

放射性廃棄物核種の 中性子反応断面積の研究 (Ⅳ)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1992年3月

名古屋大学工学部 加藤敏郎

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and
Nuclear Fuel Development Corporation Tokai 4 - 33, Muramatsu,
Tokai - mura, Naka - gun, Ibaraki - ken 319 - 11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation) 1992

放射性廃棄物核種の 中性子反応断面積の研究（Ⅳ）

（動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書）

1992年3月

名古屋大学工学部 加 藤 敏 郎

放射性廃棄物核種の中性子反応断面積の研究 (Ⅳ) *

(平成3年度委託研究)

加 藤 敏 郎**

要 旨

ウランの核分裂生成物中の長寿命核種の原子炉による消滅処理をおこなうための可能性を調べるためにそれらの核種の中性子捕獲断面積の値について調査と断面積の測定を行なった。

^{137}Cs については平成元年度に捕獲断面積，平成2年度に共鳴積分の測定を行なった。また， ^{90}Sr については平成2年度に捕獲断面積の測定を行なった。これらの結果はすでにそれぞれの年度の報告書にまとめてある。

平成3年度には ^{90}Sr の中性子捕獲断面積の確認を行なった。また， ^{135}Cs の捕獲断面積測定の予備実験も行なった。一方，これらの実験と平行してその他の核分裂生成核種 ^{85}Kr ， ^{93}Zr ， ^{99}Tc ， ^{107}Pd ， ^{129}I ， ^{135}Cs の測定値の現状についての調査も行なった。

^{135}Cs の捕獲断面積測定はほぼ 15 バーン程度の値が得られた。データ調査の結果は実測値は非常に少ないことを明らかにした。

* 本報告書は名古屋大学工学部（担当者：加藤敏郎）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。

** 名古屋大学工学部

OFFICIAL USE ONLY

PNC TJ8603 92-001

MARCH, 1992

Study of Neutron Reaction Cross Sections
of Radioactive Waste Nuclides(IV)*

Toshio Katoh**

ABSTRACT

Feasibility of the transmutation of the long-lived radioactive waste nuclides by the neutron capture is studied.

The measured value of the capture cross section of ^{90}Sr was confirmed by the gamma-ray measurement. The irradiated ^{90}Sr was chemically purified.

The capture cross section of ^{135}Cs was also measured by the measurement of gamma-ray from the irradiated ^{135}Cs source.

Data of the cross sections of ^{85}Kr , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs were investigated.

* Work performed by Toshio Katoh, Nagoya University, under the contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

** Department of Nuclear Engineering, Nagoya University

目 次

まえがき	1
1. $^{90}\text{Sr} (n, \gamma) ^{91}\text{Sr}$ 反応断面積の測定	2
1. 1. 試料調整と照射	2
1. 2. 化学分離	3
1. 3. 測定	3
1. 4. 解析と結果	4
2. $^{135}\text{Cs} (n, \gamma) ^{136}\text{Cs}$ 反応断面積の測定	5
2. 1. 実験	5
2. 2. データ解析	5
2. 3. 議論	9
2. 4. 結論	10
3. 主な核分裂生成核種の中性子捕獲断面積測定値の現状	11
4. まとめ	13
謝辞	13
参考文献	14
付録	20

放射性廃棄物核種の中性子反応断面積の研究（Ⅳ）

（動力炉・核燃料開発事業団 委託研究）

加 藤 敏 郎*

ま え が き

高レベル放射性廃棄物核種の処理処分の問題は原子力の今後の発展のためには避けて通れない重要な問題である。その方法の一つとして長寿命放射性核種を核反応を利用して短寿命あるいは安定な核種に変換させて比較的短い時間の間に非放射性核種に変える消滅処理の方法がある。使用済みの原子燃料のなかに含まれる放射性核種には（１）ストロンチウム-90，セシウム-137などの核分裂生成核種，（２）原子炉内の核反応により生成したアクチノイド元素および（３）残っているウラン，プルトニウムなどの原子燃料などである。本研究ではこれらの核種の中性子による核変換の断面積を調査し，必要な場合は測定し，消滅処理計画に必要なデータを求めることを目的とする。

セシウム-137については平成元年度に中性子捕獲断面積，平成2年度に共鳴積分の測定を行なった。ストロンチウム-90については平成2年度に捕獲断面積の測定を行なった。平成3年度はストロンチウム-90の測定値を確認し，セシウム-135の捕獲断面積を測定し，さらにこの他の核分裂生成核種の ^{85}Kr ， ^{93}Zr ， ^{99}Tc ， ^{107}Pd ， ^{129}I ， ^{135}Cs の捕獲断面積のデータの調査を行なった。

次年度は ^{90}Sr の共鳴積分の最終測定と ^{135}Cs の捕獲断面積の測定を計画している。

* 名古屋大学工学部

1. ^{90}Sr (n, γ) ^{91}Sr 反応断面積の測定

^{90}Sr は ^{137}Cs と同様に放射性廃棄物として大量に使用済み燃料のなかに存在し、かつ寿命が長く（半減期：30年）、長期間（約300年間）の対策が必要になる。そのために ^{137}Cs と同様に消滅処理が検討されている。そこでその中性子捕獲断面積の調査を行い、その結果、いままでの二つのデータは相互に大きく異なり、再測定をする必要があることがわかり、昨年断面積測定を行った¹⁾。本年は昨年の測定値の確認を行い、さらに共鳴積分の測定を行う予定であった。しかし実験のスケジュールの関係で ^{137}Cs の実験のときにあらわれた ^{135}Cs の中性子捕獲による ^{136}Cs からのガンマ線を測定して ^{135}Cs の捕獲断面積の値の確認することを先にすることになり ^{90}Sr の共鳴積分の測定が遅れ、現在データ整理中であり、ここでは捕獲断面積の再測定の結果を報告する。

1. 1. 試料調製と照射

断面積の測定は基本的には ^{137}Cs の場合と同じくターゲット核種と生成核種の量の比を放出放射線の強度の比から求める方法で行った。しかし、この場合には ^{90}Sr はガンマ線を放出しないので ^{90}Sr のトレーサーとして ^{85}Sr （ガンマ線エネルギー：514 keV）をあらかじめ試料の ^{90}Sr に混入させておきそのガンマ線を指標として用いた。混合試料のなかの ^{90}Sr と ^{85}Sr の割合は両者のベータ線強度とガンマ線強度の測定で求めておいた。

約 5 μl （約 10 kBq）の ^{85}Sr と ^{90}Sr を含む SrCl_2 の溶液を薄いマイラー膜に落として乾燥させて、この測定の試料として用いた。 ^{90}Sr の放射能は 2π ガスフロー型比例計数管を用いてベータ線を測定して決定した。その計数管の効率は標準線源で校正した。 ^{85}Sr は軌道電子捕獲（Electron Capture）型の崩壊なので ^{90}Sr のベータ線測定には影響がない。 ^{85}Sr の放射能はガンマ線の強度測定で決定した。 ^{90}Sr と ^{85}Sr の強度比は 131 ± 7 であった。

約 0.5 ml x 2 の混合試料を断面積測定の照射試料とした。これをそれ

ぞれ直径 10 mm, 長さ 3 cm のポリエチレンの管に入れて赤外線ランプで乾燥させたのち, 熱を加えてこの管を密閉し, さらにそれをひとまわり大きいポリエチレンの管に入れた。この外の管も熱を加えて密封し照射用カプセルにいった。カプセルには中性子束測定用のフラックスモニター線 (Co/Al および Au/Al) も入れてある。Co と Au の熱中性子および熱外中性子に対する感度は相互に異なるのでこの二つのモニターを用いることによって熱中性子および熱外中性子のフラックスをもとめることができる。

照射試料は日本原子力研究所の 4 号炉で 10 分間の中性子照射を受けた。照射位置での熱中性子束は $4 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ であった。熱外中性子に対するウエストコットコンベンションの指数は 0.03 であった。

照射中の反応による ^{85}Sr の減少はこの条件では, たとえ反応断面積が 10,000 バーンであっても無視出来るので考えないことにした。

1. 2. 化学分離

照射試料の化学分離は照射終了の 90 分後から始めた。容器のポリエチレンの管を開封し, 試料の SrCl_2 を水で洗浄し, イオン交換樹脂のコラムにセットした。約 30 ml の 2 N の硝酸を加え, 濾過された溶液を 2.5 ml または 5 ml ごとにバイアルに集めた。バイアル中の ^{85}Sr の量はガンマ線計測でモニターした。この結果, 放射性ストロンチウムが ^{24}Na , ^{38}Cl , ^{90}Y から分離されていることが確認された。分離された $\text{Sr}(\text{NO}_3)$ 溶液に 20 mg の SrCO_3 を加え, さらに 8 ml の 5 N - NaOH と 8 ml の 0.2 N - NaCO_3 を加えて, SrCO_3 の沈殿を作った。この沈殿を乾燥させて測定用線源とした。

1. 3. 測定

ガンマ線測定は 90 % の効率の高感度ゲルマニウム検出器で行なった。ベータ線からの制動輻射の影響を減らすためにプラスチック板と鉛板の吸収板を線源と検出器の間に置いた。この結果制動輻射をおおいに減らすことが出来て装置の不感時間を 1 % 以下にすることが出来た。さらにこのシステム全

体を厚さ 15 cmの鉛遮蔽の箱に入れ（図 1 参照），周辺からのバックグラウンドを減少させた。検出器からのシグナルは 4 k メモリーに蓄積し，1 時間ごとにフロッピーディスクに記録した。検出器の効率 は混合標準線源で校正した。

1. 4. 解析と結果

測定されたガンマ線スペクトル中には ^{85}Sr と ^{91}Sr のガンマ線ピークを観測することが出来た。 ^{91}Sr のガンマ線（750 keV, 1,024 keV）の半減期測定を行なって，これらのガンマ線が確かに ^{91}Sr からのものであることを確認した。この結果，昨年の $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ 反応の断面積（ σ ）の値（15.3 mb）が確認された。中性子エネルギーが 25 meV(2,200 m/s)での断面積（ σ_0 ）は次の式によって熱外中性子による共鳴積分を考慮することによって得られるが， ^{137}Cs の場合と同様に熱外中性子の影響は数パーセント以下と考えられる。

$$\sigma = \sigma_0 (g \cdot G_{th} + r \sqrt{(T/T_0)} \cdot s_0 \cdot G_{epi})$$

$r \sqrt{(T/T_0)}$: 熱外中性子の割合

s_0 : 共鳴積分を含む項

G_{th}, G_{epi} : 自己遮蔽に関する項

g : スペクトルの $1/v$ 則からのズレを示す項

2. $^{135}\text{Cs} (n, \gamma) ^{136}\text{Cs}$ 反応断面積の測定

^{135}Cs は ^{137}Cs と同様に核分裂生成物として使用済み核燃料中に存在する。

崩壊形式は低エネルギーのベータ線放出であり、半減期は 3×10^6 年である。使用済み燃料取り扱いの初期にはあまり問題にはならないが、長期にわたって残留するのでいつまでも放射線を出し続ける。

^{137}Cs の断面積測定の際にスペクトル中に ^{136}Cs からのガンマ線 (1,048 keV) を観測したので ^{135}Cs の中性子反応断面積の測定も行なうことにして予備実験を行なった。

2. 1. 実験

実験は ^{137}Cs を照射試料とし、その中に含まれる ^{135}Cs の量を ^{137}Cs との比較でもとめることにし、平成元年度と同様にしてガンマ線測定で放射能強度を求める方法でおこなった。したがって実験の詳細は省略するが要点のみを記しておく。

試料の照射は日本原子力研究所の4号炉でおこなった。中性子束はモニター線 (Co/Al, Au/Al) で測定した。試料は照射後、化学分離を行なって不純物 (とくに ^{24}Na , ^{38}Cl) を除去した。ガンマ線測定は検出効率 90 % のゲルマニウム検出器で測定した。得られたスペクトル (図2参照) には前回同様に ^{138}Cs とともに ^{136}Cs のガンマ線ピーク (ガンマ線エネルギー: 1,048 keV) が見られた。このスペクトルから以下に示すようにして $^{135}\text{Cs} (n, \gamma) ^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積を求めた。

2. 2. データ解析

^{136}Cs は ^{135}Cs から中性子捕獲反応で生成されるものとし、 ^{137}Cs の $(n, 2n)$ 反応の寄与は無視できるものとする。 N_1 を試料中の ^{137}Cs の原子核数、 αN_1 を ^{135}Cs の原子核数とする。照射直後の ^{136}Cs の放射能 ($\lambda_2 N_2$)

は次の式で与えられる。

$$(\lambda_2 N_2) = \alpha N_1 \cdot \phi \cdot \sigma (1 - \exp(-\lambda_2 T_{IR})) \quad (1)$$

σ : ^{135}Cs の中性子捕獲断面積

ϕ : 中性子束

T_{IR} : 照射時間

$^{137}\text{Cs} (n, \gamma)$ の場合と同じように測定を $t_1 \sim t_2$ の間で行なったときの断面積とピークカウントの関係は次の式で与えられる (付録参照)。

$$\alpha \cdot \sigma = \frac{[N_2] \cdot b_1 \varepsilon_1 \cdot (t_2 - t_1) \lambda_1 \lambda_2}{[N_1] \cdot b_2 \varepsilon_2 \phi [\exp\{-\lambda_2(t_1 - T_{IR})\} - \exp\{-\lambda_2(t_2 - T_{IR})\}]} \times \frac{1}{\{1 - \exp(-\lambda_2 T_{IR})\}} \quad (2)$$

$[N_1]$: ^{137}Cs のガンマ線 (662 keV) の計数値

$[N_2]$: ^{136}Cs のガンマ線 (1,048 keV) の計数値

b_1, b_2 : それぞれ 662 keV および 1,048 keV ガンマ線の分岐比

$\varepsilon_1, \varepsilon_2$: それぞれ 662 keV および 1,048 keV ガンマ線の検出効率

λ_1, λ_2 : それぞれ ^{137}Cs および ^{136}Cs の崩壊定数

ϕ : 中性子束

ここで ^{136}Cs の半減期 (13 日) は測定時間に比べて充分長いので

$\lambda_2(t_1 - T_{IR}), \lambda_2(t_2 - T_{IR}), \lambda_2 T_{IR}$ は 1 にくらべて充分小さいとしてよい。その結果, 上の式は次のように書ける。

$$\alpha \cdot \sigma = \frac{[N_2] \cdot b_1 \varepsilon_1 \cdot \lambda_1}{[N_1] \cdot b_2 \varepsilon_2 \phi \cdot \lambda_2 T_{IR}} \quad (3)$$

表1に9回の測定の 662 keVおよび 1,048 keVのガンマ線の計数値およびそのうちの6回の "Cd 無し"の結果による $\alpha \cdot \sigma$ の値を示す。中性子束は各測定ごとに測定しているが、その値は $(3.1 \sim 3.9) \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ であった。

得られた $\alpha \cdot \sigma$ の重みつき平均値は

$$\langle \alpha \cdot \sigma \rangle = 16.0 \pm 0.4 \text{ b.}$$

となった。ここで誤差は統計誤差のみを考えている。

この計算に用いたパラメーターは次の通りである。

ゲルマニウム検出器の検出効率(%) :

距離	662 keV	1,048 keV
5 cm	1.83	1.29
7 cm	1.19	0.862

ガンマ線分岐比 :

ガンマ線	分岐比
662 keV	0.850 ± 0.005
1,048	0.798 ± 0.008

崩壊定数：

$$\lambda_1 : 7.29 \times 10^{-10} / s$$

$$\lambda_2 : 6.10 \times 10^{-7} / s$$

中性子束：

Run	ϕ
	$\times 10^{13} n/cm^2/s$
Cs03	3.7 ± 0.2
Cs04	3.8 ± 0.2
Cs05	3.9 ± 0.1
Cs06	3.8 ± 0.2
Cs08	3.4 ± 0.2
Cs11	3.1 ± 0.2

共鳴積分のパラメーターについて：

この実験では照射試料にカドミウムをかぶせた照射 (Run Cs09, Cs10, Cs12) もおこなった。この結果と組合せることによって共鳴積分の影響を示す項 S の評価も出来る。

$$S = \frac{2 \cdot I_o'}{\pi^{-1/2} \cdot \sigma_o} \quad (4)$$

I_o' : $1/v$ を差し引いた共鳴積分の値

各 Runに対する S の値は

Run	S
08 & 09	2.92 ± 2.95
08 & 10	4.90 ± 4.39
11 & 12	1.40 ± 25.3
重みつき平均値	3.5 ± 2.4

2. 3. 議論

^{135}Cs の中性子捕獲断面積は A.P.Baerg²⁾ によれば

$$\sigma = 8.7 \pm 0.5 \text{ b}$$

であり，共鳴積分の値は

$$I = 62 \pm 2 \text{ b}$$

である。

これらの値とわれわれの測定値を比較するためには照射試料中の ^{137}Cs と ^{135}Cs の原子核数の比を知る必要がある。現在の照射試料内での比は不明であるが，一応，核分裂収率³⁾の比を考えると $\alpha = 1.04$ と考えられる。この値を用いれば， ^{135}Cs の捕獲断面積は $\sigma = 15.38 \text{ b}$ となり，Baerg の値の約 2 倍となる。また， $\alpha = 1.84$ であればわれわれの結果と Baerg の結果は一致することになる。

一方，共鳴積分に関する項については

$$I_0 = I_0' + 0.45 \cdot \sigma$$

の関係式を用いれば、Baergの値からは $S = 7.5 \pm 0.5$ が得られる。この値はわれわれの値の約2倍の値である。

いずれの値もわれわれの場合は、まだ不確かな点もあるので明確な結論は出せないが相互にかなり近い値が得られたと考えられる。

2. 4. 結論

^{135}Cs の中性子捕獲反応断面積は ^{137}Cs と ^{135}Cs の共存する混合試料を用い、生成核と試料核の放射能比をガンマ線計測で求める方法により得ることができることがわかった。 ^{137}Cs と ^{135}Cs の原子核数の比を求めることが必要である。われわれの予備実験の結果からはこの原子核数の比をほぼ1としたときには ^{135}Cs の断面積の値は従来報告された値の約2倍である。今後はこの比を正確に求めて断面積の値を求める予定である。

求められた値に高速中性子による $^{137}\text{Cs}(n, 2n)$ 反応の影響がはいる可能性がある。一般に $(n, 2n)$ 反応は核種依存性が少ないので近くの核種 ^{133}Cs を用いて測定することができると考えられる。 ^{133}Cs は自然存在比が100%なので比較的簡単に生成放射能 ^{132}Cs のガンマ線計測でこの中性子場での $(n, 2n)$ 反応の影響を測定できる。 $^{133}\text{Cs}(n, 2n)$ 反応モニターは照射場における $(n, 2n)$ 反応の可能性を吟味する上で有効と考えられる。

3. 主な核分裂生成核種の中性子捕獲断面積測定値の現状

主な核分裂生成核種の中性子捕獲断面積の測定値の現状について調査を行った。調査は ^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{137}Cs について行なった。これらの核種のうち, ^{137}Cs と ^{90}Sr についてはすでに過去の値およびわれわれの測定値について報告をおこなった^{1), 4)}。表2にはこの二核種のデータをふくめて調査結果を記しておく。一般にいえることはこのような放射性核種の中性子反応断面積の測定のデータは非常に少ないことである。以下に ^{90}Sr と ^{137}Cs 以外の各核種についてのデータについて述べる。

^{85}Kr : この核種については 1972 年に Bemis⁵⁾ の測定がある。これは放射性の ^{85}Kr をアルミニウム箔に打ち込んで中性子照射を行い照射後アルミニウム箔を溶かして Kr ガスを追い出して質量分析器に導き、質量分析で放射性の ^{85}Kr と安定な ^{86}Kr の存在比を求めて、断面積を出している。得られた断面積の値は 1.66 ± 0.20 b. であった。

^{93}Zr : この核種については透過法と中性子飛行時間測定による共鳴パラメターの測定があるのみで熱中性子の断面積は評価値のみである³⁾。

^{99}Tc : この核種の断面積は Ovechkin⁶⁾, Lucas⁷⁾, Pattenden⁸⁾ によって測定されている。Ovechkinの測定は ^{238}Pu -Be 中性子源を用いた放射化法であり、ガンマ線計測で生成量を決定している。Lucas の実験は原子炉中性子による放射化法である。Pattenden の測定は原子炉に付設した結晶スペクトロメーターを用いた透過法である。得られた値はそれぞれ表2に示してある。

^{107}Pd : ^{107}Pd については共鳴パラメターの測定値があるのみで捕獲断面積は評価値³⁾のみである。

^{129}I : Block⁹⁾ はオークリッジ研究所の高速チョッパー中性子飛行時間法で ^{129}I の断面積を 0.0205 eVから 0.0453 eVまでの間で測定した。得られた断面積のデータを最小二乗法で処理して 2,200 m/sの中性子に対する断面積として 35 ± 4 barnという値を得た。

^{135}Cs : この核種については二つの実験があり、それぞれ特徴がある。

Baerg²⁾ の測定は ^{136}Cs と ^{137}Cs の放射能比を放射線測定で行い、 ^{135}Cs と ^{137}Cs の比は質量分析で行なって両者を合わせて断面積の値を求めている。

Sugarman¹⁰⁾ は ^{135}Cs を ^{135}Xe からの崩壊で求め、したがってその放射能の量も親核の ^{135}Xe の放射能から求めている。それぞれの結果は表2に示してある。相互に若干の食い違いが見られる。われわれの予備的な測定値はどちらかといえば Sugarman の結果に近いがまだ不確かな点もあり今後、再測定を行ないたい。

4. まとめ

平成3年度は前年度測定 of ^{90}Sr の中性子捕獲断面積の値の確認を行い、 ^{135}Cs の捕獲断面積測定を予備的に行なって断面積値の大きさの見通しをつけ、その他の核分裂生成物 of 中性子捕獲断面積値測定 of 現状についての調査を行なった。調査の結果、重要な核種についてデータはほとんど無いが、あっても不確かなものが多いことが判明した。

謝辞

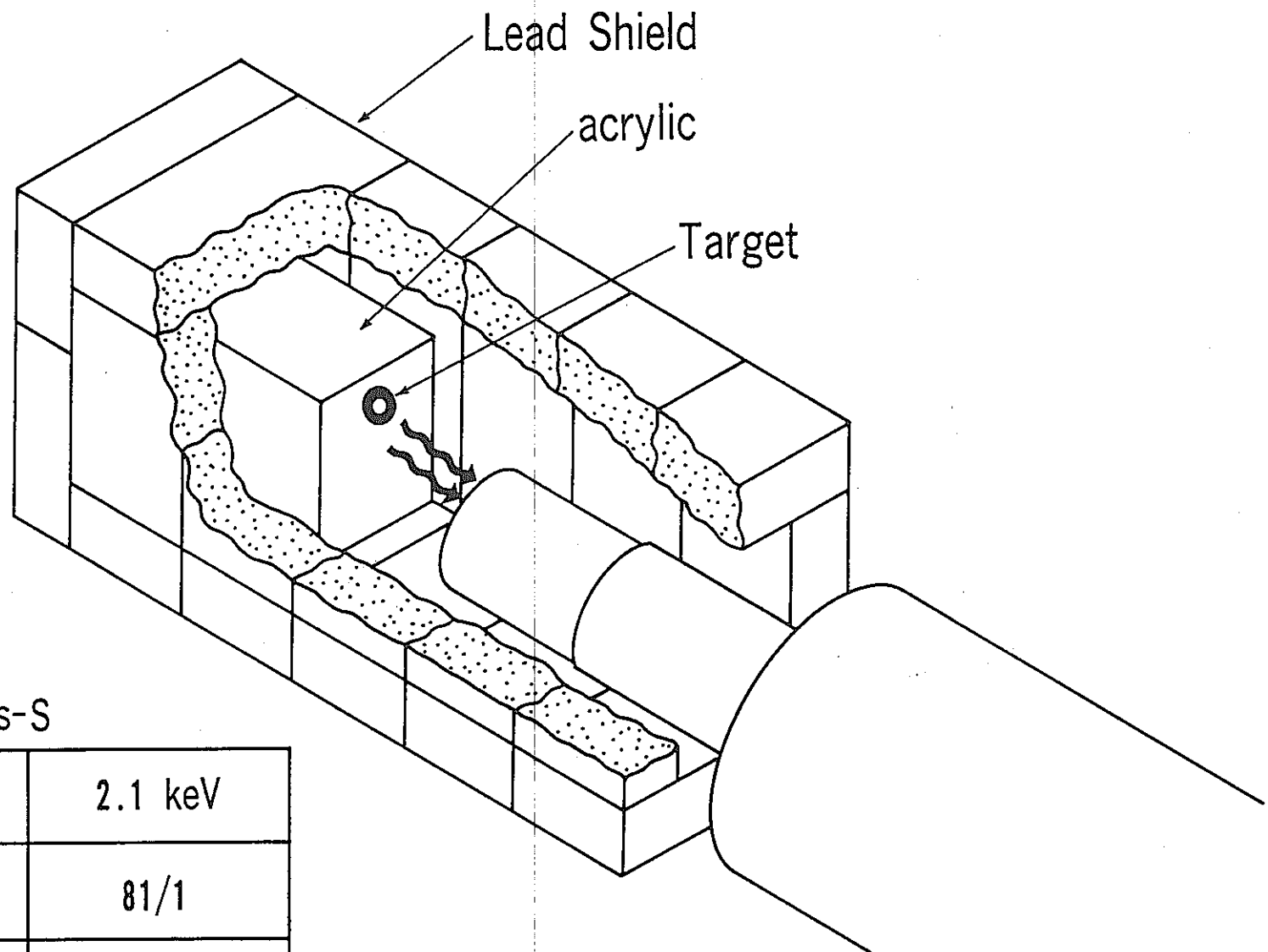
本研究は動力炉・核燃料開発事業団からの委託によるものである。この研究を実施する機会を与えられた同事業団には深く感謝致します。同事業団の笹尾信之氏、小無健司氏および加瀬健氏には絶えずご支援とご協力をして頂きました。原田秀郎氏は平成元年、平成二年の2年間実験をともにし、本年は絶えず貴重なご意見を賜りました。日本原子力研究所の関根俊明氏、初川雄一氏、小林勝利氏、大槻勤氏、および重田典子氏は実験とデータ解析に協力して頂きました。以上の方々には深く感謝致します。

参考文献

- 1) 加藤敏郎： 動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書
PNC PJ1603 91-002, 1991年 3月
- 2) A.P.Baerg et al. : Can. J. Phys. 36(1958) 863
- 3) JNDC Group: JAERI 1320 (1990)
- 4) 加藤敏郎： 動力炉・核燃料開発事業団成果報告書
PNC J1603 90-002 1990年 3月
- 5) C.E.Bemis et al. : Nuclear Sci. Engineering 47(1972) 371
- 6) B.B.Ovechkin et al. : INIS-mf-1543 Conf. on Neutron Physics, at
Kiev vol. 2(1973) 131
- 7) M.Lucas et al. : IAEA-TC-119/14
- 8) N.J.Pattenden : P/11 UK
- 9) R.C.Block et al. : Nuclear Sci. Engineering 8(1960) 112
- 11) N.Sugarman : Phys. Rev. 75(1949) 1473

HP GE Detector
Ortec GEM-90210-Plus-S

Resolution (FWHM) at 1.33 MeV	2.1 keV
Peak to Compton	81/1
Efficiency	93 %



Schematic setup for the measurement of the radioactivity

図 1. ゲルマニウム検出器と遮蔽体との配置図

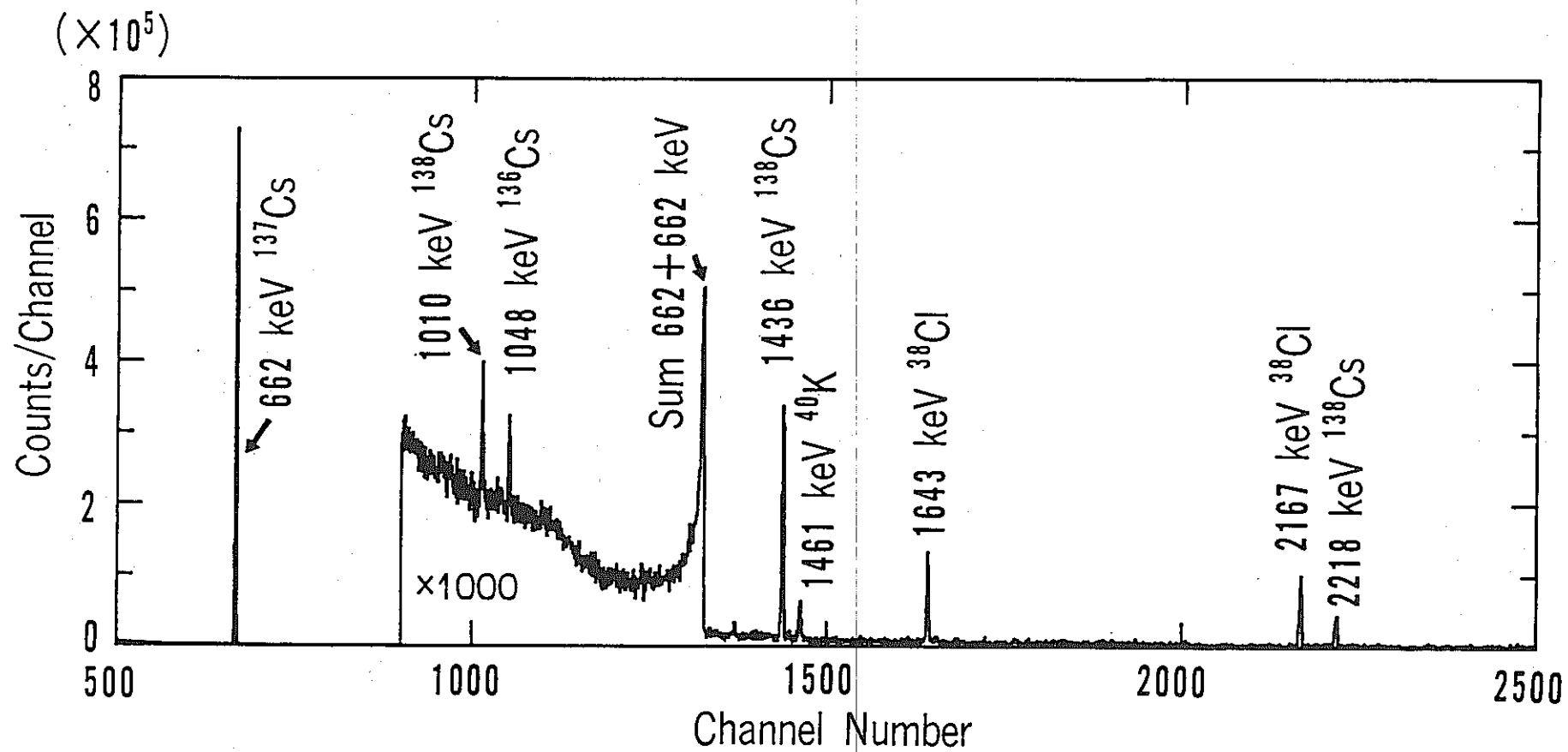


図 2. 中性子照射後の ^{137}Cs — ^{135}Cs 混合試料からの
ガンマ線スペクトル

表 1. $^{137}\text{Cs}-^{136}\text{Cs}$ 混合線源からのガンマ線測定の結果

Run [*]	距 離	Cdの 有 無	662 KeV		1048 KeV		$\alpha \cdot \sigma$
			ピークカウント	統計誤差	ピークカウント	統計誤差	
CS03	5cm	無	2.008×10^7	4507	4119	211	16.6 ± 0.9
CS04	7cm	無	4.931×10^6	2229	935	59	14.6 ± 0.9
CS05	7cm	無	1.978×10^7	4472	4070	183	15.5 ± 0.7
CS06	7cm	無	1.942×10^7	4430	4320	180	17.1 ± 0.7
CS08	5cm	無	1.601×10^7	4029	523	151	16.4 ± 4.7
CS09	5cm	有	2.009×10^7	4510	598	149	
CS10	5cm	有	1.146×10^7	3407	443	103	
CS11	5cm	無	1.171×10^7	3444	1911	152	15.8 ± 1.3
CS12	5cm	有	7.253×10^6	2713	135	110	

重みつき平均値 16.0 ± 0.4 barn

表 2. 核分裂生成核種の中性子捕獲断面積測定値等

核 種	核分裂収率*	半減期	Data No.	捕獲断面積	測 定 方 法	測定者等 (文献)
^{85}Kr	0.27 %	11 年	1	1.66 ± 0.20 b	^{85}Kr を埋め込んだ Al 箔を ORNLの原子炉で照射, 質量分析で $^{86}\text{Kr}/^{85}\text{Kr}$ を得た.	C. E. Bemis, et al., N. S. E., 47, 371('72)
			2	1.66 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
^{90}Sr	5.9	29	3	0.8 ± 0.5 b	ガンマ線スペクトル測定	G. Zeisel, Acta Phys Austr 23, 223('66)
			4	14.0 ± 2.4 mb	放射化法, ガンマ線測定	L. A. McVey, J. Radioanal Chem 76, 131('83)
			5	15.3 ± 1.3 mb	放射化法, ^{85}Sr を指標として ^{85}Sr と ^{91}Sr のガンマ線を比較測定	原田, 関根, 加藤その他核データ研究会で発表 ('91)
			6	0.9 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
^{93}Zr	6.39	1.5E6	7	2.25 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
			8	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E., 92, 525('86)
^{99}Tc	6.1	2.1E5	9	24 ± 4 b	$^{238}\text{Pu-Be}$ 線源を用いた放射化法	B. B. Ovechkin et al INIS-mf-1543,
			10	30 ± 2 b	原子炉に設置した結晶スペクトロメーターで測定	N. J. Pattenden, P/11 UK
			11	19.9	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
			12	$20 + 186$ r	原子炉での放射化法	M. Lucas, IAEA-TC-119/14
			13	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 81 520('82)

*核分裂収率は " JNDC: JAERI 1320('90)" から引用

表 2 (つづき). 核分裂生成核種の中性子捕獲断面積等

核 種	核分裂収率*	半減期	Data No.	捕獲断面積	測 定 方 法	測定者等 (文献)
^{107}Pd	0.14	6.5E6	14	(共鳴パラメータの測定)		U. N. Singh, N. S. E. 67 54('78)
			15	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 89 79('85)
			16	2.0 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
^{129}I	0.71	1.6E7	17	35 ± 4 b	ORNL fast chopper T O F	R. C. Block et al., N. S. E. 8, 112('60)
			18	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 85 85, 350('83)
			19	27 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
^{135}Cs	6.5	2.3E6	20	14.5 ± 4 b	放射化法, 吸収, 崩壊曲線	N. Sugarman, Phys Rev 75 1473('49)
			21	8.7 ± 0.5 b	放射化法, $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の 質量分析と $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の 放射能比から	A. P. Baerg, Can J Phys 36, 863('58)
			22	$\alpha \cdot \sigma = 16$ b	放射化法, $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の 放射能比を求めた。 α は $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の原子核数比	原田, 関根, 加藤その他 未発表
			23	6.5 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
^{137}Cs	6.27	30.	24	0.11 ± 0.03 b	放射化法, 試料核と生成核 は別々に測定	D. C. Stupiega, J. Nucl. Energy, 12, 16('60)
			25	0.250 ± 0.013 b	放射化法, 試料核と生成核 の放射能の同時測定	H. Harada, T. Sekine, T. Katoh et al., J. Nucl. Sci. Tech. 27, 577('90)
			26	0.11 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)

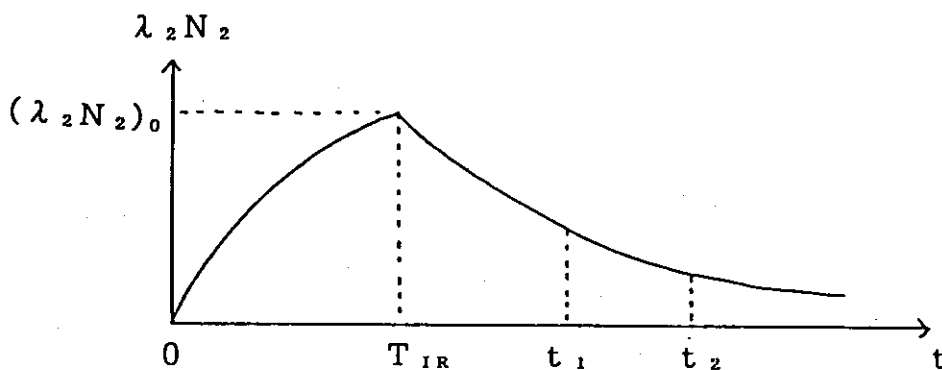
*核分裂収率は " JNDC: JAERI 1320('90)" から引用

付 録 ガンマピークの計数値と断面積の関係

測定したガンマスペクトルのガンマ線ピークの計数値から断面積を求めた。本研究では照射試料と生成核からのガンマ線を同じスペクトル上で観測してそれらの強度を比較することによって断面積を求めた。以下に ^{137}Cs の 662 keV のガンマ線と ^{138}Cs の各ガンマ線を同じスペクトル上で観測した場合について説明する。この方法によれば不感時間などは自動的に補正されるのでそれだけ精度が上がるし、実験の手続きも簡単になる。具体的な計算の手順を次に示す。なお、 ^{90}Sr と ^{91}Sr の場合も原理的にはおなじであるが、 ^{90}Sr はガンマ線を放出しないので ^{85}Sr を照射試料に混合し、 ^{85}Sr からのガンマ線（ガンマ線エネルギー：514 keV）を指標とした。

照射開始時刻を時間の原点にとる。

T_{IR} を照射時間（照射終了時刻）とし、その後冷却の後、時刻 t_1 から t_2 の間、測定を行なうものとする。この時、 ^{138}Cs の放射能は下図のように変化する。



照射直後の ^{138}Cs の放射能 $(\lambda_2 N_2)_0$ は次の式①で与えられる。

$$(\lambda_2 N_2)_0 = N_1 \phi \sigma (1 - \exp(-\lambda_2 T_{\text{IR}})) \quad \cdots \quad \textcircled{1}$$

ここで、 λ_2 は ^{138}Cs の崩壊定数、 N_1 は ^{137}Cs の原子数、 ϕ は熱中性子束、 σ は $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応断面積である。

式①より求める断面積は次のようになる。

$$\sigma = \frac{(\lambda_2 N_2)_0}{\lambda_1 N_1} \cdot \frac{\lambda_1}{(1 - \exp(-\lambda_2 T_{IR})) \cdot \phi} \quad \text{①'}$$

時刻 t_1 から t_2 の間の ^{138}Cs の崩壊数を n_2 とすると

$$\begin{aligned} n_2 &= (\lambda_2 N_2)_0 \int_{t_1}^{t_2} \exp\{-\lambda_2(t - T_{IR})\} \cdot dt \\ &= (\lambda_2 N_2)_0 \cdot [\exp\{-\lambda_2(t_1 - T_{IR})\} - \exp\{-\lambda_2(t_2 - T_{IR})\}] / \lambda_2 \end{aligned}$$

となる。

これから

$$(\lambda_2 N_2)_0 = \frac{\lambda_2 n_2}{\exp\{-\lambda_2(t_1 - T_{IR})\} - \exp\{-\lambda_2(t_2 - T_{IR})\}}$$

したがって、

$$\frac{(\lambda_2 N_2)_0}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2 n_2}{\lambda_1 N_1} \cdot \frac{1}{\{\exp(\lambda_2 T_{IR})\} \cdot \{\exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2)\}} \quad \dots \text{②}$$

が得られる。

式②を式①'に代入すると、

$$\sigma = \frac{\lambda_2 n_2}{\lambda_1 N_1} \cdot \frac{1}{\exp\{-\lambda_2(t_1 - T_{IR})\} - \exp\{-\lambda_2(t_2 - T_{IR})\}} \times$$

$$\times \frac{\lambda_1}{\{1 - \exp(-\lambda_2 T_{IR})\} \phi} \dots \textcircled{3}$$

^{138}Cs のガンマ線の計数値を $[N_2]$ とすると

$$[N_2] = n_2 \cdot b_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot R \dots \textcircled{4}$$

と書ける。ここで、 b_2 は測定したガンマ線の分岐比、 ε_2 は検出効率、 R は (Live time)/(Real time) で不感時間の補正項である (R は最終的には分子と分母で打ち消しあうので計算には必要ない)。

同様に、 ^{137}Cs の計数値を $[N_1]$ とすると

$$[N_1] = \lambda_1 N_1 (t_2 - t_1) \cdot b_1 \cdot \varepsilon_1 \cdot R \dots \textcircled{5}$$

となる。ここで b_1 は 662 keV のガンマ線の分岐比、 ε_1 はその検出効率である。

式④と式⑤を式③に代入すると、次の式⑥が得られる。

$$\sigma = \frac{[N_2] \cdot b_1 \varepsilon_1 \cdot \lambda_1 \lambda_2 (t_2 - t_1)}{[N_1] \cdot b_2 \varepsilon_2 \cdot [\exp\{-\lambda_2(t_1 - T_{IR})\} - \exp\{-\lambda_2(t_2 - T_{IR})\}]} \times$$

$$\times \frac{1}{\{1 - \exp(-\lambda_2 T_{IR})\} \cdot \phi} \dots \textcircled{6}$$

この式から断面積 σ が得られる。