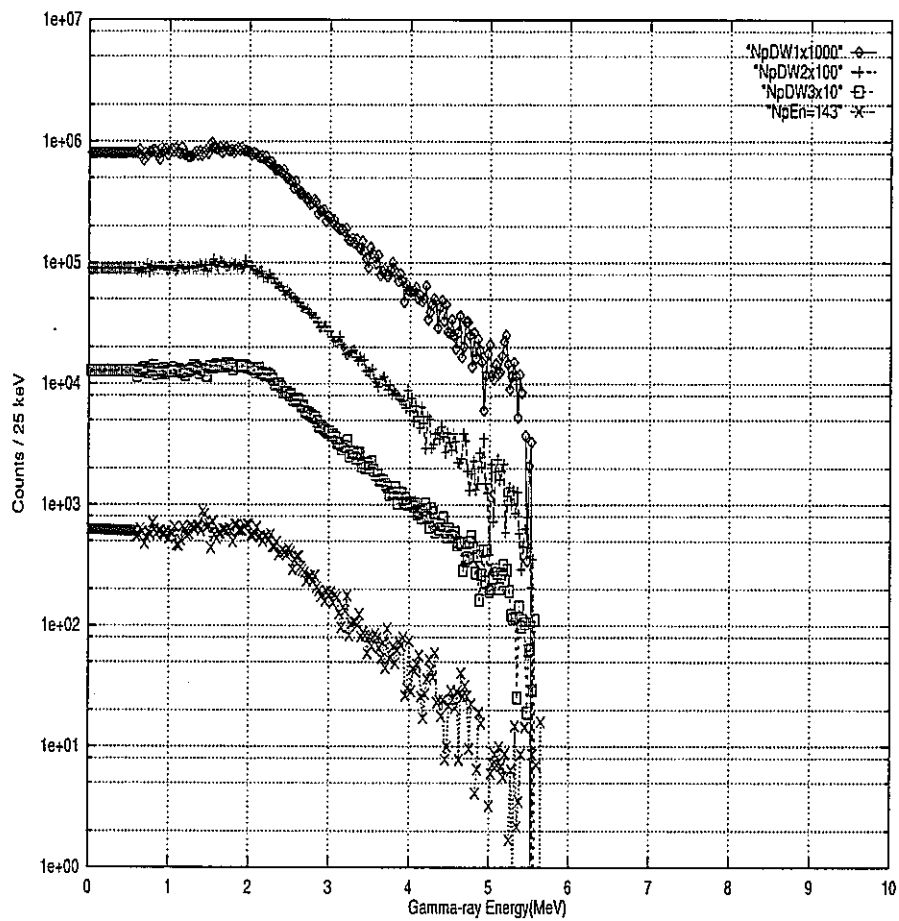


Figure 4.19: 上から $E_n = 22, 34, 60, 143 \text{ keV}$ での補正前の波高スペクトル

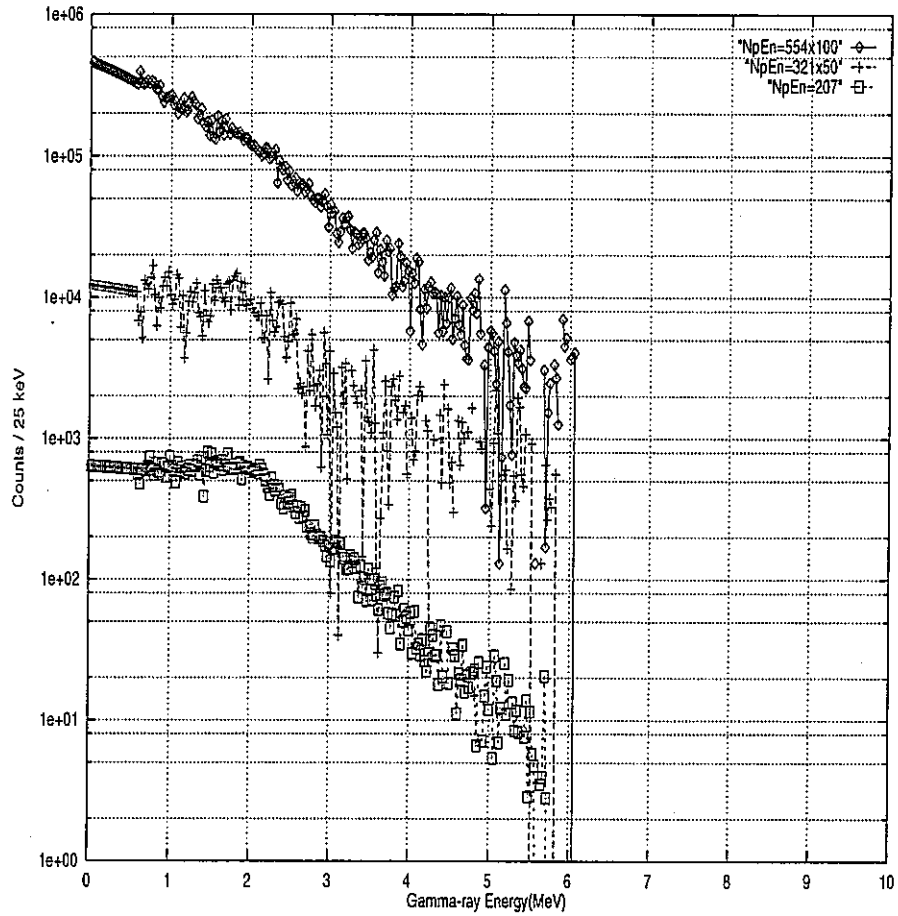


Figure 4.20: 上から $E_n = 554, 321, 207\text{keV}$ での補正前の波高スペクトル

中性子エネルギーの波高スペクトルと形が大きく異なる。これは核分裂反応による γ 線の影響である。

一回の核分裂反応によって生じた γ 線エネルギーの総和は、 $E_n + B.E.$ にはならないため、核分裂反応による波高スペクトルに対しては式 (4.13) で示した波高重み法を適用することができない。

捕獲断面積を求めるためには、核分裂による波高スペクトルの補正が必要となる。そこで以下に説明するようにスペクトルの補正を行った。

4.6.2 核分裂波高スペクトルの補正

^{237}Np の核分裂波高スペクトルの導出

核分裂反応による波高スペクトルを導出するために、以下の仮定をした。

仮定 1 捕獲反応による波高スペクトル PH_{cap} は、入射中性子エネルギーに関わらず同じ形をしている。

仮定 2 核分裂反応による波高スペクトル PH_{fis} は、入射中性子エネルギーに関わらず同じ形をしている。

仮定から、 N_p の波高スペクトルは、2つのスペクトルの重ね合わせで表すことができる。(式 (4.37))

$$PH_{E'_n}(I) = a_{E'_n} \times PH_{cap}(I) + b_{E'_n} \times PH_{fis}(I) \quad (4.37)$$

Table. 4.5 から推測すると、中性子エネルギーが 200keV 以下では捕獲反応が支配的に起こっているが、中性子エネルギーが 550keV では核分裂反応が支配的である。

そこで、まず入射中性子エネルギーが 200keV 以下の実験から得られた波高スペクトルを、捕獲反応による波高スペクトル PH_{cap} そのものであると考える。(仮定 3)

$$PH_{E'_n}(I) = a_{E'_n} \times PH_{cap}(I) \quad (4.38)$$

式 (4.37), (4.38) から核分裂波高スペクトルは次の式の様に表すことができる。

$$b_{554keV} \times PH_{fis}(I) = PH_{554keV}(I) - \frac{a_{554keV}}{a_{E'_n}} \cdot PH_{E'_n}(I) \quad (4.39)$$

規格化係数 $a_{554keV} / a_{E'_n}$ は、入射中性子数 (Table 4.1) と JENDL3.2 で与えられる平均捕獲断面積を用いて、式 (4.40) から求めた。

$$\frac{a_{554keV}}{a_{E'_n}} = \frac{\phi_{554keV} \cdot \sigma_{cap554keV}}{\phi'_n \cdot \sigma_{capE'_n}} \quad (4.40)$$

各エネルギーでの $a_{554keV} / a_{E'_n}$ の値を、Table. 4.6 に示す。

Table 4.6: 各エネルギーでの捕獲波高スペクトル規格化係数

$E_n(keV)$	22	34	60	143	207
	0.683	0.651	0.398	0.989	1.09

このようにして核分裂反応による波高スペクトル PH_{fis} を導出した。

fig. 4.21 に、 $E_n = 22, 34, 60, 143, 207 keV$ の波高スペクトルを捕獲 γ 線波高スペクトルとして用いて、得られた核分裂波高スペクトルを示す。

どのエネルギーのスペクトルからも、同じ形の核分裂波高スペクトルが得られた。

核分裂による影響の補正

得られた PH_{fis} を用いて、入射中性子数と *JENDL3.2* で与えられる平均核分裂断面積を用いて規格化して、各エネルギーにおける波高スペクトルを補正した。この際に用いた核分裂波高スペクトルは、もっとも統計のよい *D.W.3* の捕獲 γ 線波高スペクトルを用いて導出した波高スペクトルである。

各エネルギー領域での波高スペクトルが、式 (4.37) で表せるとする。この時、 E'_n における正味の捕獲波高スペクトル PH_{net} は、次式で表される。

$$PH_{netE'_n}(I) = PH_{E'_n}(I) - \frac{b_{E'_n}}{b_{554keV}} \cdot b_{554keV} \times PH_{fis}(I) \quad (4.41)$$

規格化係数 $b_{E'_n} / b_{554keV}$ は式 (4.42) の様に表される。規格化係数を Table.4.7 に示す。

$$\frac{b_{E'_n}}{b_{554keV}} = \frac{\phi_{E'_n} \cdot \sigma_{fisE'_n}}{\phi_{554keV} \cdot \sigma_{fis554keV}} \quad (4.42)$$

Table 4.7: 各エネルギーでの核分裂波高スペクトル規格化係数

$E_n(keV)$	22	34	60	143	207	321
($\times 10^{-2}$)	0.613	0.795	1.84	1.77	2.57	1.97

補正した各エネルギーの波高スペクトルから、捕獲イールドを求めた。その結果を Table. 4.8 に示す。

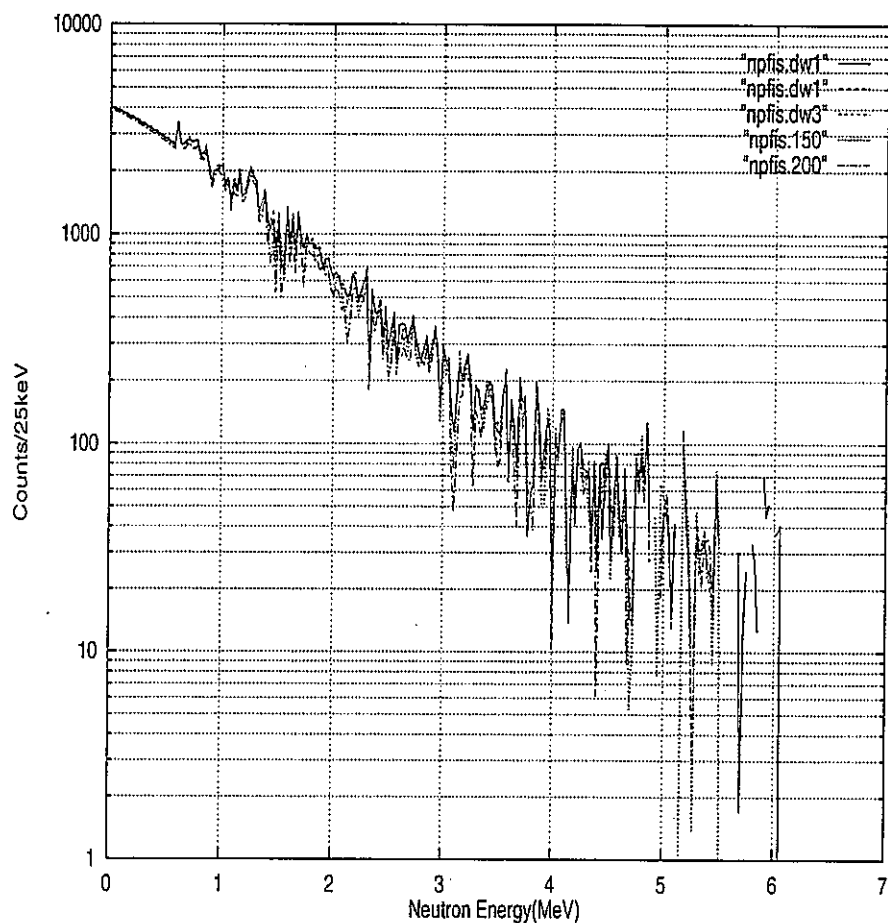


Figure 4.21: 核分裂反応による波高スペクトル

Table 4.8: 各実験における Np の捕獲 γ 線イールド

E_n	捕獲イールド	(エラー%)	補正前の値との比
DW1	7.30×10^7	(3.4)	0.991
DW2	8.13×10^7	(3.4)	0.988
DW3	11.9×10^7	(3.4)	0.983
143	5.18×10^7	(3.6)	0.959
207	5.11×10^7	(3.5)	0.941
321	1.51×10^7	(5.7)	0.863

Chapter 5

結果・考察

5.1 実験結果

本章では、まず解析で求めた中性子捕獲断面積と捕獲反応による正味の波高スペクトルの結果を示す。

中性子捕獲断面積

各実験から得られた Np 試料の正味の捕獲 γ 線波高スペクトルを *fig.5.1*, *5.2* に示す。

中性子捕獲断面積を *Table 5.1* と *fig. 5.3* に示す。

fig. 5.3 には、今回の測定結果と JENDL3.2 の評価値、WESTON[WES+81]、HOFFMAN[HOF+76]、STUPEGIA[STU+67]、LINDNER[LIN+76]、BULEEVA[BUL+88]、TROFI-MOV[TRO+83] のデータを示す。横棒の誤差棒は、中性子エネルギー 100keV 以下では中性子エネルギー範囲を、100keV 以上では入射中性子エネルギー分布の半値幅を示している。

Table 5.1: 各エネルギーにおける Np の中性子捕獲断面積

入射中性子エネルギー [keV]	捕獲断面積 (barn)	error(%)
22(D.W. 1)	2.52	3.4
34(D.W. 2)	2.24	3.4
60(D.W. 3)	1.58	3.4
143	0.943	3.6
207	0.800	3.5
321	0.626	5.7

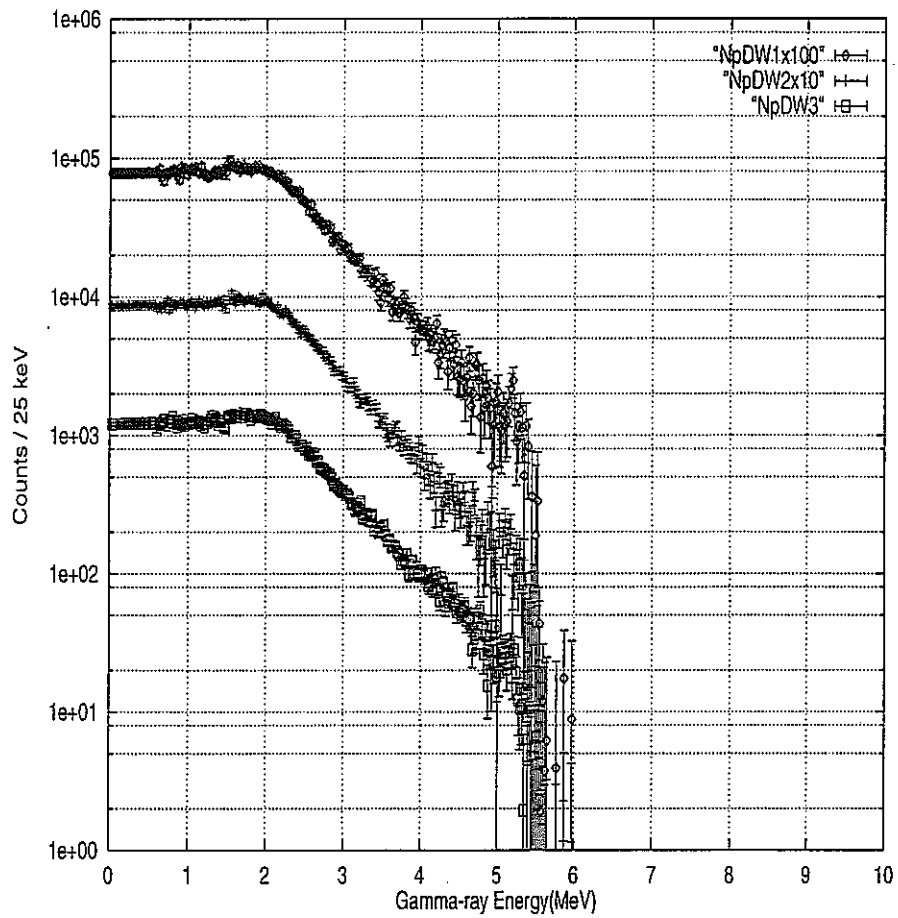


Figure 5.1: 上から $E_n = 22, 34, 60 \text{ keV}$ での正味の捕獲 γ 線波高スペクトル

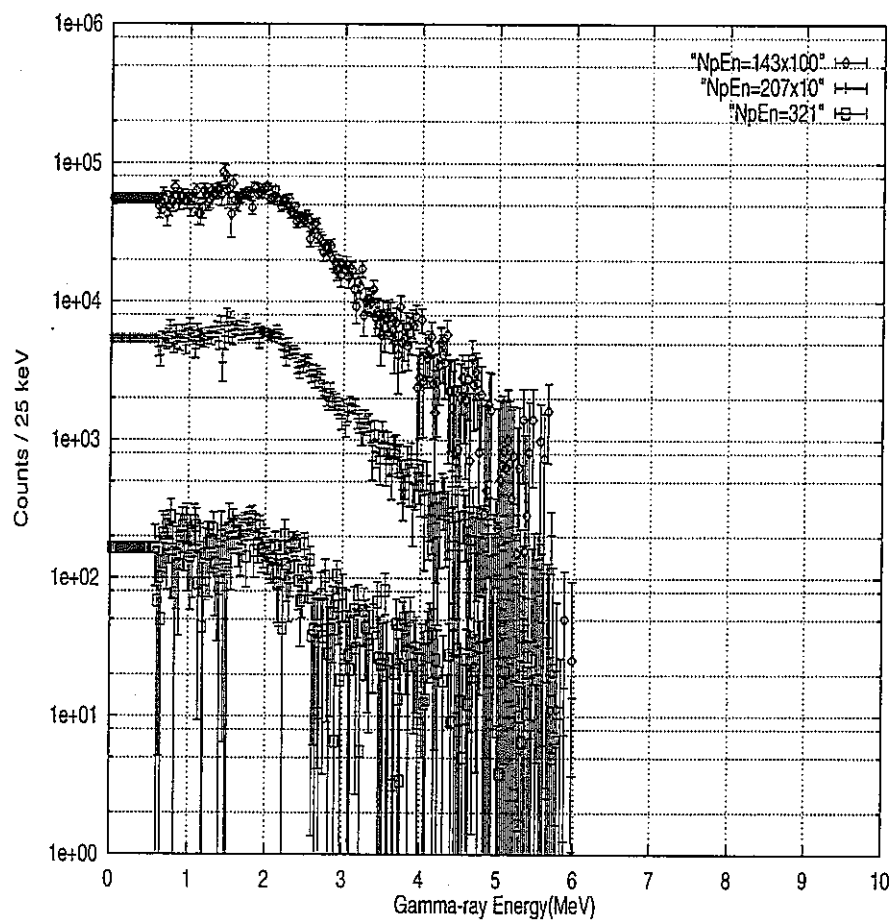


Figure 5.2: 上から $E_n = 143, 207, 321 \text{ keV}$ での正味の捕獲 γ 線波高スペクトル

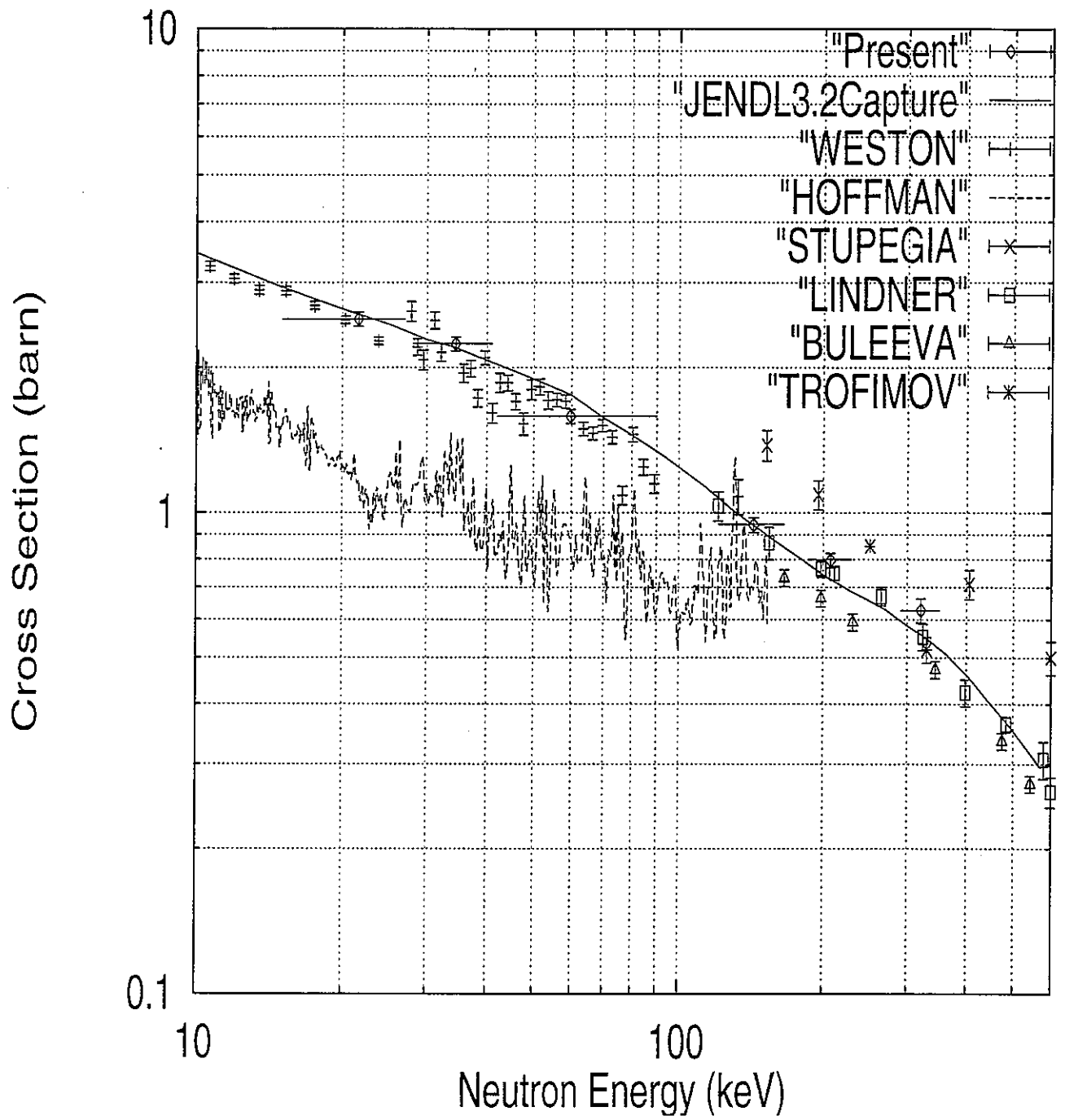


Figure 5.3: ^{237}Np の中性子捕獲断面積

捕獲 γ 線スペクトル、核分裂 γ 線スペクトル

最終的に得られた正味の波高スペクトルを、50keV/ch. にバンチングし、計算コード FERDOR[Ken+70] を用いてアンフォールディングして、捕獲 γ 線スペクトルおよび核分裂 γ 線スペクトルを得た。それを fig.5.4、5.5、5.6に示す。

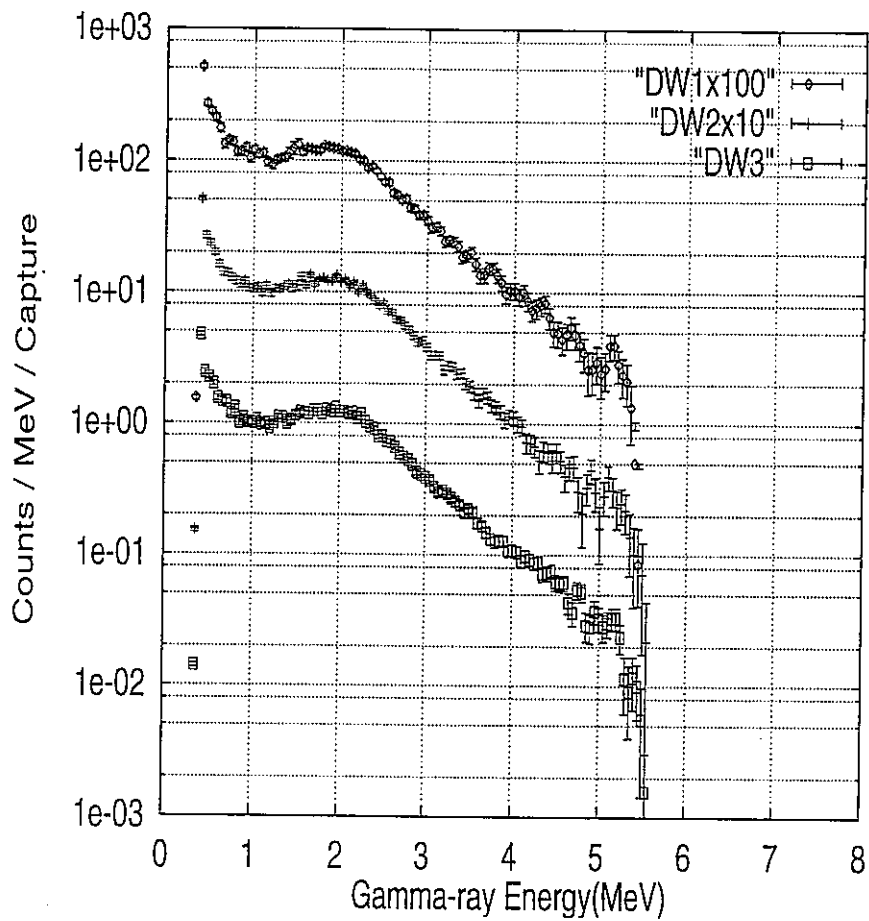


Figure 5.4: 上から $E_n = 22, 34, 60\text{keV}$ での捕獲 γ 線スペクトル

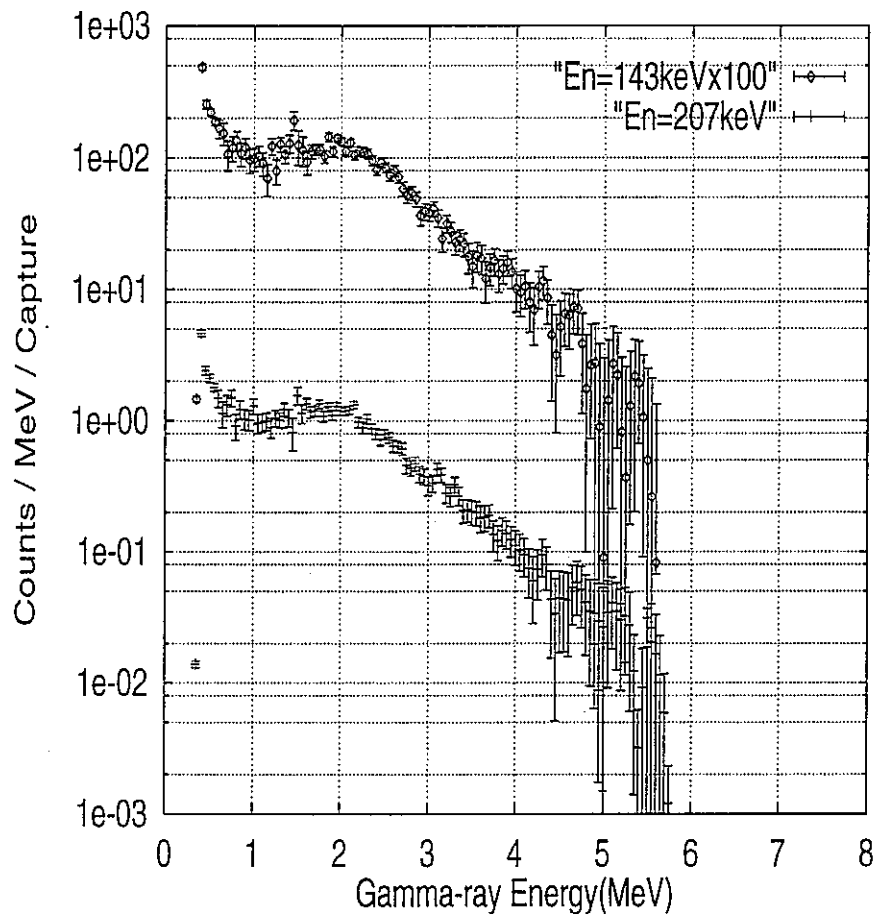


Figure 5.5: 上から $E_n = 143, 207\text{keV}$ での捕獲 γ 線スペクトル

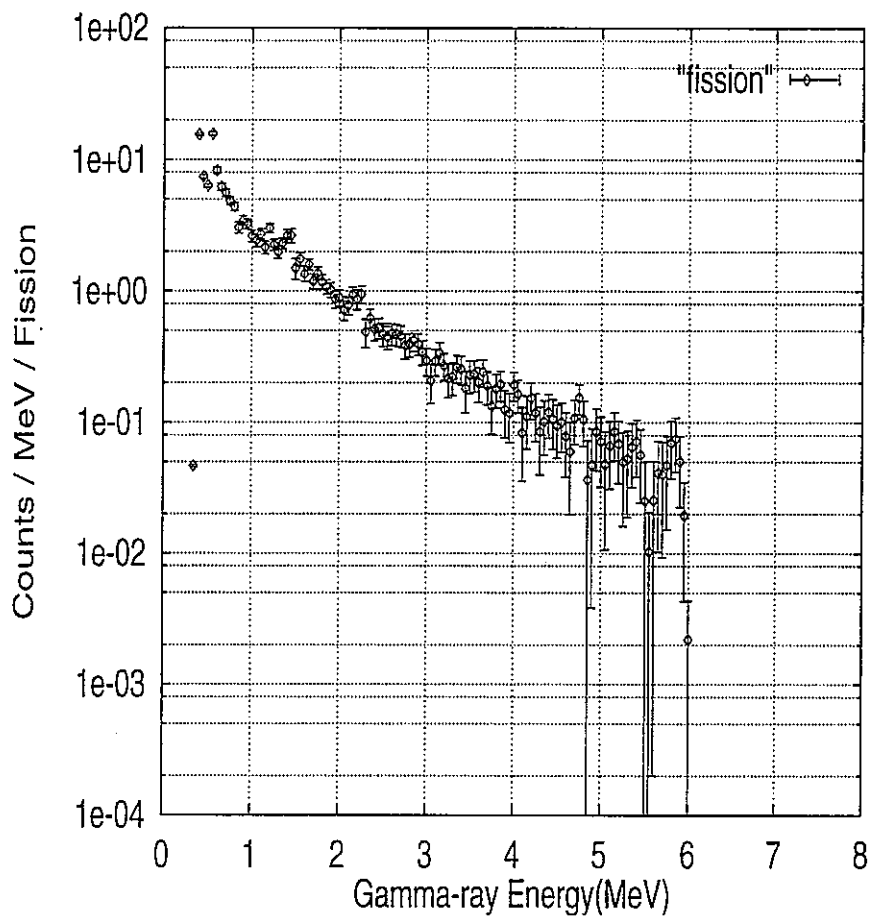


Figure 5.6: $E_n = 554keV$ での核分裂 γ 線スペクトル

5.2 考察

^{237}Np の中性子捕獲断面積は、150 keV 以下の中性子エネルギー領域で、JENDL3.2 の評価値および Weston のデータと良い一致を示した。一方 200 keV 以上の領域では、JENDL3.2 の評価値より約 10% 大きい値を示した。

Weston と Hoffman 以外の他の実験データはすべて放射化法によって得られたものである。放射化法ではバックグランドレベルの決定が難しい。特に捕獲反応の様に熱中性子に対する断面積が大きい測定の際は、バックグランド決定の不確かさが非常に重要となる。

バックグランドレベルは各実験施設および実験配置によって異なって来る。Lindner と Buleeva の値が今回の測定値よりも小さい値を示したのに対し、Stupegia の測定値が大きい値を示したのは、バックグランドレベルの決定法が異なることによると考えられる。

Chapter 4.6 で行った核分裂反応の補正で、JENDL3.2 の平均断面積データを用いた。554keV での平均捕獲断面積の値が、JENDL3.2 の値よりも 20% 大きいと考えて補正したところ、もっとも核分裂反応の影響の大きい 321keV での捕獲断面積の値が 1% 大きくなった。つまり JENDL3.2 の捕獲断面積が 550keV において 20% もの誤差を含んでいたとしても、今回の解析方法では高々 1% 程度の誤差しかもたらさないということになる。よって、今回の結果はバックグランドの決定等で生じる系統誤差を含まず信頼性が高いと考えられる。

捕獲 γ 線スペクトルは、中性子エネルギーによって γ 線エネルギーの上限が変化する以外には大きな違いは見られない。また 2 MeV 付近にはっきりしたショルダーが見られる。

核分裂 γ 線スペクトルは、 E_γ に反比例して減少していて、片対数グラフ上でリニアになっている。捕獲 γ 線スペクトルが上に凸の形を形をしているのと対照的である。

Chapter 6

結論

本研究の結論を述べる。

1. ^{237}Np の中性子捕獲断面積を測定し、中性子エネルギー範囲 10 ~ 207 keV において誤差 4% 以内、321keV において誤差 6% 以内で結果を得た。今回の結果は 150keV 以下では、JENDL3.2 の評価値および Weston の値とよい一致を示した。一方 200 ~ 330 keV の領域では、JENDL3.2 の評価値より約 10 % 大きい値となった。
2. ^{237}Np の中性子捕獲 γ 線スペクトルを、中性子エネルギー 10 ~ 330keV の領域で得た。
3. ^{237}Np の核分裂生成 γ 線スペクトルを中性子エネルギー 550keV で得た。

Bibliography

- [MAS 94] 増田 浩二；修士論文 東京工業大学 (1994)
- [SEN+ 94] ,K.Senoh et.al.,*Nucl. Instr. Meth.* ,A339,556 (1994)
- [OHS 98] 大崎 敏郎；計算コード *sg44cga* 井頭研究室 東京工業大学 (1998)
- [KEN+ 70] H.Kendrick and S.M.Sperling,GULF RADIATION TECHNOLOGY (1970)
- [WES+ 81] L.W. Weston et.al.,*Nucl.Sci.Eng.* ,79,184 (1981)
- [HOF+ 76] M.Hoffman et.al.,*Bull.Am.Phys.Soc.*, 21,655 (1976)
- [STU+ 67] D.C.Stupegia et.al.,*J.Nucl.Eng.*,29,218(1967)
- [LIN+ 76] ,M. Lindner et.al.,*J.Nucl.Eng.*,59,381 (1976)
- [BUL+ 88] ,N.N.Bleeva et.al.,*AE*,65,348 (1988)
- [TRO+ 83] ,JU.N.Trofimov et.al.,*83KIEV*,2,142 (1983)