JNC TY8400 2005-002

# 長寿命核中性子捕獲断面積決定に必要な即発γ線放出率の測定

（先行基礎工学研究に関する共同研究報告書）

2005年6月

名　古　屋　大　学
核燃料サイクル開発機構

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

〒319-1184　茨城県那珂郡東海村村松４番地４９
核燃料サイクル開発機構
技術展開部　技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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

© 名古屋大学（Nagoya University）
核燃料サイクル開発機構（Japan Nuclear Cycle Development Institute）
2005

Ⓦ

JNC TY8400 2005−002
2005 年 6 月

# 長寿命核中性子捕獲断面積決定に必要な即発γ線放出率の測定

(先行基礎工学研究に関する共同研究報告書)

宮崎格*、清水俊明*、柴田理尋*、河出清*、谷口秋洋†
古高和禎‡、中村詔司‡、坂根仁‡、原田秀郎‡

要　旨

半減期が数万年に及ぶ長寿命の核分裂生成物(LLFP)を短寿命化させる核変換技術の開発には中性子捕獲反応の精度の良い断面積データが必要である。しかし、放射性核種の中には、放射化法では測定できないか、あるいは極めて測定の難しいものがある。即発γ線を用いた断面積測定ならその問題の解決を期待できる。そこで、本研究では即発γ線を測定するのに必要な 10 MeV までの高エネルギーγ線の放出率の標準となる $^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応の測定と即発γ線を用いた捕獲断面積測定手法の開発を目的とする。そのために以下の三つの研究を行った。

京都大学原子炉実験所の B-4 スーパーミラー中性子導管(B-4 孔)にて熱中性子照射測定実験を行った。バランス法とシミュレーション計算を援用したゲルマニウム検出器の効率曲線表現法の開発により、$^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応で放出される主要な即発γ線の放出率を精度 0.2-0.9%で決定した。また、$^{23}$Na, $^{27}$Al, $^{51}$V, $^{55}$Mn, $^{59}$Co, $^{64}$Ni, $^{65}$Cu, $^{141}$Pr, $^{186}$W, $^{197}$Au の 10 核種について、即発γ線とβ壊変γ線を用いた断面積測定値を比較した。それにより報告されている即発γ線の放出率が系統的にずれており、過去のデータを測定した際の検出効率がずれていた可能性があることがわかった。$^{104}$Pd(n, γ)$^{105}$Pd 反応断面積の測定を行った。$^{107}$Pd は放射性廃棄物中に含まれる LLFP であり、その核変換を考える際には同位体として混ざっている $^{104}$Pd の断面積も重要である。断面積の下限値を精度 6%で決定した。また報告されている $^{105}$Pd 周辺の核データから、核構造の類似性に着目して上限値を推定する方法を検討した。放出率の下限値を安全サイドで 79%小さい値に見積もった。それに伴い断面積の上限値は 27%大きな値になる。

---

本報告書は、名古屋大学と核燃料サイクル開発機構が、核燃料サイクル開発機構の先行基礎工学研究制度に基づき実施した共同研究の研究成果に関するものである。
* 名古屋大学
† 京都大学原子炉実験所
‡ 東海事業所　環境保全・研究開発センター　先進リサイクル研究開発部

JNC TY8400 2005−002
June, 2005

# Measurements of Prompt γ-ray Emission Probabilities for Determinations of Neutron Capture Cross sections of long Life Nuclides

(Document on Collaborative Study: the JNC Cooperative Research Scheme on the Nuclear Fuel Cycle)

Itaru MIYAZAKI*, Toshiaki SHIMIZU*, Michihiro SHIBATA*, Kiyoshi KAWADE*, Akihiro TANIGUCHI†, Kazuyoshi FURUTAKA‡, Shoji NAKAMURA‡, Hitoshi SAKANE‡, Hideo HARADA‡

Abstract

Accurate cross section data for the neutron capture of long-lived fission products (LLFP) are needed for developing a nuclear transmutation technology which reduces radioactive wastes by transmuting nuclides that have half-lives of as long as a few million years to other nuclides that have much shorter half-lives. There are some nuclides, whose cross sections cannot be measured in activation method. Utilization of prompt γ-rays is expected to solve this problem. The aim of present study was twofold: (i) to measure emission probabilities of the high energy γ-ray, up to 10 MeV, emitted from $^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ reaction, which are usually used as standards, in order to improve their accuracies and (ii) to develop a measurement method for neutron capture cross sections by using prompt γ-rays. We have carried out the following three studies.

Neutron irradiations and γ-ray measurements were carried out by using the supermirror neutron guide tube at the Kyoto University Research Reactor Institute. The balance method and a representation method of efficiency curve, which utilize calculations, were developed. Emission probabilities of principal prompt γ-rays from $^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ reaction were determined with 0.2-0.9% errors. For ten nuclides, $^{23}Na$, $^{27}Al$, $^{51}V$, $^{55}Mn$, $^{64}Ni$, $^{65}Cu$, $^{141}Pr$, $^{186}W$, and $^{197}Au$, capture cross sections were measured by using prompt γ-rays and γ-rays following β-decay. By comparing both cross section values, it was found that emission probabilities of prompt γ-rays reported in the literatures were systematically larger than those inferred from the cross sections that were determined in activation methods. It is possible that efficiencies used in these published works were underestimated. The cross section of a $^{104}Pd(n, \gamma)^{105}Pd$ reaction at thermal energy was measured. Radioactive waste contains $^{107}Pd$, which is LLFP. Considering transmutation of the nuclide, the cross section of $^{104}Pd(n, \gamma)$, which is an isotope of palladium, is also necessary. A lower limit of the cross section was determined with 6% accuracy. Additionally, a method of estimating an upper limit was examined by noting similarity of nuclear structures to the neighboring nuclides. It was estimated that the observed lower limit of emission probabilities correspond to 79% of the cross section, and so an upper limit of the cross section should be 127% of the observed result.

---

This research has been done as a collaborative study between the Nagoya University and the Japan Nuclear Cycle Development Institute.
* Nagoya University
† Kyoto University Research Reactor Institute
‡ Tokai works, Advanced Fuel Recycle Technology Division

# 目　　次

1.　序　論 …… 1
1.1　はじめに …… 1
1.2　目　的 …… 1
1.3　構　成 …… 2

2.　即発 γ 線放出率の測定 …… 3
2.1　$^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ 反応 …… 3
2.2　即発 γ 線を用いた断面積測定法と放射化法の比較 …… 13
2.3　$^{104}Pd(n, \gamma)^{105}Pd$ 反応断面積 …… 18

3.　結　論 …… 31

謝　辞 …… 32

参考文献 …… 33

# 図　目　次

**Fig. 1** A part of a nuclear chart and a schematic view of a decay and a level scheme. ····· 2
**Fig. 2** A schematic view of the balance method. 5
**Fig. 3** A schematic view of the arrangement of a $^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ reaction measurement. ····· 6
**Fig. 4** Measured efficiencies are fitted by a polynomial function. It is clearly seen that the deviation oscillates. ····· 7
**Fig. 5** Comparison of the spectrum of the γ-rays emitted from $^{15}N$ using a melamine ($C_3H_6N_6$) target to the one using a deutronaized-melamine ($C_3D_6N_6$) target. ····· 8
**Fig. 6** The level scheme of $^{15}N$ obtained in the present study. ····· 9
**Fig. 7** Changing the size of germanium crystal in a detector and ratios of calculated efficiency and experimental one for a 22% HPGe detectior. ····· 10
**Fig. 8** Comparison of the measured efficiencies and calculated efficiencies of a 22% HPGe detector. ····· 11
**Fig. 9** The ratios of the intensities of the γ-rays from a $^{14}N(n, \gamma)$ reaction obtained from the Raman's work [5] and this one. ····· 12
**Fig. 10** Comparison of the uncertainties of γ-ray intensities in the $^{14}N(n, \gamma)$ reaction obtained in the present study to those reported in Kennett's [3] and Journey's work [4]. ····· 12
**Fig. 1ı** A schematic view of the measuring process. ····· 15
**Fig. 12** Spectra of the γ-rays permitted from a $^{197}Au(n, \gamma)^{198}Au$ reaction at thermal energy. ····· 16
**Fig. 13** The ratios of σ obtained from the used prompt γ-ray data from to σ used β-decay γ-rays ····· 17
**Fig. 14** Neutron flux spectra in horizontal direction at guide tube exit obtained by time of flight method [12]. ····· 22
**Fig. 15** Profile of neutron beam at B-4. ····· 23
**Fig. 16a** A picture of the experimental arrangement. ····· 24
**Fig. 16b** A picture of the target and the Li-box. ····· 24
**Fig. 17** A beam profile in the horizontal direction by using a $^{10}B(n, \alpha)$ reaction. ····· 25
**Fig. 18** The obtained level scheme of $^{105}Pd$ which was made with the present experimental data and referring Table of Isotope 8th[15]. ····· 26
**Fig. 19** Comparison of the cross section obtained in the present work to that of Mughabghab [6] and JENDL-3.3 [13]. ····· 27
**Fig. 20** The sum of absolute emission probabilities to the ground states. We sorted the sum by numbers of γ-rays. Those showed in **Fig. 20a, 20b, 20c, 20d**. ····· 28
**Fig. 21** Estimation of absolute emission probability. ····· 30

# 1. 序　　論

## 1.1　はじめに

原子力発電所が排出する使用済み燃料の再処理に伴って発生する高レベル放射性廃棄物中には、放射性毒性が強くとても長い半減期を持つマイナーアクチノイド($^{237}$Np:$T_{1/2}$=2.1×10$^{6}$ 年、$^{241}$Am:$T_{1/2}$=4.3×10$^{2}$ 年、$^{243}$Am:$T_{1/2}$=7.4×10$^{3}$ 年、$^{245}$Cm:$T_{1/2}$=8.5×10$^{3}$ 年、$^{246}$Cm:$T_{1/2}$=4.7×10$^{3}$ 年)や非常に半減期の長い核分裂生成物($^{79}$Se:$T_{1/2}$=6.5×10$^{4}$ 年、$^{93}$Zr:$T_{1/2}$=1.5×10$^{6}$ 年、$^{99}$Tc:$T_{1/2}$=2.1×10$^{5}$ 年、$^{107}$Pd:$T_{1/2}$=6.5×10$^{6}$ 年、$^{126}$Sn:$T_{1/2}$=1×10$^{5}$ 年、$^{129}$I:$T_{1/2}$=1.6×10$^{7}$ 年)、発熱の大きい核分裂生成物($^{90}$Sr:$T_{1/2}$=2.9×10$^{1}$ 年、$^{137}$Cs:$T_{1/2}$=3.0×10$^{1}$ 年)が含まれている。これらの核種に対して、原子炉や加速器を用いて中性子捕獲や核分裂を起こさせ非放射性あるいは短い半減期の核種に変える核変換処理が近年研究されている[1]。マイナーアクチノイド核種は高速中性子により核分裂を起こさせる方がより高次の長寿命核種ができにくいという点で適している。また、長寿命核分裂生成核種は中性子捕獲させるのがよいと考えられている。そのとき核変換技術の開発に捕獲反応断面積の精確で網羅的なデータが必要である。しかし、現実的には実験的に測定することができない核種もある。そのような場合、限られた実測データから実験的な系統式を作成することもあるが、実験的に測定するための手法の開発を行い、測定可能な核種の範囲を拡大することが最重要である。

長寿命の核分裂生成物(LLFP)の核変換を引き起こす中性子捕獲反応の精度の良い断面積データを測定するには、通常、放射化法と呼ばれる手法が用いられている。この方法では、中性子捕獲反応により作成した核種が放射性であることを利用し、その崩壊の際に放出されるγ線の収量から断面積を決定する。LLFP の中性子捕獲反応の断面積を測定するにあたり、放射化法では測定できないかあるいは極めて測定の難しい放射性核種がある。それは、中性子捕獲反応により生成した核種が崩壊をしない安定核種となる場合である。そこで、中性子捕獲反応とほぼ同時に放出される即発γ線を検出する測定法ならば、生成核種が安定であろうがどのくらい寿命を持とうが関係ないために、この問題を解決することができると考えられる(Fig. 1)[2]。この測定手法を即発γ線法と呼ぶことにする。このように即発γ線を用いるためには、エネルギーが 10MeV までの高エネルギーγ線の放出率を高精度で測定できる計測法の開発及び長寿命の $^{79}$Se, $^{93}$Zr, $^{107}$Pd などの中性子捕獲断面積測定のための測定手法の開発が必要とされていた。

## 1.2　目的

即発γ線の定量的な測定を行うには、およそ 10 MeV のγ線エネルギーまでの検出器の効率を決められていなければならない。そのためには標準となる即発γ線放出率が必要である。通常その標準には熱中性子を用いた $^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応が用いられており、Kennett[3]と Journey[4]、Raman[5]により放出率が報告されていた。それらの値をより精密化するために、新しい窒素ターゲットの開発とバランス法[3]による放出率決定

を行うことを目的とした。また、熱中性子捕獲断面積を放射化法と即発γ線法による測定の比較と、精度 50%の Mughabghab[6]の評価値しかない $^{104}$Pd(n, γ)$^{105}$Pd 反応断面積の測定の三つを行うことで即発γ線法の開発を行うことを目的とした。

## 1.3　構成

即発γ線放出率の測定の第 2 章は、熱中性子による $^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応のγ線放出率の測定、即発γ線法と放射化法の比較、$^{104}$Pd の熱中性子捕獲反応断面積の測定についてまとめた。$^{14}$N(n, γ)反応の即発γ線放出率の測定では、ターゲットの開発とシミュレーション計算の利用による効率曲線の表現法を開発したことをまとめた。放射化法との比較では、誘導放射能を測定することができる核種に対して、崩壊γ線の放出に先駆けて放出される即発γ線も検出して比較することで、即発γ線法と従来の断面積測定法と比較した結果について記述した。$^{104}$Pd(n, γ)反応断面積測定では、即発γ線を用いた中性子捕獲断面積測定と下限値しか決まらない断面積の上限値を見積もることに対する検討をまとめた。第 3 章のまとめでは現状の結論と今後の課題展望を記述した。図表は章末にまとめた。

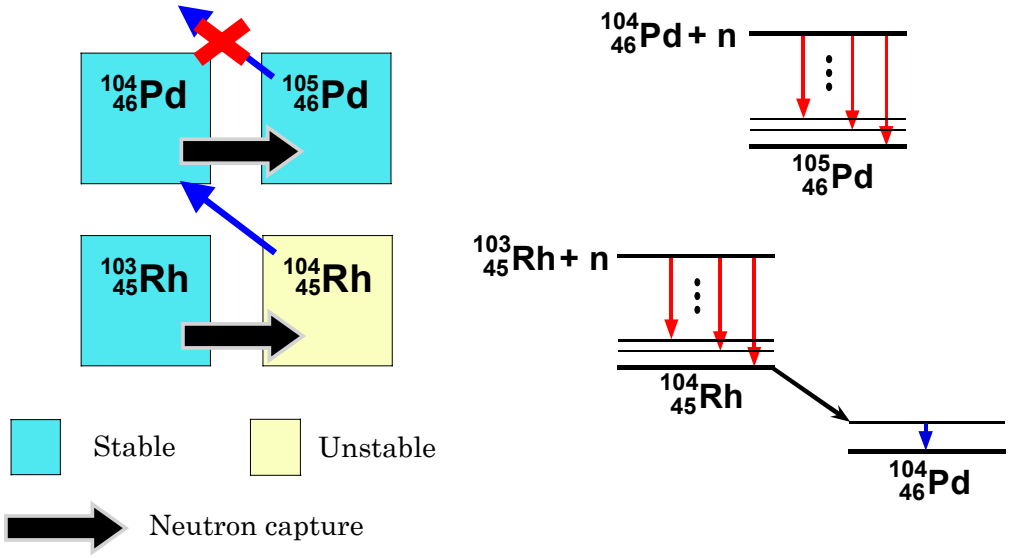


**Fig. 1**　A part of a nuclear chart and a schematic view of a decay and a level scheme.

# 2. 即発γ線放出率の測定

## 2.1 $^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ 反応

### 2.1.1 バランス法

信頼性の高いγ線に対する検出器の効率を決定するには、それに応じたエネルギー領域のγ線放出率が精度良く決定された線源が必要である。およそ 3 MeV までは標準線源があるが、10 MeV に及ぶ即発γ線を測定するための効率となると標準とされる線源はなかった。その代わりに、$^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ 反応が一般的によく用いられている。この反応による即発γ線は 1.7 MeV から 11 MeV という広範囲にわたってほぼ等間隔のエネルギーで放出される。この放出率を精度良く決定する方法にバランス法がある。バランス法は、核種の各励起準位において、それぞれの準位に遷移してくるγ線の放出率の合計($\Sigma I_{\gamma in}$)とそこから遷移するγ線の放出率の合計($\Sigma I_{\gamma out}$)が釣り合うように検出器の効率と放出率を同時に決める手法である(Fig. 2)。この手法には詳細な準位図とγ線の検出効率の関数形が必要である。中性子源、シングルス測定、γ–γ同時測定、検出効率について以下に記述する。

### 2.1.2 中性子源

中性子照射測定は京都大学原子炉実験所(KURRI)の B-4 スーパーミラー中性子導管(B-4 孔)にて行った。導管出口の中性子束密度は $5\times10^7$ n/cm$^2$·s である。

### 2.1.3 液体窒素ターゲットを用いたシングルス測定

$^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ 反応による即発γ線の測定は従来入手しやすいメラミンが($C_3H_6N_6$)用いられてきた。その場合、$^{1}H(n, \gamma)$反応が問題になる。この反応は、中性子捕獲反応断面積が 0.332 b と $^{14}N(n, \gamma)$のそれより 4 倍大きい。この反応で放出される 2223 keV のγ線により、$^{14}N(n, \gamma)$反応に由来する検出器の計数の相対的な減少、さらにコンプトン部分による低エネルギーγ線の同定の妨害が生じる。また、$^{1}H$ の中性子の散乱断面積は 20.5 b であり、$^{14}N$ のそれの 2 倍である。そのため、中性子はメラミンターゲット中の $^{14}N$ に到達する前に散乱されてしまう。これは中性子が有効利用されていないと言える。そこで、水素を含んでいない、単体の窒素試料として液体窒素ターゲット[7]を開発した。断熱する必要があるためにターゲット付近に検出器を置くのが難しい。しかし、高精度な検出効率を決める必要があるシングルス測定はコインシデンスサム効果の影響を極力小さくするために十分距離をとる必要があるために、有用なターゲットである。ターゲットのサイズは 2 cm×5 cm×8 cm であり検出器と同じくらいの広がりがあるが、距離を 15 cm から 24 cm 離しているため点線源と考えて差し支えない。検出器はエネルギー分解能を重視して、22%と 38%の二台の HPGe 検出器を用いて、合計で約 260 時間測定した。

2.1.4　重水素置換メラミンターゲットを用いたγ-γ同時測定

液体窒素ターゲットは、検出器を照射位置に近づけることに不向きであるため、γ–γ同時測定では重水素置換メラミン($C_3D_6N_6$)をターゲット試料にした。重水素置換メラミンは通常のメラミン同様に扱いやすい試料であるため、Ge 検出器との距離を 15 mm まで近づけて測定を行うことができた(Fig. 3)。重水素置換メラミン粉末試料 2 g をコイン状に圧縮固化し、二つを $^6$Li 製($LiF+CF_2$)のボックス内に設置した。γ線検出器は二台の 90%HPGe 検出器と LEPS を適宜組み合わせ使い分け、二台の検出器のエネルギー情報と同時情報を得る三次元測定を約 60 時間行った。

2.1.5　シミュレーション計算を援用した効率曲線

標準線源などを用いた実測値がないエネルギーに対してガンマ線検出効率を決定するには、従来、多項式を実測値に内挿する方法が用いられてきた。高次式を用いることで実測値とフィッティング式の値のずれは小さくなり精度が良くなる。しかし、効率曲線は物理現象によるものであり、多項式ではそれを記述できないため、多項式フィッティングでは正確さに限界がある。また、多項式の場合実測値との間に波うちが生じる(Fig. 4)。そこで、シミュレーション計算コード EGS4[8]と Geant4[9]を援用した Ge 検出器の効率曲線表示法の開発を行った。

シミュレーション計算では検出器の形状と材質を入力し、検出効率を計算する。材質の情報は、元素の種類、存在比、密度を設定して与える。検出器のカタログにはゲルマニウム結晶の直径と長さ、表面不感層の厚さが記載されている。このカタログ値を用いて計算した場合、得られる効率は実験値によるそれと一致しないのが普通である[10]。結晶の中心軸付近には不感層が存在することが知られているが、この部分の材質と大きさは記載されていない。しかし、計算するためには、この部分の形状を入力する必要がある。γ線を用いた結晶のプロファイル測定を行った結果、中心軸付近にはゲルマニウムと同程度にγ線を吸収する物質が満たされている可能性が見出された。そこで、その部分を不感層と仮定した。また、実験値の効率に近づけるため結晶の大きさを妥当な範囲で変化させた。

2.1.6　結果

シングルスの測定では、$^1$H(n, γ)の 2223 keV のγ線の大幅な低減により、コンプトン端によってバックグラウンドに隠れていた 4 本の $^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応γ線を同定することができた(Fig. 5)。$^{14}$N の中性子捕獲反応で放出されるガンマ線の同時測定の結果、今回初めて 4 本のγ線を発見し、準位図に組み込むことができた(Fig. 6)。シミュレーション計算では、結晶の直径と長さを適切に変化させ(Fig. 7)、EGS4 で 1.6 MeV、Geant4 で 7 MeV までの領域で実測値と計算値が一致した(Fig. 8)。それより高いエネルギー領域でも 11MeV まで簡単な二次以下の関数で表すことができた。その結果、波うちなしで効率曲線を得ることができた。バランス法を利用した際、Fig 8 の計算値を初期値にし、高エネルギーの効率を二次以下の関数で変化させ最適化した。

以上の結果を用いてバランス法により $^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ 反応即発γ線の放出率を決定した。Raman の評価値との比較により、評価値には系統的なずれがあったことがわかった(Fig. 9)。主要なγ線について、放出率を精度 0.2%から 0.9%の範囲で得ることができた(Fig. 10)。

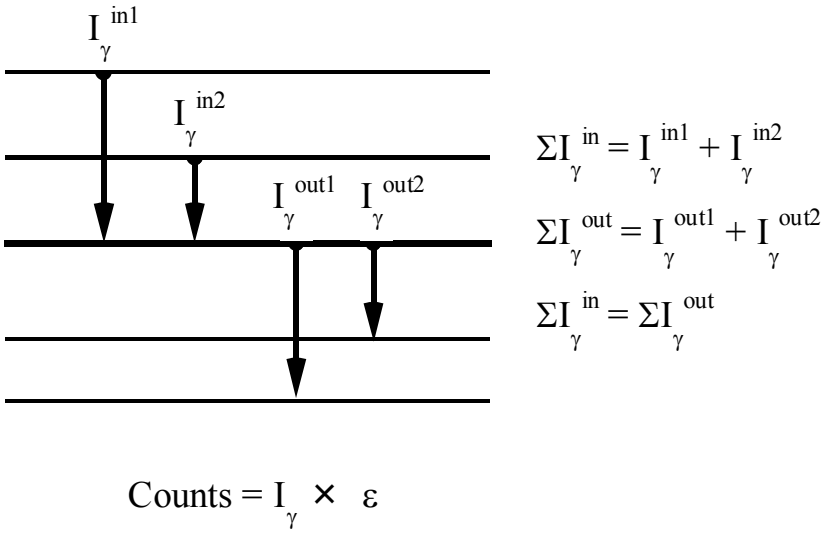


**Fig. 2** A schematic view of the balance method. The sum of transit-in γ-ray emission probabilities agrees with that of transit-out γ-ray emission probabilities. A difference between transit-in and transit-out is minimized for all levels. Then both emission probabilities and efficiency are decided.

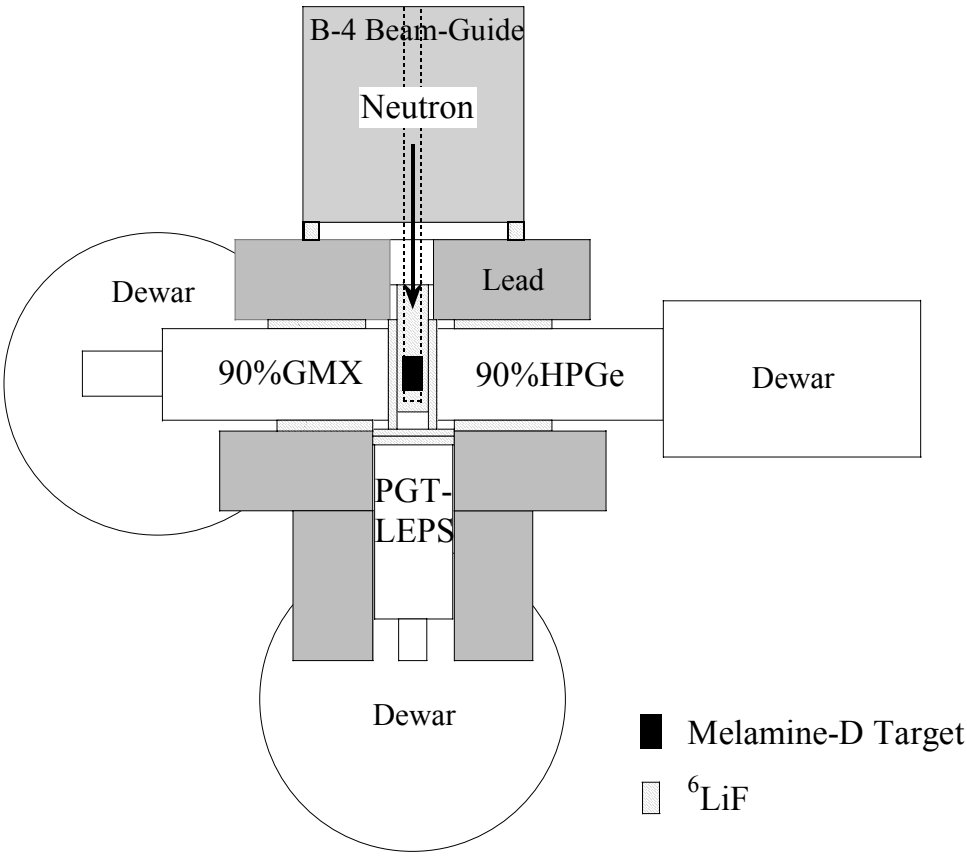


**Fig. 3** A schematic view of the arrangement of a $^{14}N(n, \gamma)^{15}N$ reaction measurement.

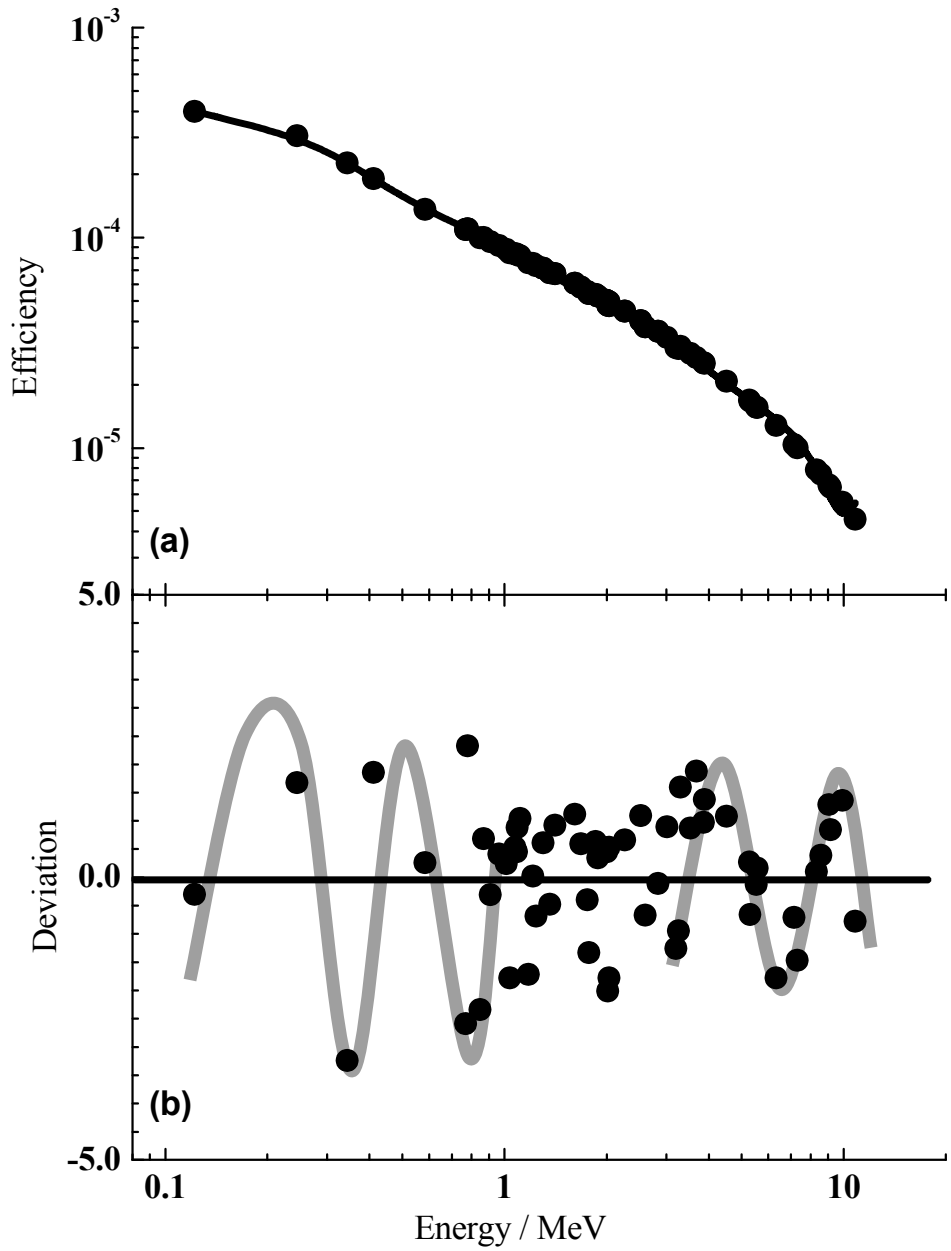


**Fig. 4** Measured efficiencies are fitted by a polynomial function. It is clearly seen that the deviation oscillates.

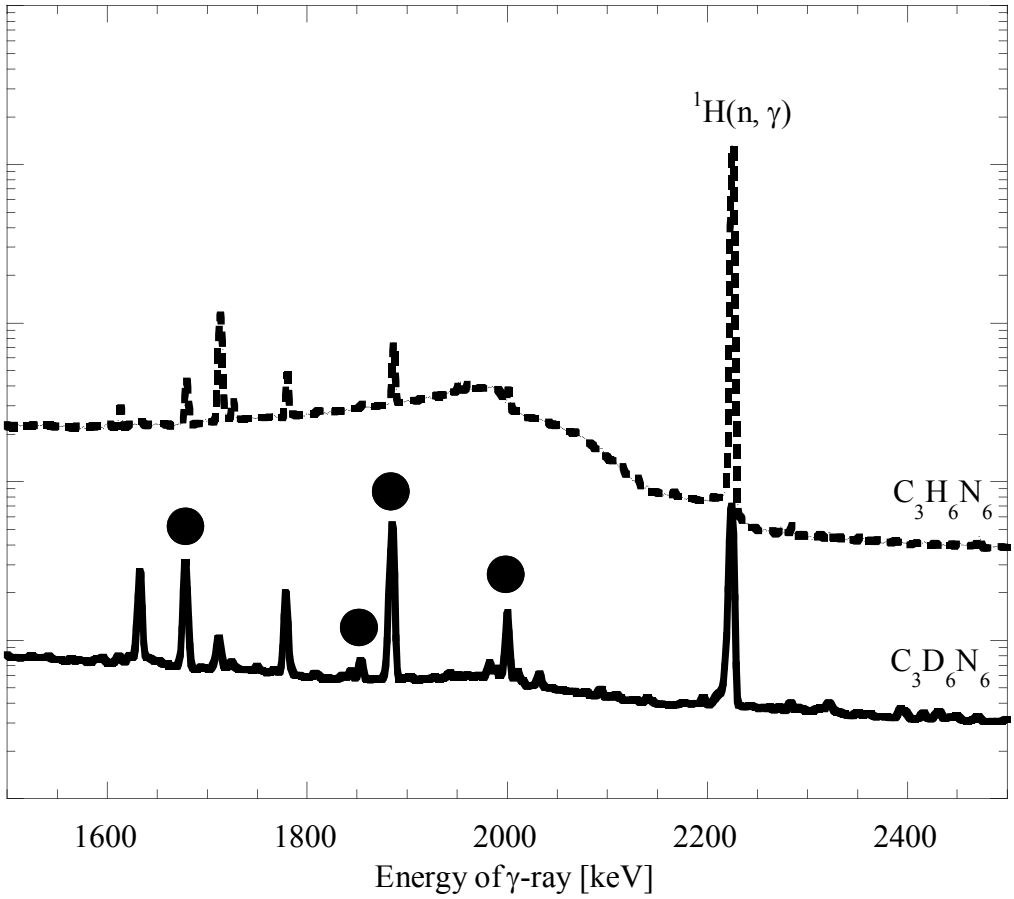


**Fig. 5** Comparison of the spectrum of the γ-rays emitted from $^{15}N$ using a melamine($C_3H_6N_6$) target to the one using deutronaized-melamine($C_3D_6N_6$) target. Four peaks marked with closed circles are clearly seen in the $C_3D_6N_6$ case because of the diminished influence of the tail and Compton edge due to the $^1H(n, \gamma)$ reaction.

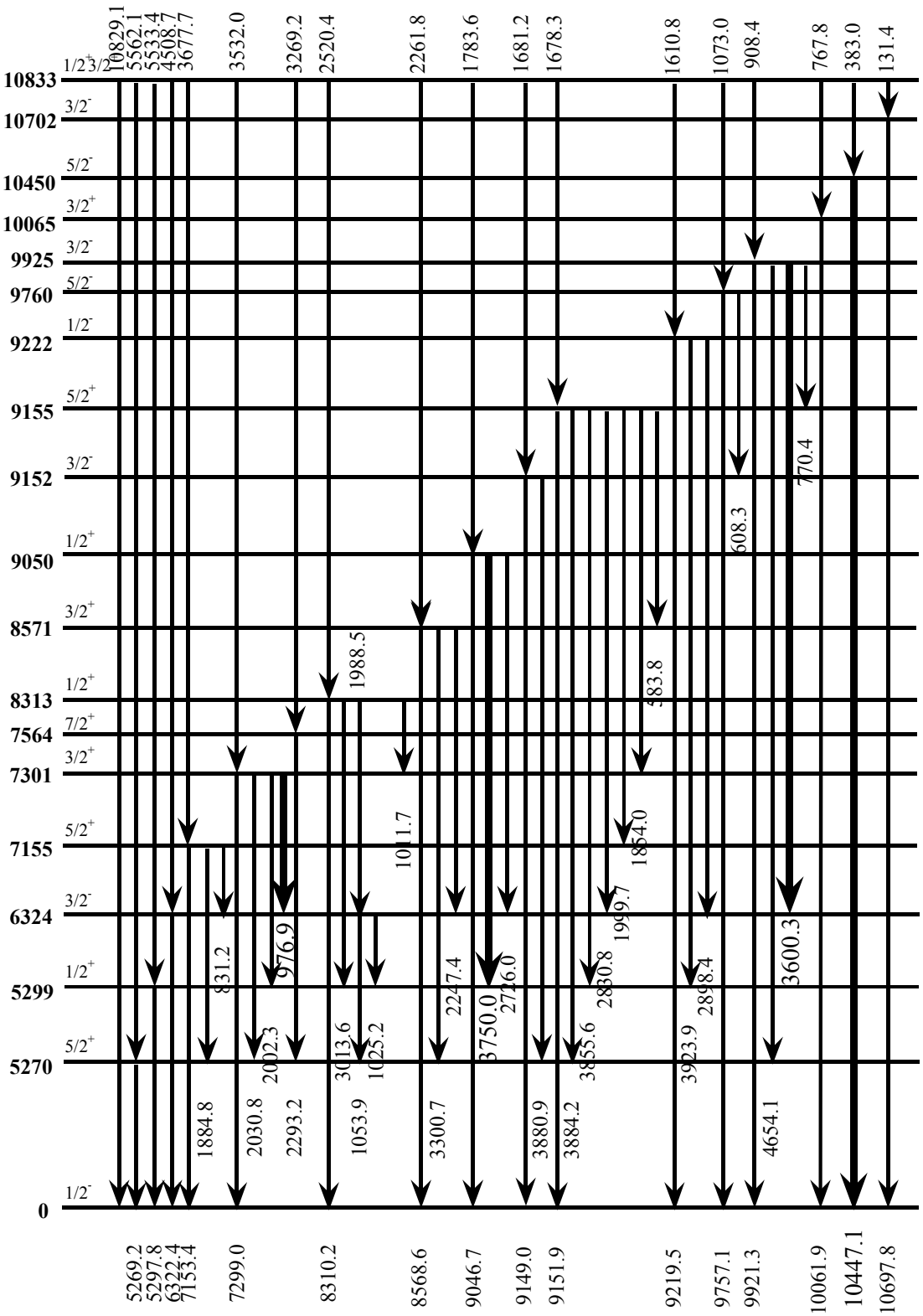


**Fig. 6** The level scheme of $^{15}N$ obtained in the present study. The four thick arrows indicate newly observed γ-rays.

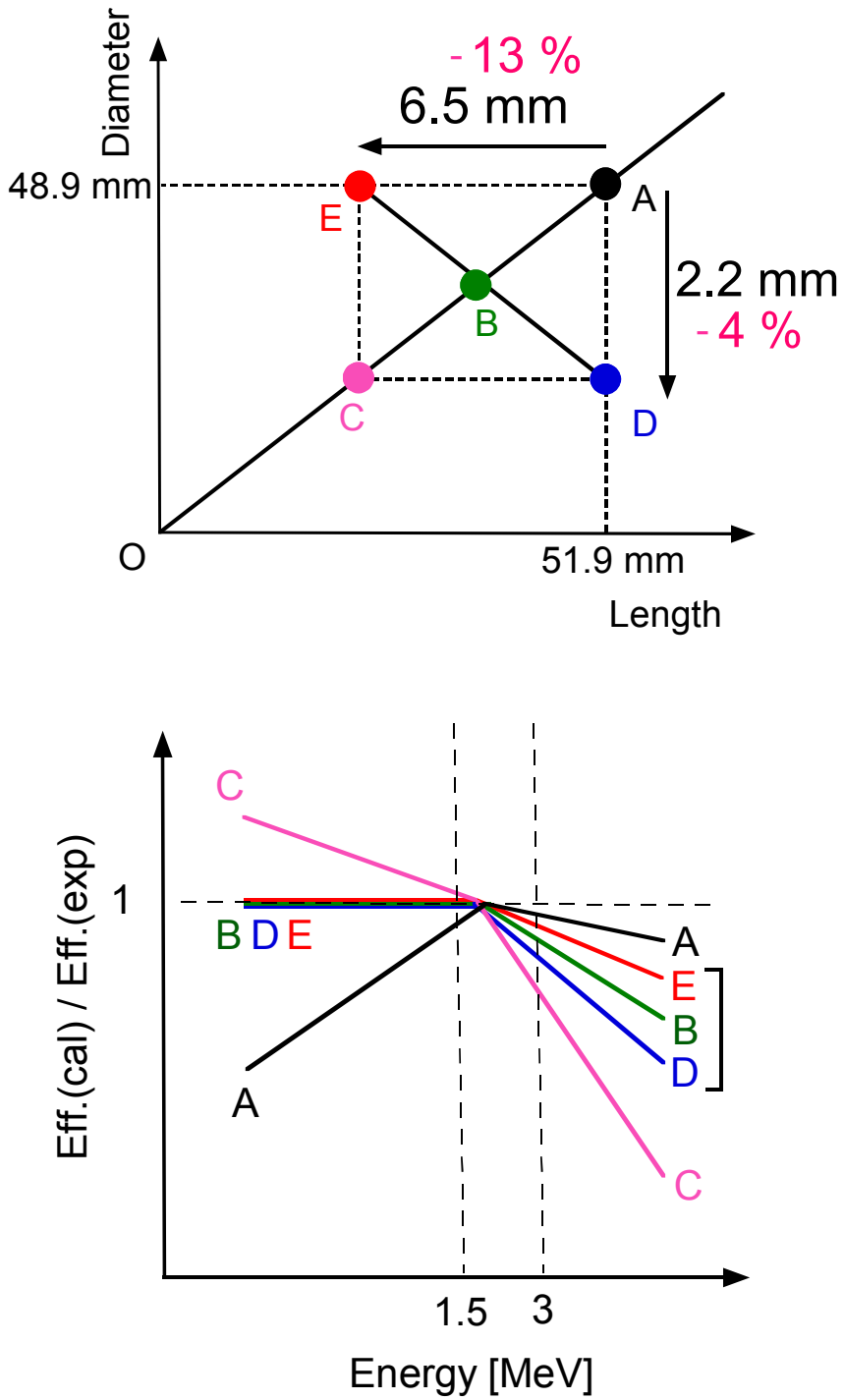


**Fig. 7** Changing the size of germanium crystal in a detector and ratios of calculated efficiency and experimental one for a 22% HPGe detectior. A diameter and a length of the crystal are shortened. The size of "E" is the best one because of a good agreement with the ratio.

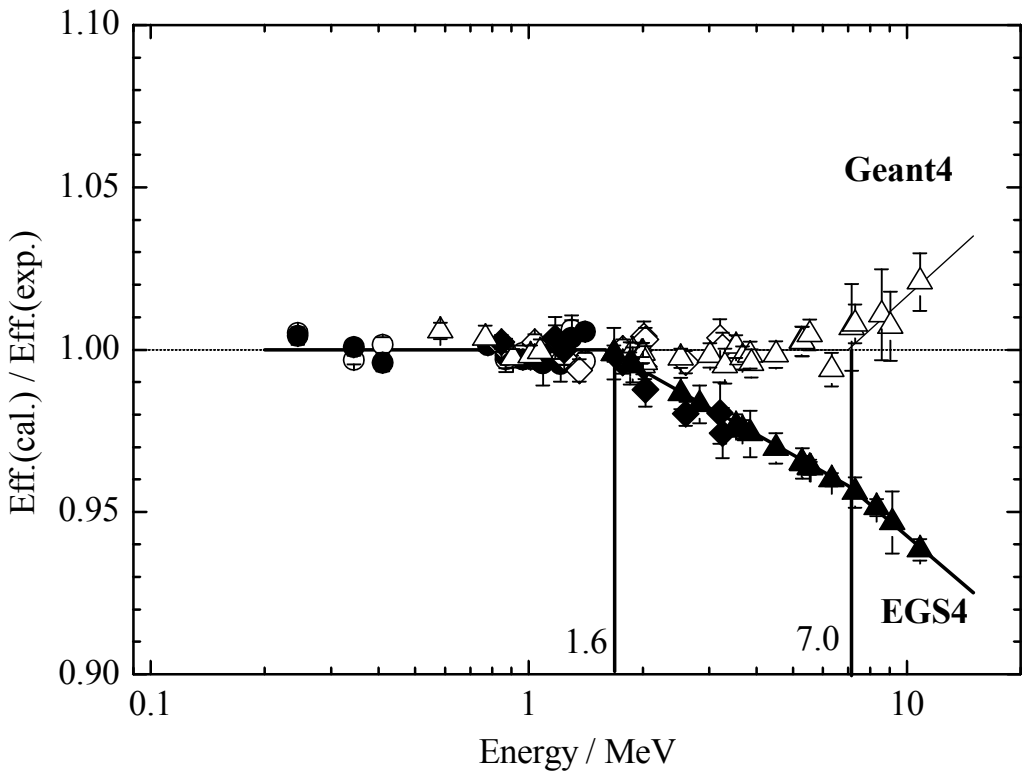


**Fig. 8** Comparison of the measured efficiencies and calculated efficiencies of a 22% HPGe detector. Open plots and closed ones are calculated with Geant4 and EGS4, respectively. The result of Geant4 is in agreement with the measured efficiency with 0.5% accuracy from 0.3 to 7.0 MeV, while that of EGS4 agree with the measured efficiency with 0.5% accuracy from 0.3 to 1.6 MeV. Efficiencies above those energy region, 0.3 to 7.0 MeV and 0.3 to 1.6 MeV, can be fitted by polynomial functions of at most second order.

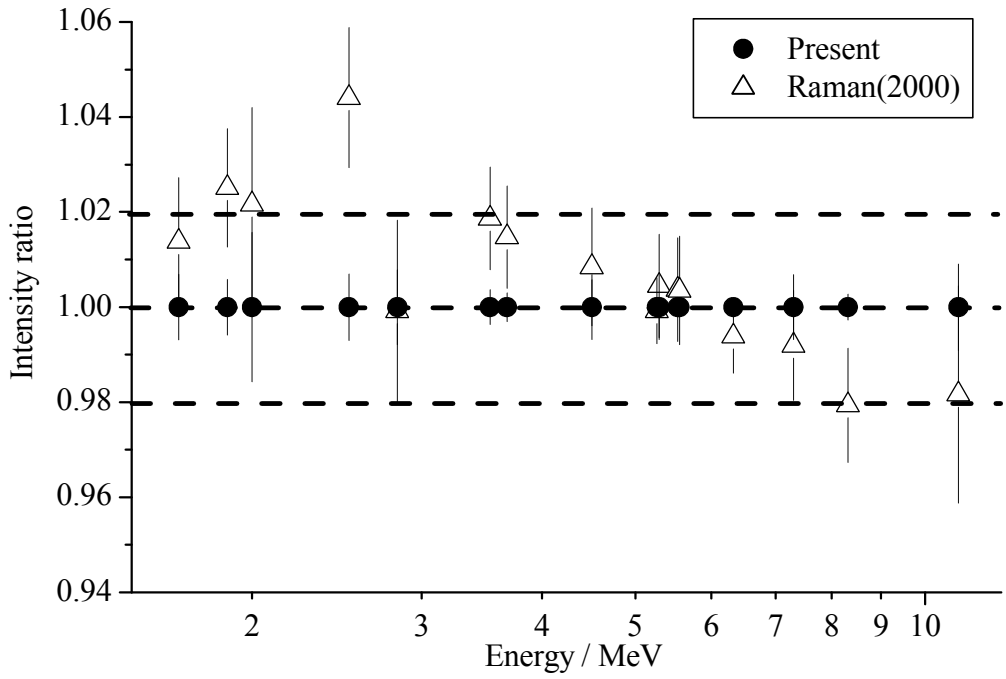


**Fig. 9** The ratios of the intensities of the γ-rays in a $^{14}N(n, \gamma)$ reaction reported in Raman's work [5] to those obtained in the present work. Open triangles and closed circle correspond to the Raman's results and present one, respectively.

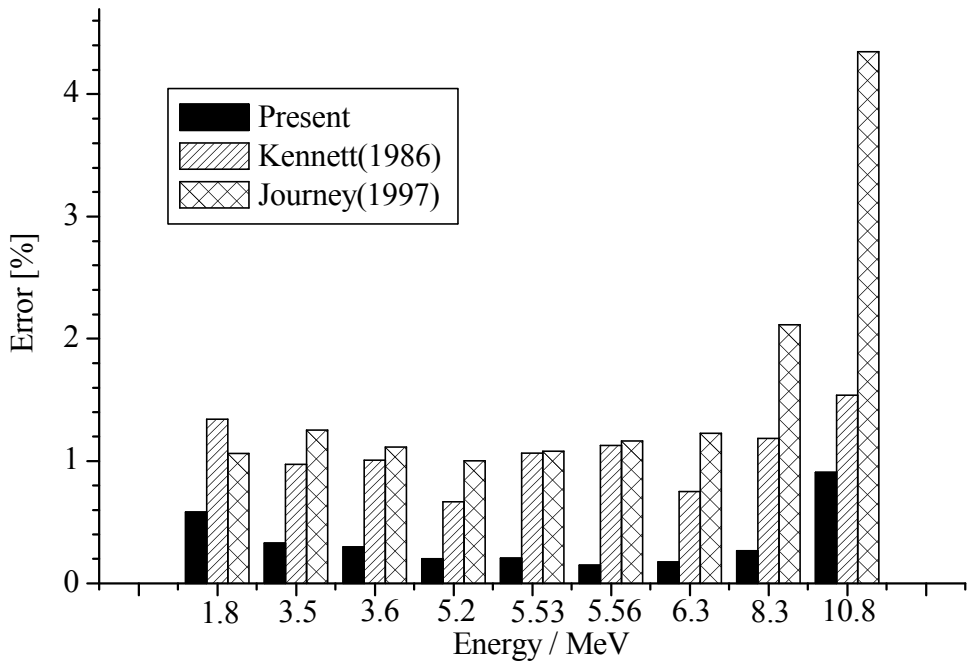


**Fig. 10** Comparisons of the uncertainties of γ-ray intensities in the $^{14}N(n, \gamma)$ reaction obtained in the present study to those reported in Kennett's [3] and Journey's work [4]. Open triangles and closed circle are the Raman work and this one, respectively.

## 2.2　即発γ線 を用いた断面積測定法と放射法の比較

### 2.2.1　即発γ線法

測定核種を含む試料に対し中性子照射を行い、反応時に放出される即発γ線を検出することで反応断面積を測定する手法が即発γ線法である。原子核反応で励起された生成核は、即発γ線を放出しながらエネルギーを失い基底状態に達する。熱中性子捕獲反応の場合、中性子分離エネルギーに相当するエネルギーを即発γ線によって放出する。即発γ線の大部分が捕獲後、瞬時に放出されるため、生成核が崩壊γ線をほとんど出さない、あるいは全く出さない安定核であっても断面積を測定することができる。そのためには、中性子照射場内に検出器を設置し、照射と同時にγ線測定を行う必要がある。

ある特定の即発γ線に着目したときの断面積測定は以下の式によって表すことができる。

$$C = N_0 \sigma \phi t \cdot I_\gamma \varepsilon \tag{1}$$

$C$ はγ線の計数、$N_0$ は標的原子核数、$\sigma$は反応断面積、$\phi$は照射位置の中性子束密度、t は照射測定時間である。$I_\gamma$は即発γ線の絶対放出率、$\varepsilon$は検出器のピーク効率である。絶対放出率は生成核の励起準位図を作成することで決めることができる。

### 2.2.2　比較方法

中性子捕獲反応後にβ崩壊γ線を放出する核種の断面積を、従来の放射化法と即発γ線法で測定することで即発γ線法を検証した。両方法で得た断面積測定結果の比をとった。式は以下のようになる。

$$\sigma_p = \frac{C_p}{N \phi t_i I_p \varepsilon_p} \tag{2}$$

$$\sigma_a = \frac{C_a}{N \phi \left(1 - \mathrm{e}^{-\lambda t_i}\right) \mathrm{e}^{-\lambda t_c} \left(1 - \mathrm{e}^{-\lambda t_m}\right) I_a \varepsilon_a} \tag{3}$$

$$\frac{\sigma_p}{\sigma_a} = \frac{C_p / I_p \varepsilon_p}{C_a / I_a \varepsilon_a} T(t) \tag{4}$$

$\sigma$は断面積測定値、$C$ はγ線ピーク計数、$N$ は標的原子核数、$\phi$は照射位置での中性子束密度、$\lambda$は崩壊定数、$t_i$、$t_c$、$t_m$ はそれぞれ照射時間、冷却時間、測定時間、$I$ は絶対放出率、$\varepsilon$はγ線検出効率である。また下付の添え字は $p$ が即発γ線法、$a$ が放射化法を表す。(4)式で示されるように、本手法では比を取ることにより標的原子核数と中性子束密度がキャンセルされるという利点がある。

2.2.3　中性子照射

中性子照射測定は京都大学原子炉実験所(KURRI)の B-4 スーパーミラー中性子導管(B-4 孔)にて行った。

2.2.4　即発γ線と誘導放射能測定

即発γ線放出率が報告されている $^{23}$Na, $^{27}$Al, $^{51}$V, $^{55}$Mn, $^{59}$Co, $^{64}$Ni, $^{65}$Cu, $^{141}$Pr, $^{186}$W, $^{197}$Au について(Table 1)、即発γ線法と放射化法の両方で熱中性子捕獲断面積を測定した。放出率は公表されている文献値[11]を用いた。解析に用いた主な即発γ線は Table 1 に示した。これらの核種は絶対放出率の精度が、即発γ線が 5%、崩壊γ線が 1%以下である。また、半減期は数分から数日と、即発γ線の測定と交互に行うことが容易である。二台の HPGe 検出器を用いて、中性子の照射と同時に即発γ線を測定し、熱中性子遮蔽材の $^{6}$Li で作成したシャッターで照射を止めた後、崩壊γ線の測定を行った(Fig. 11)。そのシャッターの厚みは 10 mm で、両測定を十分に分けて行うことができる厚さである(Fig. 12)。

2.2.5　結果

両手法による断面積値の比は、ほとんどの核種で即発γ線法により求めた値が放射化法で求めた値より小さいという傾向を示した(Fig. 13)。$^{65}$Cu と $^{186}$W 以外の核種はおよそ 10%以内の違いであった。これは即発γ線の放出率を決めるのに使った検出器の高エネルギーγ線の効率に起因すると考えている。先に挙げた効率決定に用いられたであろう $^{14}$N(n, γ)反応のデータで一番古いものでも Kennett の 1986 年であり、それ以前のデータはシミュレーション計算のみで高エネルギーの効率を決めた可能性がある。また 1986 年以降についても、精度の良い $^{14}$N(n, γ)のデータがこれまでなかった。$^{65}$Cu と $^{186}$W については効率だけでなく、個々の測定に何か問題があるのだろうと考えられる。

Table 1 List of reactions and samples.

| Reaction | Isotopic abundance *Enrichment | Chemical form | $T_{1/2}$ | $E_\gamma$ (Decay) [MeV] | $E_\gamma$ (Prompt) [MeV] |
|---|---|---|---|---|---|
| $^{23}Na(n, \gamma)^{24}Na$ | 100 | NaF | 14.9 h | 1.36 | ~ 6.39 |
| $^{27}Al(n, \gamma)^{28}Al$ | 100 | Al | 2.241 min | 1.77 | ~ 7.72 |
| $^{51}V(n, \gamma)^{52}V$ | 99.8 | $V_2O_5$ | 3.743 min | 1.43 | ~ 7.31 |
| $^{55}Mn(n, \gamma)^{56}Mn$ | 100 | Mn | 2.578 h | 0.84 | ~ 7.27 |
| $^{59}Co(n, \gamma)^{60}Co$ | 100 | Co | 10.467 min | 1.17 | ~ 7.21 |
| $^{64}Ni(n, \gamma)^{65}Ni$ | 97.9* | Ni | 2.517 h | 1.48 | ~ 6.03 |
| $^{65}Cu(n, \gamma)^{66}Cu$ | 99.6* | CuO | 5.088 min | 1.03 | ~ 6.68 |
| $^{141}Pr(n, \gamma)^{142}Pr$ | 100 | $Pr_6O_{11}$ | 19.12 h | 1.57 | ~ 5.66 |
| $^{186}W(n, \gamma)^{187}W$ | 97.5* | $WO_3$ | 23.72 h | 0.47 | ~ 5.32 |
| $^{197}Au(n, \gamma)^{198}Au$ | 100 | Au | 2.695 d | 0.41 | ~ 6.51 |

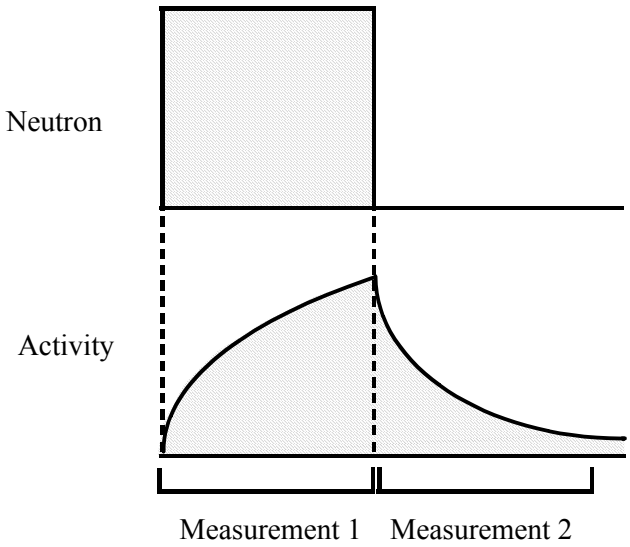


**Fig. 11** A schematic view of the measuring process. In "Measurement 1" prompt as well as decay γ-rays were measured, while only decay γ-rays were measured in "Measurement 2".

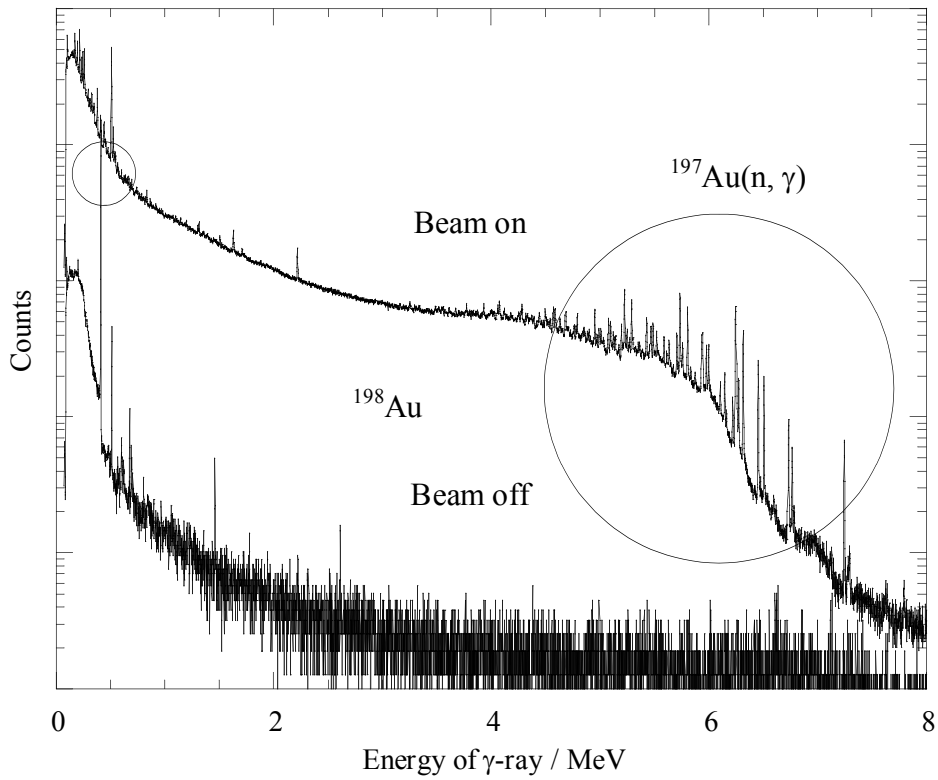


**Fig. 12** Spectra of the γ-rays permitted from a $^{197}$Au(n, γ)$^{198}$Au reaction at thermal energy. "Beam on" and "Beam off" were switched by using a shutter made of $^{6}$LiF. It is clearly seen that the γ-rays from the $^{197}$Au(n, γ)$^{198}$Au reaction are observed at "Baem on" and are not at "Beam off".

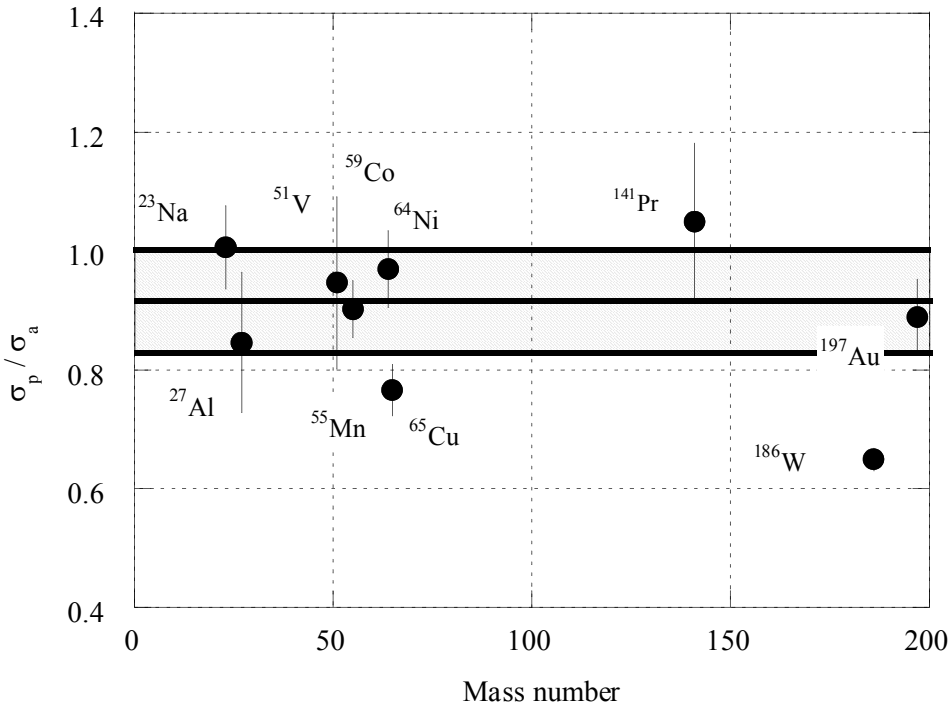


**Fig. 13** The ratios of σ obtained from the prompt γ-ray data to that from β-decay γ-rays. Detector used was the 22% HPGe detector. It is clearly seen that the ratios are lower systematically than 1.0 ($\sigma_p=\sigma_a$).

## 2.3 $^{104}$Pd(n, γ)$^{105}$Pd 反応断面積

### 2.3.1 即発γ線の絶対放出率

前節の即発γ線法の項で述べたように、断面積決定に必要なγ線絶対放出率は生成核の励起準位図を作成することで決めることができる。熱中性子捕獲反応により放出される即発γ線の絶対放出率は、γ線のエネルギーと中性子分離エネルギーとの間に以下のような関係式を持つ。

$$\sum E_\gamma \cdot I_\gamma = S_n \tag{5}$$

$E_\gamma$はγ線エネルギー、$I_\gamma$はその絶対放出率、$S_n$ は中性子分離エネルギーを表している。この式はγ線エネルギーとその絶対放出率の積の総和は複合核状態の励起エネルギー、つまり中性子分離エネルギーに等しいという関係を表している。この式(5)の関係から、絶対放出率を決めるためには、捕獲反応時に放出される全てのγ線を同定し、準位図を完成させることが望ましい。実際には、準位密度が高いもの、反応断面積が小さいものが多々あり完成に至ることは希である。そのため、作成した準位図から求めた絶対放出率は厳密には上限値であり、即発γ線法で得られる断面積は下限値となる。作成した準位図の完成度がそのまま個々の即発γ線絶対放出率の確度を左右することになる。バックグラウンドに比べて十分大きな S/N 比で測定できる核種の場合は、たとえ準位図に全てのγ線を組み込むことができなくとも、測定したい反応によるγ線であると同定することが可能であるために、有効な方法であるだろう。しかし、対象核種の同位体存在比や反応断面積が小さかった場合、または準位密度がかなり大きい場合は、準位図の完成なしでは式(5)を適用することは現実的ではない。それに対して、今回の $^{104}$Pd(n, γ)$^{105}$Pd 反応断面積の測定では、基底準位への最後の遷移の際に放出されるγ線の絶対放出率の和が反応率に等しいことを利用した。捕獲準位から基底準位に至るまで一本のγ線で遷移すると想定したとき、式(5)に $E_\gamma$=$S_n$ を代入することで以下の式を得る。

$$\sum I_\gamma^{ground} = 1 \tag{6}$$

$I_\gamma^{ground}$は基底準位に遷移するγ線の絶対放出率である。または、$I_\gamma$を捕獲準位から遷移するγ線の絶対放出率に置き換えても、この式(6)を利用することができる。

### 2.3.2 中性子照射

中性子照射測定を京都大学原子炉実験所(KURRI)の B-4 スーパーミラー中性子導管(B-4 孔)にて行った。中性子ビームの特性を調べた Akiyoshi[12]が報告している波長分布から、中性子エネルギーはおよそ 0.05 keV と熱中性子の 2 倍である(Fig. 14)。以後表記の上では熱中性子とする。また、$^{197}$Au(n, γ)反応を用いたイメージングプレートの結果から、中性子ビームは高さ 61 mm、幅 14 mm の形状を持っていることがわかった。(Fig. 15)。

パラジウムは質量数102,104,105,106,108,110の同位体を持つ元素である。存在比と、熱中性子捕獲断面積の JENDL3.3[13]の計算値から、$^{104}$Pd(n, γ)を測定する場合 $^{105}$Pdの存在が大きな妨害となることがわかる(Table 2)[6][14][15]。また同表にそれらの積も記載した。実験には $^{104}$Pd 試料(濃縮率 96.6%)を用いた(Table 3)。その結果、$^{104}$Pd の約80 倍の SN 比である $^{105}$Pd(n, γ)の影響を同程度以下にまで下げることができた。試料は粉末状なため、薬包紙に包んで 10 mm 四方の板状にした。質量は 93.71 mg であった。

照射位置における中性子束密度を $^{197}$Au(n, γ)$^{198}$Au 反応を用いて測定した。生成放射能の都合上、質量がおよそ 50 mg になる 10×5 mm の大きさの板状試料を用いた。$^{104}$Pd試料と形状が違うが、イメージングプレートと後述する照射位置決定の結果から、鉛直方向は水平方向に比べて中性子ビームの強弱の違いがないので、長辺が水平方向になるよう設置した。こうすることで、試料位置における照射中の中性子束密度を正確に測定できると考えた。断面積は ENDF/B-VI[16]の熱中性子の値を用いた。$^{104}$Pd(n, γ)反応と $^{197}$Au(n, γ)反応の Westcott g-factor はそれぞれ 1.0005、1.0054 であるため[6]、B-4 孔の中性子エネルギーでは両反応ともに 1/υ則に従うものとし、測定した断面積値は熱中性子に対する断面積と見なすことができる。

### 2.3.3　即発γ線の測定

熱中性子の遮蔽にはフッ化リチウム($^{6}$Li)を用いた。試料設置台はカーボン板で作成し、リチウムボックスの中に入れた(Fig. 16)。ボックスの配置は、$^{10}$B(n, α)反応を利用して決定した(Fig. 17)。準位図作成のためにγ–γ同時測定を、二台の 90%HPGe 検出器で行った。検出器と試料の距離はそれぞれ 17 mm にした。二台の検出器のエネルギー情報と同時情報を得る三次元測定を約 50 時間行った。

シングルス測定は二台の HPGe 検出器と低エネルギー用に LEPS を用いた。ピーク効率は標準線源の $^{152}$Eu、$^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応で決定した。それぞれの放出率のデータは、Table of Isotope 8th[15]、前章のデータを用いた。

### 2.3.4　結果

同時情報により基底準位に遷移するγ線は 26 本組み込むことができた(Fig. 18)。準位は公表データを参考にした。捕獲準位から遷移するγ線は 14 本見つけることができた。エネルギーが 3 MeV 以上の準位は多数存在すると考えられるが、見つけることができなかった。基底準位に遷移するγ線から(1), (6)式を使って、捕獲断面積の下限値を決めた(Fig. 19)。

### 2.3.5　検討

実験結果からは断面積の下限値しか得ることができなかったが、対象としている原子核と似た準位構造を持っていると考えられる原子核のデータから上限値を推定するこ

とを考えた。このことは放出率の下限値を得ることに相当する。完成度が高い核データを用いて、未検出なγ線が(6)式に与える影響を検討した。そのためには、核構造の類似性をγ線の放出率で評価する必要がある。そこで、基底準位における放出率和が 100%になる過程に着目した。用いた公表データは ENSDF[11]である。基底準位へのγ線を強い順に和していき、それらの途中経過を最後に足した放出率の逆数でプロットし、γ線の本数で分類した(Fig. 20)。これよりγ線の本数が多いほど、つまり未検出なγ線が限りなく少ないと考えられるものほど100%になるまでの過程が緩やかになることがわかった。加えて、偶偶核は特異な形状になることが見てとれた。これらの結果より測定で得られたγ線の放出率に対して、同様にこの操作を行い、その過程を最も緩やかなものに合わせることで断面積の上限値を決めることにした。

目的の $^{105}$Pd は偶奇核なので、同じ条件の核種を公表データから選ぶことにした(Table 4)。$^{105}$Pd の基底準位へのγ線の本数が 16 本であり、これより本数が多い核種で、信頼性の高いものを選ぶ必要がある。そこで、再規格化しなくても基底準位における絶対放出率の和が 100 であり、傾斜が極めて緩やかな $^{135}$Ba[17]に合わせることで、安全サイドで断面積の上限値を見積もることが出来ると考えた。これは見落としたものを加えることが、$^{105}$Pd の絶対放出率を小さくする方向に向かうことに基づく。この結果より、$^{105}$Pd の絶対放出率和の下限値を 79%と見積もった(Fig. 21)。それに伴い断面積の上限値は 27%大きな値になる(Fig. 19)。

Table 2　Isotopic abundances and neutron capture cross sections ($\sigma_n$) of Palladium.

| Nuclide | Abundance [%] | $\sigma_n$ [b] | Abun.× $\sigma_n$ |
|---|---|---|---|
| $^{102}$Pd | 1.02 | 3.363 | 3.43 |
| $^{104}$Pd | 11.14 | 0.5231 | 5.827 |
| $^{105}$Pd | 22.23 | 20.25 | 450.1 |
| $^{106}$Pd | 27.33 | 0.303 | 8.28 |
| $^{108}$Pd | 26.46 | 8.504 | 225.0 |
| $^{110}$Pd | 11.72 | 0.227 | 2.66 |

Table 3 Isotopic content of the palladium sample.

| Isotope | Content [%] |
|---|---|
| 102 | 0.02 |
| 104 | 96.6 |
| 105 | 2.16 |
| 106 | 0.79 |
| 108 | 0.33 |
| 110 | 0.10 |

Table 4 Present data and list of published data for estimating a lower limit of emission probabilities.

| Nuclide | Atomic number | Number of γ-ray to ground state | $\sum I_\gamma$ (ground) *Assumed value |
|---|---|---|---|
| $^{105}$Pd | 46 | 16 | 100* |
| $^{77}$Se | 34 | 37 | 81.7 |
| $^{87}$Sr | 38 | 4 | 68.6 |
| $^{89}$Sr | 38 | 15 | 72.7 |
| $^{99}$Mo | 42 | 6 | 111.8 |
| $^{101}$Mo | 42 | 19 | 103.6 |
| $^{103}$Ru | 44 | 26 | 52.9 |
| $^{109}$Pd | 46 | 21 | 123.3 |
| $^{123}$Te | 52 | 22 | 43.2 |
| $^{125}$Te | 52 | 37 | 34.3 |
| $^{131}$Te | 52 | 8 | 79.0 |
| $^{135}$Ba | 56 | 31 | 101.27 |
| $^{137}$Ba | 56 | 27 | 96.2 |
| $^{139}$Ba | 56 | 12 | 99.2 |

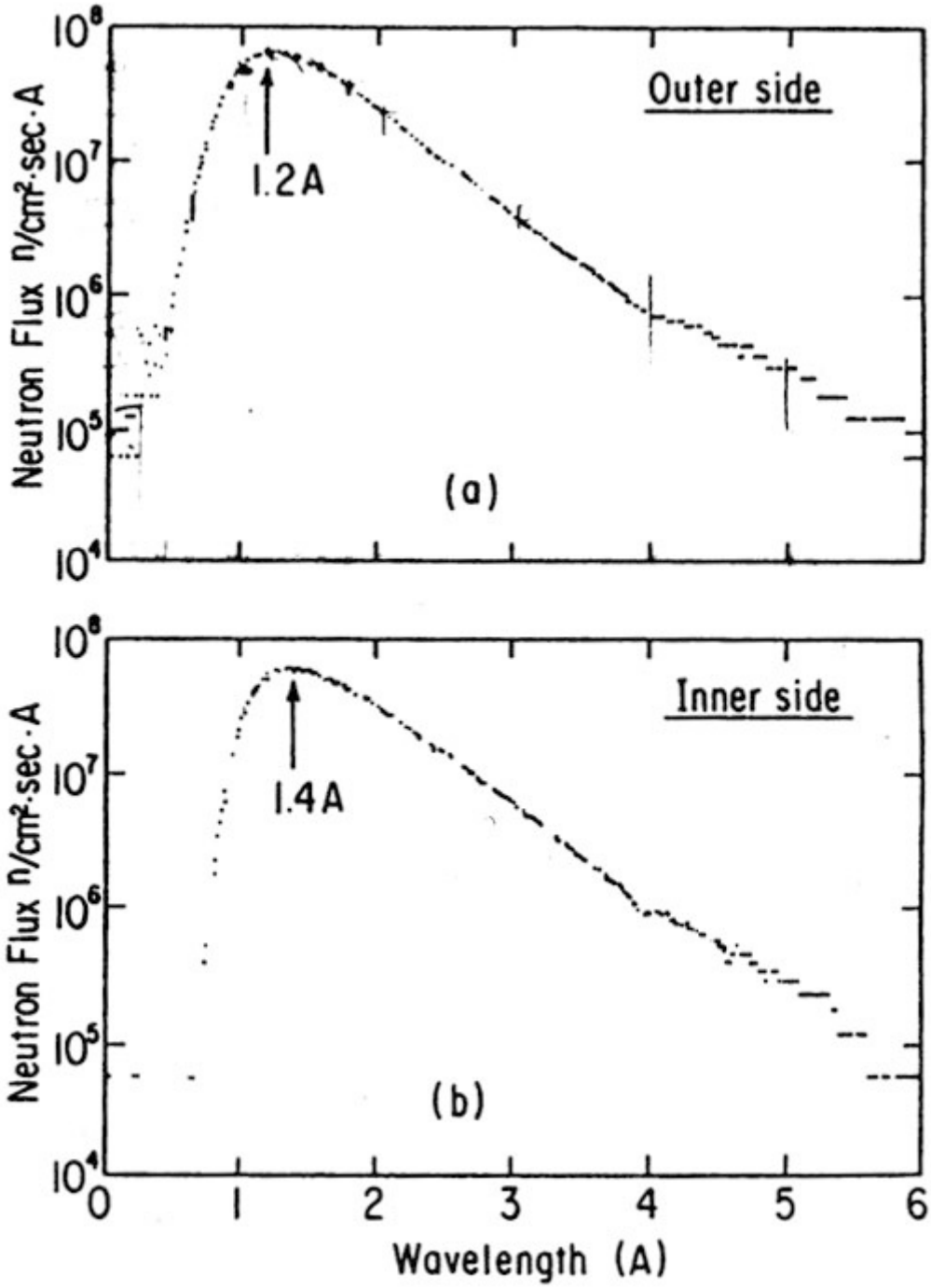


**Fig. 14** Neutron flux spectra in horizontal direction at guide tube exit obtained by time of flight method [12].

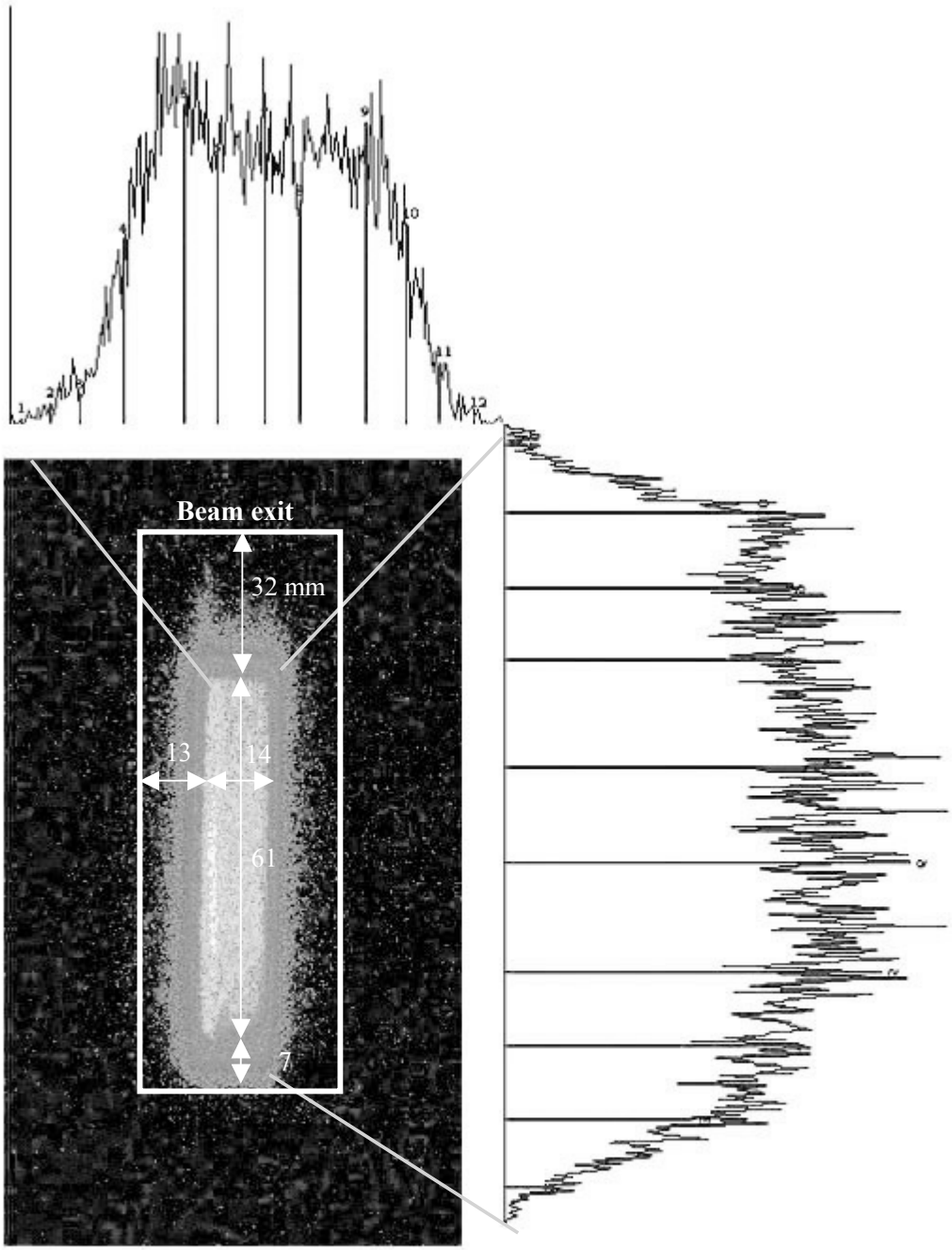


**Fig. 15** Profile of neutron beam at B-4.

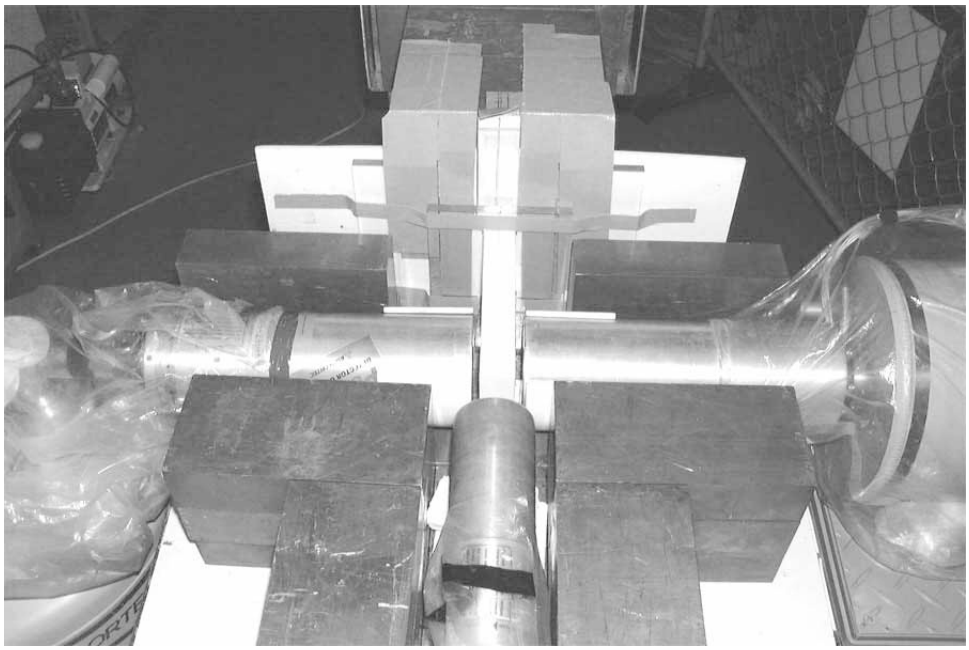

**Fig. 16a** A picture of the experimental arrangement.

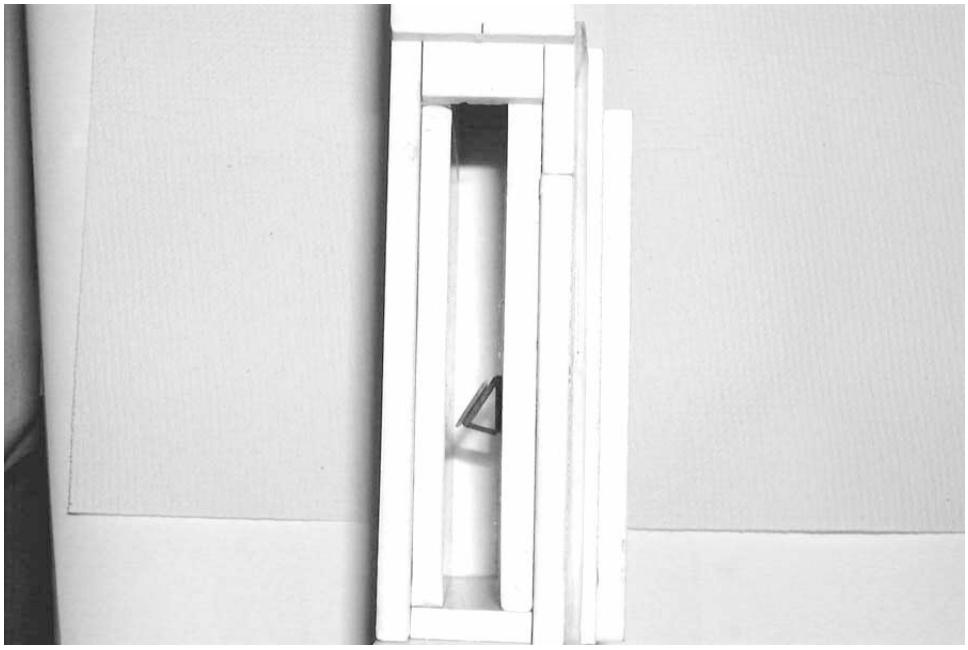

**Fig. 16b** A picture of the target and the Li-box.

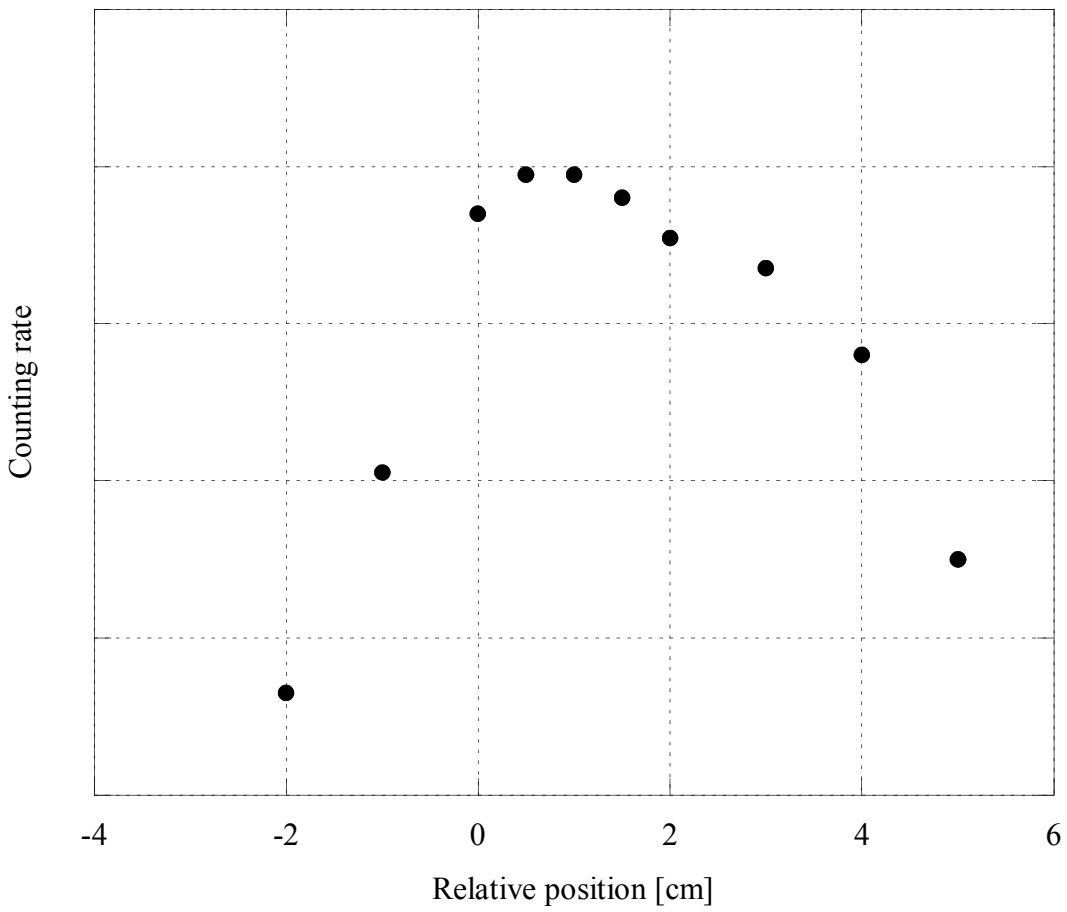


**Fig. 17** A beam profile in the horizontal direction by using a $^{10}B(n, \alpha)$ reaction. The result was used to determine the position of the sample box.

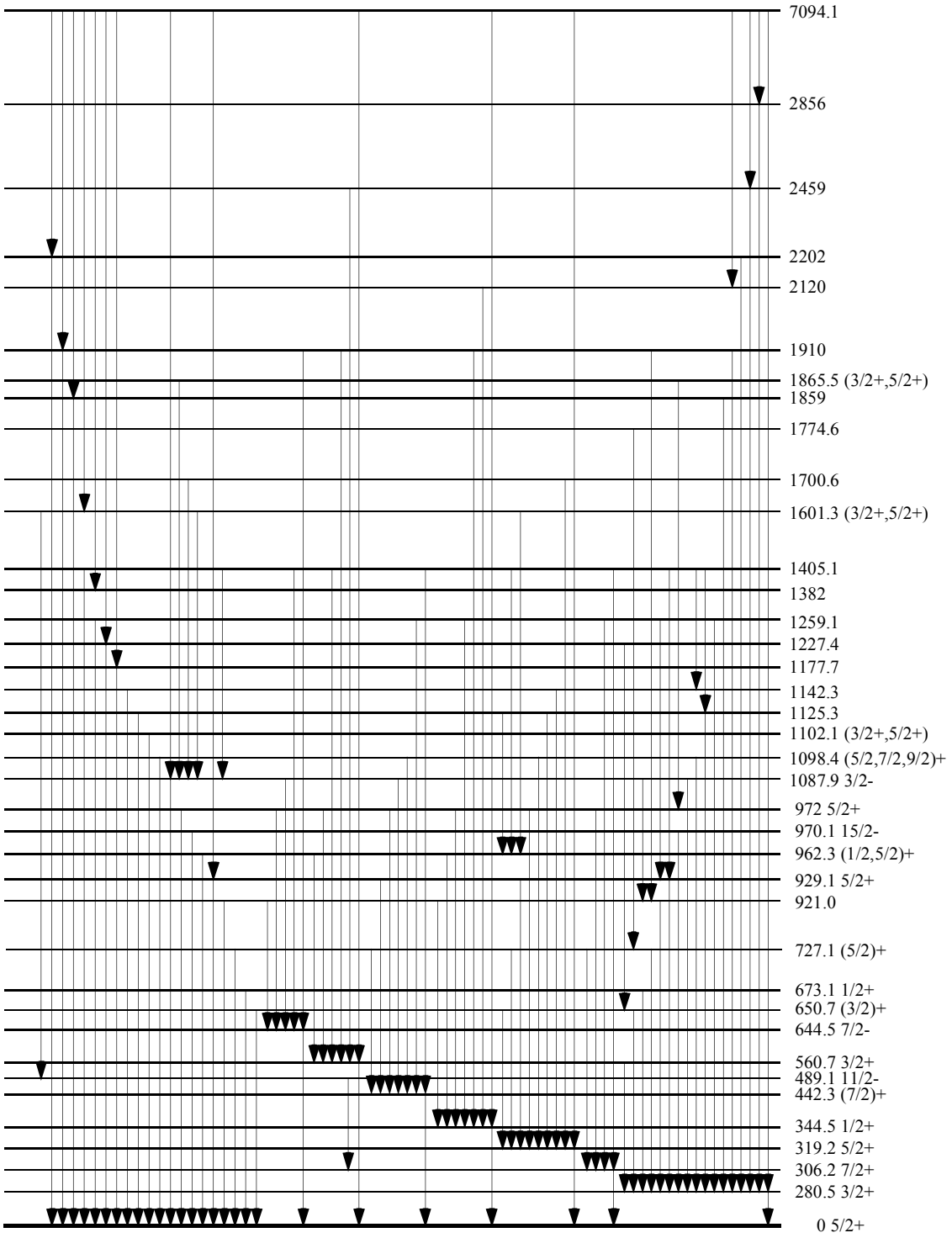


**Fig. 18** The obtained level scheme of $^{105}$Pd which was made with the present experimental data and referring Table of Isotope 8$^{th}$ [15].

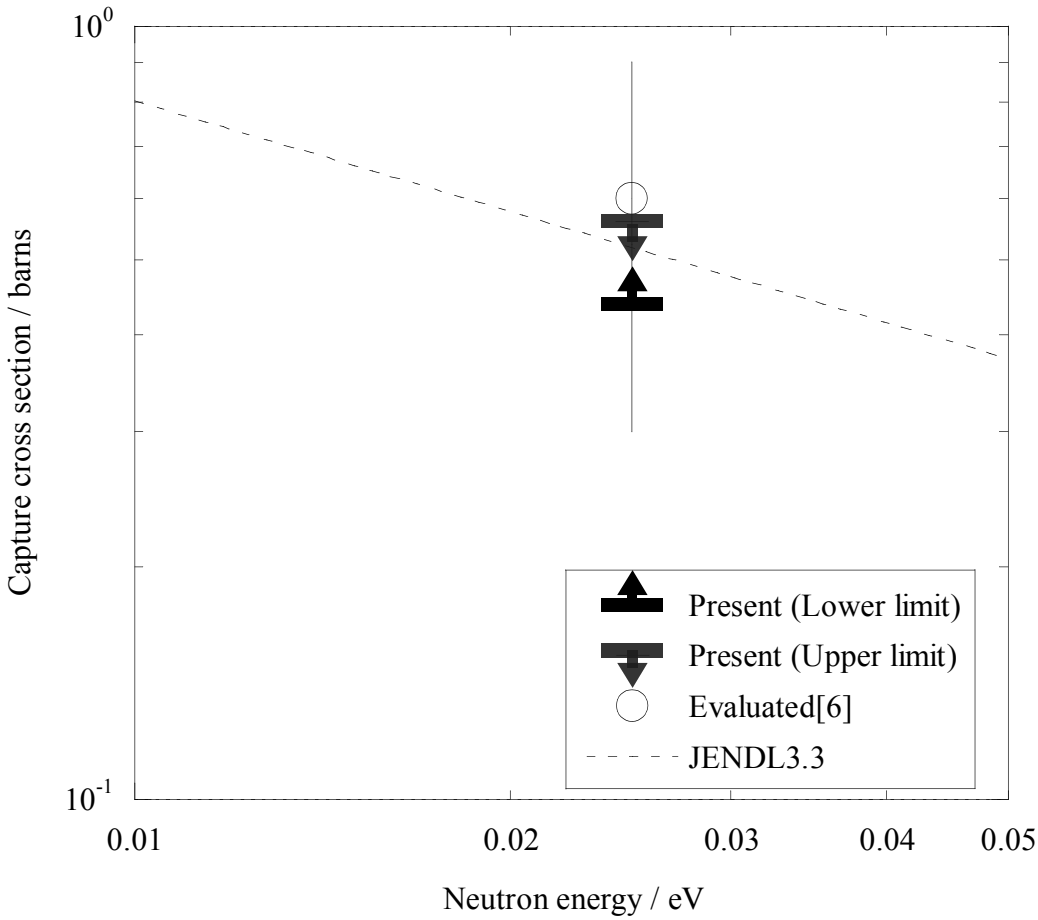


**Fig. 19** Comparison of the cross section obtained in the present work to that of Mughabghab [6] and JENDL-3.3 [13]. The black arrow indicates the lower limit of the capture cross section, while the spotted arrow indicates the upper limit.

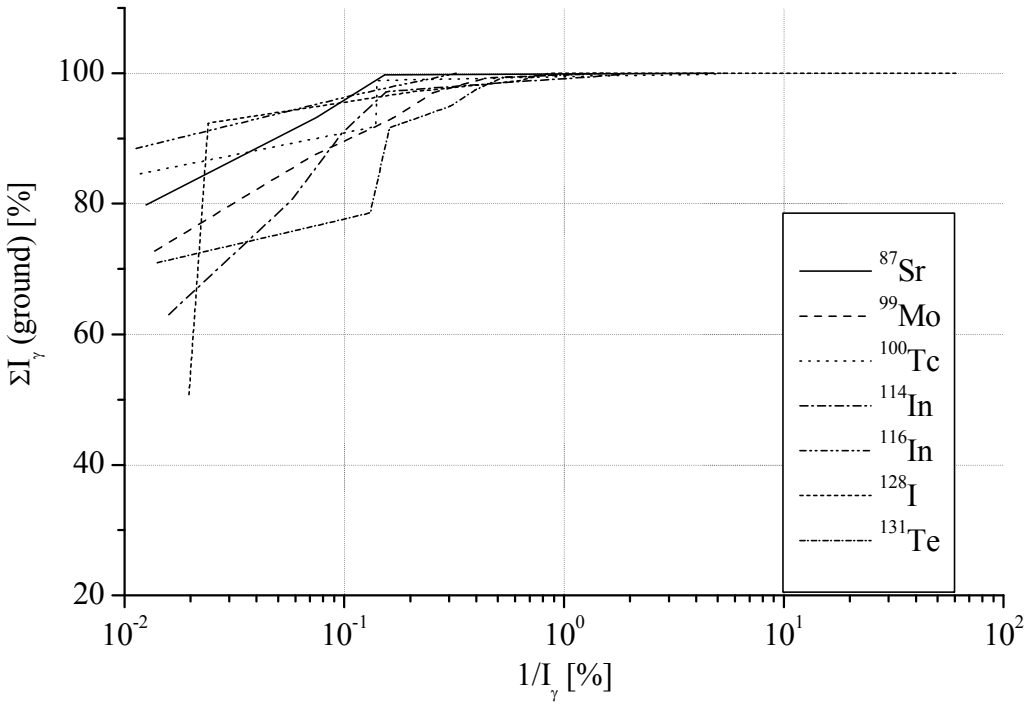


**Fig. 20a** The sum of absolute emission probabilities to ground states. These nuclides have between one and ten γ-rays to the state.

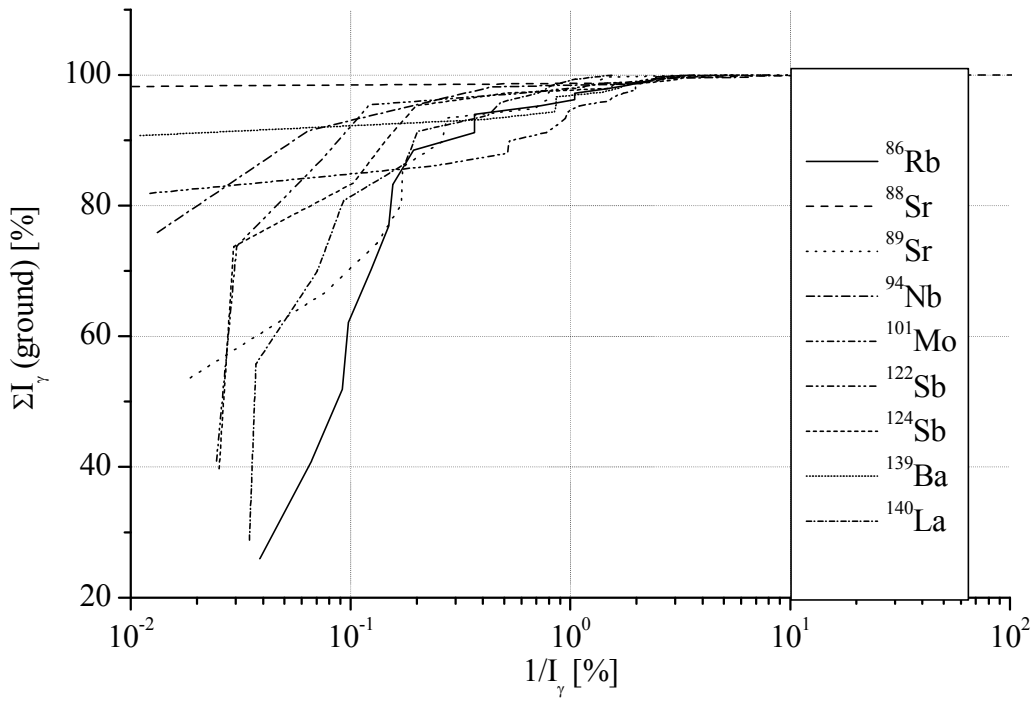


**Fig. 20b** The sum of absolute emission probabilities to ground states. These nuclides have between eleven and twenty γ-rays to the state.

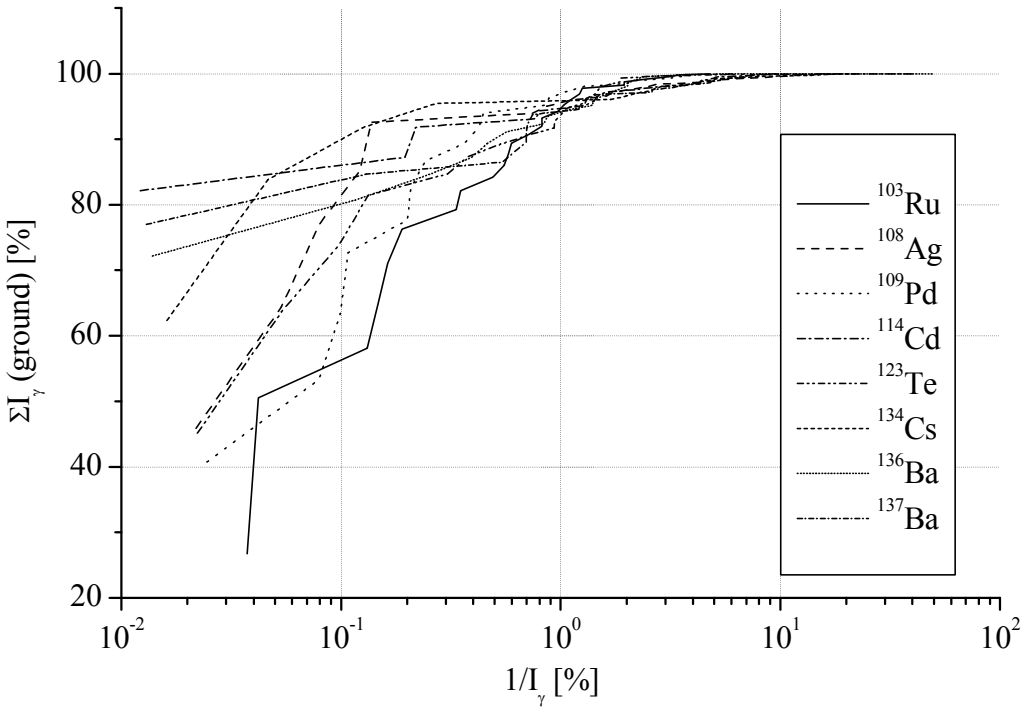


**Fig. 20c** The sum of absolute emission probabilities to ground states. These nuclides have between twenty-one and thirty γ-rays to the state.

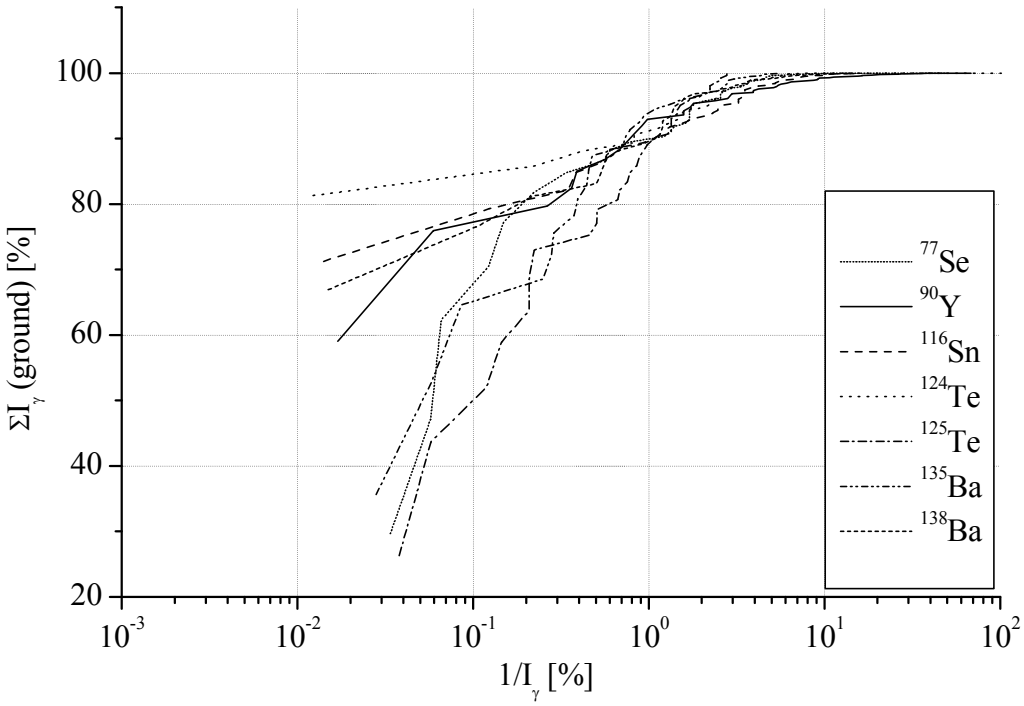


**Fig. 20d** The sum of absolute emission probabilities to ground states. These nuclides have more than thirty γ-rays to the state.

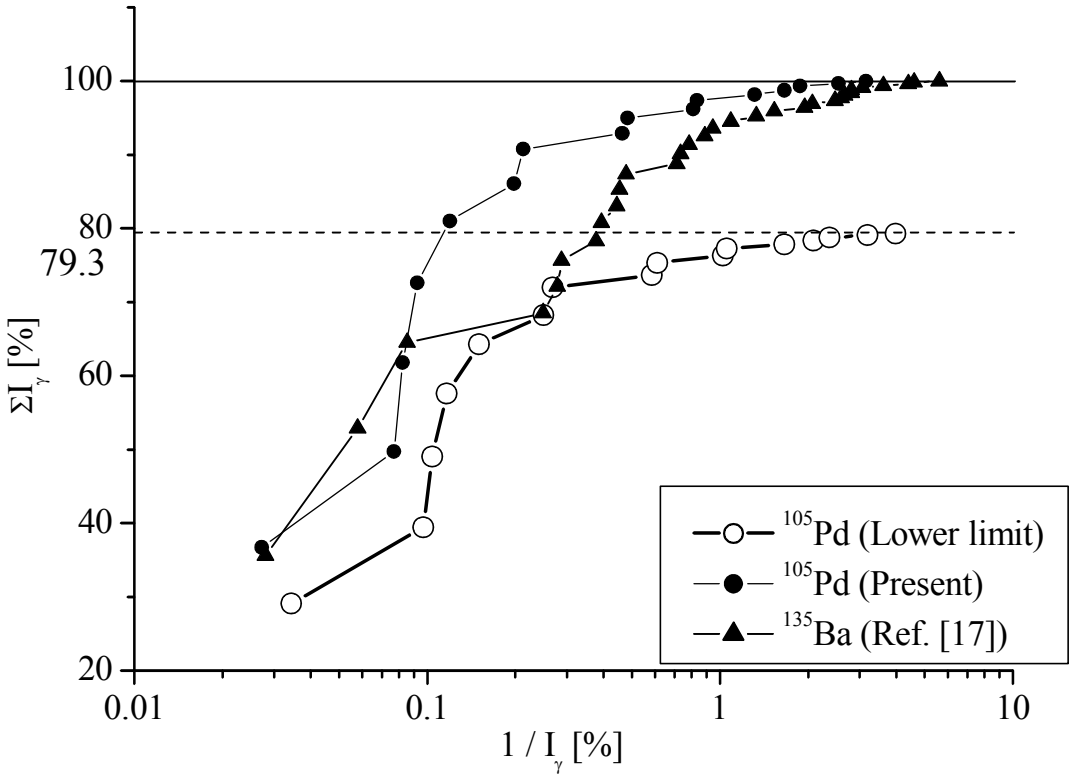


**Fig. 21** Estimation of absolute emission probability. The closed circles are present experimental data. The closed triangle is $^{135}$Ba data from ref. [17]. The open circles are the estimated lower limit, which were obtained by lowering the present data so that those would not exceed the $^{135}$Ba data.

# 3. 結　　論

$^{14}$N(n, γ)$^{15}$N 反応の同時計数測定の解析により新たに 4 本のγ線を検出し、合計 61 本の詳細な $^{15}$N の準位図を作成した。その図と 5 回のシングルス測定からこれまでの精度を 2 倍から 8 倍改善し、主要な即発γ線放出率を精度 0.2~0.9%で決定した。これは高エネルギーに及ぶ即発γ線の高精度測定に必要不可欠な一次標準となるものである。γ線放出率決定のためにバランス法及びシミュレーション計算コードを利用した Ge 検出器の効率曲線表示法を開発した。この表示法はバランス法を解くのに不可欠であった。計算で入力する結晶の大きさを最適化することにより EGS4 で 1.6 MeV、Geant4 で 7 MeV まで実験値で得た効率と一致させることができた。またそれ以上の領域を 11 MeV まで二次以下の関数で表せることがわかった。今回得られた結果を用いて、断面積が $^{14}$N の 600 倍大きな $^{35}$Cl(n, γ)$^{36}$Cl 反応即発γ線の放出率を精度 1%程度で決定し、二次標準値にすることが期待できる。

報告されている即発γ線強放出率を用いて得られる断面積の値をβ壊変時のγ線の放出率を用いて、即発γ線放出率の信頼度を検証した。測定した核種は $^{23}$Na, $^{27}$Al, $^{51}$V, $^{55}$Mn, $^{59}$Co, $^{64}$Ni, $^{65}$Cu, $^{141}$Pr, $^{186}$W, $^{197}$Au である。これらのβ壊変γ線の放出率は精度 1.0%以下の信頼できる公表データを用いた。即発γ線法、放射化法の両方法で得た断面積値の比をとった結果、従来の即発γ線放出率には大きくずれているものがあることが判明した。それ以外の核種も一様に高エネルギーγ線の放出率の値が約 10%大きめになる方向へずれていた。検出器の効率に必要な高エネルギーγ線の標準値である $^{14}$N(n, γ)反応のデータが近年まで精度の良いデータがなかったことから、報告されていた放出率の値を決める際の検出効率に問題がある可能性があると考えられる。今後、断面積に即発γ線の放出率を用いる場合、既存の報告値をそのまま用いる際は注意すること、可能であれば新たに測定し検証する必要がある。

熱中性子に対する $^{104}$Pd(n, γ)$^{105}$Pd 反応γ線を新たに 112 本検出した。その結果を用いて断面積の下限値を精度 6%で決定した。中性子束密度の測定には $^{197}$Au(n, γ)反応を利用した。また報告されている $^{105}$Pd 周辺の核データから、核構造の類似性に着目して上限値を推定する方法を検討した。$^{135}$Ba の評価値に合わせることで放出率の下限値を安全サイドで 79%小さい値に見積もった。それに伴い断面積の上限値は 27%大きな値になる。この見積もり法を含めた断面積測定法は、今後即発γ線を用いた測定手法の一般的な方法として受け入れられることが期待できる。

これらの得られた成果は、核反応データの高精度化及び測定手法の高度化に反映している。

# 謝　辞

実験は京都大学原子炉実験所の B-4 スーパーミラー中性子導管を用いて、原子炉運転していただいた職員の方々のご援助により行われました。深く感謝致します。名古屋大学大学院生の笠石昌史、高山寛和、林裕晃には窒素の放出率決定のための最終解析、シミュレーション計算、パラジウムの断面積測定において貢献していただきました。感謝致します。また、核燃料サイクル開発機構の船坂英之部長には本研究の推進にあたり、支援をいただきました。感謝致します。

## 参考文献


[1] A. Abánades, *et al.*, "Results from the TARC experiment: spallation neutron phenomenology in lead and neutron-driven nuclear transmutation by adiabatic resonance crossing", Nucl. Instr. Meth., Phys. Res. Vol.A478, pp.577-730 (2002)

[2] K. Furutaka, *et al.*, "Prompt Gamma Rays Emitted in Thermal-neutron Capture Reaction by $^{99}$Tc and Its Reaction Cross Section", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.41, p.1033 (2004)

[3] T.J. Kenett, *et al.*, "The $^{14}$N(n, γ)$^{15}$N reaction as both an intensity and energy standard", Nucl. Instr. Meth., Phys. Res., Vol.A249, pp.366-378 (1986)

[4] E.T. Journy, *et al.*, "Thermal-neutron capture by $^{14}$N", Phys. Rev., Vol.C56, pp.118-134 (1997)

[5] S. Raman, *et al.*, "Efficiency caliblation of a Ge detector in the 0.1 - 11.0 MeV region", Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Vol.A454, pp.389-402 (2000)

[6] S.F. Mughabghab, Thermal Neutron Capture Cross Sections Resonance Integrals and G-factors, INDC(NDS)-440 (2003)

[7] H. Sakane, *et al.*, "Preparation of a liquid nitrogen target for measurement of γ-rays in the $^{14}$N(n, γ)$^{15}$N as an intensity standard energy regions up to 11 MeV", Appl. Radiat. Isot., Vol.63, pp. 131-135 (2005)

[8] W.R. Nelson, *et al.*, "The EGS4 Code System", Stanford Linear Accelerator Center report SLAC-265 (1985)

[9] S. Agostinelli, *et al.*, "GEANT4−a simulation tookit", Nucl. Instr. Meth., Phy. Res., Vol.A506, pp.250-303 (2003)

[10] R.G. Helmer, *et al.*, "Precise efficiency calibration of an HPGe detector up to 3.5 MeV, with measurements and Monte Carlo calculations", Appl. Radiat. Isot., Vol.60, pp.173-177 (2004)

[11] Evaluated Nuclear Structure Data File, a computer file of evaluated experimental nuclear structure data maintained by the National Nuclear DataCenter, Brookhaven National Laboratory.

[12] T. Akiyoshi, *et al.*, "Development of a Supermirror Neutron Guide Tube", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, p.939 (1992)

[13] K. Shibata, *et al.*, "Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.39, p.1125 (2002)

[14] P.De Bievre and P.D.P. Talor, "Table of the isotopic compositions of the elements", Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc., Vol.123, p.429 (1993)

[15] R.B. Firestone and V.S. Sirley, Table of Isotopes 8th Edition, John Wiley & Sons, New York. (1996)

[16] P.F. Rose (Ed.), "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation", BNL-NCS-17541, 4thEd. (ENDF /B-VI) (1991)

[17] V.A. Bondarenko, *et al.*, "Thermal-Neutron-Capture Studies on $^{135}$Ba", Nucl. Phys., Vol.A551, p.54 (1993)