

分置

PNC ^TJ1601 91-003

社内一般

本資料は 02年 2月 25日付けで登録区分、
変更する。

[技術情報室]

超ウラン元素を含む放射性廃棄物の光分解消滅 のための基礎研究(V)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1991年 3月

東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター

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大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

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

るもの
、転載、
いよう

注意して下さい。

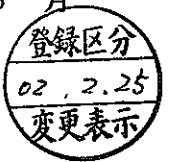
This document is not intended for publication. No public reference nor disclosure to the third party should be made without prior written consent of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

本資料についての問合せは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術管理部技術情報室



超ウラン元素を含む放射性廃棄物の 光分解消滅のための基礎研究 (V)

中村尚司^{*}, 山寺 亮^{*}, 宇野喜智^{*}, 柴田誠一^{**}
藤原一郎^{***}, 加瀬 健^{****}

要 旨

放射性廃棄物中の長寿命放射性核種である超ウラン元素や⁹⁰Sr, ¹³⁷Csなどの核分裂生成物を短寿命または安定な核種に変換する消滅処理の基礎研究として、制動放射線を用いた光核反応による変換について研究した。電子ライナックからの45, 50, 60MeVの電子ビームを白金コンバータにあてて制動放射線を発生させ、それを¹³⁷Cs, ⁹⁰Srの試料に照射して、¹³⁷Cs(γ, n)反応及び⁹⁰Sr(γ, n)反応に伴う¹³⁶Cs及び⁸⁹Srの反跳を利用したキャッチャーfoil法を用いて内部標準法によりその反応断面積を求めた。しかし⁸⁹Srは γ 線を放出しないので、 β 線スペクトロメトリーで測定を行ったが、混在している⁹⁰Srの β 線との分離が困難で精度よく検出できなかった。このため濃縮アイソトープの⁸⁴Sr, ⁸⁶Sr, ⁸⁸Srを用いて(γ, n)反応断面積を測定し、その同位体依存性から⁹⁰Sr(γ, n)反応断面積を推定した。

本報告書は、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターが動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：020D0049

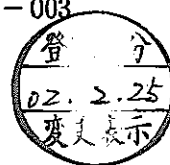
事業団担当者：原 田 秀 郎（核燃料技術開発部先端技術開発室）

※：東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター

※※：東京大学原子核研究所

※※※：追手門学院大学経済学部

※※※※：動力炉核燃料開発事業団東海事業所核燃料技術開発部先端技術開発室



Basic Study on the Incineration of Nuclear Wastes Including Transuranium Elements by Using the Photodisintegration (γ)

Takashi Nakamura*

Akira Yamadera*

Yoshitomo Uno*

Seiichi Shibata**

Ichiro Fujiwara***

Takeshi Kase****

Abstract

For a contribution to the feasibility study of incineration of nuclear waste materials which transmutes the long half-life transuranium and fission products such as ^{90}Sr and ^{137}Cs into the short half-life or stable radionuclides, we studied the transmutation using the photonuclear reactions from the bremsstrahlung radiation. The bremsstrahlung radiation was produced from a platinum converter bombarded by 45, 50 and 60 MeV electron beams from the electron linac, and was irradiated to ^{137}Cs and ^{90}Sr samples.

The $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ cross section could be obtained from the internal standard method by using the catcherfoil method of ^{136}Cs nuclei recoiled from the ^{137}Cs sample due to the $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ reaction.

While on the other hand, the $^{90}\text{Sr}(\gamma, n)$ cross section could not be obtained from the same recoil method, since the ^{90}Sr isotope recoiled from the $^{90}\text{Sr}(\gamma, n)$ reaction only emits β ray and it was very difficult to identify the ^{90}Sr β -activity from the ^{90}Sr β -activity.

We therefore irradiated the enriched isotopes of ^{84}Sr , ^{86}Sr and ^{88}Sr and measured their (γ, n) reaction cross sections. The $^{90}\text{Sr}(\gamma, n)$ cross section was estimated from the isotopic dependence of the (γ, n) reactions of enriched strontium isotopes.

Work performed by Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University under contract with
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

PNC Liaison : Hideo Harada (Tokai Branch)

※ : Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

※※ : Institute for Nuclear Study, University of Tokyo

※※※ : Faculty of Economics, Ottemon Gakuin University

※※※※ : Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, Tokai Works

目 次

1	序 論	1
2	^{137}Cs の光核反応断面積の測定	3
2-1	照射試料の製作	3
2-2	照射実験	3
2-3	化学分離操作	4
2-4	放射能の測定	4
2-5	データ解析	5
2-6	実験結果と考察	7
	(1) キャッチャーフォイルの γ 線スペクトル	7
	(2) 光核反応断面積	8
	(3) リコイル分離効率	8
3	^{90}Sr の光核反応断面積の測定	10
3-1	照射試料の製作	10
3-2	照射実験	10
3-3	化学分離操作	10
3-4	放射能の測定および解析	11
3-5	考 察	11
4	(γ, n) 反応の同位体依存性	13
4-1	照射試料の作成	13
4-2	照射実験	13
4-3	放射能の測定および解析	13
4-4	考 察	14
5	(γ, n) 反応によるリコイルレンジの測定	16
5-1	照射試料の作成	16
5-2	照射実験	16
5-3	化学分離操作	16
5-4	放射能の測定	17
5-5	リコイルレンジの簡易式	17
5-6	リコイルレンジの計算	18
5-7	考 察	19
参	考 文 献	20
謝	辞	20

1 序論

昨年度以前の研究において、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応によって生成する、 ^{136}Cs のリコイル分離法を確立できた¹⁻³⁾。これによって、 ^{136}Cs の放射能を ^{137}Cs からの妨害を少なくして、測定することが出来た。 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積も、一応見積ることができたが、もともと生成された ^{136}Cs 放射能がきわめて低い上に、照射試料の調製法、放射能の測定方法、データの解析方法にまだ若干の問題があり、十分信頼するに足る値は得られなかった。そこで、本年度も前年度に引き続いてリコイル分離法による $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応断面積の測定を行なうことにした。

また、Cs のリコイル分離法の成功によって、 $^{90}\text{Sr}(\gamma, n)^{89}\text{Sr}$ 反応のリコイル分離法の可能性がでてきた。しかし、 ^{89}Sr はガンマ線は放出せず、 β 線の測定に頼らざるを得ない等、Cs に比べてはるかに難しい実験になることは予想されるが、やってみる価値はあるので、 ^{90}Sr のリコイル分離法の実験を行なうことにした。

さらに、リコイル分離法を用いた断面積の直接測定法の他に、Sr および Cs 近辺の元素の (γ, n) 反応の同位体依存性の検討から、 ^{90}Sr 、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応の断面積を間接的に推定し、リコイル分離法のデータと比較検討することにした。

また、リコイル分離法を適用する上で必要になる、光子と中性子によるリコイルを評価するために、天然の Cu と Cs ターゲットを用いてリコイルレンジを測定した。

具体的には以下の通りである。

- (1) ^{137}Cs ターゲットに最大エネルギー 60, 50, 45 MeV の制動放射線を照射して、それぞれの反応断面積を求めた。
- (2) 電着法で ^{90}Sr ターゲットを作成し、リコイル分離法を用いて ^{89}Sr を単離した。ベータ線スペクトロメトリーを行なって、 ^{89}Sr の定量を試みた。

(3) 濃縮同位体の ^{85}Rb , ^{87}Rb , ^{98}Ru , ^{104}Ru , ^{106}Cd , ^{110}Cd , ^{116}Cd , ^{84}Sr , ^{86}Sr および ^{88}Sr を照射してその反応断面積を求め、同位体依存性から $^{90}\text{Sr}(\gamma, n)^{89}\text{Sr}$ 反応の断面積を推定した。

(4) 天然の Cu と Cs を照射して、光子と中性子によるリコイルレンジを求めた。

以上の研究結果について、以下に報告する。

2 ^{137}Cs の光核反応断面積の測定

^{137}Cs ターゲットに最大エネルギー 60, 50, 45MeV の制動放射線を照射し、リコイル分離法を用いて ^{137}Cs とその (γ, n) 反応で生成した ^{136}Cs を分離し、キャッチャーフォイルに捕集された ^{136}Cs を測定することによって、それぞれのエネルギーにおける (γ, n) 反応断面積を求めた。

2-1 照射試料の作成

原液は DUPONT社の 10mCi/ml $^{137}\text{CsNO}_3$ (1N HNO_3) で、仕様書によれば放射能純度は99%, 放射化学純度は99%となっていた。 $^{137}\text{CsNO}_3$ 0.2mlを蒸発乾固し、これに6N HCl 溶液を5ml加えて蒸発乾固した。これを2回くり返して硝酸塩から塩酸塩に変えた。約2mlの蒸留水を加えて $^{137}\text{CsCl}$ (2mCi/2ml) とした。この溶液から20 μl (^{137}Cs の放射能 $6.73 \times 10^6 \text{Bq}$) をとり、金製の小皿 ($\phi = 4\text{mm}$) に滴下して乾燥させた試料、およびTable 2-1に示すように、さらにこれに一定量の $^{133}\text{CsCl}$ を加えた試料を2組ずつ製造した。この試料を、Fig. 2-1 に示す簡易型蒸着装置で、直径20mmのアルミニウム箔上に、直径12.5mmの範囲で $^{137}\text{CsCl}$ を蒸着し照射試料とした。50MeV 制動放射線照射用の試料は原液の量とキャリアーの量を倍にした試料も作成した。

蒸着試料をそのままGe検出器で ^{137}Cs の γ 線を測定した結果、蒸着前の試料の15%~45%が蒸着していることがわかった。

2-2 照射実験

照射は、東北大学理学部附属原子核理学研究施設で行なった。照射系を Fig. 2-2に示す。電子ライナックで加速された45MeV, 50MeV または60MeV の電子を、直径18mm 厚さ1mmの白金コンバータ (厚さ0.5mmの白金板の間に5mmの冷却水を循環させている) に入射させて、制動放射線を発生させ、それをターゲットに照射した。コンバータを通過した電子は、そのすぐ後ろに置かれたスイープマグネットにより、掃引されて下方の水槽に捨てられ、ターゲットには直接入射しないようにした。入射電子の電流量は、コンバータの前に置いたコアモニターによって測定した。ターゲットの後方には、制動放射線の遮蔽用に厚さ30cmの鉛を入れた水槽が置かれている。

照射時間は 45MeV, 50MeV および60MeVでそれぞれ19.8h, 18.3hおよび19.0h、平均

電流値は約70 μ Aであった。

ターゲットと同じ直径の金フォイルを同時に照射し、 $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ 反応による ^{196}Au の生成量からは制動放射線束を、 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応による ^{198}Au の生成量からは、妨害反応となる熱中性子束を求めた。

照射用ターゲットスタックを Fig. 2-3 に示す。製作したターゲット試料（直径20mmのアルミニウムフォイル上に、直径12.5mmに塩化セシウムを蒸着）にアルミニウム製スペーサ（外径=20mm, 内径=15mm）を介して、アルミニウム製キャッチャーフォイル（直径20mm, 厚さ0.05mm）を置いた。このようなターゲットとキャッチャーフォイルのセットを重ね、最後に金フォイルを置いた。このターゲットスタックをアルミニウム製の容器（Fig. 2-3の中央の図）に入れて固定させ、これを更に真空容器（Fig. 2-3の下の図）に入れて照射した。反跳原子がキャッチャーフォイルに到達できるように、照射中も真空ポンプを用いて容器内を真空に保った。さらに、容器が加熱して塩化セシウムが蒸発しないように、容器の外側には冷却水パイプを巻き、更にブローアで空冷した。

2-3 化学分離操作

照射後、容器からキャッチャーフォイルを取り出し、まず表面の ^{137}Cs の汚染を取り除くために希硝酸溶液で洗浄した。さらに、蒸留水で洗浄した後 Fig. 2-4に示す化学処理を行なった。

最後に、テトラフェニルほう酸セシウム (CsTPB)の沈澱を濾紙上に回収して、Ge検出器で放射能測定した。この沈澱には、化学処理で使用した試薬類中の不純物のカリウムが混入している恐れがあり、さらに、テトラフェニルほう酸塩の分解生成物も混じっていることがわかったので、化学収率の算出は一連の放射能測定が終わった後で、以下に述べる方法で求めなおした。

沈澱にエタノール2mlを加えてCsTPBを溶解した。次に6N HCl 4mlを加えてウォーターバスで加熱してCsTPBを分解した。これに蒸留水を加えて200mlにし、原子吸光分析器にかけた。装置は日立180-50型原子吸光分析器で、Csランプの波長 852nm に対する吸光度を測定して、セシウムの量を算出した。

2-4 放射能の測定

測定はピュアGe検出器（ORTEC社製、エネルギー分解能1.89keV、相対効率30%、及び、TENNELEC社製、分解能1.9keV、相対効率30%）と、マルチチャンネル波高分析

器NLAB-MCA2（東芝（株）社製）で行なった。

測定は照射後約1ヶ月に渡って行なわれ、各試料の測定回数は、3~4回であった。放射能が弱かったので、検出器に最も近い位置に測定試料を置かざるを得ず、そのためにサムコインシデンスの補正も必要になった。

γ線スペクトルは、γ線核種分析用ソフトNLAB-GAMMA（東芝（株）社製）で解析し、同定した核種とその核種の照射終了時の放射能（ μCi ）を得た。

2-5 データ解析

得られた照射終了時の放射能から飽和放射能を算出した。Fig. 2-5に ^{136}Cs および ^{132}Cs の壊変図を示す。この図からわかるように、 ^{136}Cs は340.57, 1,048.1および818.50keVのγ線をカスケードに放出するので、サムコインシデンス計算ソフトSUMECC⁴⁾で飽和放射能を補正した。その結果、 ^{136}Cs の818.5keVのガンマ線の飽和放射能は、ORTECおよびTENNELECの検出器でそれぞれ20.8%および13.1%増加した。補正計数をTable 2-2に示す。

補正後、次の解析を行なった。

キャリアーの ^{133}Cs を添加しない試料中の ^{136}Cs の飽和放射能 A_{n136} は

$$A_{n136} = N_{n137} \cdot \phi \cdot e_{n137} \cdot f_{n136} \cdot c_{n136} \cdot \bar{\sigma}_{137} \quad (1)$$

ここで、 N_{n137} は原液中の ^{137}Cs の個数でTable 2-1の放射能から計算される、 ϕ は単位時間当りの光子束、 e_{137} は蒸着試料を作成したときの蒸着率、 f_{136} は生成した ^{136}Cs の、ターゲットフォイルからキャッチャーフォイルへのリコイル収率、 c_{136} はキャッチャーフォイルを化学処理した時の Cs の化学収率、および $\bar{\sigma}_{137}$ は $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の平均断面積を示す。

原液中には安定な ^{133}Cs も含まれている。この理由は、 ^{137}Cs は普通原子炉の核分裂生成物から化学分離して製造されるが、この核分裂生成物には ^{137}Cs の他に、 ^{133}Cs がその1.06倍含まれていること⁵⁾、さらにこれに、化学分離操作中の試薬中の不純物として、 ^{133}Cs が加えられることによる。 ^{133}Cs から核反応で生成した ^{132}Cs の放射能 A_{n132} は、同様にして

$$A_{n132} = N_{n133} \cdot \phi \cdot e_{n133} \cdot f_{n132} \cdot c_{n132} \cdot \bar{\sigma}_{133} \quad (2)$$

ここで、 N_{n133} は求められてはいないが N_{n137} に対する比は一定として、 $N_{n133} = k \cdot N_{n137}$ で置き換える、 e と c は同位体効果が無いとして $e_{137} = e_{133}$ 、 $c_{136} = c_{132}$ とする。 f は $^{132}\text{C s}$ と $^{136}\text{C s}$ の反跳エネルギーなので、正確には若干違うが、ここでは $f_{136} \approx f_{132}$ とする。こうして(1)式と(2)式の比を取ると

$$\frac{A_{n136}}{A_{n132}} = \frac{\bar{\sigma}_{137}}{k \cdot \bar{\sigma}_{133}} = \frac{1}{k} \cdot y \quad (3)$$

ここで、 $y = \bar{\sigma}_{137} / \bar{\sigma}_{133}$ とおいた。この式では、正確に求めるのが難しい蒸着効率、リコイル収率及び化学収率が消去されている。

原液に $^{133}\text{C s}$ キャリアーを $^{137}\text{C s}$ の原子数の a 倍加えた試料についても同様の式が立てられる。

$^{136}\text{C s}$ について

$$A_{c136} = N_{c137} \cdot \phi \cdot e_{c137} \cdot f_{c136} \cdot c_{c136} \cdot \bar{\sigma}_{137} \quad (4)$$

$^{132}\text{C s}$ について

$$A_{n132} = N_{c137} \cdot (k + a) \cdot \phi \cdot e_{c133} \cdot f_{c132} \cdot c_{c132} \cdot \bar{\sigma}_{133} \quad (5)$$

(4)式と(5)式の比をとると

$$\frac{A_{c136}}{A_{c132}} = \frac{\bar{\sigma}_{137}}{(k + a) \cdot \bar{\sigma}_{133}} = \frac{1}{(k + a)} \cdot y \quad (6)$$

(3)式と(6)式から

$$y = \frac{a \cdot A_{c136} \cdot A_{n136}}{A_{c132} \cdot A_{n136} - A_{n132} \cdot A_{c136}} \quad (7)$$

この式では、反応断面積の比 $\bar{\sigma}_{137} / \bar{\sigma}_{133}$ が、キャリアーとして加えた $^{133}\text{C s}$ の $^{137}\text{C s}$ に対する比 a と、実測された $^{132}\text{C s}$ と $^{136}\text{C s}$ の放射能だけによって決定

され、誤差の原因となる照射ターゲット中の ^{133}Cs と ^{137}Cs の量には無関係であることを示している。前報で用いた式では照射ターゲット中の ^{137}Cs の放射能がわかっていないと解けなかったが、この式では誤差源が1つ取り除かれその分精度の高い解析が可能になったと言える。

平均断面積 $\bar{\sigma}_{133}$ は全光子に対する平均断面積と (γ, n) の巨大共鳴吸収が起こる範囲の光子に対する平均断面積が用いられる。我々は従来から、後者の方法によって平均断面積を評価してきたが、他のデータとも比較し易いように前者の方法についても計算した。

巨大共鳴領域の光子に対する平均断面積は

$$\bar{\sigma}_{133} = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \sigma_{133}(E) \cdot \phi(E) dE}{\int_{E_1}^{E_2} \phi(E) dE} \quad [\text{mb}] \quad (8)$$

ここで、 E_1 は (γ, n) の巨大共鳴吸収が起こり始める9MeVに、 E_2 は巨大共鳴吸収が実質的に終了する25MeVにした。 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応の励起関数 $\sigma_{133}(E)$ は、S. S. Dietrichら⁶⁾のグラフから読みとった。制動放射線スペクトル $\phi(E)$ はEGS4⁷⁾による計算から求めた。

全光子に対する平均断面積は

$$\bar{\sigma}_{133} = \frac{\int_0^{E_{\max}} \sigma_{133}(E) \cdot \phi(E) dE}{(1/E_{\max}) \int_0^{E_{\max}} E \cdot \phi(E) dE} \quad [\text{mb/eq.q.}] \quad (9)$$

ここで、 E_{\max} は制動放射線の最大エネルギーを示している。

2-6 実験結果と考察

(1) キャッチャーフォイルの γ 線スペクトル

測定したキャッチャーフォイルの γ 線スペクトルの例を Fig. 2-6に示す。

340.57keV、818.50keVおよび1048.07keVのピークは半減期13.16dで減衰し ^{136}Cs からの γ 線であることが確認された。 ^{136}Cs はこの他にも176.55keV、273.65keV、1235.34keV他の γ 線を放出するが、放出率が低く、スペクトルからは確認されなかった。データ解析には主に818.50keVの γ 線を用いた。

667.67keVのピークは半減期 6.475dで減衰し ^{132}Cs の γ 線である。661.65keVのピークは ^{137}Cs の γ 線でターゲットからスパッタリング等でキャッチャーフォイルを汚染させたものである。この γ 線の強度が大きいと ^{136}Cs の γ 線の測定に支障を来すが、本実験では充分低く抑えることが出来た。その他のピークは天然の放射性核種からのもので、セシウムを化学分離はよく行なわれたことがわかった。

なお、測定は厚さ20cmの鉄遮蔽体の中で行なわれたので、バックグラウンドは鉛5cmの遮蔽を施した場合に比べて、約1桁低く抑えられた。

(2) 光核反応断面積

内部標準法の(7)式によって求めた平均断面積の、 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応に対する $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ の比をTable 2-3に示す。45MeVおよび60MeV照射では平均断面積の比が1.2であるが、50MeVでは1.7と大きな値になっている。しかし、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積が50MeV付近で急激に大きくなるのはきわめて不自然である。

ところで、表中のkは、購入した ^{137}Cs 原液中に ^{133}Cs が ^{137}Cs に対して何倍入っていたかを示す値である、従ってどの実験に於いても一致すべき値である。60MeVと45MeVのk値は確かによ一致を示している。また、この値は我々の予想していた値にほぼ近い値である。従って、ここでは60MeVと45MeVの値が正しいと判断する。いま、50MeVのk値が60MeVと45MeVの平均値であると仮定すると、断面積の比は(3)式から 1.03 ± 0.08 になって、60MeVと45MeVの値にほぼ一致する。この値は理解できるものである。

後に同位体依存性の項で述べるように、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積は、 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応より若干高くなる、と予想していたが、そのとうりの結果が得られた。

核分裂生成物中には、 ^{135}Cs が ^{137}Cs の1.06倍含まれていて⁵⁾、熱中性子によって $^{135}\text{Cs}(n, \gamma)$ 反応が起り、 ^{136}Cs を生成する。この反応が大きいと $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応の断面積の評価を狂わせることになる。熱中性子による反応の程度は、 $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ 反応と $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$ 反応の収率の比較から見積ることが出来るが、それによれば、光子束(9~25MeV)は熱中性子束に対し 3.1×10^4 大きく、本実験では無視できることがわかった。

(3) リコイル分離効率

Fig. 2-7は、 ^{137}Cs の全量に対するキャッチャフオイル上の汚染の比を、ターゲットの厚さに対してプロットしたものである。45MeVでは、約 $1/10^6$ の汚染がターゲットからキャッチャに移り、その汚染はターゲットの厚さを増すと減少する傾向を示している。60MeVと50MeVでは汚染の程度は45MeVの場合より1桁大きく、ターゲットの厚さには無関係の傾向を示している。なぜこのような傾向になったかはこれだけの情報では解らないが、少なくとも条件を選べば、汚染は $1/10^6$ 程度には抑えられることがわかった。いま、 ^{136}Cs のリコイル効率が10%と仮定すればリコイル分離法による ^{137}Cs と ^{136}Cs の分離効率は 1×10^5 になる。尚、分離効率は次の式で定義した。

$$\text{分離効率} = \frac{\text{(キャッチャ上の } ^{136}\text{Cs} / \text{ターゲットの } ^{136}\text{Cs})}{\text{(キャッチャ上の } ^{137}\text{Cs} / \text{ターゲットの } ^{137}\text{Cs})}$$

本実験では、この高い分離効率のおかげで $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応断面積を初めて測定することができた。 (γ, n) 反応のようにリコイルエネルギーが極めて小さい系においても、リコイル分離が出来ることを実証した意義は大きい。本実験で使用した ^{137}Cs は、1つの試料当たり約 $50\mu\text{Ci}$ 、約 $5 \times 10^{-7}\text{g}$ と極めて微量であった。ごく微量で足りることは、放射能取扱いの危険性を考えると大きな利点である。

3 ^{90}Sr の光核反応断面積の測定

電着法で ^{90}Sr ターゲットを作成し、 ^{137}Cs と同様のリコイル分離法を用いて、 ^{90}Sr をキャッチャーフォイル上に回収した。さらに化学分離を行なってストロンチウムを単離した。 ^{90}Sr は γ 線を放出しないので、測定の難しいベータ線スペクトロメトリーを行なって、 ^{90}Sr の定量を試みた。

3-1 照射試料の作成

原液は Amersham 社製の 10mCi/ml 、 $^{90}\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ (1N HNO_3) である。

まず、キャリアを加えない試料の調製について述べる。原液 $20\mu\text{l}$ を赤外線ランプで乾燥し、余分の HNO_3 を除く、これに $\text{dil. HCl } 50\mu\text{l}$ を加えて赤外線ランプで乾燥させる。もう1度 $\text{dil. HCl } 50\mu\text{l}$ を加えて赤外線ランプで乾燥させた後、 $\text{H}_2\text{O } 80\mu\text{l}$ と n -ブチル 8ml を加えてアルミニウムフォイル上に電着した。電圧は約1分間かけて 400V にし、その後10分間電着を続けた。この間の電流値は $3\text{mA}\sim 5\text{mA}$ であった。このような試料を4個作ったが、GMサーベイメータによる測定では原液の約50%が電着されていた。

キャリアを加えた試料の調製法は、原液 $100\mu\text{l}$ を塩酸系に変えた後、 ^{90}Sr キャリアー (209.2ml/ml) $50\mu\text{l}$ と $\text{H}_2\text{O } 50\mu\text{l}$ を加えた溶液を作った。この溶液から $40\mu\text{l}$ ずつ分取し、キャリアを加えない試料と同じ条件で電着した。

3-2 照射実験

照射は、東北大学理学部附属原子核理学研究施設で行なった。2-2のセシウム試料と同時に照射したので、ここでは省略する。

3-3 化学分離操作

照射後容器からキャッチャーフォイルを取り出し、まず表面の ^{90}Sr の汚染を取り除くために希硝酸溶液で洗浄、更に蒸留水で洗浄した後 Fig. 3-1 に示すスキームで化学処理を行なった。

最後に、炭酸ストロンチウム (SrCO_3) の沈澱を濾紙上に回収して、試料皿に取

め、測定試料とした。

3-4 放射能の測定および解析

^{90}Sr は β 壊変してその 99.99% が ^{90}Y の基底状態に、残りの 0.001% が励起レベルに落ちて 909.1keV のガンマ線を放出する。このガンマ線は弱すぎて Ge 検出器で測れないことが解ったので、 β 線スペクトル分析を試みることにした。

測定は、低バックグラウンド β 線スペクトロメータ（富士電機（株）社製）で行なった。この検出器は ^{137}Cs の 625keV の内部転換電子に対し 13.6% の分解能を持ち、バックグラウンドは、3.5keV ~ 3500keV の β 線に対し 0.43cpm と低い値を示した。

測定されたスペクトルの 1 例を Fig. 3-2 に示す。縦軸は計数値 (counts/channel) を、横軸は β 線のエネルギーを、いずれも対数目盛りでとってある。図中②はキャリアを加えない試料 (No. 3) のスペクトルを 7 点スムージングしたものである。図中 550keV と 2300keV 付近の終点は、それぞれ ^{90}Sr の 546keV および ^{90}Y の 2280keV の最大エネルギーを有する β 線に対応するもので、目的とする ^{90}Sr の最大エネルギー 1490keV の β 線スペクトルは隠されていて見られない。①のスペクトルは、平衡状態に達している $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ 標準線源のスペクトルであるが、②のスペクトルはこれによく似ている。②のスペクトルは、平衡状態に達している $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ と、 ^{90}Sr だけからなるとして、520 ~ 570 チャンネルの計数値は ^{90}Y のみによるものと仮定する、この領域の計数値の平均がゼロになるように、②のスペクトルから①のスペクトルを差し引くと、③のスペクトルが得られる。図には最大エネルギーを 1490keV とする ^{90}Sr の β 線スペクトルらしいものが現われているが、断定はできない。データがばらついていて定量するには至らなかった。

3-5 考察

セシウム試料の場合には、 ^{137}Cs の汚染があっても ^{136}Cs の定量が出来た。しかしこれは分解能の良い Ge 検出器を用いてようやく可能になったものである。一方、 β 線はそのエネルギーが 0 から E_{\max} まで幅広く分布するスペクトルなので、混ざり合った β 線スペクトルから、ごく微量の放射性核種の成分を分離することは、ガンマ線の場合に比べて非常にむづかしくなる。

セシウムの場合に、分離効率は良い試料で 1×10^{-5} 程度であった。ストロンチ

ウムの分離効率もこの程度であろうが、同程度の汚染があったのでは、スペクトル分離はできないことが分かった。 ^{90}Sr の汚染を今より1~2桁低くできればスペクトル解析も可能になるが、リコイル分離法ではスパッタリングなどによる汚染が不可避で、これ以上汚染を低くすることは無理であろう、との結論に達した。よって、これ以上の実験は中止することにした。

4 (γ, n) 反応の同位体依存性

$^{90}\text{Sr}(\gamma, n)$ 反応の断面積を直接求めることができなかつたので、それに代わる方法として、濃縮同位体の ^{85}Rb , ^{87}Rb , ^{98}Ru , ^{104}Ru , ^{106}Cd , ^{110}Cd , ^{116}Cd , ^{84}Sr , ^{86}Sr および ^{88}Sr を照射して、その反応断面積を求め、その同位体依存性から $^{90}\text{Sr}(\gamma, n)^{89}\text{Sr}$ 反応の断面積を推定した。

4-1 照射試料の作成

使用した濃縮同位体の組成を Table 4-1 に示す。これらの化合物の約 10mg を直径 6.5mm、深さ 1mm のアルミニウム容器に包み、ガンマ線束モニタの金箔（直径 10mm 厚さ 0.01mm）と一緒にして重ねて照射した。

4-2 照射実験

照射は、東北大学理学部附属原子核理学研究施設で行なつた。照射時間は 60MeV は 2.23 時間、45MeV では 1.02 時間で、電流値は平均 70μA であつた。その他の条件は 2-2 と同じなので、ここでは省略する。

4-3 放射能の測定および解析

照射後試料をアルミニウム容器から取り出し、別の容器に移して秤量の後、放射能測定した。測定は 2-4 で述べた Ge 検出器と γ 線核種分析用ソフトを用いた。計算結果は照射終了時の放射能が μCi で与えられるので、親核-娘核壊変の補正、照射中の娘核の成長の補正、サムコインシデンスの補正等を行い、最終的に照射終了時の飽和放射能にしてから、以下の計算を行なつた。

この実験では、まず体系内の光子束密度を求める必要がある。金モニターの飽和放射能 A_{Au} は、平均電流を C とすれば

$$A_{\text{Au}} = N_{197} \int_{9\text{MeV}}^{25\text{MeV}} \sigma_{197}(E) \cdot C \cdot \phi_{\text{EGS4}}(E) dE \quad (10)$$

よつて

$$C = \frac{A_{\text{Au}}}{N_{197} \int_{9\text{MeV}}^{25\text{MeV}} \sigma_{197}(E) \cdot \phi_{\text{EGS4}}(E) dE} \quad (11)$$

ここで積分範囲は巨大共鳴吸収を含む 9MeV~25MeVとした。また、制動放射線のスペクトルは、2-5と同様 EGS4による計算値を用いた。

実際の制動放射線束 ϕ は

$$\phi = C \int_{9\text{MeV}}^{25\text{MeV}} \phi_{\text{EGS4}}(E) dE \quad (12)$$

となる。

同時に照射した同位体試料の放射能を A_{ir} とすれば

$$\begin{aligned} A_{ir} &= N_E \int_{9\text{MeV}}^{25\text{MeV}} \sigma_E(E) \cdot C \cdot \phi_{\text{EGS4}}(E) dE \\ &= N_E \cdot \bar{\sigma}_E \cdot C \int_{9\text{MeV}}^{25\text{MeV}} \phi_{\text{EGS4}}(E) dE \\ &= N_E \cdot \bar{\sigma}_E \cdot \phi \end{aligned} \quad (13)$$

ここで、 N_E は濃縮同位体の原子数である。

よって、巨大共鳴領域の光子に対する平均断面積は

$$\bar{\sigma}_E = \frac{A_{ir}}{N_E \cdot \phi} \quad (14)$$

より求められる。

4-4 考察

測定された平均断面積を、Table 4-2に示す。

^{84}Sr 、 ^{86}Sr 、 ^{88}Sr の (γ, n) 反応の平均断面積 σ_E を質量数の関数として Fig. 4-1に示す。図には 1988年度の実験値¹⁾も合わせて載せているが、2回の実験の測定値はほぼ一致している。この図の σ_E の同位体依存性からみて、 $^{88}\text{Sr}(\gamma, n)$ 反応の σ_E はおよそ $^{88}\text{Sr}(\gamma, n)$ 反応の σ_E と等しいことが推定された。またこの (γ, n) 反応の平均断面積の同位体依存性をもう少し詳しく検討するために、我々の実験値に加えて Dietrichら⁶⁾ の文献値に示されている (γ, n) 反応の励起関数 $\sigma(E)$ から、巨大共鳴領域の光子に対する平均断面積を求めた。

$$\bar{\sigma}_E = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) \cdot \phi(E) dE}{\int_{E_1}^{E_2} \phi(E) dE} \quad (15)$$

において、 $E_1=9\text{MeV}$, $E_2=25\text{MeV}$ ととり、 $\phi(E)$ としては 60MeV 電子による EGS4の計算による制動放射線 (2-2の実験条件と同じ) を用いた。

Fig. 4-2 に ^{90}Sr 近辺の核種に対する σ_E の値を、Fig. 4-3 に ^{137}Cs 近辺での核種に対する σ_E の値を、各々質量数の関数として示す。Fig. 4-2 では中性子数 $N=50$ のマジック数を持つ核種を、Fig. 4-3では中性子数 $N=82$ のマジック数を持つ核種を各々○印で囲んでいる。図より Mo のみを例外として、その他の核種、 Rb , Sr , Zr , Cs , Ce , Nd , Sm は、いずれも同じ核種の中で $N=50$, 82 のマジック数を持つ核種が最も (γ, n) 反応の断面積が大きいことが分かった。マジック数を持つ核種の場合 (γ, n) 反応のしきいエネルギーは他より確かに高いのだが、一旦このしきいエネルギーを越えればかえって中性子放出が起り易いことを示している。これは核物理学的に非常に興味ある現象であり、理論的な解明が待たれる。逆にこのことから、我々の実験で ^{137}Cs (γ, n) 反応の平均断面積 (^{137}Cs は $N=82$ のマジック数を持つ) が ^{133}Cs (γ, n) 反応の平均断面積より大きくなったことも裏付けられたものと判断できる。

5 (γ, n) 反応によるリコイルレンジの測定

本リコイル分離法においては、反跳によりターゲットからとびだす原子核を捕集するので、反跳核のターゲット中での飛程が問題になる。この飛程とターゲットの厚さから、リコイル取率が決められる。そこで、天然の銅とセシウムを照射して、光子と中性子によるリコイルレンジを求めた。

5-1 照射試料の作成

銅試料は直径 20mm、厚さ 0.1mm のアルミニウムフォイル上に、直径 12.5mm の大きさに金属銅を蒸着したものである。天然のセシウム試料は、塩化セシウムを銅と同様に蒸着したもので、どちらの厚さも約 $0.1\text{mg}/\text{cm}^2$ にした。この厚さは、リコイルレンジを $20\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度と見積って、それより充分厚い試料を作ったものである。蒸着前後のアルミニウムフォイルの重さを、 $1\mu\text{g}$ まで測定可能なマイクロ天秤を用いて秤量し、その差と蒸着面積から蒸着試料の厚さをもとめた。結果を Table 5-1 に示す。

5-2 照射実験

照射は、以下に述べる点を除いて、前節で述べたのと同じである。

製作した銅ターゲット試料に、アルミニウム製スパーサを介して、アルミニウム製キャッチャーフォイルを置いた。このようなターゲットとキャッチャーフォイルのセットを 4 組用意し、その内の 2 組はターゲットを上流側（従ってキャッチャーは下流側）に、後の 2 組はその逆向きに置いた。これは、ビームの上流側へのリコイルと下流側へのリコイルの差を見るためである。セシウム試料も同様に配置して同時に照射した。

照射は 50MeV で 18.3h、平均電流値は約 $70\mu\text{A}$ であった。

5-3 化学分離操作

照射後、容器からキャッチャーフォイルを取り出し、まず表面の汚染を取り除くために希硝酸溶液で洗浄し、更に蒸留水で洗浄した後、銅試料は Fig. 5-1 に示す分離スキームで、セシウム試料は Fig. 2-4 に示す分離スキームで化学処理を行なった。銅試料は秤量した重さから化学取率を求めたが、セシウム試料は 2-3 で述べたと同様に、原子吸光分析をして化学取率を求めた。

5-4 放射能の測定

測定はピュアGe検出器（ORTEC社製、エネルギー分解能 1.89keV、相対効率30%及びTENNELEC社製、同1.9keV、同30%）と、マルチチャンネル波高分析器 NLAB-MCA2（東芝（株）社製）で行なった。

銅の試料は化学分離の後（照射後12時間経過後）から2000~6000秒ずつ繰り返し2日間行なわれた。

セシウムの測定は照射後約1ヶ月に渡って行なわれ、各試料の測定回数は、3~4回であった。γ線スペクトルはγ線核種分析用ソフトNLAB-GAMMA（東芝（株）社製）で解析した。

5-5 リコイルレンジの簡易式

(γ, n) 反応によるリコイルは、まずターゲット核がγ線を吸収し、γ線のビーム方向にリコイルする、励起された核は中性子を放出するが、この時中性子の正反対の方向にリコイルする。中性子放出は、核の励起後十分に時間が経っていると、中性子放出は等方的に行なわれる、と仮定する。

リコイルレンジに対してターゲットが十分に厚い系を考える。

中性子放出のリコイルが、実験室系で等方的に行なわれると、リコイルでキャッチャーフォイルにトラップされる放射能(A)は

$$A = k \frac{R}{4} \quad (16)$$

となる。ここで、Rはリコイルレンジ(μg/cm²)で、kはターゲット中で単位深さ当りの放射能(Bq·cm²/μg)を示す。

これにγ線を吸収したときのリコイル成分が、ビームの前方では加えられ、ビームの後方では差し引かれるので、ビームの前方では

$$A_f = A + kr = k\left(\frac{R}{4} + r\right) \quad (17)$$

ビームの後方では

$$A_b = A - kr = k\left(\frac{R}{4} - r\right) \quad (18)$$

となる、ここで r は γ 線を吸収したときのリコイルレンジである。

ターゲット中で生成した全放射能はターゲットの厚さを T とすれば $k \cdot T$ となるのでキャッチャーフォイルに捕獲された放射能の割合はそれぞれ

$$F_f = \frac{A_f}{(kT_f)} = \frac{R/4+r}{T_f} \quad (19)$$

$$F_b = \frac{A_b}{(kT_b)} = \frac{R/4-r}{T_b} \quad (20)$$

この2式から R と r を求めることができる。

リコイルレンジと運動エネルギーとの関係は、銅中のガリウムについては J. Lindhard⁸⁾ によって求められている。

$$R[\mu\text{g}/\text{cm}^2] = 0.193E[\text{keV}] \quad (21)$$

ここでは、その式が銅中の銅にも適用できるとする。セシウムについては実験式が求められていないので、計算によって求めた。詳細は別報で述べられることになるので、ここでは省略する。

5-6 リコイルレンジの計算

^{64}Cu は $1,345.8\text{keV}$ の γ 線1本を放出するが、放出率が極めて低く一部の試料については測定にかからなかった。やむを得ず、陽電子放出に伴う消滅 γ 線を用いて計算したが、消滅 γ 線は ^{61}Cu から発生する。 ^{61}Cu は 656.04keV の γ 線も発生するので、 656.04keV のガンマ線から ^{61}Cu の生成量を計算し、 ^{61}Cu による消滅 γ 線の量を見積って差し引いた。Table 5-2 に照射終了時の放射能を示す。これから、ターゲットとキャッチャーの対毎に (19) と (20) 式によってレンジを求めた。結果を Table 5-3 に示す。表の値から平均を求めると、次の通りになる。

$$\text{銅試料は} \quad R = 19.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \quad r = 1.97 \mu\text{g}/\text{cm}^2$$

リコイルエネルギーに直すと

$$= 103.2\text{keV} \quad = 10.2\text{keV}$$

セシウム試料は $R = 8.66 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ $r = 0.764 \mu\text{g}/\text{cm}^2$

リコイルエネルギーに直すと

$$\frac{1}{2} m v^2 = 73.3 \text{ keV} \quad = 15.2 \text{ keV}$$

5-7 考察

(γ, n) 反応によるリコイルを一応評価できた。

しかし、 ^{64}Cu の光子による反跳エネルギー 10.2 keV から、光子エネルギーを求めると 35.1 MeV になるが、これは γ 線の巨大共鳴吸収のエネルギー (約 16 MeV) に比べるとかなり高い値である。 ^{132}Cs についても同様に高い値が得られていて、簡易式では十分に説明できないようである。このことについては、別報にて考察する。

参考文献

- (1) 中村 尚司他:「超ウラン元素を含む放射性廃棄物の光分解消滅のための基礎研究(Ⅲ)」、動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書、PNC J4601 89-001(1989)
- (2) 中村 尚司他:「超ウラン元素を含む放射性廃棄物の光分解消滅のための基礎研究(Ⅳ)」、動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書、PNC J1601 90-001(1990)
- (3) 山寺 亮他:「 γ 線による放射性廃棄物の消滅処理」、核理研報告 22(1)、107(1990)
- (4) 中村 尚司他:「放射化データ解析コード コインシデンス・サム補正 SUMECC」、東大核研報告書 INS-T-468(1987)
- (5) 吾勝 永子: JAERI-M 7873
- (6) S. S. Dietrich and B. L. Berman: "Atlas of Photoneutron Cross Section Obtained with Monoenergetic Photons", UCRL-94820(1986)
- (7) W. R. Nelson, H. Hirayama and D. W. O. Rogers: "The EGS4 Code System", SLAC-265(1985)
- (8) J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiott, Range concepts and heavy ion Ranges, Kobenhavn(1963)

謝辞

本研究の遂行にあたり、全面的にご協力いただいた動力炉核燃料開発事業団に深く感謝致します。

照射実験の際お世話になりました、東北大学理学部附属核理学研究施設の榎本和義氏、並びにマシングループの方々に深くお礼申し上げます

また、実験に協力していただいた東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター放射線管理研究部の皆様にもお礼を申し上げます。

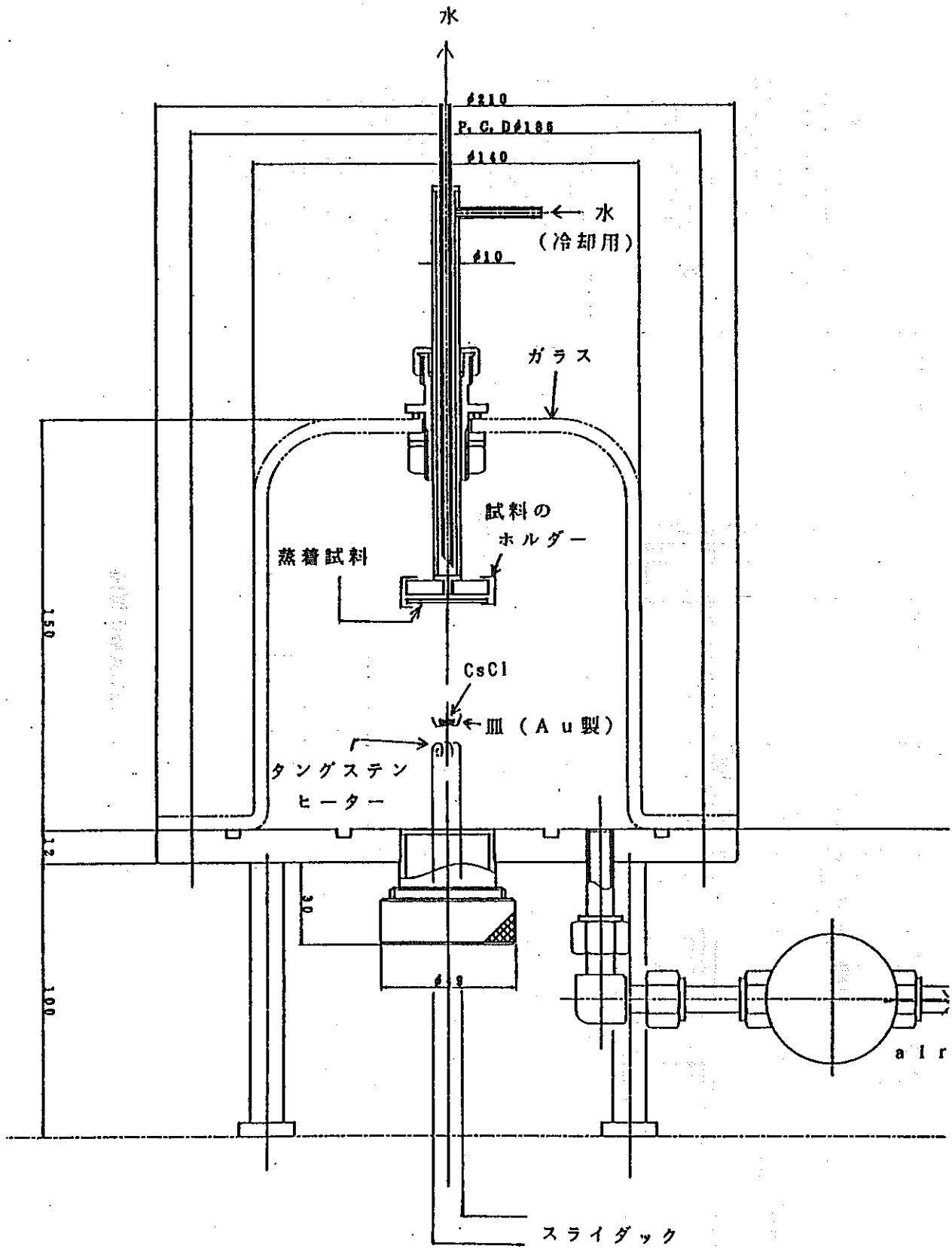


Fig. 2-1 蒸着試料の作成装置

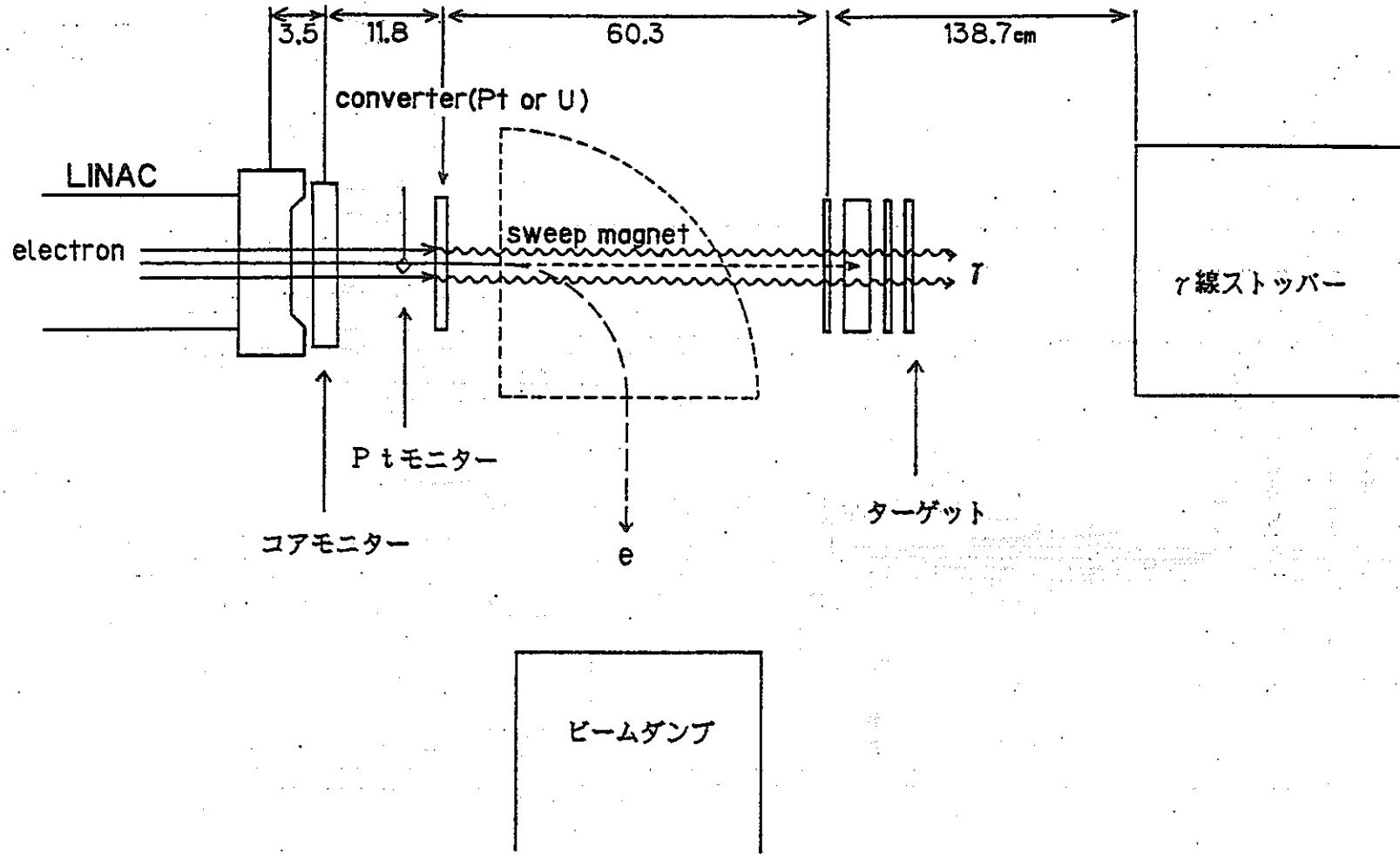


Fig. 2-2 照射実験配置図

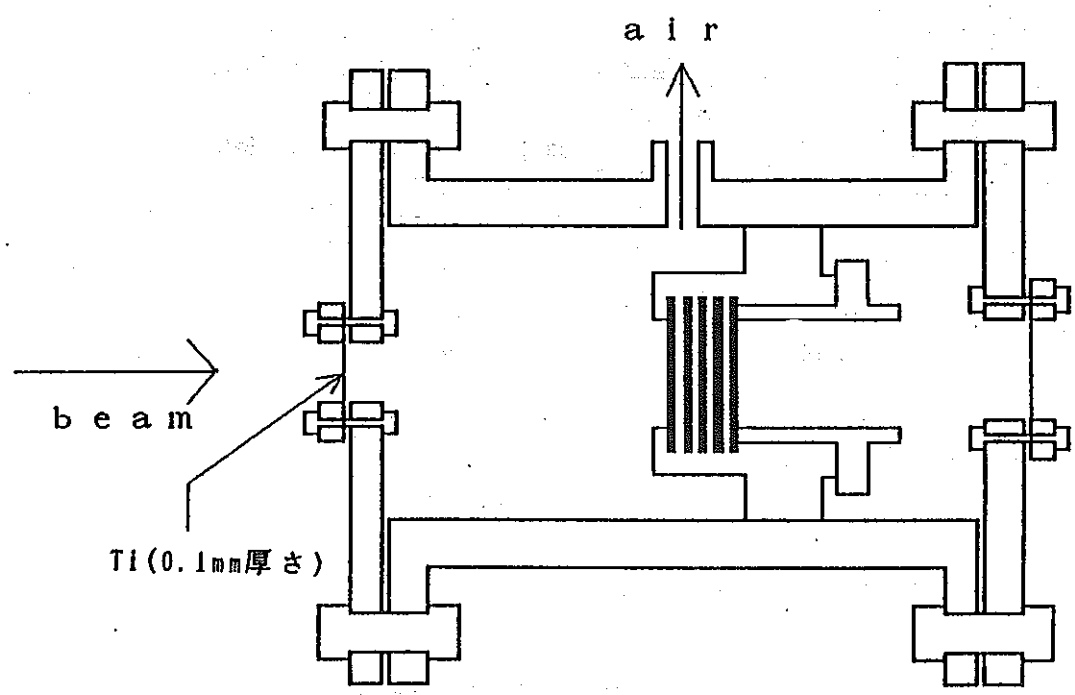
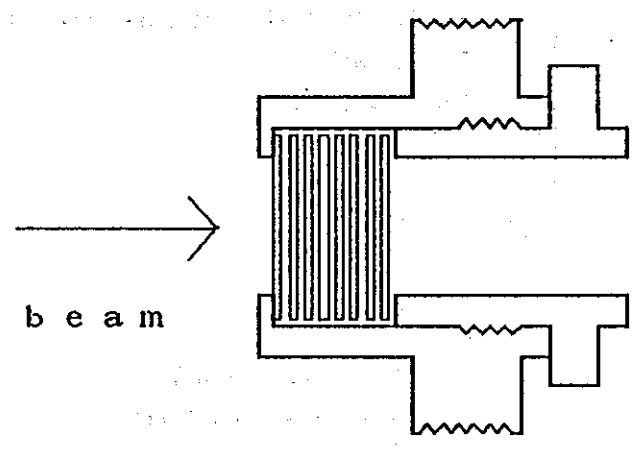
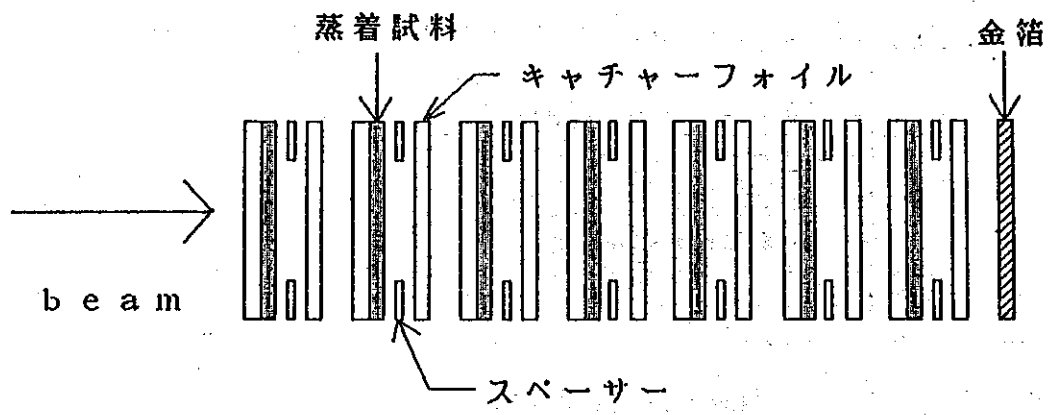
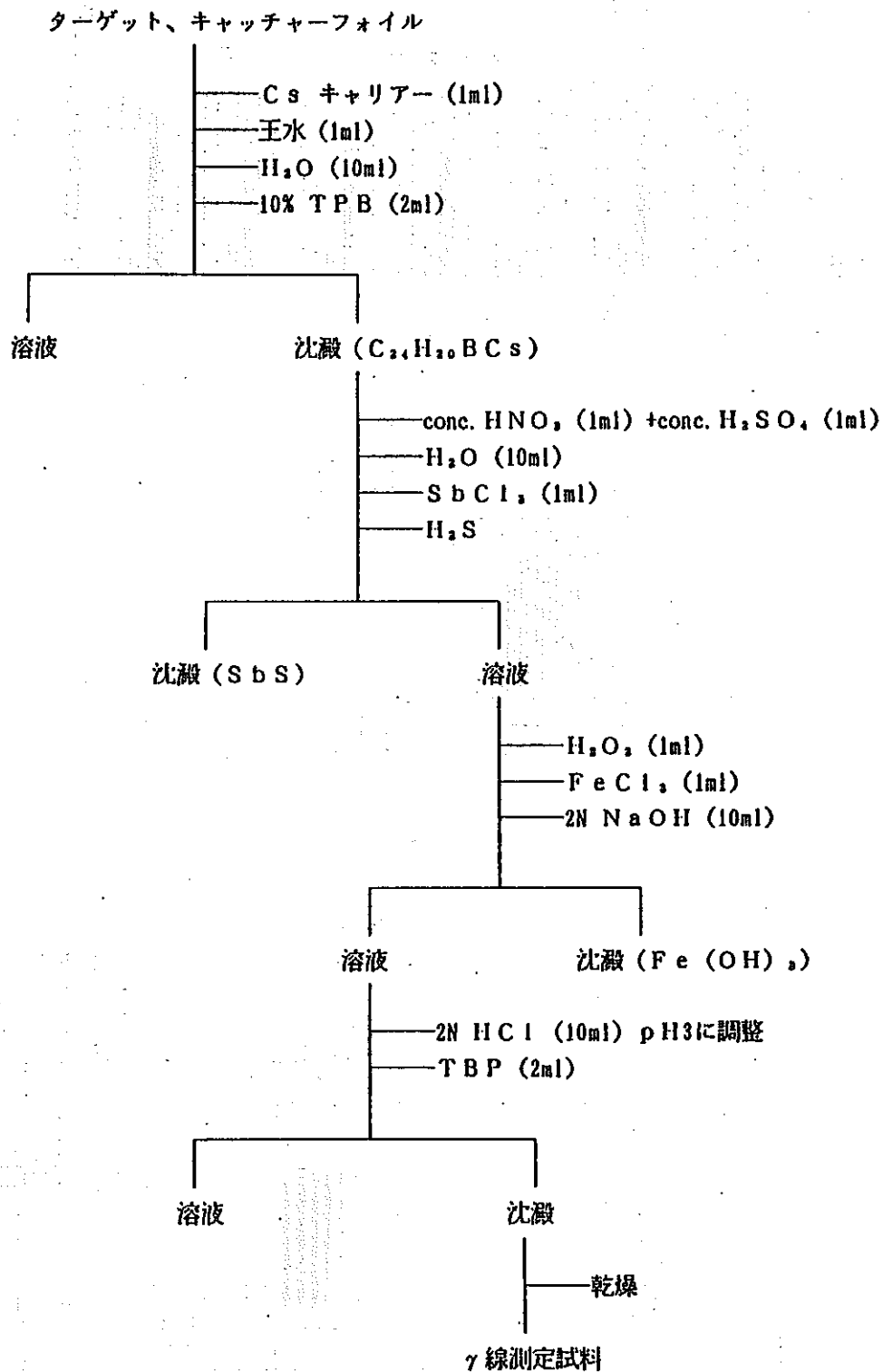
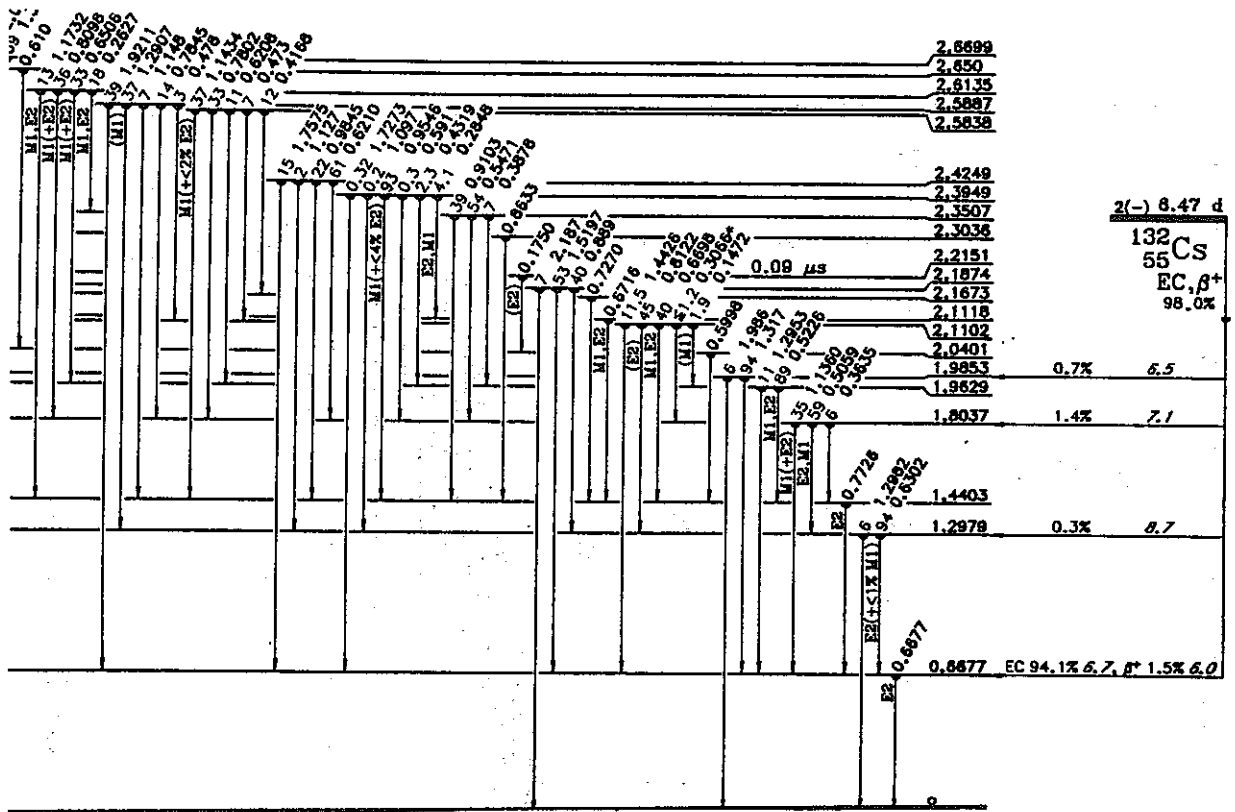


Fig. 2-3 照射ターゲット詳細図



TBP : テトラフェニルほう酸ナトリウム

Fig. 2-4 Cs蒸着試料 化学分離流れ図



132

X O

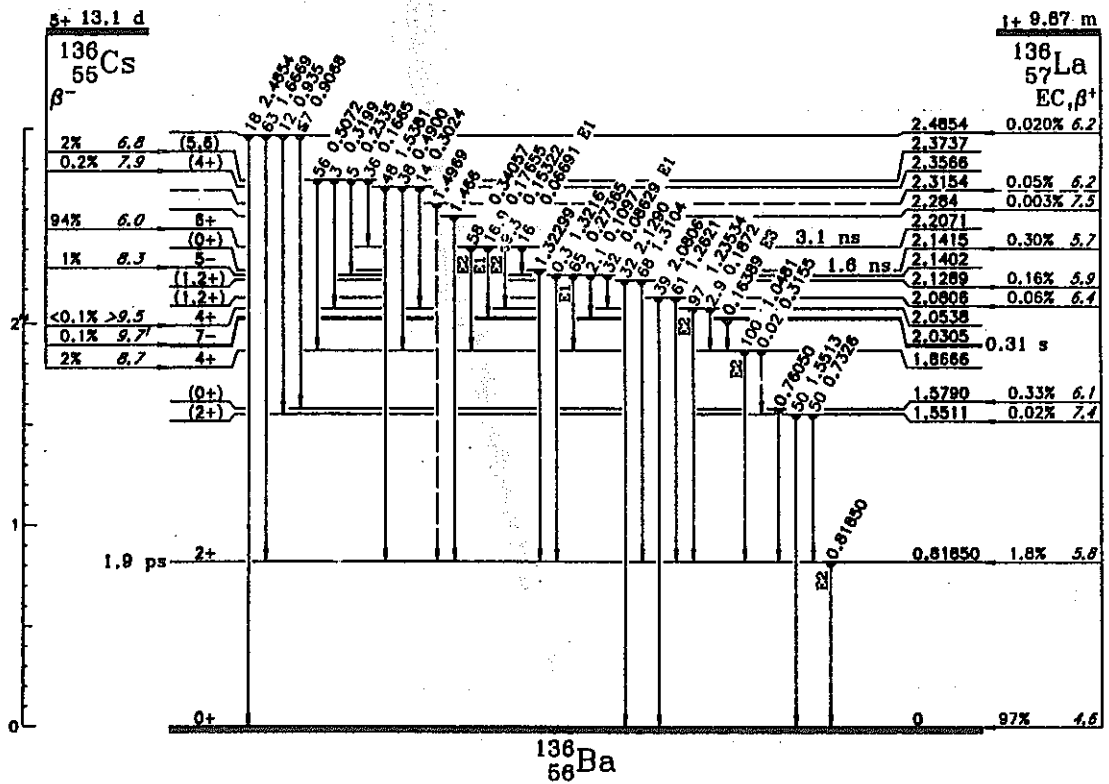


Fig. 2-5 ^{132}Cs と ^{136}Cs の壊変図

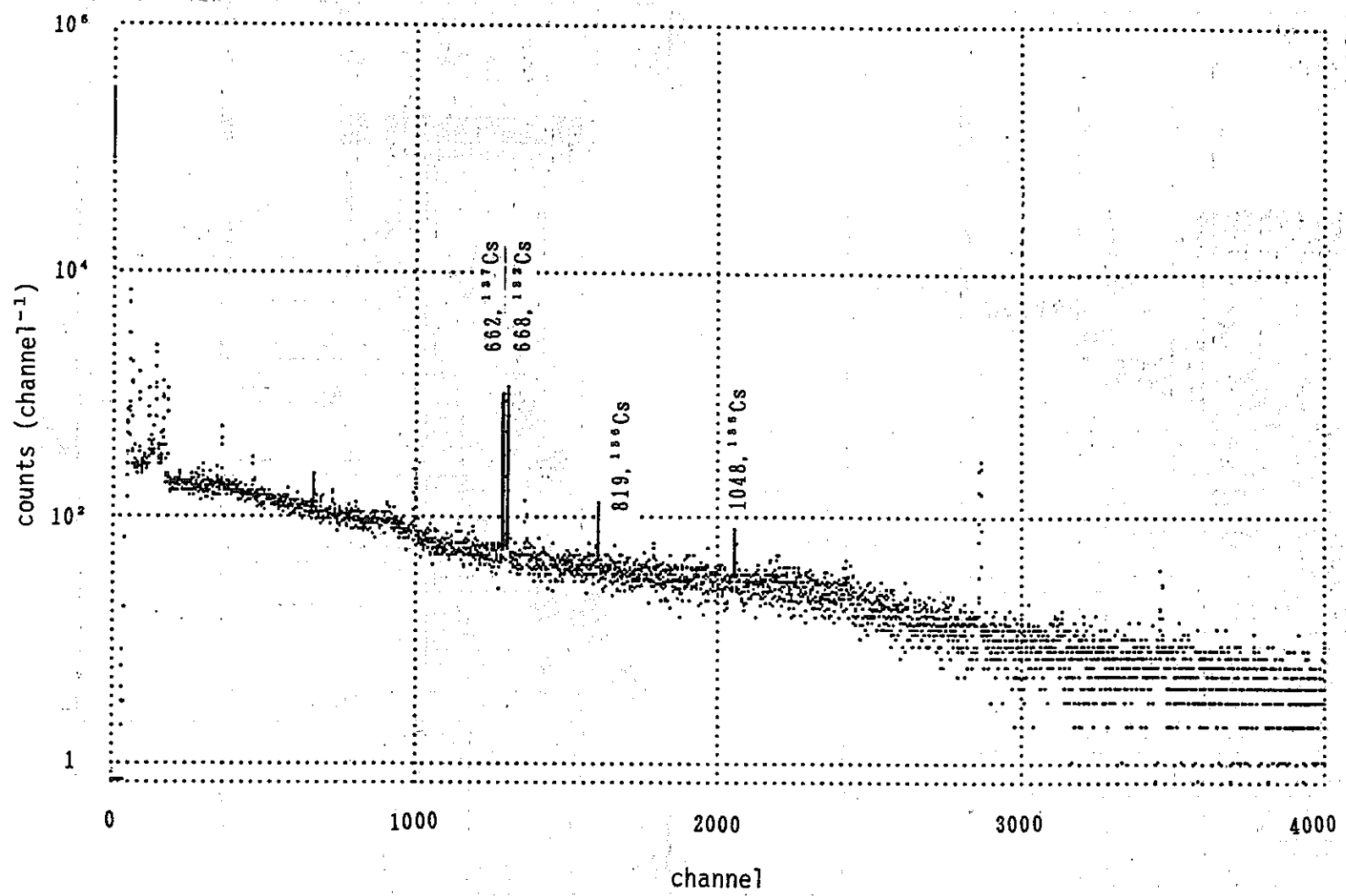


Fig. 2-6 キャッチャーフォイルのγ線スペクトル

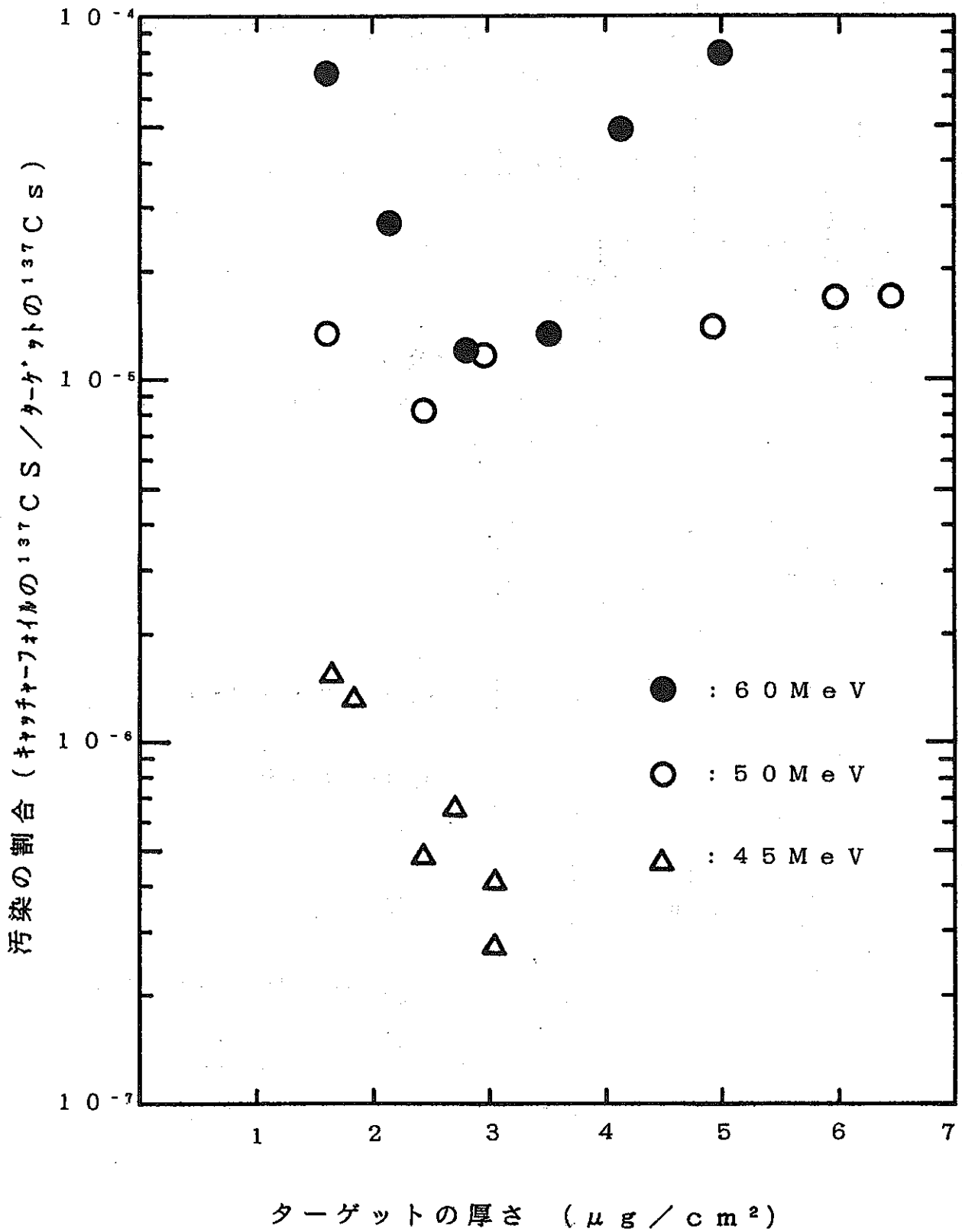


Fig. 2-7 ^{137}Cs のキャッチャーフォイルの汚染の割合

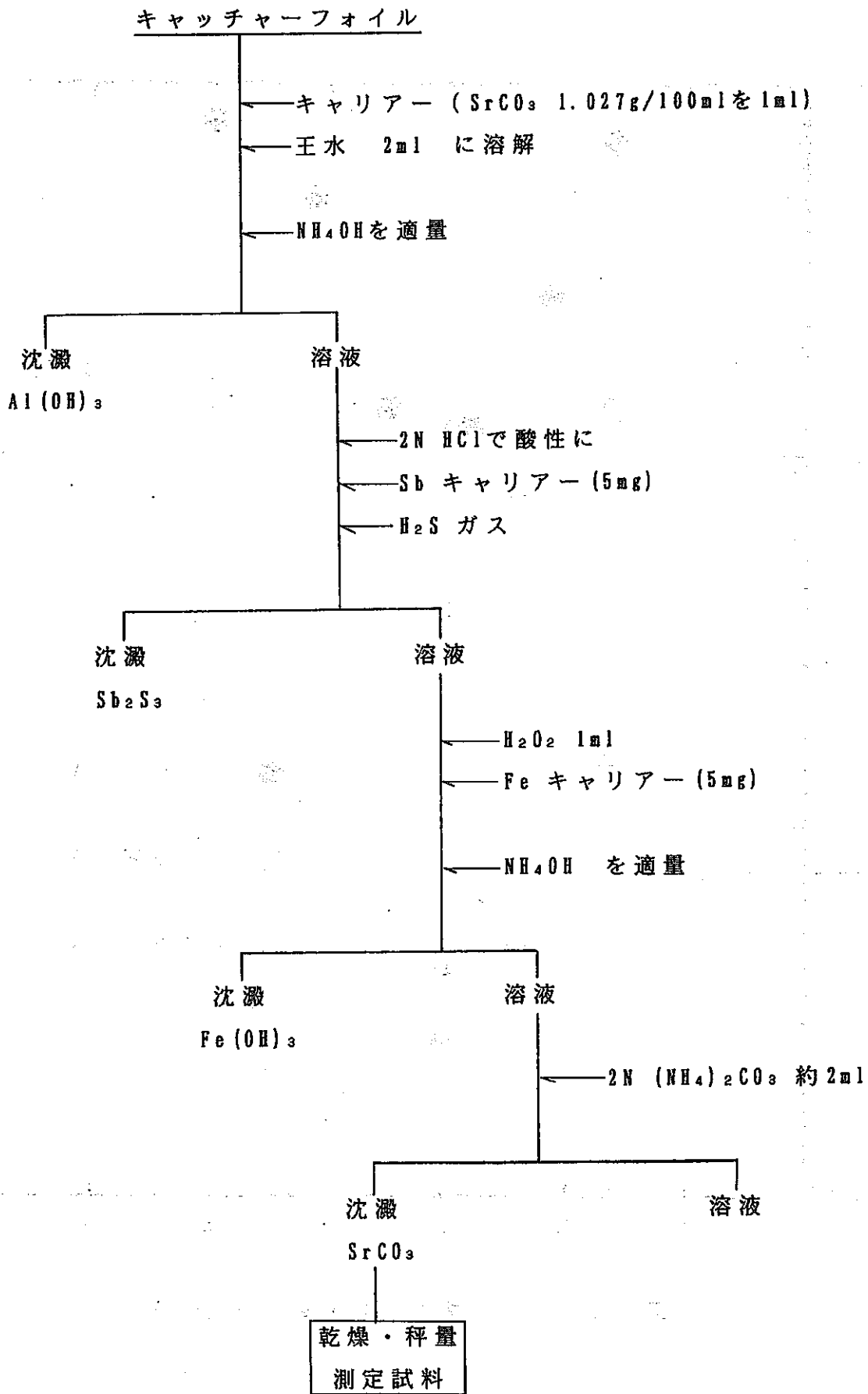
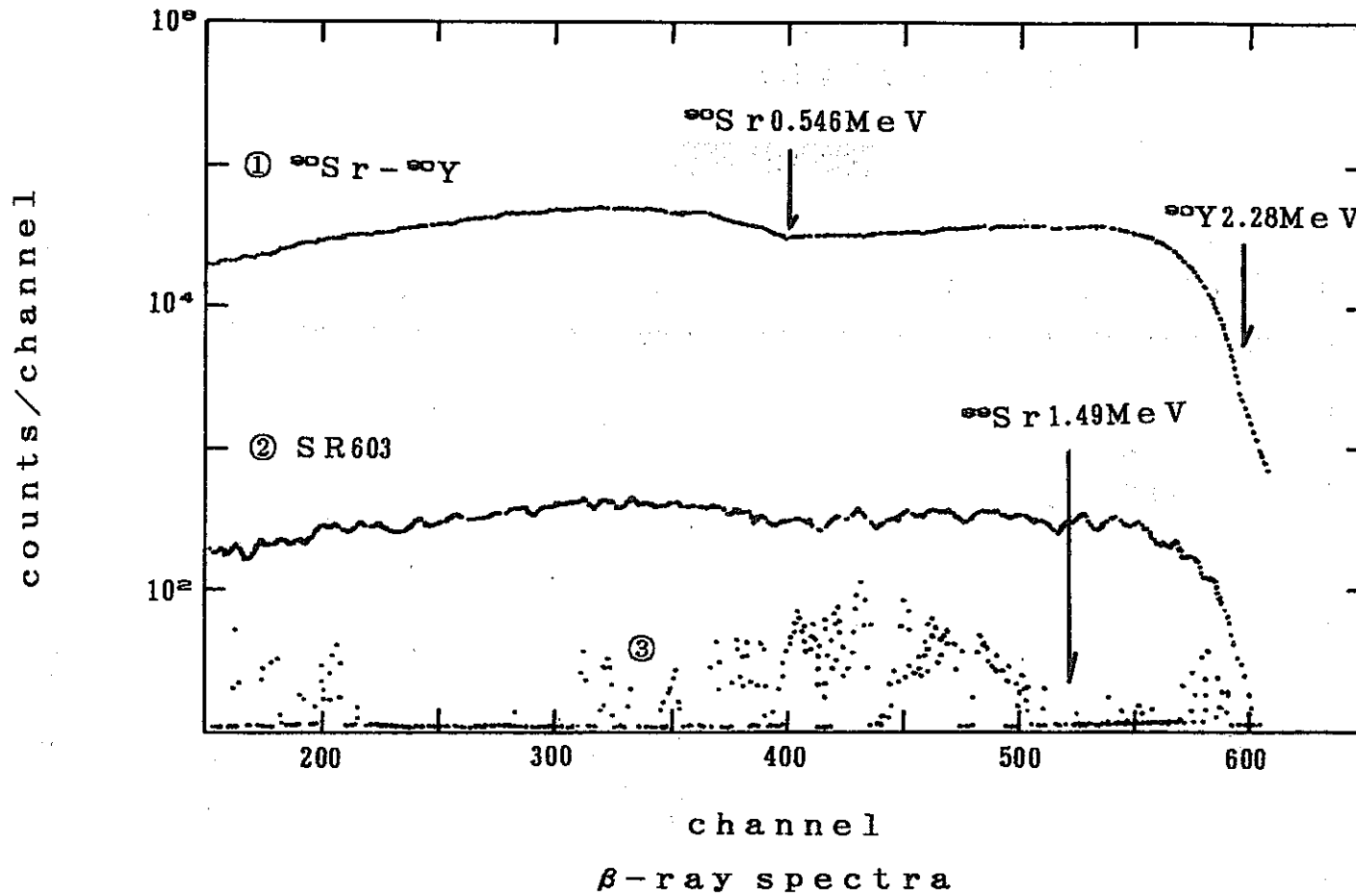


Fig. 3-1 Srの化学分離流れ図



- ① $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ 標準試料 (7点スムージング)
- ② 化学分離後のキャッチャーホイル (7点スムージング)
- ③ ② - $a \times$ ① (520~570 channel のカウント数が0になるよう a を決めた)

Fig. 3-2 ストロンチウムの β 線スペクトル

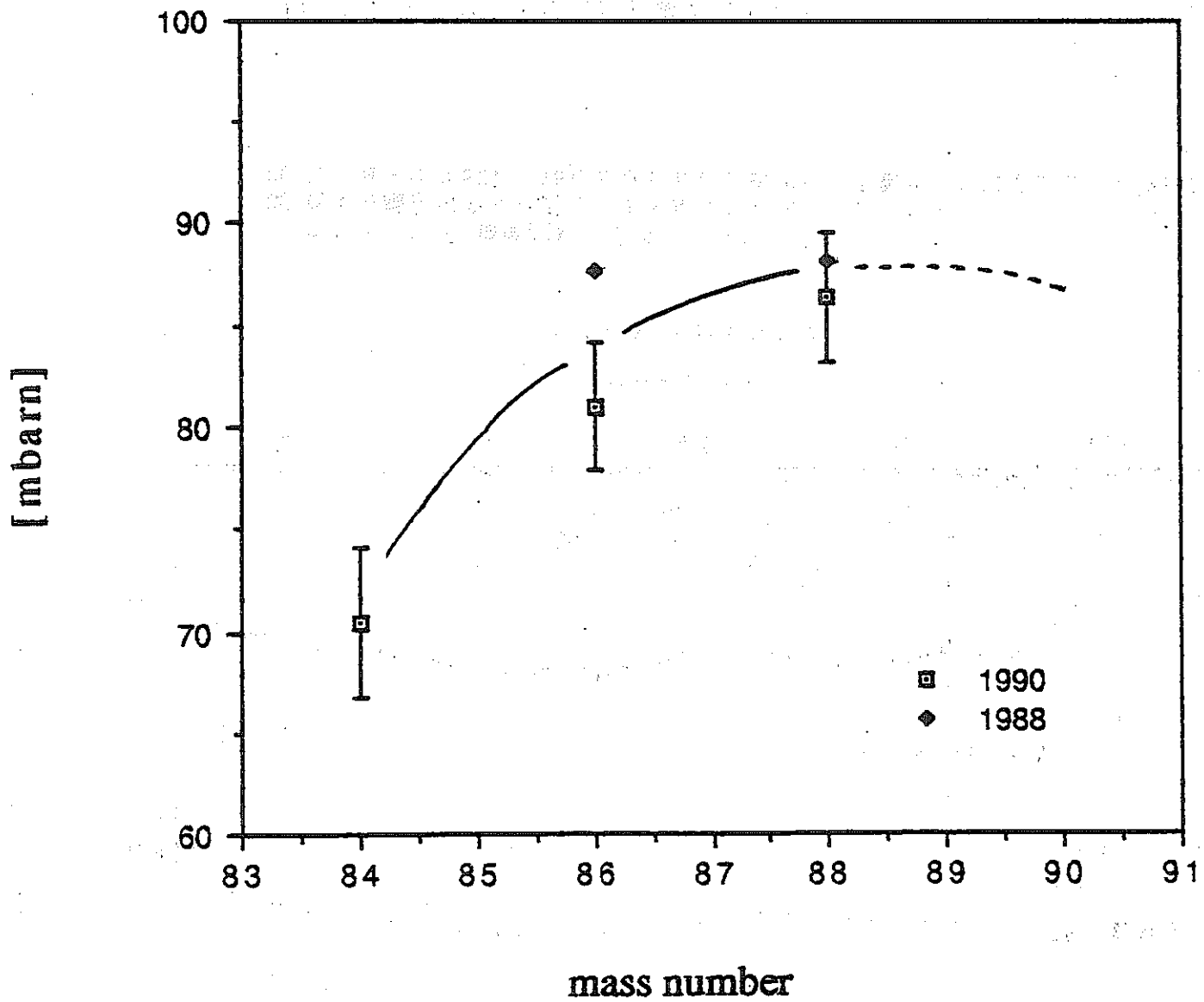
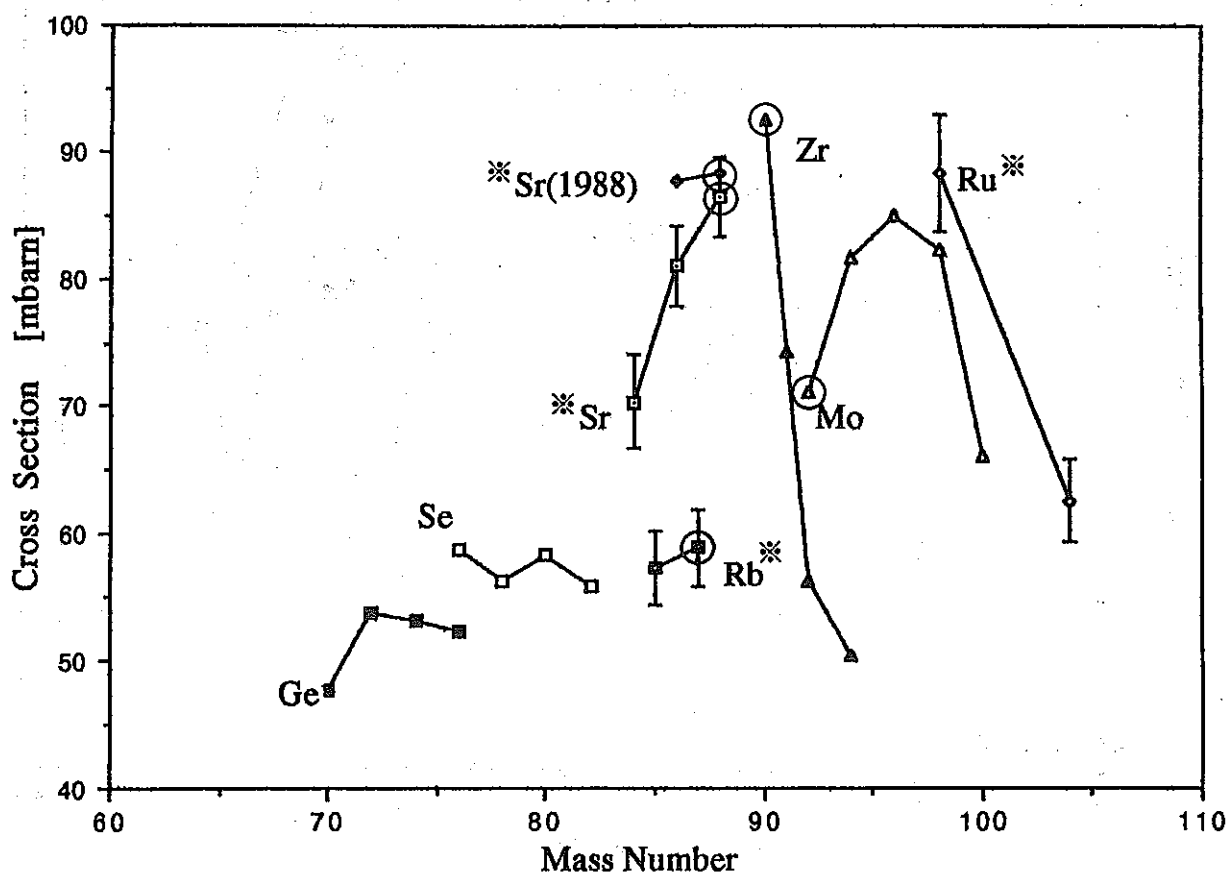


Fig. 4-1 Srの(γ, n)反応断面積の同位体依存性

光核反応断面積の同位体依存性



S. S. dietrich, B. L. Berman: UCRL-94820 (1986)

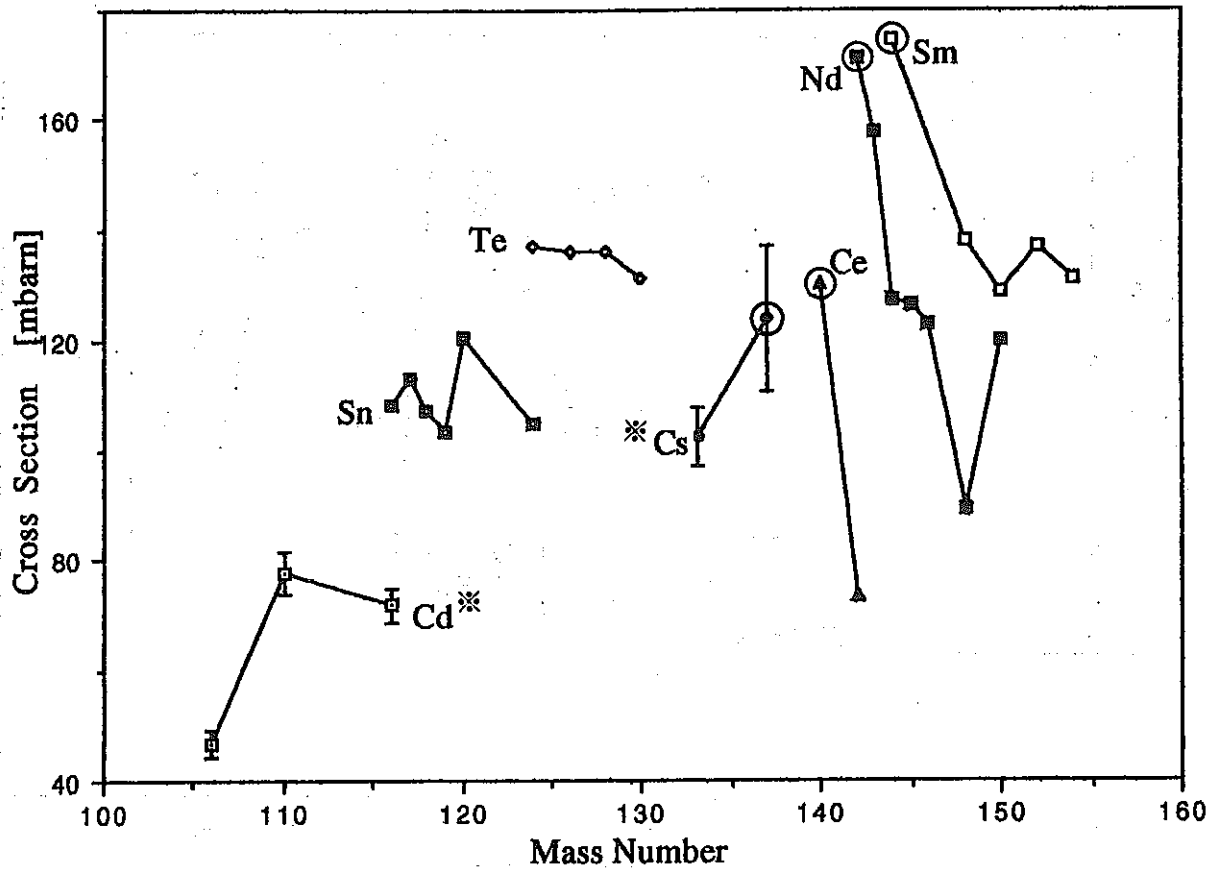
による実験値

※ 今回の実験による実測値

○ 中性子数 $N=50$ のマジックナンバーの核種

Fig. 4-2 Sr 近辺元素の (γ, n) 反応断面積の同位体依存性

光核反応断面積の同位体依存性



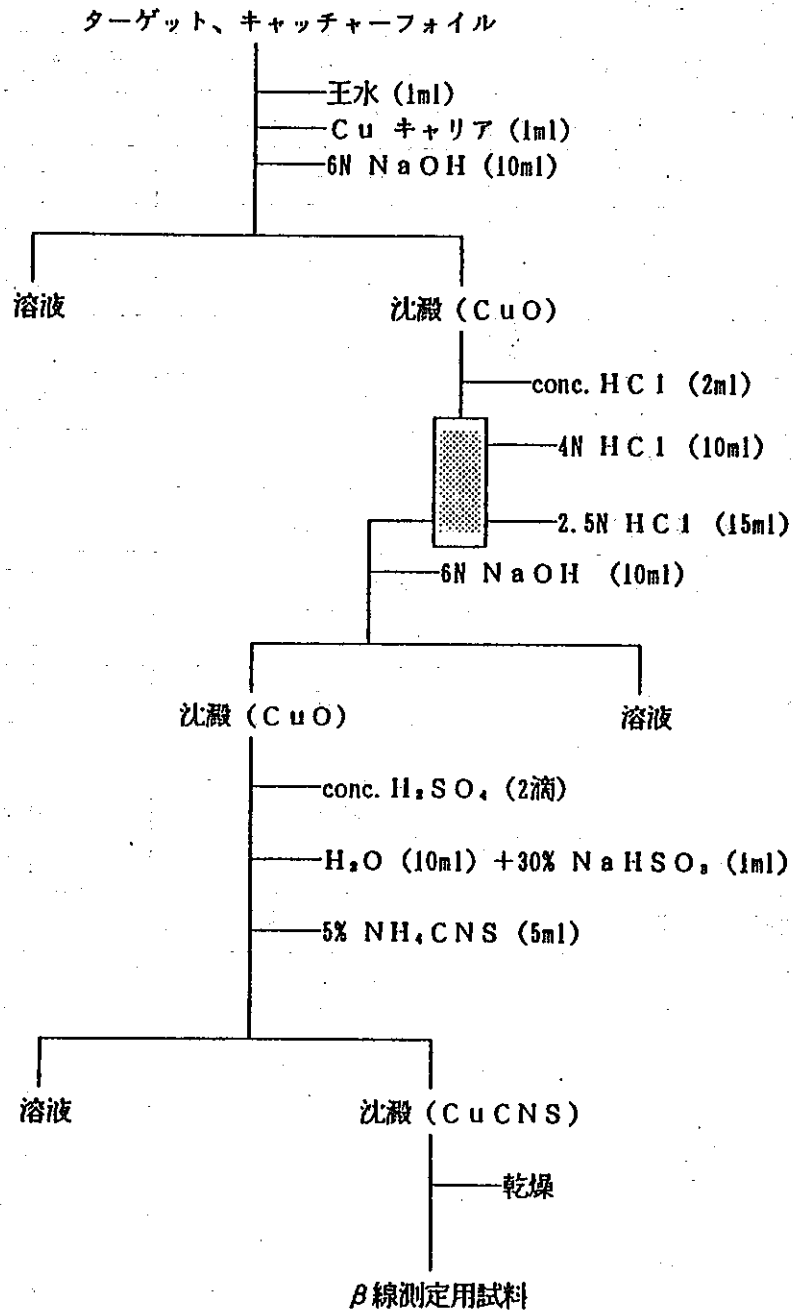
S. S. Dietrich, B. L. Berman: UCRL-94820 (1986)

による実験値

※ ----- 今回の実験による実測値

○ ----- 中性子数 $N=82$ のマジックナンバーの核種

Fig. 4-3 Cs 近辺元素の (γ, n) 反応断面積の同位体依存性



 : 陰イオン交換樹脂カラム (Dowex 1)

Fig. 5-1 Cu蒸着試料 化学分離流れ図

Table 2-1 ^{137}Cs ターゲット作成条件

60 MeV制動放射線照射 (1990. 6. 29)

試料番号	試料調製割合		蒸着後の ^{137}Cs の キューリー数
	^{137}Cs 原液の量	^{133}Cs キャリアー	
1	20 μl	—	68.9 μCi
2	"	—	52.4 "
5	"	4 μg	76.5 "
7	"	"	64.6 "
11	"	8 μg	36.5 "
12	"	"	65.1 "

45 MeV制動放射線照射 (1990. 7. 10)

3	20 μl	—	77.5 μCi
4	"	—	53.1 "
14	"	4 μg	33.7 "
16	"	"	51.0 "
13	"	8 μg	39.8 "
15	"	"	40.0 "

50 MeV制動放射線照射 (1990. 11. 28)

1	40 μl	—	74.5 μCi
2	20 μl	—	49.4 "
3	"	4 μg	68.2 "
4	40 μl	8 μg	86.9 "
5	20 μl	8 μg	72.7 "
6	"	"	77.3 "
7	40 μl	—	89.9 "

註1, ^{137}Cs 原液は182 $\mu\text{Ci}/20 \mu\text{l}$ であった。

註2, ^{133}Cs キャリアーの化学形は CsCl であるが、加えた量は Cs のみの重さになっている。

Table 2-2 サムコインシデンスによる検出効率の補正

検出器	^{136}Cs			^{132}Cs	^{137}Cs
	0.34062MeV	0.81856MeV	1.0481MeV	0.66773MeV	0.66165MeV
ORTEC	1.099	1.208	1.220	1.002	1.000
TENNELEC	1.070	1.131	1.132	1.002	1.000

Table 2-3 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の平均断面積

制動放射線	$\sigma_{137} / \sigma_{133}$	平均断面積	光子当量断面積	k
45MeV	1.15 ± 0.04	$119 \pm 6 \text{ mb}$	$142 \pm 7 \text{ mb}$	1.59
50MeV	1.68 ± 0.09 (1.03 ± 0.06)	$170 \pm 13^*$ $104 \pm 8^*$	$203 \pm 22^*$ $125 \pm 9^*$	2.66
60MeV	1.21 ± 0.11	124 ± 13	$162 \pm 17^*$	1.66

註1: カッコ内は、 $k = 1.63$ とした時の断面積(比)

註2: $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応の平均断面積はS. S. Dietrichら⁵⁾の励起関数から(9)式および(15)式で計算した。

エネルギー	平均断面積	光子当量断面積
45MeV	$102.39 \pm 5.24 \text{ mb}$	$124.1 \pm 3.1 \text{ mb}$
50MeV	$101.35 \pm 5.87^*$	$121.1 \pm 8.6^*$
60MeV	$104.14 \pm 3.15^*$	$134.3 \pm 6.1^*$

Table 4-1 安定同位体の組成

同位体 (化合物)	存在比 (%)	
$^{85}\text{RbCl}$	^{85}Rb	99.78 ± 0.02
	^{87}Rb	0.22 ± 0.02
$^{87}\text{RbCl}$	^{85}Rb	2.68 ± 0.04
	^{87}Rb	97.32 ± 0.01
^{98}Ru (metal)	^{96}Ru	0.78 ± 0.02
	^{98}Ru	82.93 ± 0.08
	^{99}Ru	7.00 ± 0.06
	^{100}Ru	2.62 ± 0.03
	^{101}Ru	2.26 ± 0.03
	^{102}Ru	3.11 ± 0.07
^{104}Ru (metal)	^{96}Ru	< 0.03
	^{98}Ru	< 0.05
	^{99}Ru	0.10 ± 0.00
	^{100}Ru	0.13 ± 0.00
	^{101}Ru	0.23 ± 0.00
	^{102}Ru	0.49 ± 0.00
^{106}CdO	^{106}Cd	79.01 ± 0.05
	^{108}Cd	0.68 ± 0.01
	^{110}Cd	3.03 ± 0.02
	^{111}Cd	2.60 ± 0.01
	^{112}Cd	5.56 ± 0.01
	^{113}Cd	1.73 ± 0.01
	^{114}Cd	6.21 ± 0.01
	^{116}Cd	1.18 ± 0.01
^{110}CdO	^{106}Cd	0.05
	^{108}Cd	0.08
	^{110}Cd	93.63 ± 0.07
	^{111}Cd	2.66 ± 0.03
	^{112}Cd	1.74 ± 0.02
	^{113}Cd	0.48 ± 0.01
	^{114}Cd	1.21 ± 0.02
^{116}CdO	^{106}Cd	0.10 ± 0.00
	^{108}Cd	0.13 ± 0.00
	^{110}Cd	0.63 ± 0.01
	^{111}Cd	0.76 ± 0.01
	^{112}Cd	1.37 ± 0.01
	^{113}Cd	0.60 ± 0.00
	^{114}Cd	2.53 ± 0.01
	^{116}Cd	93.88 ± 0.03

Table 4-1 続き

同位体 (化合物)	存在比 (%)		
$^{84}\text{SrCO}_3$	^{84}Sr	80.53	± 0.02
	^{86}Sr	4.41	± 0.06
	^{87}Sr	1.71	± 0.03
	^{88}Sr	13.32	± 0.15
$^{86}\text{SrCO}_3$	^{84}Sr	0.08	± 0.01
	^{86}Sr	97.02	± 0.04
	^{87}Sr	0.78	± 0.01
	^{88}Sr	2.12	± 0.03
$^{88}\text{SrCO}_3$	^{84}Sr	0.010	± 0.00
	^{86}Sr	0.050	± 0.00
	^{87}Sr	0.124	± 0.00
	^{88}Sr	99.816	± 0.01

Table 4-2 (γ, n) 反応の平均断面積

Isotope	平均断面積 σ (mb)	
	45 MeV	60 MeV
^{85}Rb	35.8 ± 1.21	57.3 ± 2.95
^{87}Rb	33.8 ± 1.18	59.0 ± 3.04
^{98}Ru	58.1 ± 1.97	88.3 ± 4.54
^{104}Ru	43.6 ± 1.48	62.6 ± 3.22
^{106}Cd	37.4 ± 1.39	46.9 ± 2.49
^{110}Cd	63.9 ± 2.53	77.7 ± 3.99
^{116}Cd	50.7 ± 2.36	71.8 ± 3.27
$^{84}\text{Sr}^*$		70.4 ± 3.62
$^{86}\text{Sr}^*$	41.4 ± 1.02	81.0 ± 3.15
$^{88}\text{Sr}^*$	50.6 ± 1.21	86.4 ± 3.15

*) 照射中の娘核の成長は考慮せず

Table 5-1 リコイルレンジ測定試料

試料名	試料の厚さ (mg/cm ²) *	キャッチャーフォイルの位置
C u 1	0. 1 1 0	ビームに対し下流側
C u 2	0. 1 1 2	"
C u 3	0. 0 9 4 6	ビームに対し上流側
C u 4	0. 0 9 0 5	"
C s 1	0. 0 8 6	ビームに対し下流側
C s 2	0. 0 8 3	"
C s 3	0. 0 7 4	ビームに対し上流側
C s 4	0. 0 6 1	"

*) 銅試料は金属、セシウムはC s C lの厚さ