

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	長寿命核分裂生成物[99]Tc及び[129]IのkeV中性子捕獲反応の研究
Title(English)	
著者(和文)	松本哲郎
Author(English)	
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第5397号, 授与年月日:2003年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第5397号, Conferred date:2003/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

学位論文

長寿命核分裂生成物 ^{99}Tc 及び ^{129}I の
keV 中性子捕獲反応の研究

指導教官

井頭 政之 助教授

東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻

00D19039 松本 哲郎

〒152-8550 東京都目黒区大岡山 2-12-1

2003 年 3 月

概要

高速炉を用いた長寿命核分裂生成物 (LLFP) の核変換処理研究では、個々の LLFP の精度良い keV 中性子捕獲断面積が必要不可欠である。また、keV 中性子捕獲 γ 線スペクトルは、keV 中性子捕獲反応機構を解明する上で重要な核データである。しかしながら、LLFP の keV 中性子捕獲断面積の実験データは質・量ともに極めて乏しく、また、keV 中性子捕獲 γ 線スペクトルの実験データは皆無である。そこで本研究では、LLFP の中で最も重要な核種である ^{99}Tc と ^{129}I について、 $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応パルス化中性子源と大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) γ 線検出器を用いた中性子飛行時間法により、keV 中性子捕獲 γ 線を精度良く測定した。共に 1g 以下の試料を用い、特に ^{129}I については多量の不純物が混在した試料を用いて測定を行い、得られた波高スペクトルに波高重み法を適用することによって、入射中性子エネルギー 10-600 keV における ^{99}Tc と ^{129}I の捕獲反応断面積をそれぞれ誤差約 5 % と約 10 % で導出することができた。また、波高スペクトルをアンフォールディングすることによって捕獲 γ 線スペクトルを初めて求めることができた。捕獲断面積については、過去の測定値および評価済み核データライブラリ JENDL-3.2 と ENDF/B-VI の評価値と今回の結果を比較し考察した。また、 ^{99}Tc の測定において、コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器のコリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を挿入した場合と挿入しない場合の測定を行い、この 2 種類の測定結果が互いに良く一致することを確かめることによって、本研究の波高重み法を用いた実験データ解析の信頼性を確認した。また、 ^{129}I の実験データ解析を通して、多量の不純物が混在した試料を用いた測定から中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルを導出する際の要点を明らかにした。

^{99}Tc と ^{129}I の keV 中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルについて統計モデルによる計算を行い、計算結果と今回の測定結果とを比較検討した。Lorentz 型の電氣的双極子 (E1) γ 線強度関数を用いて計算した結果、keV 中性子捕獲断面積はかなり良く再現できるが、捕獲 γ 線スペクトルについては再現しないことが分かった。そこで、計算が ^{99}Tc と ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルをできるだけ再現するように、 ^{100}Tc と ^{128}I の E1 γ 線強度関数を修正した。更に、得られた ^{128}I の修正 E1 γ 線強度関数を用いて ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルの計算を行い、測定結果との比較を行った。また、修正 E1 γ 線強度関数を用いて ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{127}I の keV 中性子捕獲断面積を計算し、本研究で得られた実験値と比較検討した。

目次

第1章 序論	1
第2章 実験	13
2.1 概要	13
2.2 ペレトロン加速器	14
2.3 中性子源	16
2.4 中性子検出器	17
2.4.1 ^6Li ガラスシンチレーション検出器	17
2.4.2 中性子測定系回路	21
2.5 γ 線検出器	21
2.5.1 大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器	21
2.5.2 NaI(Tl) 検出器系回路	23
2.5.3 応答関数	24
(I) コリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を加えない場合	24
(II) コリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を加えた場合	28
2.5.4 波高重み法	30
2.5.5 重み関数	34
2.6 試料	34
2.6.1 ^{99}Tc	36
2.6.2 ^{129}I	36
2.7 測定	39
第3章 データ解析	42
3.1 入射中性子エネルギー分布	42
3.2 TOF スペクトル	44
3.2.1 ^{99}Tc	44
3.2.2 ^{129}I	49
3.3 波高スペクトル	49

3.3.1	^{99}Tc の正味の波高スペクトルの導出	54
	(I)8-90 keV 実験	54
	(II)190、330、540 keV 実験	54
3.3.2	^{129}I の正味の波高スペクトルの導出	57
	(I)16-90 keV、150 keV 実験	57
	(II)560 keV 実験	59
	(III) ^{127}I 実験のデータ解析	62
3.4	中性子捕獲断面積	67
3.5	中性子捕獲 γ 線スペクトル	67
3.6	補正	68
3.6.1	中性子自己遮蔽・多重散乱効果	68
3.6.2	100 keV 以下の実験における Gate1(8-15 keV) に存在する時間依存バックグラウンドの補正	74
3.6.3	γ 線発生位置依存・多重散乱効果	77
3.6.4	正味の波高スペクトルのディスクリレベル以下の外挿補正	78
3.6.5	その他の補正	78
	(I) 不純物	78
	(II) デッドタイム	79
3.7	誤差	79
第 4 章	実験結果と考察	81
4.1	^{99}Tc の実験結果と考察	81
4.1.1	[Tc 実験 A] と [Tc 実験 B] の比較	81
4.1.2	中性子捕獲断面積	81
4.1.3	中性子捕獲 γ 線スペクトル	86
4.2	^{129}I の実験結果と考察	86
4.2.1	中性子捕獲断面積	86
4.2.2	中性子捕獲 γ 線スペクトル	90
第 5 章	理論解析の方法と結果	93
5.1	中性子捕獲断面積の計算	93
5.2	捕獲 γ 線スペクトルの計算	94
5.3	原子核準位密度関数	96
5.4	γ 線強度関数	98
5.5	捕獲 γ 線スペクトルの計算結果と実験結果の比較 1	99
5.6	捕獲 γ 線スペクトルの計算結果と実験結果の比較 2	103

5.6.1	E1 γ 線強度関数の修正	103
5.6.2	^{99}Tc	103
5.6.3	^{129}I と ^{127}I	105
5.7	中性子捕獲断面積の計算結果と実験結果の比較	108
第6章	結論	114
付録A	^{129}I試料の放射化分析	116
A.1	実験	116
A.2	解析	116
A.2.1	検出効率	116
A.2.2	入射中性子フラックスの導出	117
A.2.3	^{127}I と ^{129}I の原子核数の導出	119
A.3	結果	120

第1章 序論

原子炉で生成される長寿命核分裂生成物 (LLFP) の処理・処分については現在、他の放射性核種と共にガラス固化・一時貯蔵・地中埋設を行うことが国策となっている。しかし、LLFP の地中埋設を行えば長期管理が必要となり、また長期管理後にも人工及び天然バリアが破れて、埋設処分した LLFP の一部が生活圏へ出現する可能性があり、その場合、出現した LLFP の公衆に与える影響が重要問題となる可能性がある。従って、原子炉で生成された LLFP の全てを地中埋設する場合には、生活圏に出現する LLFP の放射能を公衆への影響が無いレベルにまで低く抑える必要があるため、人工及び天然バリアを堅固なものにする必要がある。即ち、LLFP の生活圏出現を防ぐための環境負荷は大きなものとなる。

LLFP の潜在的毒性を表す指標の1つとして、国際放射線防護委員会 (ICRP) が定めた年経口摂取限度 (ALI) を用いて、

$$\text{核種 } i \text{ の潜在的毒性指数} = \frac{\text{核種 } i \text{ の放射能 (Bq)}}{\text{核種 } i \text{ の経口年摂取限度 (Bq)}} \quad (1.1)$$

で定義される潜在的毒性指数がある。表 1.1 に、原子炉で生成される核分裂生成物 (FP) の内、半減期が 10^4 年以上のもので、潜在的毒性指数が大きい主要 LLFP である 7 核種を示す。表 1.1 では、潜在的毒性指数に相当する (累積核分裂収率 $Y / (\text{半減期 } T_{1/2} * \text{ALI})$) の値 (^{135}Cs の値を 1 にした場合の相対値) を示している。この 7 核種の中で、 ^{129}I と ^{99}Tc の毒性指数 (Hazard index) は ^{135}Cs の毒性指数と共に大きく、環境負荷の観点から最も重要な核種であることが分かる。

現在、環境負荷を軽減するための方法の1つとして、中性子捕獲反応を用いて LLFP を安定核種や短寿命核種に変換する核変換処理が考えられている。核変換処理する方法としては現在、熱中性子炉を用いたもの、高速中性子炉を用いたもの、加速器を用いたもの¹⁾ など多く提案され、活発に研究されている。このとき、それぞれの研究において核変換システムの核変換性能を評価する上で、個々の LLFP の精度良い中性子捕獲断面積データが必要不可欠となる。

表 1.1 に挙げた LLFP の 7 核種について、高速炉を用いた核変換システム研究において必要不可欠な keV 中性子エネルギー領域における中性子捕獲断面積について、実験データの現状および我が国の JENDL-3.2 (Japanese Evaluated Nuclear Data Library)

と米国の ENDF/B-VI(Evaluated Nuclear Data File) の評価済み核データライブラリに格納されている評価データの現状を以下に簡単に述べる。

1. ^{79}Se :熱中性子領域も含めた全中性子エネルギー領域で実験データは存在せず、評価値は計算のみから与えられている。ENDF/B-VI の評価値は無い。keV 中性子領域における JENDL-3.2²⁾ の評価値を図 1.1 に示す。
2. ^{93}Zr :keV 中性子領域においてこれまで測定された実験データ³⁾ と JENDL-3.2 および ENDF/B-VI⁴⁾ の評価値を図 1.2 に示す。実験値データとしては、3-300 keV のエネルギー領域で Time-Of-Flight(TOF) 法によって測定された Macklin³⁾ のデータが有るだけである。JENDL-3.2 と ENDF/B-VI は、共に Macklin のデータを参考にして、計算によって評価されている。
3. ^{99}Tc :LLFP の中で、keV 領域で実験データが複数⁵⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾ 存在する唯一の核種である。keV 中性子領域においてこれまで測定された実験データ⁵⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾ と JENDL-3.2 および ENDF/B-VI⁹⁾ の評価値を図 1.3 に示す。70 年、80 年代の 3 セットのデータ⁵⁾⁶⁾⁷⁾ は、それぞれ食い違いを示している。本研究開始後の 2001 年に Gunsing らによる 3-90keV 領域での測定結果が報告され、誤差が与えられていないデータであるが Littel and Block のデータと近い値となっている。また、100 keV 以上に注目すると Macklin⁷⁾ のデータしか存在しない。JENDL-3.2 の評価では、100 keV 以下では Macklin のデータを用いて評価が行われており、100 keV 以上では、球形光学ポテンシャルを用いた統計モデルによる計算値を 100 keV における Macklin のデータに規格化することによって評価されている。ENDF/B-VI は、1978 年 (Macklin の実験よりも前) に評価されたもので、統計モデルによる計算結果を Little and Block の実験値を参考に規格化している。
4. ^{107}Pd :図 1.4 にこれまで測定された実験データ¹⁰⁾ と JENDL-3.2 および ENDF/B-VI¹¹⁾ の評価値を比較して示す。実験値としては、3-600 keV のエネルギー領域で TOF 法によって測定された Macklin¹⁰⁾ のデータが有るだけである。JENDL-3.2 では Macklin のデータを参考に評価しており、ENDF/B-VI では Macklin の実験値を全面的に採用している。
5. ^{126}Sn :全エネルギー領域で実験データが存在しない。keV 中性子領域における JENDL-3.2 および ENDF/B-VI¹²⁾ の評価値を図 1.5 に示す。実験データが存在しないので、これらの評価は計算のみで行われている。
6. ^{129}I :keV 中性子領域においてこれまでに測定された実験データ¹³⁾ と JENDL-3.2 および ENDF/B-VI¹⁴⁾ の評価値を図 1.6 に示す。keV 領域の測定データとしては、

Macklin¹³⁾ のデータのみである。JENDL-3.2 では Macklin のデータを参考に評価している。ENDF/B-VI の評価は古く、Macklin の実験より前に評価されたので、計算のみによって評価が行われている。

7. ¹³⁵Cs : 図 1.7 に測定値¹⁶⁾ と JENDL-3.2 および ENDF/B-VI¹⁵⁾ の評価値を比較して示す。keV 領域の測定データとしては、30 keV の Jaag *et al.*¹⁶⁾ の放射化法によるデータがあるだけで、TOF 法による実験データは存在しない。JENDL-3.2 および ENDF/B-VI の評価は Jaag らの測定以前に行われており、従って計算のみの評価である。なお、JENDL-3.2 の評価値と Jaag *et al.* の実験値との一致は偶然と考えられる。

以上のように LLFP の keV 中性子捕獲断面積は、⁹⁹Tc については複数の実験データが存在するが、⁹³Zr、¹⁰⁷Pd、¹²⁹I および ¹³⁵Cs については 1 セット (あるいは 1 点) の実験データしか存在せず、⁷⁹Se および ¹²⁶Sn にいたっては全く実験データが存在しない。即ち、LLFP の keV 中性子捕獲断面積実験データは質・量ともに極めて乏しいといえる。

また現在においては、原子核反応理論による keV 中性子捕獲断面積予測精度が充分で無いため、keV 中性子捕獲断面積評価は実験データを基に行うのが基本である。従って実験データが極めて乏しい LLFP については、JENDL-3.2 や ENDF/B-VI 等の評価済み核データライブラリに格納されている keV 中性子捕獲断面積の信頼性は極めて乏しいと言わざるを得ない。

中性子捕獲 γ 線スペクトルは、その中に γ 線強度関数や準位密度といった重要な物理量の情報を含んでおり、重要なデータである。また、実験で得られた中性子捕獲断面積のみならず中性子捕獲 γ 線スペクトルを同時に解析することによって核分裂生成物領域核種の keV 中性子捕獲反応機構を解明することができれば、現在では測定が困難な LLFP の keV 中性子捕獲断面積の予測精度を向上できると期待される。しかしながら、LLFP の中性子捕獲 γ 線スペクトルの実験データはこれまで皆無である。

以上のように keV 中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルの実験データが極めて少ない理由として次の 2 つが挙げられる。

- (i) 中性子捕獲実験に必要な量の高純度 LLFP 試料を準備することが容易でない。

通常の keV 中性子捕獲実験では数 g ~ 数 10g の LLFP 試料が必要であるが、この様な多量の LLFP 試料を、安定同位体を標的とした加速器による (p,n) あるいは (d,n) 反応等で製造するのは実際上不可能である。従って、多量の LLFP 試料は、原子炉中で照射した核燃料中に含まれる核分裂生成物を化学精製して製造する。この場合、⁹⁹Tc 試料の場合を除いて、核分裂で生成される他の安定同位体が不純物同位体として試料中に存在することになる。例えば、本研究対象核種の 1 つで

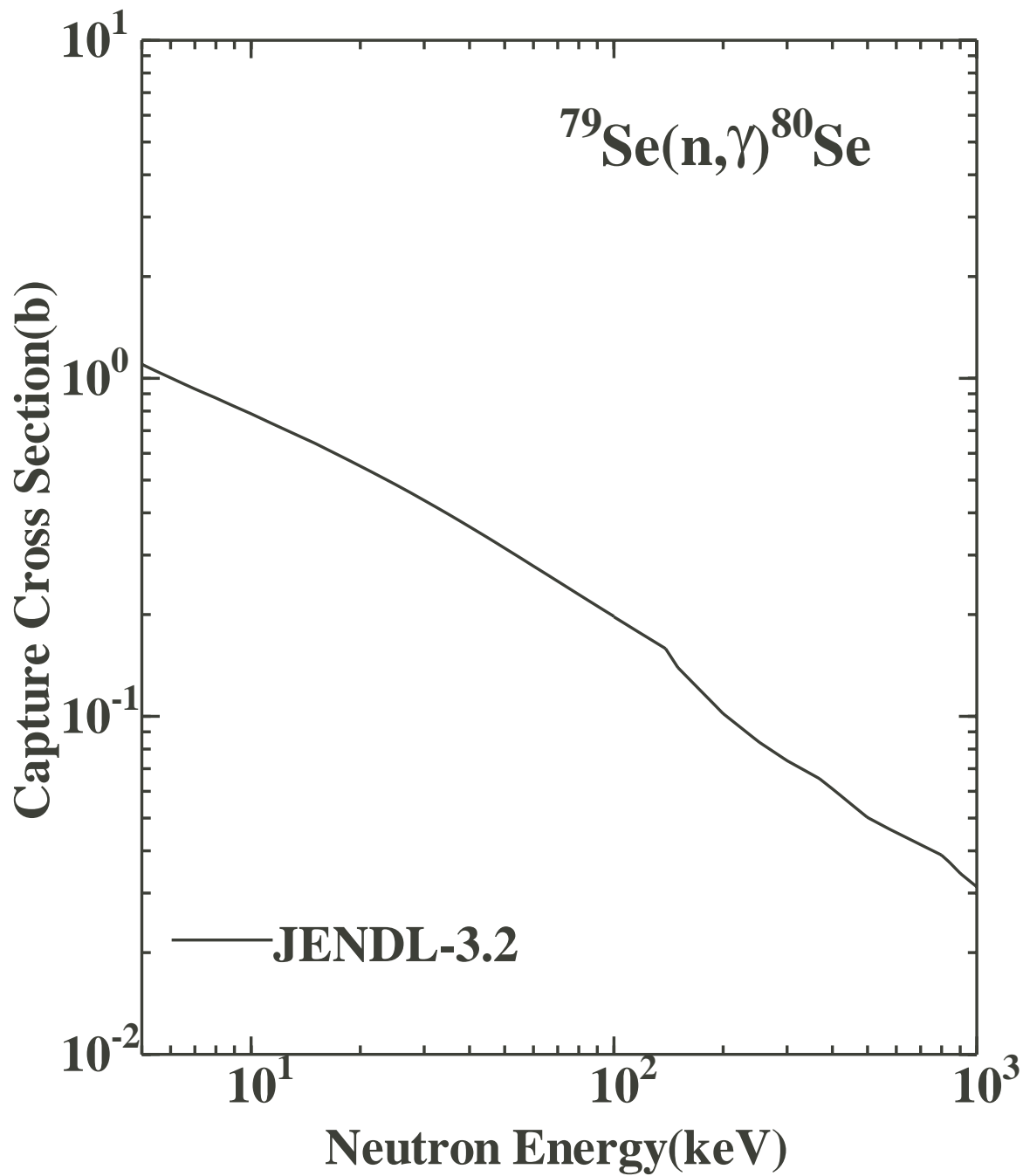


図 1.1: ^{79}Se の中性子捕獲断面積の評価値の現状

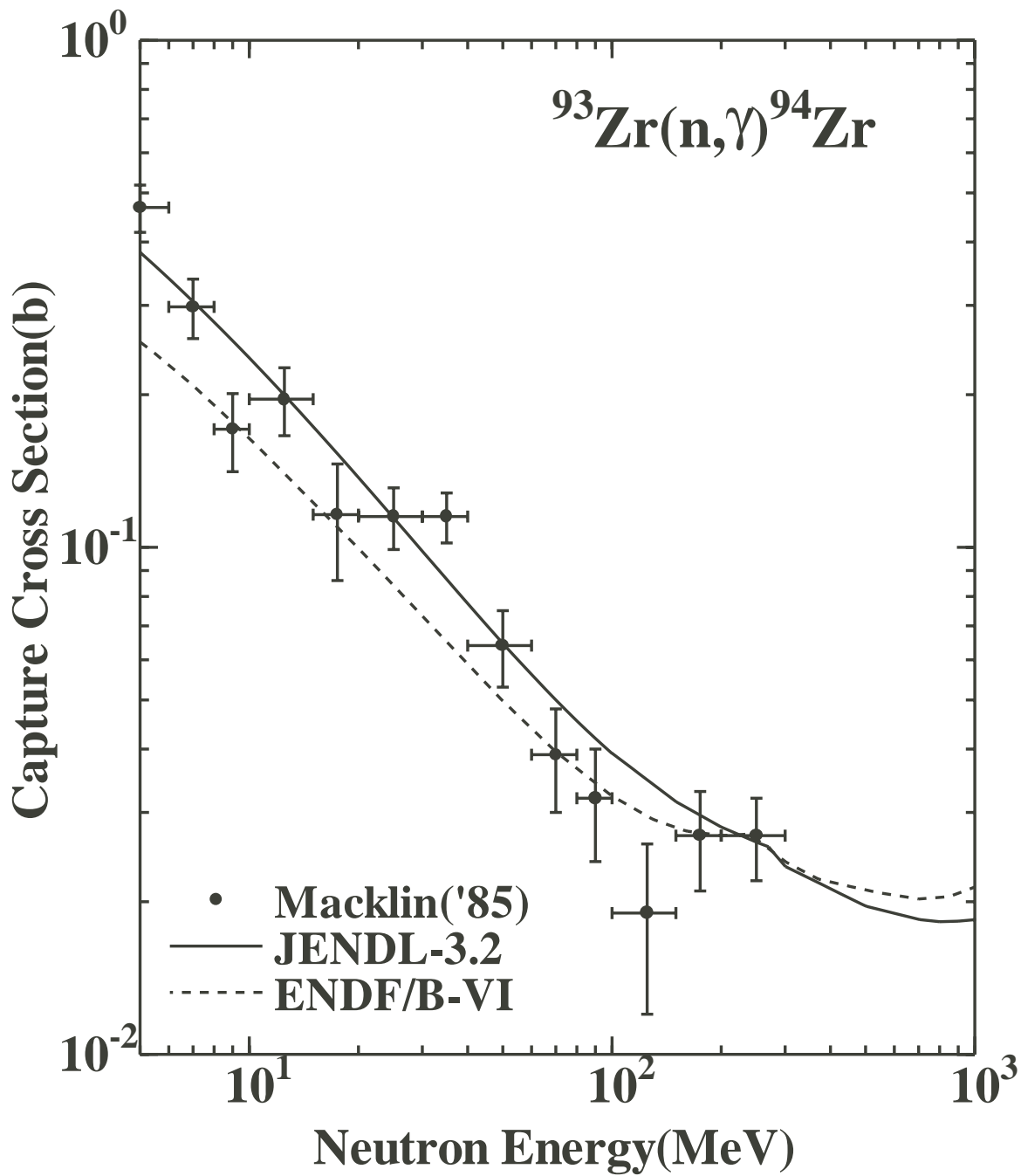


図 1.2: ^{93}Zr の中性子捕獲断面積の測定値と評価値の現状

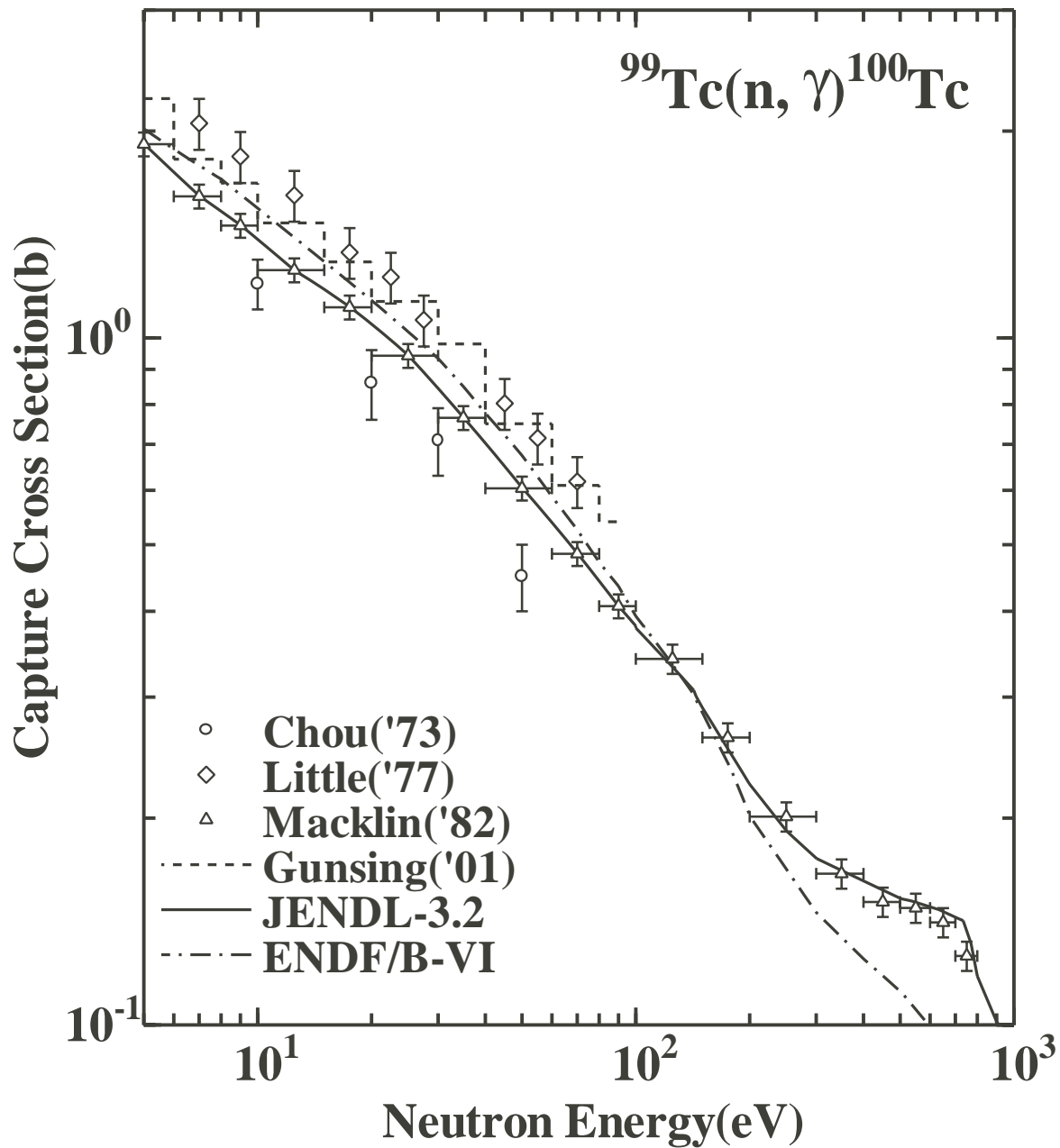


図 1.3: ^{99}Tc の中性子捕獲断面積の測定値と評価値の現状

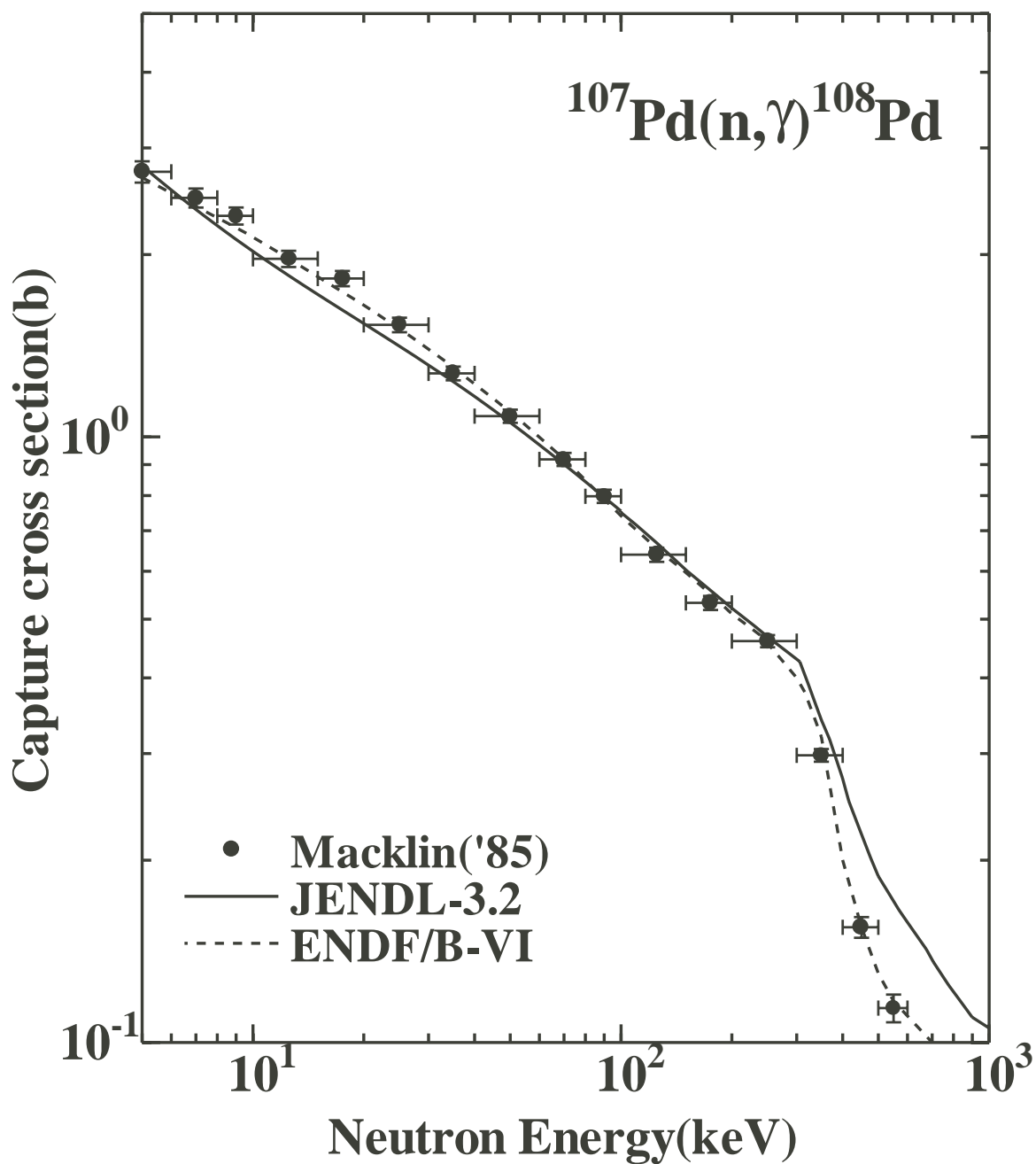


図 1.4: ^{107}Pd の中性子捕獲断面積の測定値と評価値の現状

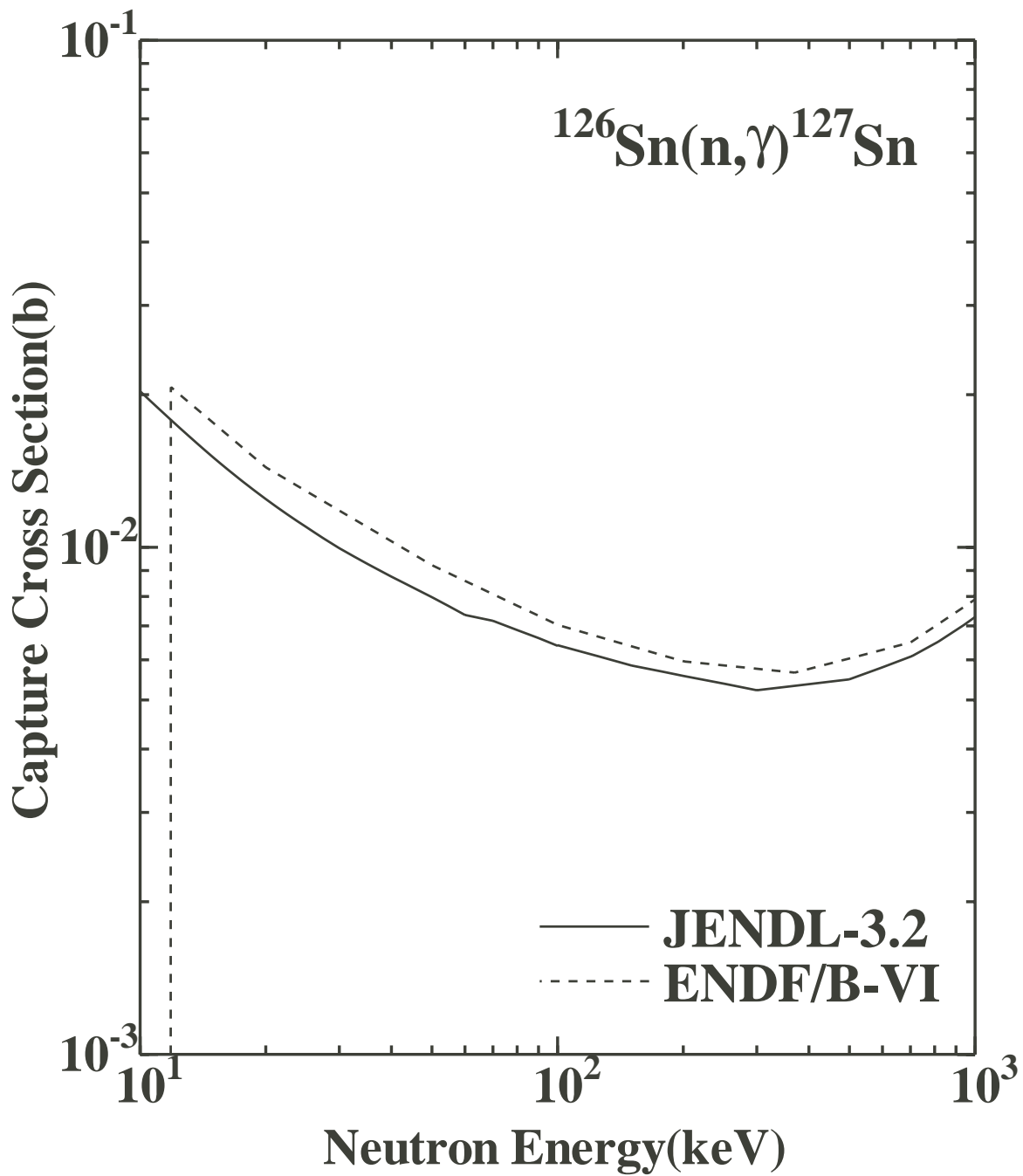


図 1.5: ^{126}Sn の中性子捕獲断面積の評価値の現状

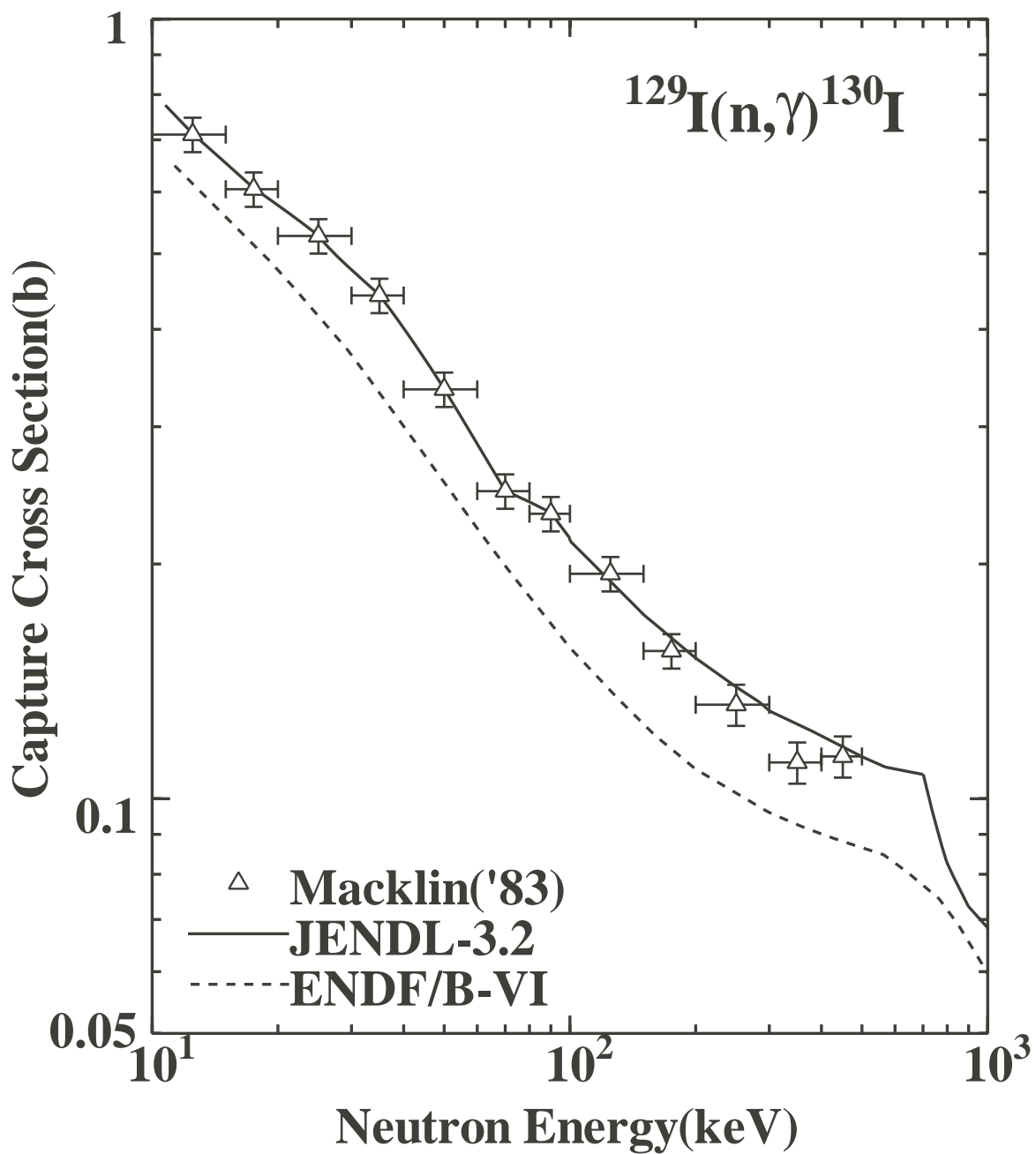


図 1.6: ^{129}I の中性子捕獲断面積の測定値と評価値の現状

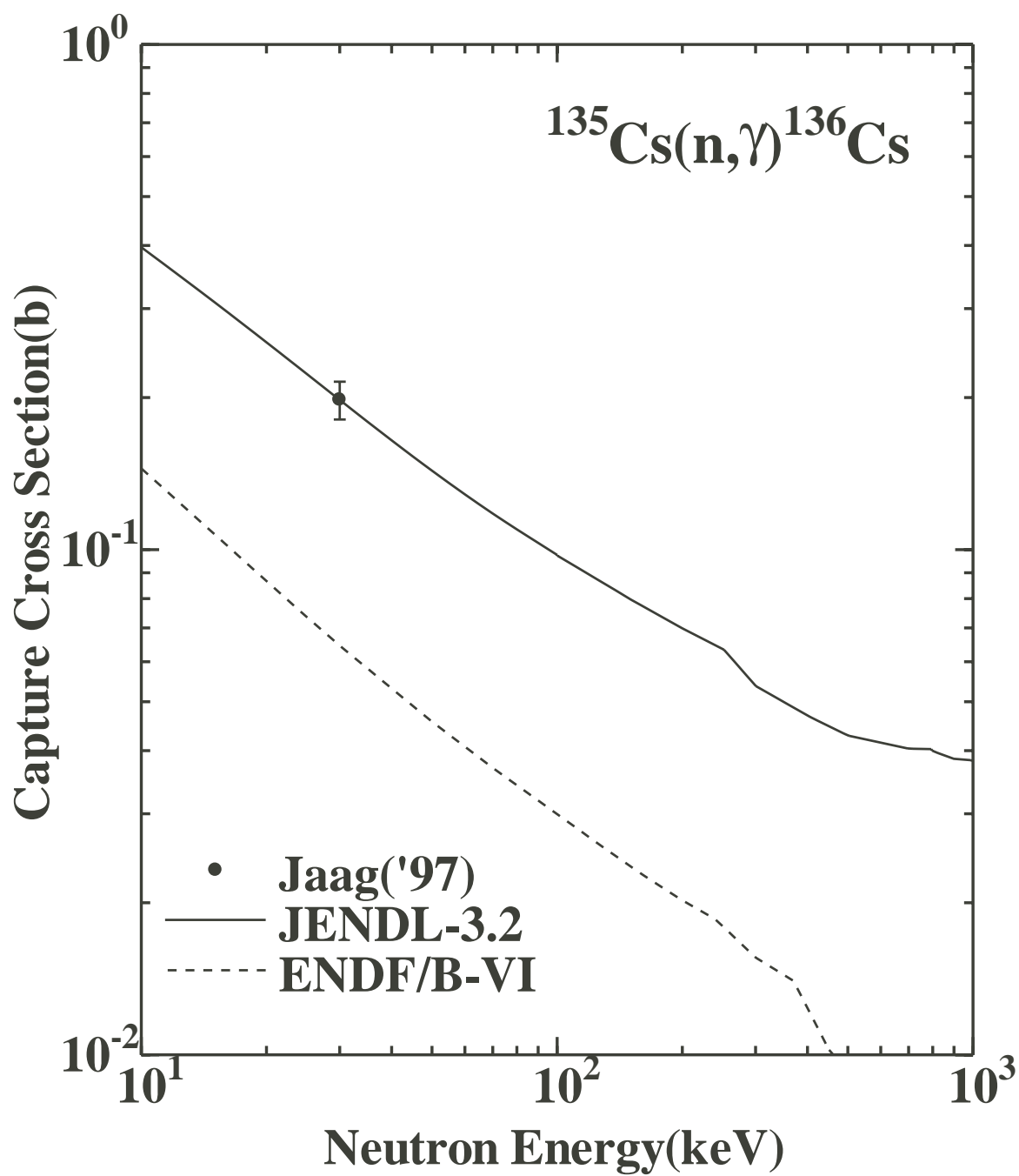


図 1.7: ^{135}Cs の中性子捕獲断面積の測定値と評価値の現状

表 1.1: 原子炉で生成される重要な LLFP

Nuclei	$T_{1/2}(y)$	Y(%)	ALI(MBq)	Hazard index
^{79}Se	6.50×10^4	4.53×10^{-2}	21-160	0.04 ~ 0.3
^{93}Zr	1.53×10^6	6.39	54-110	0.35 ~ 0.71
^{99}Tc	2.11×10^5	6.11	140	1.9
^{107}Pd	6.50×10^6	0.14	1000-1300	$1.5e-4 \sim 1.9e-4$
^{126}Sn	1.00×10^5	5.49×10^{-2}	10	0.5
^{129}I	1.57×10^7	0.72	0.2-0.67	0.63 ~ 2.1
^{135}Cs	2.30×10^6	6.53	260	1

$T_{1/2}$:Half-life

Y:Cumulative fission Yield

ALI:Annual limit on intake

Hazard index:Y/ $T_{1/2}$ /ALI

ある ^{129}I 試料の場合、安定同位体である ^{127}I が試料中に約 30%存在する。化学精製で得られた LLFP 試料について更に同位体分離を行えば化学的および同位体的に高純度の LLFP 試料を得ることができるが、多量 (100mg 程度) の LLFP を同位体分離できる施設は世界的に見ても現時点では存在しない。

- (ii) LLFP 試料からのバックグラウンド γ 線のため、捕獲 γ 線の測定が容易でない。

数 g ~ 数 10g の LLFP 試料からはかなり強いバックグラウンド γ 線が発生し、このバックグラウンド場の中で捕獲 γ 線を精度良く測定することは容易でない。測定に用いる LLFP 試料を 1 桁程度少なくすることが出来れば、このバックグラウンド問題は緩和される。

従って、LLFP について精度良い keV 中性子捕獲実験を行うためには、少なくとも化学的純度の (可能な限り) 良い試料を準備し、出来るだけ少量の試料を用いることが重要である。ここで捕獲実験に少量の試料を用いるためには、強い keV 中性子源と高感度の捕獲 γ 線検出装置が不可欠である。

上記の背景から本研究では、最も重要な LLFP である ^{99}Tc および ^{129}I を対象核種とし、

- (1) 我々の研究室で開発した大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器と 1 g 以下の少量の試料を用いて精度良く keV 中性子捕獲 γ 線を測定し、
- (2) ^{99}Tc については捕獲断面積を誤差 5 %程度で導出し、また、捕獲 γ 線スペクトルも精度良く導出する、

- (3) ^{129}I については、高純度試料を用いることが出来ないため、多量の不純物を含む試料を用いた測定から中性子捕獲断面積を精度良く導出する際の要点を明らかにし、最終的に捕獲断面積を誤差 10 %程度で導出する、

を第一の目的とし、更に、

- (4) ^{99}Tc と ^{129}I について keV 中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルを統計モデルによって計算し、計算結果と測定結果の比較検討を行い、これらの核種の keV 中性子捕獲反応機構についての知見を得る、

ことを第二の目的とした。

本研究で測定を行う ^{99}Tc は、表 1.1 に示したように、半減期が 21 万年¹⁷⁾ で ^{235}U の核分裂に対する累積核分裂収率は 6.1 %¹⁸⁾ であり、 ^{129}I は半減期が 1570 万年¹⁷⁾ で累積核分裂収率は 0.7 %¹⁸⁾ の核種である。また前述の通り ^{99}Tc と ^{129}I は、潜在的毒性指数が重要 LLFP の 7 核種の中で最も大きい。更に、 ^{99}Tc を地層処分にした場合、地層における核種移行性の強さが指摘¹⁹⁾ されている。したがって、 ^{99}Tc と ^{129}I は、LLFP の核変換処理研究において最も重要な核種であると考えられる。

本論文は 6 章から構成されている。第 1 章の本章は序論で、本研究の背景や意義、目的を述べた。第 2 章では keV 中性子捕獲実験に用いた装置や実験方法について述べ、第 3 章ではデータ解析の方法について述べる。第 4 章では実験結果を示し、他の測定結果と比較し考察する。第 5 章では、理論計算の方法とその結果を示し、今回の実験結果と比較して考察する。最後に第 6 章で結論を述べる。

第2章 実験

2.1 概要

本研究では ^{99}Tc と ^{129}I の中性子捕獲 γ 線を、それぞれ平均入射中性子エネルギー 8-10 keV、190 keV、330 keV、540 keV と 16-90 keV、150 keV、560 keV において、中性子 TOF 法を用いて測定した。

keV 中性子捕獲実験は、東京工業大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った。 ^{99}Tc の入射中性子エネルギー 8-90 keV の測定における検出器等の配置の概略図を図 2.1 に示す。本実験室に設置されている 3 MV ペレトロン加速器によって加速された幅 1.5 ns のパルス化陽子を Li ターゲットに照射し、 $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応からパルス化 keV 中性子を得た。パルスの繰り返し周波数は測定によって 2, もしくは 4 MHz とした。測定用試料は陽子ビーム方向に対し 0° 方向に置き、試料中心とターゲットの距離は ^{99}Tc の 540 keV 実験および ^{129}I の 560 keV 実験において 20 cm とした他は 12 cm とした。中性子の測定には、 ^6Li ガラスシンチレーション検出器を用い、試料へ入射する平均的な中性子スペクトルが得られる角度に置いた。 ^{99}Tc と ^{129}I 試料はそれぞれ 650 MBq と 2.2 MBq の放射性物質であるためそれぞれ Al ケースと Ti ケースに密封されたものを用いた。 ^{99}Tc と ^{129}I 試料を密封した容器の形状は、ともに内径が 20 mm で、厚さがそれぞれ 3.1 mm、5.0 mm である。また、相対測定用の標準試料として ^{197}Au を用いた。試料からの捕獲 γ 線は、大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器を用いて測定した。大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器は、試料からの γ 線を検出する主 NaI(Tl) 検出器とそれを取り囲む環状 NaI(Tl) 検出器から構成されている。検出器は、内側から Pb、Cd、ボロン入りポロエチレンとボロン入りパラフィンで構成される重遮蔽体によって覆われて、高い S/N を実現している。また、検出器前面には試料による散乱中性子の遮蔽のため ^6LiH が挿入してある。検出器は、陽子ビーム方向に対して 125° の角度に置かれた。

我々の研究室では、放射性核種の keV 中性子捕獲実験の場合は通常、試料からの低エネルギー γ 線バックグラウンドを軽減するためにコリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を加

えている (図 2.1 参照)。鉛板を用いた場合、(1) γ 線検出器の応答関数および重み関数、及び (2) γ 線波高スペクトルのディスクリレベル以下の外挿補正、が鉛板を用いない場合と比べ変化する。 ^{99}Tc の場合は、 γ 線放出率が 0.0016 %¹⁷⁾ で、 γ 線バックグラウンドはあまり強くない。したがって、鉛板を用いない実験も可能である。そこで、重み関数と外挿補正の信頼性を確かめ、本研究の波高重み法を用いた実験データ解析の信頼性を確認するため、 ^{99}Tc の入射中性子エネルギー 8-90 keV の測定では、鉛板をコリメータ内に加えた場合と加えない場合について 2 種類の測定を行った。以降、5.0 mm 厚鉛板をコリメータ内に加えて行った 8-90 keV 実験を [Tc 実験 A] と呼び、5.0 mm 厚鉛板を加えずに行った 8-90 keV 実験を [Tc 実験 B] と呼ぶ。また、330 keV の測定は、当初コリメータ内に 5.0 mm 厚鉛板を挿入し、かつ試料中心とターゲットの距離を 15.6 cm にして測定を行った。しかしながら、後で述べるように 300 keV 領域の発生中性子量が少なく、また S/N が悪くてバックグラウンドの決定が容易でなかった。そこで、試料とターゲット間の距離を 12.0 cm にすることで試料への入射中性子量を増やし、かつコリメータ内の鉛板を取り除いて測定を行うことで捕獲 γ 線の検出効率を上げ、双方で S/N を良くし、再測定を行った。本論文では、入射中性子エネルギー 330 keV での ^{99}Tc の測定については、再測定の結果を示す。

^{129}I の場合、試料から放出される γ 線のエネルギーは 40 keV と大変低いため、試料の Ti ケースや NaI(Tl) 検出器のコリメータ内に挿入されている遮蔽材 ^6LiH やその Al ケースによって大部分が遮蔽されるので、5.0 mm 厚鉛板を挿入せず測定を行った。

γ 線検出器で得られた捕獲 γ 線データは、ワークステーションに中性子飛行時間 (TOF) と波高 (PH) の二次元データとして取り込まれた。測定は基本的に、 ^{99}Tc あるいは ^{129}I 試料の run、標準 Au 試料の run、試料を置かない Blank の run をサイクリックに行い、入射中性子スペクトル等の実験条件の変動による影響を緩和した。さらに、ケースや不純物によるバックグラウンドを決定するために、 ^{99}Tc 実験では Al を、 ^{129}I 実験では 16-90 keV、150 keV 測定においては、測定試料と全く同じ形状で成分も ^{129}I を同じ質量の天然の I(^{127}I) に置き換えただけの試料 (これをダミー試料と呼ぶ) と $\text{Pb}^{127}\text{I}_2$ 試料の測定を行った。ここで、 ^{127}I の中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルも得られるよう測定を行った。560 keV 測定においては、 PbI_2 、Ti、S、Na の試料についても測定を行った。以下では、用いた実験装置、試料、測定等について詳しく述べる。

2.2 ペレット加速器

使用した加速器は、米国 nec 社製の 3UH-HC ペレット加速器である。ペレット加速器は、ヴァン・デ・グラーフ型静電加速器の一種で、電荷運搬のために通常のゴムベルトではなく金属ペレットをナイロンでつなぎ合わせたチェーンを用いている。イ

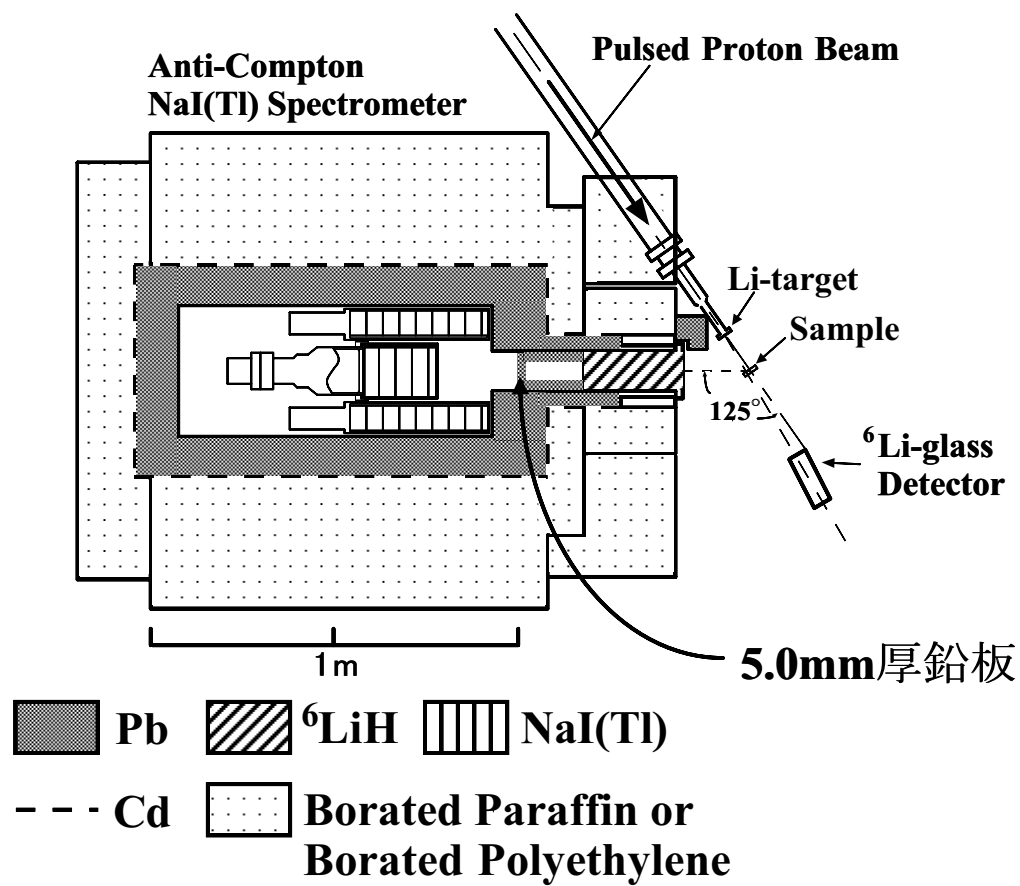


図 2.1: [Tc 実験 A] における実験装置の配置図

オン源としてデュオ・プラズマトロン・イオン源が使われている。イオン源と加速管との間には、パルス化装置、速度弁別器、アインツェルレンズ、ギャップレンズが設けられている。

イオン源で発生した H^+ 、 H_2^+ 、 H_3^+ イオンは引き出し電極によって引き出され、パルス化装置に入る。パルス化装置に入ったイオンは、まずスイープ電極によって左右に 2 MHz で振られた後、アインツェルレンズで集束される。次に、DC バイアス電極とポップ電極の間を通り、ここで陽子ビームを 4 MHz ~ 0.5 MHz に調節することができる。さらに、速度弁別器を通過し H^+ のみを取り出される。弁別された H^+ ビームは 2 mm ϕ アパーチャーで約 20 ns にチョップされる。クライストロン・バンチング法によりチョップされた陽子ビームはバンチングされ、ギャップレンズを通過し加速管に入る。加速管で加速された後、陽子ビームはビーム延長管に入り、四重極マグネット、ステアリングマグネット、分析マグネットを通り、実験室へ導かれ、ビーム延長管先端の Li ターゲットに到達する。Li ターゲットに到達する時点で、パルス化陽子のパルス幅は 1.5 ns になる。また、Li ターゲットから上流 2 m 付近に Time Pick Off (TPO) が取り付けられており、陽子ビームが通過する際に静電誘導によって発生する電気信号を、中性子 TOF 法における基準時間信号として用いている。

2.3 中性子源

中性子源として ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応を用いた。Li ターゲットは直径 3 cm、厚さ 0.4 mm の銅板に金属 Li を真空蒸着したものである。Li ターゲットは、陽子ビーム照射による発熱によって Li が蒸発することを防ぐため外側より水冷した。

${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応の Q 値は -1.644 MeV であるから、この反応のしきい値は、

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

ここで、 M_{Li} は ${}^7\text{Li}$ の質量で M_p は陽子の質量である。そのときの発生中性子のエネルギー E_n は、

$$E_n = \frac{M_{Li}M_p}{(M_{Li} + M_{Be})^2} \times E_{th} = 30 \text{ keV} \quad (2.2)$$

であり、入射陽子ビームに対して 0° 方向にのみ発生する。また、運動学的に陽子エネルギーが E_{th} から

$$E_{up} = \frac{M_{Be}}{M_{Be} - M_p} \times Q = 1.920 \text{ MeV} \quad (2.3)$$

の間は、中性子は入射陽子ビーム方向に対して限られた角度内のみが発生し、1つの角度に対して2種類のエネルギーの中性子が発生する。陽子エネルギーが E_{up} になると、中性子は角度に対し単色エネルギーとなり、 4π 方向に発生する。

^{99}Tc の 8-90 keV 実験、 ^{129}I の 16-90 keV 実験では陽子のエネルギーを $E_{th}+22\text{ keV}=1.903\text{ MeV}$ とし、厚い Li ターゲットを用いた。このとき中性子は陽子ビーム方向に対し 50° のコーン内のみに発生し、 0° 方向には 2 から 90 keV の中性子が連続的に発生する。 ^{99}Tc の 190 keV、330 keV、540 keV 実験および ^{129}I の 150 keV、560 keV 実験では、目的の中性子エネルギーが得られるよう陽子エネルギーをそれぞれ約 2.0、2.1、2.3 および 2.0、2.3 MeV に設定した。目的の平均中性子エネルギーを得るための陽子エネルギーは、Li ターゲットの厚さに依存する。

330 keV 実験では (陽子エネルギーは約 2.1 MeV)、図 2.2 の $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応微分断面積²⁰⁾ が示すように、8-90 keV ($E_p=1.9\text{ MeV}$) 実験や 540 keV ($E_p\sim 2.3\text{ MeV}$) 実験に比べて 0° の微分断面積が $1/2$ から $1/9$ 程度小さく、発生中性子量が少ないことが分かる。なお、パルス繰り返し周波数は、 ^{99}Tc の 8-90 keV 実験で 2 MHz とした他は、すべて 4 MHz とした。

2.4 中性子検出器

2.4.1 ^6Li ガラスシンチレーション検出器

本実験では、中性子測定用の検出器として 2 台の ^6Li ガラスシンチレーション検出器を用いた。 ^6Li ガラスシンチレーション検出器は、 $^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ 反応を利用して非荷電粒子である中性子を検出する。

1 つは、直径 5.0 mm、厚さ 5.0 mm の円柱状の ^6Li ガラスシンチレータに口径 12.7 mm の光電子増倍管を取り付けたものを Al ケースで覆っている。この検出器の断面図を図 2.3 に示す。時間分解能は 2 ns である。検出器の側面に厚さ 0.4 mm の Cd 板を巻くことによって、中性子捕獲実験中に実験室内に充満する熱中性子によるバックグラウンドの軽減を行った。以後、この検出器を M-Li 検出器と呼ぶ。もう 1 つは、直径 102.0 mm、厚さ 6.4 mm の円盤状 ^6Li ガラスシンチレータに口径 125 mm の光電子増倍管を取り付けたものを用いた。検出器の周りをボロン入りパラフィンとカドミウムで覆うことによってバックグラウンド中性子を遮蔽している。時間分解能は 2 ns である。この検出器の断面図を図 2.4 に示す。以後、この検出器を ϕ -Li 検出器と呼ぶ。

2 つの ^6Li ガラスシンチレーション検出器の相対検出効率は、モンテカルロシミュレーションによって計算したものを用いた²¹⁾。 ϕ -Li 検出器の相対検出効率を図 2.5 に示す。

各実験において入射中性子スペクトルを測定するために用いた検出器と、Li ターゲットと検出器の距離、検出器の置かれた陽子ビーム方向に対する角度について表 2.1 にまとめた。角度は中性子源から試料を見込む平均の角度とした。入射中性子スペクトル測定のために ϕ -Li 検出器を用いた場合は、M-Li 検出器も中性子源から試料を見込まな

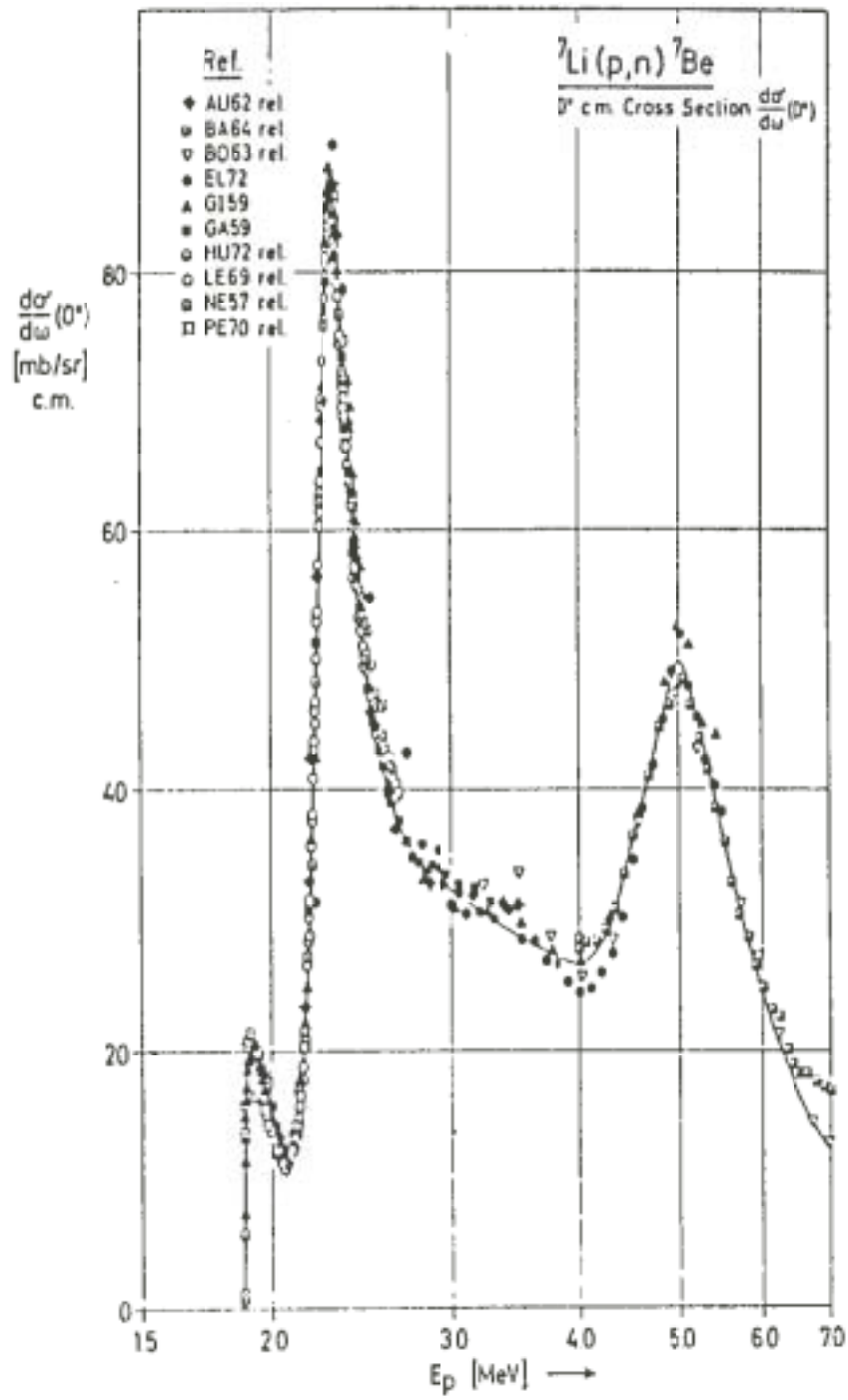


図 2.2: 0° の ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応微分断面積

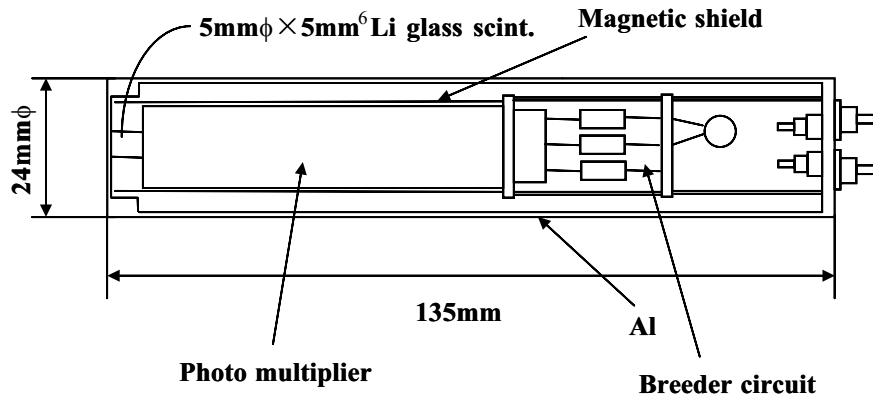


図 2.3: M-Li 検出器の断面図

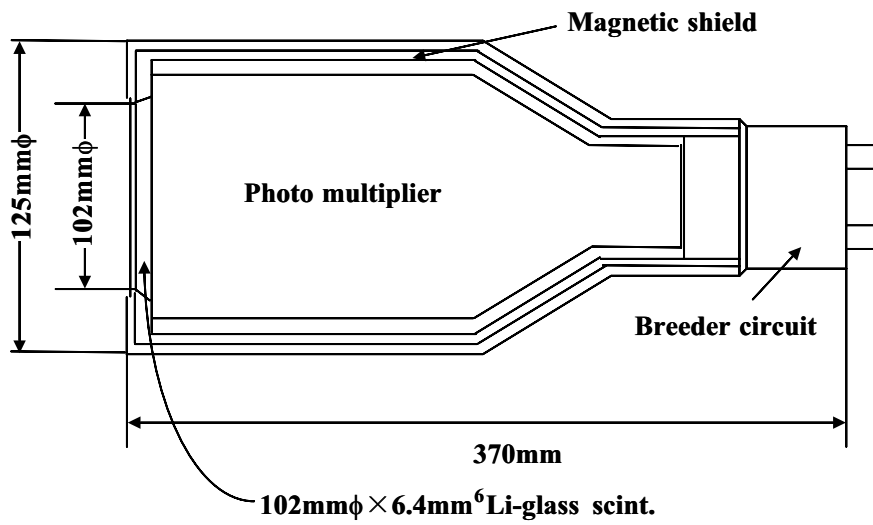


図 2.4: ϕ -Li 検出器の断面図

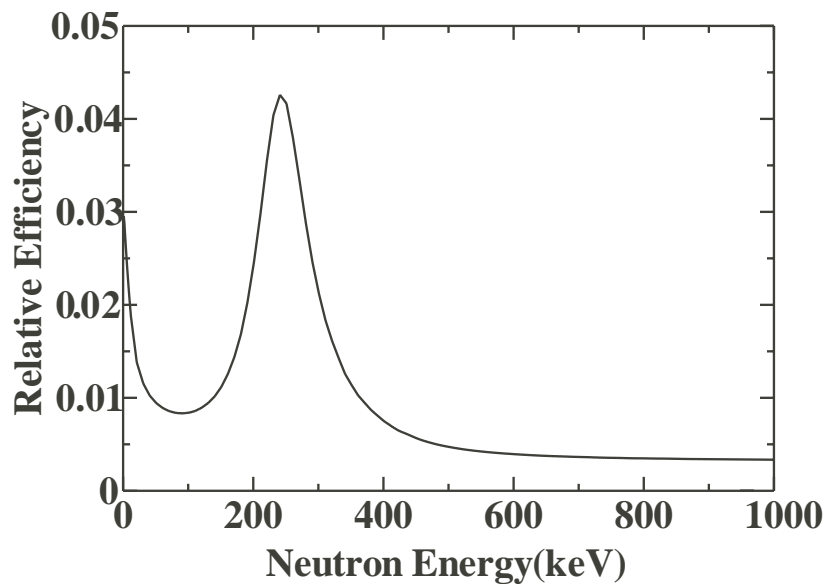


図 2.5: ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーション検出器の相対検出効率

表 2.1: 入射中性子スペクトルを測定するために用いた中性子検出器と、Li ターゲットと検出器の距離、検出器の置かれた陽子ビーム方向に対する角度

実験	M-Li	ϕ -Li	距離 (m)	角度 ($^{\circ}$)
${}^{99}\text{Tc}$				
Tc 実験 A			0.3	3.2
Tc 実験 B			0.3	3.2
190 keV			0.5	3.2
330 keV			3.2	3.2
540 keV			4.6	1.9
${}^{129}\text{I}$				
16-90 keV			0.3	3.2
150 keV			0.6	3.2
560 keV			4.6	1.9

い位置に置き、発生中性子数のモニタに用いた。

2.4.2 中性子測定系回路

中性子測定回路を図 2.6 に示す。 ${}^6\text{Li}$ 検出器からの信号は、M-Li 検出器の場合-1000 V、 ϕ -Li 検出器の場合-2000 V の電圧が印加された光電子増倍管の Dynode と Anode から取り出される。Dynode 信号は、PA(Pre Amplifier) を通り LA(Linear Amplifier) で波形整形・増幅された後、TSCA(Timing Single Channel Analyzer) により論理信号に変換される。ここで、 ${}^6\text{Li}$ 検出器によって得られる PH スペクトルの低エネルギー側にディスクリを掛けることによって n- γ 弁別を行い、 ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ 反応からの γ 線による信号の大部分が取り除かれる。Anode 信号は、FA(Fast Amplifier) で増幅された後、CFD(Constant Fraction Discriminator) で論理信号になり TAC(Time to Amplitude Convertor) のスタート信号になる。また、前述のビーム延長管中の TPO を通過する際に得た基準時間信号は、PA で増幅された後に LED(Leading Edge Discriminator) で論理信号となり TAC のストップ信号となる。スタート信号とストップ信号の時間差は波高に変換されて TAC out で出力され、LGS(Linear Gate and Stretcher) に送られる。ここで、TSCA の出力をゲート信号とすることで主に中性子による信号が選択され、MCA(Multi Channel Analyzer) に送られる。

2.5 γ 線検出器

2.5.1 大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器

γ 線検出器として大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器²²⁾ を用いた。検出器は、陽子ビーム方向に対して 125° に置かれている。中性子捕獲反応によるプライマリ γ 線は電気双極子 (E1) 遷移と磁気双極子 (M1) 遷移が主であり、E1 と M1 遷移の角度分布はル・ジャンドル関数の 0 次と 2 次の項で表される。0 次の項は定数であるから、角度分布の平均値が得られるのは 2 次の項が 0 になるような点である。すなわち、 55° と 125° である。そこで、検出器の前方に中性子源を見ないために S/N の良い 125° に検出器を設置した。

大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器は、直径 15.2 cm、長さ 20.3 cm の円柱形主 NaI(Tl) 検出器とそれを取り囲む外径 33 cm、内径 17.2 cm、長さ 35.6 cm の環状 NaI(Tl) 検出器から構成されている。この検出器は、主検出器内におけるコンプトン散乱や電子対生成により主検出器外に入射 γ 線エネルギーの一部を持ち出した 2 次 γ 線を環状検出器で検出した場合には、この事象を取り除くことにより (非同時計数)、ほとんど

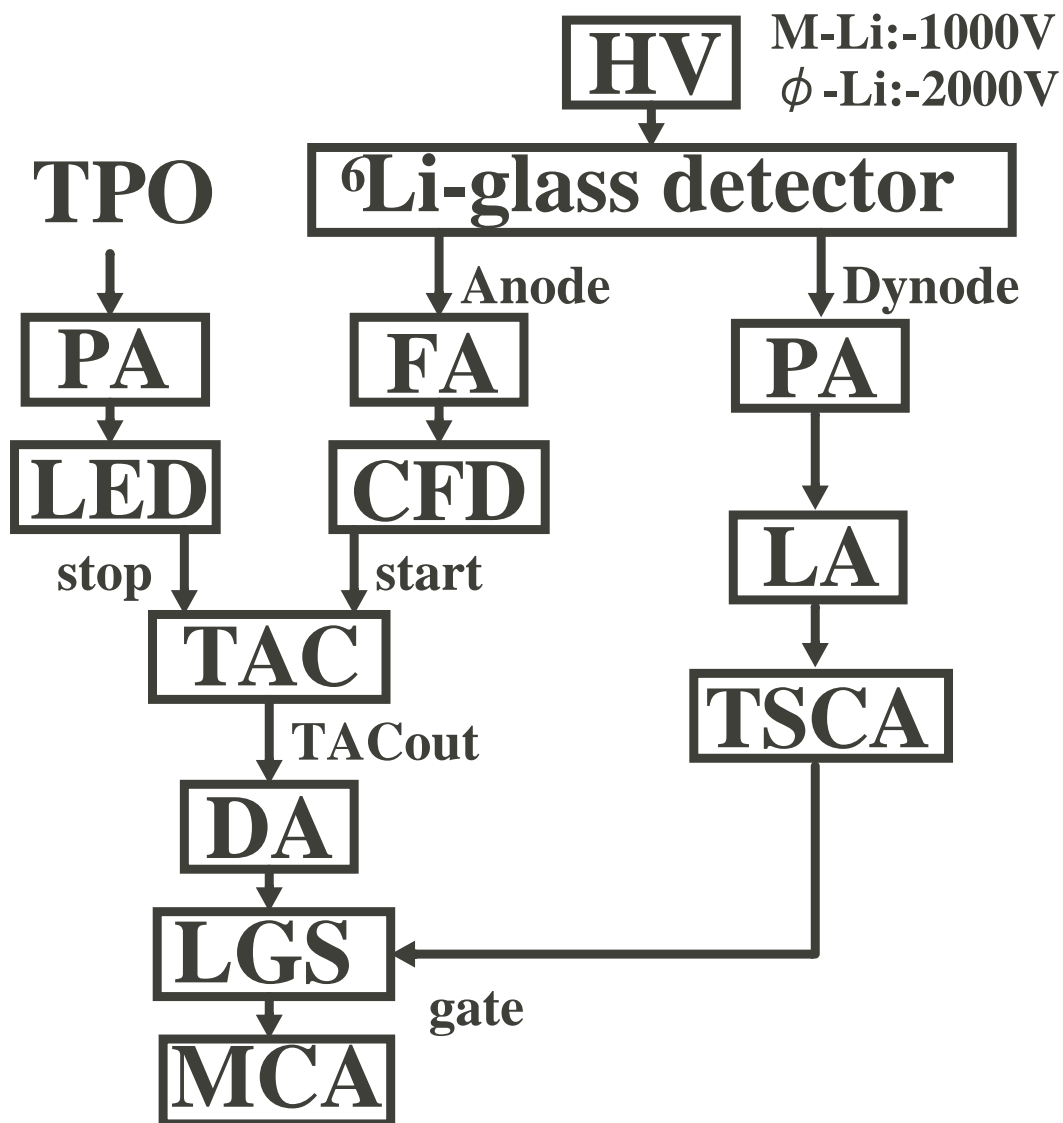


図 2.6: 中性子測定系の回路図

全エネルギーピークが強調された応答関数を持つ。さらに、宇宙線の除去効果も持つ。宇宙線の多くは高エネルギーの μ 粒子である。荷電粒子に対する NaI(Tl) 検出器の検出効率は 100% であり、 μ 粒子のほとんどは鉛直方向から来るので、主検出器と環状検出器とで同時に検出される。したがって、非同時計数により宇宙線によるバックグラウンドのほとんどが取り除かれる。

検出器全体は重遮蔽体²³⁾によって覆われている。まず外側には、中性子照射中に実験室内に充満する中性子を効率よく遮蔽するためにボロン入りパラフィンとボロン入りポリエチレンを置き、その内側に Cd を配置した。さらに内側に、 $^1\text{H}(n,\gamma)\text{T}$ 、 $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 、 $\text{Cd}(n,\gamma)$ 反応等によって発生する γ 線と実験室内の構造物と中性子との反応から発生する γ 線、自然バックグラウンドを遮蔽するために約 12 cm 厚の鉛を配置した。検出器前面には、試料によって散乱された中性子の遮蔽のために ^6LiH を置いた。また、 ^{99}Tc の 8-90 keV、190 keV、330 keV と ^{129}I の 16-90 keV、150 keV 測定では、主に Li ターゲット中での $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$ 反応からの γ 線を効果的に遮蔽するため、中性子源から検出器を見込む方向に鉛シャドバーを置き、 ^{99}Tc の 540 keV と ^{129}I の 560 keV 測定においては、 4π 方向に発生する中性子に対する遮蔽も考慮して、ボロン入りパラフィンと鉛によって構成されたシャドバーを配置した。

なお、 ^{99}Tc の実験では、放射性試料からの低エネルギー γ 線バックグラウンドを軽減するために、検出器前面のコリメータ内に 5.0 mm 厚鉛板を加えた測定も行った。 ^{99}Tc から放出される 90 keV の γ 線は、5.0 mm 厚の鉛で約 10^{-5} 程度減らすことができ、ほぼ 100 % 遮蔽できる。

2.5.2 NaI(Tl) 検出器系回路

NaI(Tl) 検出器系回路を図 2.7 に示す。主 NaI(Tl) 検出器からの信号は、-1450 V の電圧が印加された光電子増倍管の Dynode と Anode から取り出される。Dynode 信号は、PA と LA によって波形整形・増幅された後、2 つに分けられる。一方は TSCA に送られ論理信号に変換され、Coincidence 信号の 1 つとして UC(Universal Coincidence) に入る。ここで、NaI(Tl) 検出器で得られた PH スペクトルの 600 keV 以下にディスクリを設定することによって、大きなバックグラウンドの原因となる 511 keV 以下のエネルギーの γ 線を取り除いた。もう一方は、DA(Delay Amplifier) によって UC からのゲート信号とタイミングを取り LGS に入る。この LGS の出力信号は、PH 信号として用いられる。Anode 信号は、TFA(Timing Filter Amplifier) によって波形整形・増幅された後、CFD により論理信号に変換され TAC のスタート信号になる。TAC のストップ信号は、中性子測定回路の TAC のストップ信号と同じである。TAC の SCA out 信号は GDG(Gate and Delay Generator) によって Dynode の TSCA の出力信号とタイミング

を取り、Coincidence 信号の 1 つとして UC に入る。TAC の TAC out 信号は、DA によって UC からのゲート信号とタイミングを取り LGS に入る。この LGS の出力信号は、TOF 信号として用いられる。

環状 NaI(Tl) 検出器の 10 本の光電子増倍管には、約-1000 V の電圧を出力波高が等しくなるように調整して印加した。10 本の光電子増倍管の Dynode からの信号は Mixer によって 1 つの信号に合成され、LA によって波形整形・増幅される。次に Attenuator を通し波高信号の最大を 10 V 以下にした後、TCSA で論理信号に変えられる。ここで、電気ノイズを取り除くため 30 keV にディスクリを設定した。TSCA 出力信号は、GDG によって主検出器の Dynode からの TSCA 出力信号とタイミングを取って anti-Coincidence 信号として UC に入る。UC に入力した 3 つの信号によって、主検出器からの PH 信号と TOF 信号が 1 対 1 対応するように同時計測され、さらに環状検出器からの信号との非同時計測が行われる。UC の出力は 3 つに分けられ、その内 2 つは波高信号と時間信号の LGS にゲート信号として入り、LGS からの出力信号 (PH 信号と TOF 信号) は Attenuator を通った後、ADC に送られる。もう一つの出力信号は GDG によってタイミングが取られた後、一方は Strobe 信号として ADC に送られ、他方は Dead Time を計測するための Scaler に入る。ADC からの出力 (PH と TOF の二次元信号) と scaler からの信号は、それぞれ CAMAC の Creat Controller、VME Bus を通って WS(Work Station) に取り込まれる。

2.5.3 応答関数

検出器の応答関数とは、エネルギー E_γ を持つ単色の γ 線が検出器に入射した時に得られる PH スペクトルのことで、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。したがって、NaI(Tl) 検出器のコリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を挿入した場合と挿入しない場合とでは応答関数が異なる。本研究では、エネルギー E_γ の γ 線 1 本が捕獲 γ 線測定用試料の中心に対応する位置で等方的に発生した時、PH スペクトルの I チャンネルに計数される確率分布として応答関数 $R(I, E_\gamma)$ を定義し、これをコリメータ内に 5.0 mm 厚鉛板を加えない場合²⁴⁾ と加えた場合²⁵⁾ について実験的に求めた。

(I) コリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を加えない場合

この応答関数は、強度が分かっている 7 つの標準線源からの γ 線と、陽子共鳴反応からの γ 線の測定によって求められた。使用した γ 線源を表 2.2、表 2.3 に示す。

上記の測定から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・

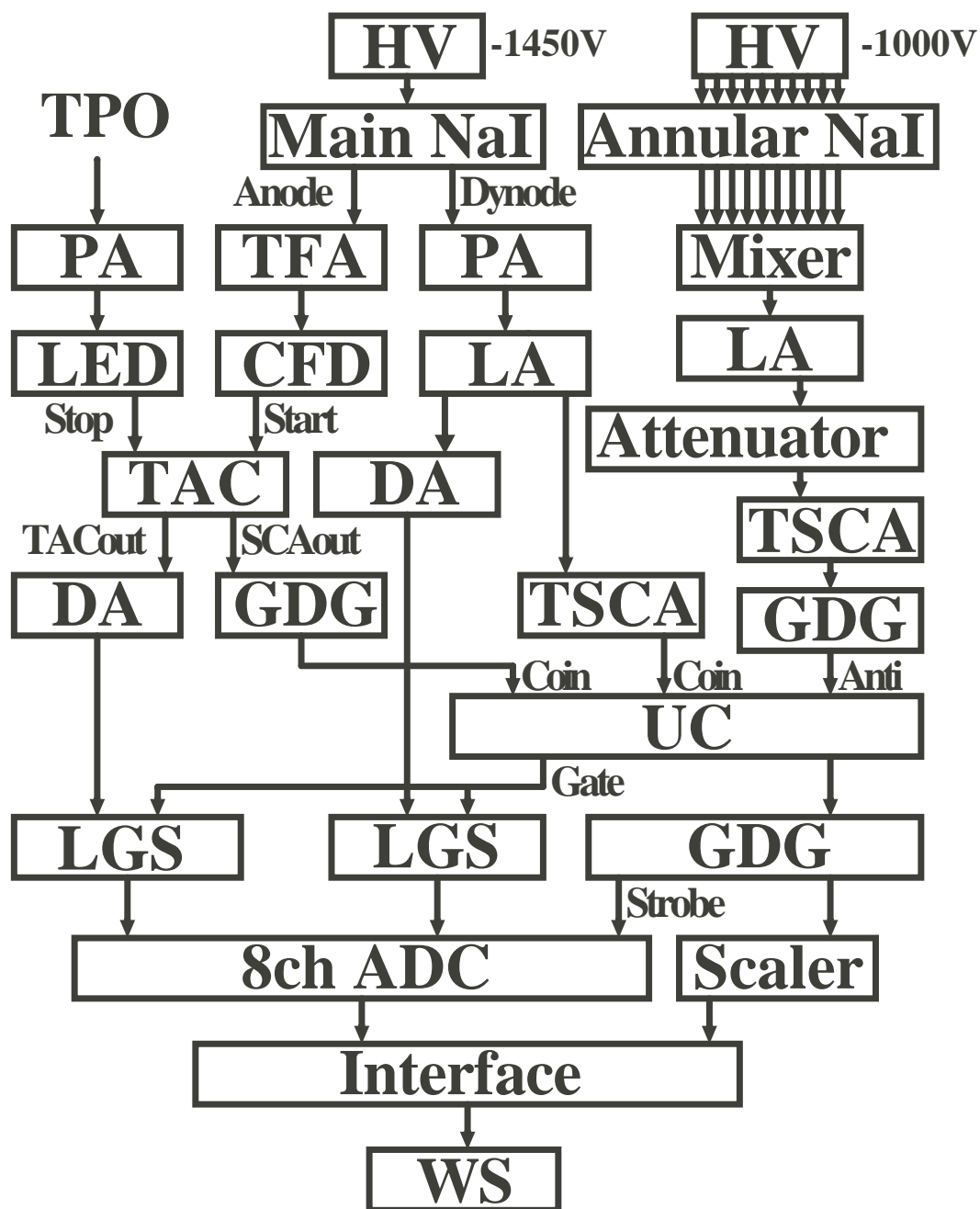


図 2.7: γ 線検出器系の回路図

表 2.2: 標準線源及び γ 線エネルギー

γ 線源	エネルギー [MeV]
^{241}Am	0.060
^{133}Ba	0.356 , 0.384
^{22}Na	0.511 , 1.275
^{137}Cs	0.662
^{54}Mn	0.835
^{88}Y	0.898 , 1.836
^{60}Co	1.173 , 1.333

表 2.3: 陽子共鳴反応のエネルギー及び γ 線エネルギー

共鳴反応	共鳴エネルギー [keV]	γ 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 γ 線の平均エネルギー

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。そこで、これら3つの部分を分離して各部分の検出効率や形状の γ 線エネルギー依存性を見出し、それらを内挿して任意の入射エネルギーの γ 線に対する応答関数を合成した。

- 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、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。ピークの低エネルギー側はガウス関数から形が少しずれてくるので、この部分は補正項として別に考慮した。ピークの高エネルギー側を最小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。エネルギー分解能は光電子増倍管中で発生する光電子数の統計的揺らぎに主に起因するので、近似的に $E_\gamma^{0.5}$ に比例すると考えられる。そこで、エネルギー分解能が aE_γ^b に比例すると仮定して最小2乗法でフィットし、

$$FWHM(E_\gamma) = 1.028E_\gamma^{0.5985} [\text{keV}] \quad (2.4)$$

となった。また、全エネルギーピーク検出効率 ε_f を次のように定義した。

$$\varepsilon_f = \frac{S}{I_\gamma \times t} \quad (2.5)$$

ここで、 S はガウス関数でフィットしたピーク面積、 I_γ は γ 線の放出強度 (γ/sec)、 t は測定時間である。標準 γ 線源に関してはその放出強度が分かっているので、(2.5) 式より 1.836 MeV までの絶対検出効率曲線を最小 2 乗法により求めた。また 1.779 MeV 以上のエネルギー領域については、 $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ 共鳴反応から得られた相対検出効率を同じく最小二乗法フィットした。これらを 1.779 ~ 1.836 MeV の間で比較することで、最終的な全領域における全エネルギー・ピーク検出効率を次式のように求めた。ここで、 E_γ は MeV の単位である。

$$\varepsilon_f(E_\gamma) = \exp(aE_\gamma^2 + bE_\gamma + c + \frac{d}{E_\gamma} + \frac{e}{E_\gamma^2} + \frac{f}{E_\gamma^3}) \quad (2.6)$$

$$\begin{aligned} a &= 6.351 \times 10^{-3} \\ b &= -1.520 \times 10^{-1} \\ c &= -7.396 \\ d &= -2.448 \times 10^{-1} \\ e &= 1.811 \times 10^{-2} \\ f &= -5.286 \times 10^{-4} \end{aligned}$$

- 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、(2.4) 式から求めた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。ただし、シングル・エスケープ・ピークの強度は全エネルギー・ピークに比べて弱いので、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。シングル・エスケープ・ピーク検出効率 $\varepsilon_s(E_\gamma)$ は、全エネルギーピーク面積との比から次式のように求められた。

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

$$\begin{aligned} a &= -1.467 \times 10^{-2} \\ b &= -1.581 \\ c &= -6.836 \end{aligned}$$

- 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・ピークを上記のガウス関数にフィットした形で引き去り、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た。そしてコンプトン部分の検出効率 $\varepsilon_c(E_\gamma)$ は、最小 2 乗法フィットにより、全エネルギーピーク面積との比から次式のように得た。

$$\varepsilon_c(E_\gamma) = \varepsilon_f(E_\gamma) \cdot \exp\left(aE_\gamma^2 + bE_\gamma + c + \frac{d}{E_\gamma}\right) \quad (2.8)$$

$$a = 7.387 \times 10^{-3}$$

$$b = -7.002 \times 10^{-2}$$

$$c = 1.051 \times 10^{-1}$$

$$d = -2.408$$

またコンプトン連続部分の形状の内挿は、測定から得られたコンプトン部分のうち、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、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・エッジに合わせた。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

前述のように、全エネルギー・ピークの低エネルギー側とガウスフィットとのずれを最小 2 乗法により E_γ のみのガウス関数で数式化した。

このようにして得られた鉛板を加えない場合の応答関数の例を図 2.8 に示す。

(II) コリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を加えた場合

同様の方法によって、コリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を加えた場合の応答関数を求めた。全エネルギーピーク検出効率と、シングルエスケープピークとコンプトン部分の検出効率を全エネルギーピーク面積との比として次のように求められた。

- 全エネルギーピーク部分

$$\varepsilon_f(E_\gamma) = \exp\left(aE_\gamma^2 + bE_\gamma + c + \frac{d}{E_\gamma} + \frac{e}{E_\gamma^2}\right) \quad (2.9)$$

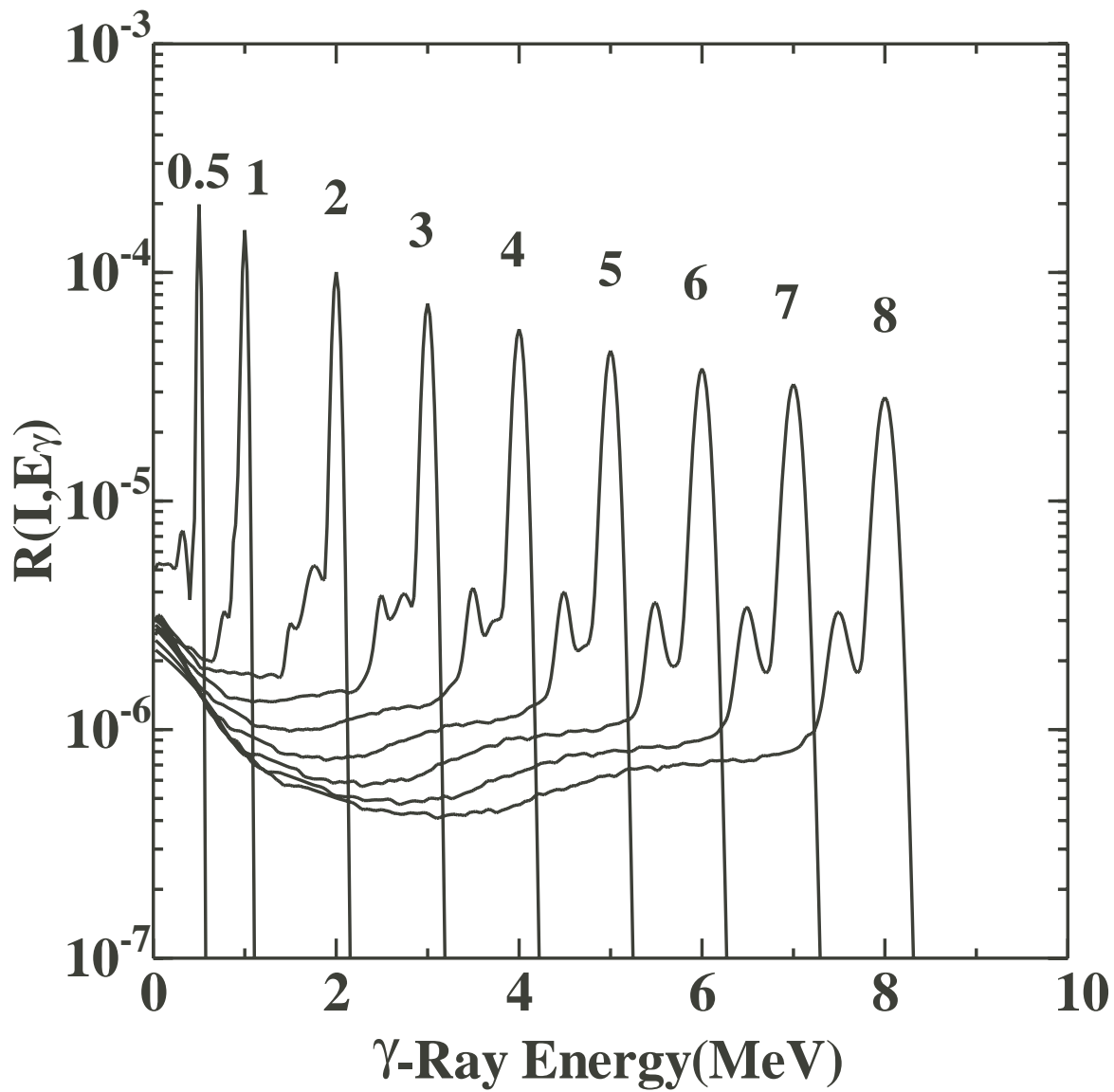


図 2.8: 鉛板を挿入しない場合の応答関数の例。ピークの上の数字は γ 線エネルギー (MeV)。

$$\begin{aligned}
 a &= 4.170 \times 10^{-3} \\
 b &= -1.327 \times 10^{-1} \\
 c &= -7.704 \\
 d &= -1.449 \times 10^{-1} \\
 e &= 1.952 \times 10^{-2}
 \end{aligned}$$

- シングルエスケープピーク部分

$$\varepsilon_s(E_\gamma) = \varepsilon_f(E_\gamma) \exp(aE_\gamma + b + \frac{c}{E_\gamma}) \quad (2.10)$$

$$\begin{aligned}
 a &= -1.467 \times 10^{-2} \\
 b &= -1.581 \\
 c &= -6.836
 \end{aligned}$$

- コンプトン部分

$$\varepsilon_c(E_\gamma) = \varepsilon_f(E_\gamma) \exp(aE_\gamma^2 + bE_\gamma + c + \frac{d}{E_\gamma}) \quad (2.11)$$

$$\begin{aligned}
 a &= 8.97309 \times 10^{-3} \\
 b &= -3.32448 \times 10^{-2} \\
 c &= -3.83562 \times 10^{-1} \\
 d &= -1.92554
 \end{aligned}$$

鉛板を加えた場合の応答関数の例を図 2.9 に示す。図 2.8 と比較して全体的に全エネルギーピーク検出効率が鉛板挿入による効果で小さくなっている。特に低エネルギーの 0.5 MeV の応答関数では、それが顕著である。

2.5.4 波高重み法

本研究では、捕獲 γ 線 PH スペクトルから捕獲イールドを求める際に波高重み法²⁶⁾²⁷⁾を採用しているため、ここでは波高重み法について述べる。波高重み法は、 γ 線検出器の検出効率が小さく、2 本以上の捕獲 γ 線が同時に観測されないという条件の下で適用される。中性子捕獲によって形成された複合核の捕獲状態から基底状態までの γ 線崩

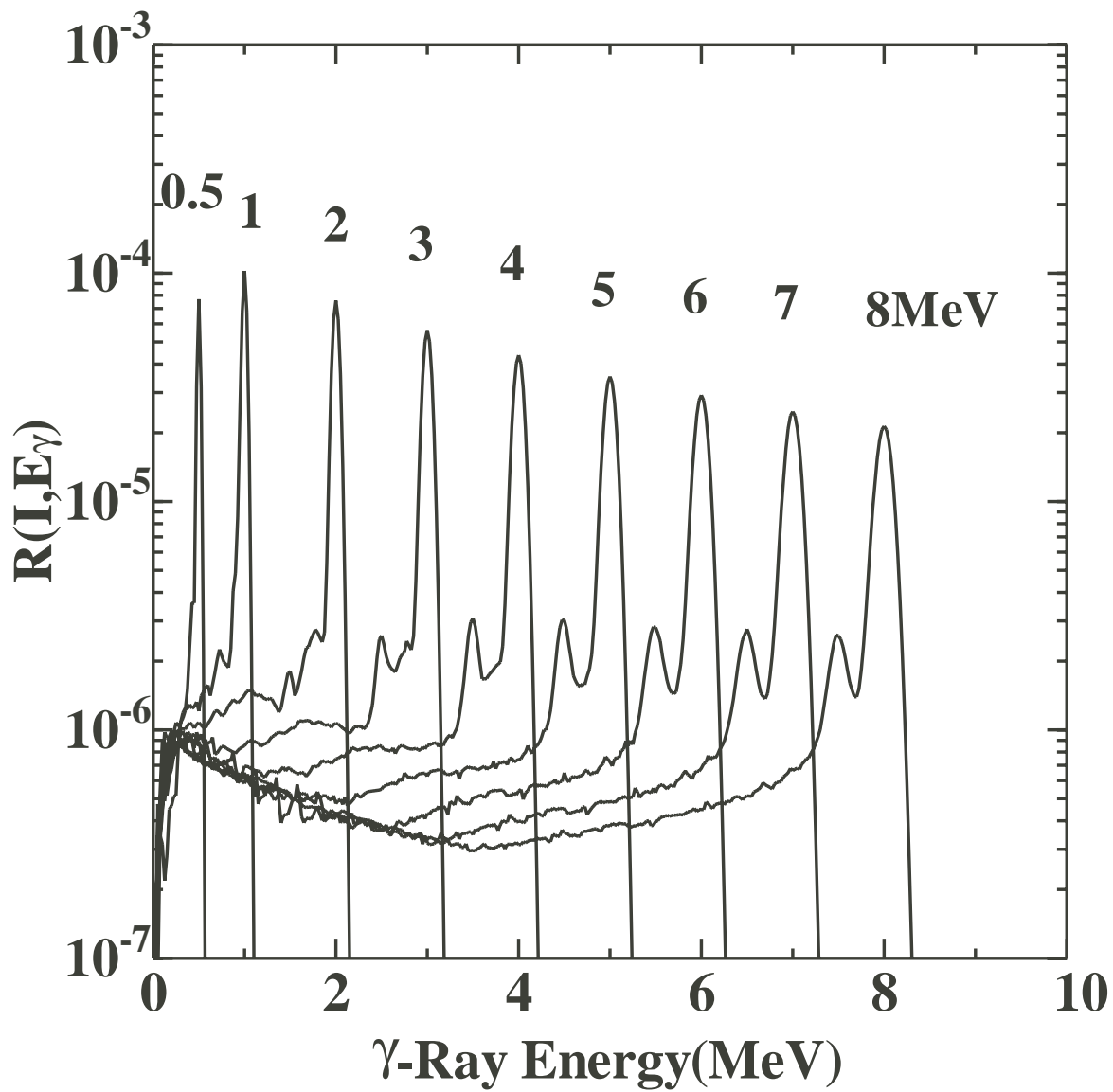


図 2.9: 鉛板を挿入した場合の応答関数の例。ピークの上の数字は γ 線エネルギー (MeV)。

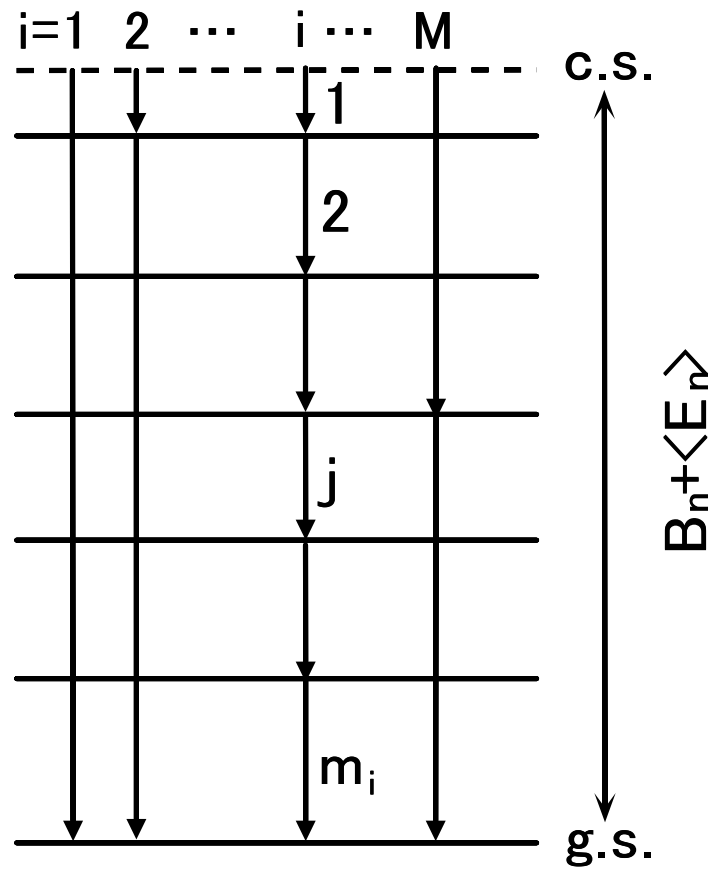


図 2.10: 様々な崩壊モード概念図

壊には図 2.10 に示すように様々なモードがあり、放出される γ 線の数およびそのエネルギーは各モードによって異なる。しかし、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結合エネルギー (B_n) と重心系における入射中性子エネルギー ($\langle E_n \rangle$) の和に等しくなる。すなわち

$$B_n + \langle E_n \rangle = \sum_j E_{\gamma ij} \quad (2.12)$$

となる。ここで、 $E_{\gamma ij}$ は i 番目の崩壊モードの 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 モードの起きた数を N_i とすれば、中性子捕獲イールド Y (中性子捕獲反応事象の数) は次式のようにになる。

$$Y = \sum_{i=1}^M N_i \quad (2.13)$$

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 $R(I, E_{\gamma ij})$ とすると、 I チャネルの計数 $S(I)$ (即ち、捕獲 γ 線 PH スペクトル) は、

$$S(I) = \sum_{i=1}^M N_i \sum_j R(I, E_{\gamma ij}) \quad (2.14)$$

となる。ここで、

$$\sum_I R(I, E_{\gamma ij}) W(I) = E_{\gamma ij} \quad (2.15)$$

を満たすような重み関数 $W(I)$ を定義すると、

$$\begin{aligned} \sum_I S(I) W(I) &= \sum_I \sum_{i=1}^M N_i \sum_j R(I, E_{\gamma ij}) W(I) \\ &= \sum_{i=1}^M N_i \sum_j E_{\gamma ij} \\ &= \sum_{i=1}^M N_i (B_n + \langle E_n \rangle) \\ &= Y (B_n + \langle E_n \rangle) \end{aligned} \quad (2.16)$$

となる。したがって、中性子捕獲イールド Y は次式で表せる。

$$Y = \frac{\sum_I S(I) W(I)}{B_n + \langle E_n \rangle} \quad (2.17)$$

以上のようにして重み関数を導入し、中性子捕獲イベントの検出効率を一定にし、中性子捕獲イールドを得る方法を波高重み法と言う。

表 2.4: 各実験におけるターゲットから試料までの距離

実験	距離 (cm)
^{99}Tc	
8-90 keV	12.0
190 keV	12.0
330 keV	12.0
540 keV	20.0
^{129}I	
16-90 keV	12.0
150 keV	12.0
560 keV	20.0

2.5.5 重み関数

重み関数は、2.5.4 節で説明した応答関数を用い、(2.15) 式を満足するように最小二乗法によって、鉛有り、無し、それぞれの場合で以下のように求めた。

- 鉛有り (図 2.11 の実線)

$$W(I) = 1.053 \times 10^3 I^{1/2} - 1.877 \times 10^2 I + 1.823 \times 10^1 I^{3/2} - 3.485 \times 10^{-1} I^2 \quad (2.18)$$

- 鉛無し (図 2.11 の点線)

$$W(I) = 2.415 \times 10^2 I^{1/2} + 3.008 I + 2.443 \times 10^{-1} I^2 - 2.955 \times 10^{-4} I^3 \quad (2.19)$$

鉛板を挿入した場合、検出効率が小さくなるため (図 2.8、2.9 参照)、重み関数は鉛板を挿入しない場合に比べ相対的に大きくなる。また鉛を挿入した場合の重み関数の方が、500 keV 付近で強調された形になっている。

2.6 試料

Li ターゲットから測定用試料までの距離は、実験システムの時間分解能、中性子 TOF、照射中性子数を考慮して決めた。各実験におけるターゲットと試料との距離を表 2.4 にまとめた。

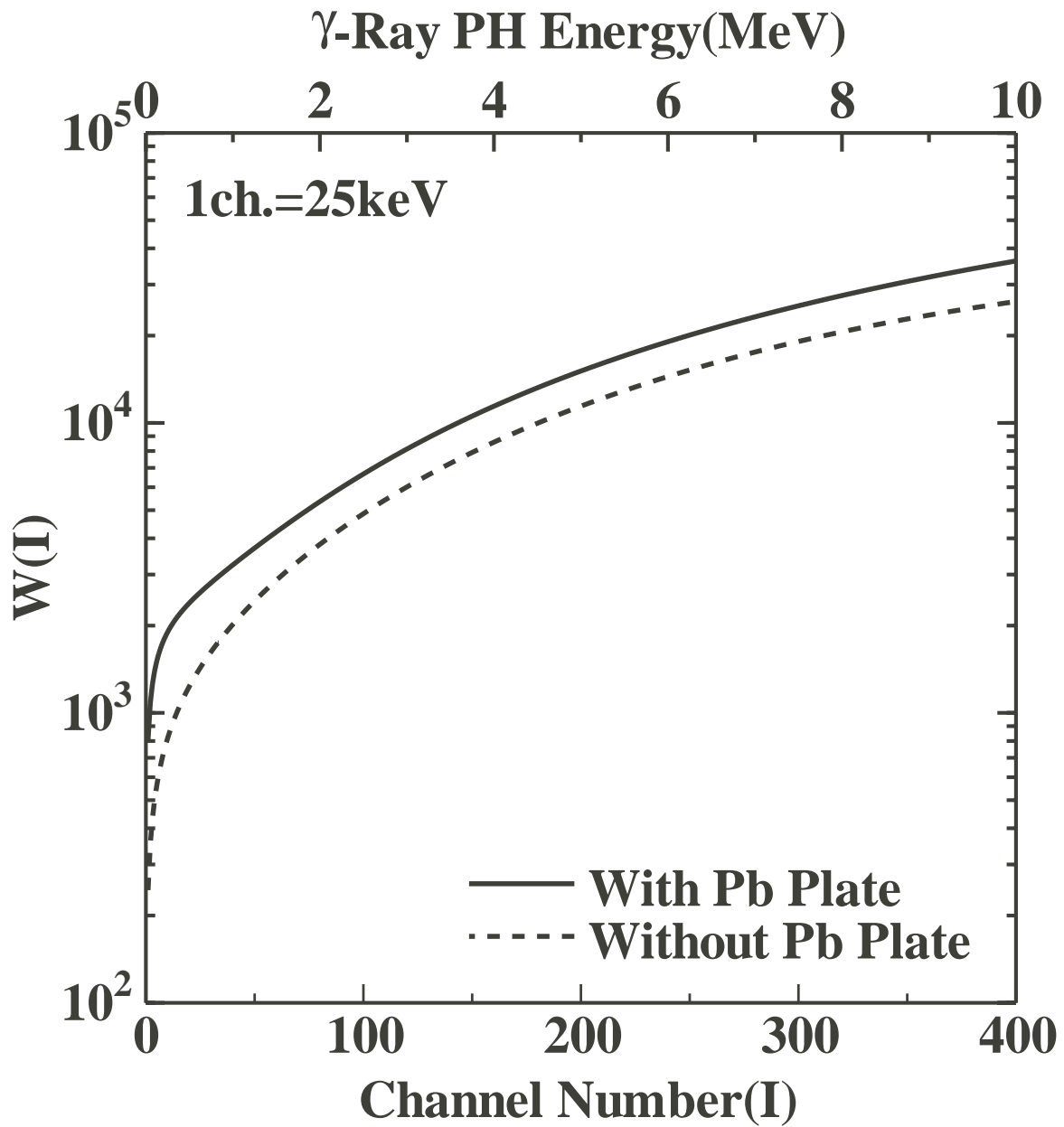


図 2.11: 鉛を挿入した場合と挿入しない場合の重み関数の比較

2.6.1 ^{99}Tc

^{99}Tc 試料、標準金試料、バックグランド測定用 Al 試料の諸元を表 2.5 に示す。試料は化学純度 99.4 % の高純度酸化物粉末で、 ^{99}Tc の正味の質量は約 1 g である。試料は約 650 MBq の放射能があり、Al ケース内に密封されている。試料内の水分は 0.3 % 以下であることが保証されている。 ^{99}Tc 試料の形状を図 2.12 に示す。

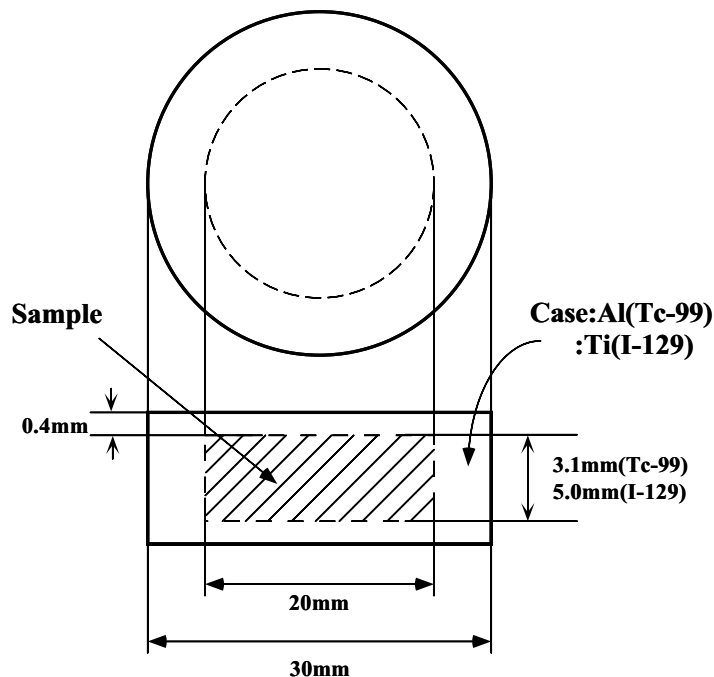


図 2.12: ^{99}Tc 試料と ^{129}I 試料の形状

2.6.2 ^{129}I

^{129}I 試料およびバックグランド測定に用いた試料の諸元を表 2.6 に示す。また、 ^{129}I 試料の形状を図 2.12 に示す。標準金試料は、 ^{99}Tc 実験と同様のものをを用いたので表 2.6 では省略する。試料の化学形は NaI で、酸化防止剤として亜硫酸ナトリウム (Na_2SO_3) を添加しているため、試料中の ^{129}I 含有量は 21 weight% である。また、NaI 結晶は潮解性があることで知られているが、試料中の水分含有量は 1% 未満であることが保証されている。なお、 ^{129}I の同位体組成 68% は、小林 (京大) らの中性子共鳴解析結果²⁸⁾ を用いた。同位体組成確認のため、本研究においては放射化分析を行った (詳細は付録 A)。その結果は、実験誤差内で小林の解析結果と一致した。

表 2.5: ^{99}Tc 試料の諸元

	^{99}Tc	^{197}Au	Al
化学形	TcO_2	Au	Al
化学純度 (%)	99.4	99.99	99.9
同位体組成 (%)	100	100	100
正味の質量 (g)	1.027	6.02/12.02	90.73
不純物			
Rh (%)	0.099	-	-
K (%)	0.059	-	-
Nb (%)	0.058	-	-
B (%)	0.057	-	-
水分量 (%)	<0.3	-	-
試料の直径 (mm)	20.0	20.0	90.0
試料の厚さ			
(mm)	3.1	1.0/2.0	5.5
($\times 10^{-3}$ atoms/b)	1.98	5.85/11.7	31.8
ケース	Al	-	-

表 2.6: ^{129}I 試料の諸元

	^{129}I	Dummy	^{127}I	Ti-nat	S-nat	^{23}Na	$^{197}\text{Au}^\dagger$
化学形	NaI +Na ₂ SO ₃	NaI +Na ₂ SO ₃	PbI ₂	Ti	S	Na	Au
化学純度 (%)	36.9	36.9	99.9	99.9	99	99.0	99.99
同位体組成				100	100	100	100
^{129}I (%)	68±2	0	0	-	-	-	-
^{127}I (%)	32±2	100	100	-	-	-	-
正味の質量 (g)	0.337	^{127}I :0.496	^{127}I :35.0	Ti:65.4	S:118.9	Na:55.3	Au:32.3
不純物							
^{23}Na (%)	20.6	20.6	-	-	-	-	-
S-nat(%)	15.9	15.9	-	-	-	-	-
Pb-nat(%)	-	-	44.9	-	-	-	-
水分量 (%)	<1	-	-	-	-	-	-
試料の直径 (mm)	20.0	20.0	49.0	60.0	59.5	90.0	55.0
試料の厚さ							
(mm)	5.0	5.0	6.0	5.2	22.0	5.0	1.0
($\times 10^{-3}$ atoms/b)	0.501	0.737	8.8	28.2	78.9	22.8	4.16
ケース	Ti	Ti	-	-	-	-	-

$^\dagger\text{PbI}_2$ 試料測定から ^{127}I の捕獲断面積導出のために用いた標準金試料

2.7 測定

測定は、次の5つのrunについて行い、(1)、(2)、(3)、(4)は、入射中性子スペクトル、発生中性子量など、測定中の実験条件の変動による影響を緩和するためにサイクリックに行った。

- (1) 試料の測定 (Sample run)
- (2) 標準金試料の測定 (Au run)
- (3) 試料を置かない測定 (Blank run)
- (4) ダミー試料の測定 (Dummy run: ^{129}I の 16-90 keV、150 keV 実験のみ)
- (5) バックグラウンド試料の測定 (^{99}Tc :Al run、 ^{129}I : ^{127}I run、Ti run、S run、Na run)

各runの相対的な入射中性子数は、M-Li 検出器による中性子モニタカウントによって得られた。また、(5)について ^{99}Tc 実験では、Al ケースによるバックグラウンドを引き去るために Al 試料の測定を、 ^{129}I 実験では Ti ケース、および試料中に含まれている ^{127}I 、S、Na によるバックグラウンドを引き去るために、 $^{127}\text{I}(\text{PbI}_2)$ 、Ti-nat、S-nat、 ^{23}Na 各試料の測定も行った。 ^{99}Tc 、 ^{129}I 試料中に含まれている O は捕獲断面積が 10^{-4}b 程度以下と小さいのでバックグラウンドに影響を与えないとして無視した。

^{99}Tc の 8-90 keV、190 keV 実験、 ^{129}I の 16-90 keV、150 keV 実験では M-Li 検出器で入射中性子スペクトルを測定すると同時に発生中性子量をモニタしている。このとき、中性子源と中性子検出器との間に測定用試料や Au 試料が存在するため、中性子発生量の規格化を行うためには、各試料について中性子透過係数を得る必要がある。そこで、短時間内においては、発生中性子量がターゲットに入射した陽子ビーム電流に比例するとして、(1)、(2)、(3)、(4) それぞれ 30 分間の測定を行い、このとき同時に Current Integrator を用いて陽子ビーム電流の積分値を測定した。陽子ビーム電流の積分値と中性子検出器の計数の比から、測定用試料と Au 試料の透過係数を求めた。

^{99}Tc および ^{129}I 試料についての実験における各runの測定時間、および平均ビーム電流を表 2.7、2.8 に示す。

さらに、(1)-(5)の測定の前後には、次の測定を行った。

- (a) 時間較正: 中性子飛行時間を導出するため、Time Calibrator によって作った特定時間間隔を持った信号を γ 線検出器系および中性子検出器系の TAC のスタートとストップに入力することでそれぞれの時間較正を行った。
- (b) 標準線源測定: γ 線検出器のエネルギー較正のため、 ^{137}Cs 、 ^{22}Na 、 ^{60}Co の標準線源について γ 線 PH スペクトルを測定した。これらの標準線源から得られた γ 線

表 2.7: ^{99}Tc の各実験における測定時間と平均陽子ビーム電流

Neutron Energy(keV)	8-90	8-90 [†]	190	330 [†]	540
Repetition rate(MHz)	2	2	4	4	4
Beam current(μA)	5.6	4.8	10.4	9.8	13.2
Measuring time(h)					
Tc run	36.5	27.0	33.0	43.0	39.0
Au run	14.0	8.5	6.5	9.0	5.0
Blank run	6.0	4.0	25.5	29.0	21.0
Al run	4.0	3.5	5.0	5.0	5.0

[†] Measurements without the lead plate

と、捕獲実験中の自然バックグラウンドの ^{40}K からの γ 線、 ^{56}Fe の熱中性子捕獲反応による γ 線を用いてエネルギー較正を行った。

表 2.8: ^{129}I の各実験における測定時間と平均陽子ビーム電流

Energy(keV)	16-90	150	560
Repetition rate(MHz)	4	4	4
Beam current(μA)	7.9	7.5	8.0
Measuring time(h)			
I run	76.0	52.0	70.0
Au run	6.0	7.0	6.0
Blank run	5.0	23.0	35.0
Dummy run	39.0	27.0	-
Ti run	19.0	15.0	20.0
S run	13.0	-	20.0
Na run	14.6	-	25.0
^{127}I run	8.4	6.0	6.0

第3章 データ解析

本章では、 ^{99}Tc と ^{129}I の keV 中性子捕獲実験で得られたデータから中性子捕獲断面積および中性子捕獲 γ 線スペクトルを求めるデータ解析について述べる。解析の流れを図 3.1 に示す。データ解析は、おおきく以下の 4 つに分類することができる。

- (i) Blank run において ^6Li 検出器によって得られた中性子 TOF スペクトルから入射中性子エネルギー分布を求める。
- (ii) NaI(Tl) 検出器で得られたデータから ^{99}Tc 、 ^{129}I と ^{197}Au の正味の捕獲 γ 線 PH スペクトルを求める。
- (iii) (ii) で得られた PH スペクトルに波高重み法を適用して中性子捕獲断面積を求める。
- (iv) (ii) で得られた PH スペクトルをアンフォールディングすることによって捕獲 γ 線スペクトルを求める。

本研究では以上の項目の中でも特に、 ^{129}I の解析における正味の PH スペクトルの導出 ((ii) の部分) で工夫を行っている。以下ではそれぞれの項目について詳しく述べる。

3.1 入射中性子エネルギー分布

各実験の入射中性子エネルギー分布を求めるために、各実験における Blank run で ^6Li 検出器によって得られた中性子 TOF スペクトルを用いる。例として ^{99}Tc の各実験で得られた中性子 TOF スペクトルを図 3.2-3.5 に示す。図中幅の広いピークが $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応からの中性子によるものであり、鋭いピークは、 $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応と競争的に起こる $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$ 反応からの γ 線によるものである。 ^{99}Tc の 330 keV 実験と、 ^{99}Tc の 540 keV 実験および ^{129}I の 560 keV 実験では、 ^6Li 検出器を Li ターゲットからそれぞれ 3.2 m、4.6 m の距離に設置したため、中性子がターゲットから検出器まで到達するのに要する時間はそれぞれ約 390 ns、440 ns である。これらの実験では繰り返し周波数 4 MHz で測定を行っているので、図 3.4、3.5 中の $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$ ピークは 2 サイクル (500 ns) 遅れて発生したものである。横軸は時間軸を示しており、時間は (p, γ) ピークを基準に右から左に進行する。(p,n) ピーク中のチャンネル I_n で計測された中性子の飛行時間 T [ns]

は、 ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ 反応のピークチャンネル $I_{p\gamma}$ とのチャンネル差に時間較正の値 $T_{cal}[\text{ns/ch}]$ を掛けたものと、ターゲットから ${}^6\text{Li}$ 検出器までの γ 線の飛行時間を加えて、次式のように表される。

$$T = T_{cal}(I_{p\gamma} - I_n) + \frac{L}{c} \quad (3.1)$$

ここで、 $L[\text{m}]$ は Li ターゲットから ${}^6\text{Li}$ 検出器までの距離、 c は光速である。

入射中性子エネルギー分布を得るためにまず、図中斜線部分をコンスタントバックグラウンドとし、全体から引き去ることで正味の TOF スペクトルを得る。次に、飛行時間と距離から速度を求め、古典的な運動エネルギーの式を用いてエネルギーを計算する。中性子の場合、

$$E_n = \left(\frac{72.3L}{T}\right)^2 \quad (3.2)$$

で計算される。ここで、 $E_n(\text{MeV})$ は中性子エネルギーである。更に、 ${}^6\text{Li}$ 検出器の相対検出効率で割り、全体の面積を 1 に規格化することで入射中性子エネルギー分布 $\eta(E_n)$ を得た。 ${}^{99}\text{Tc}$ と ${}^{129}\text{I}$ の各実験における入射中性子エネルギー分布を図 3.6-3.9 に示す。8-90 keV 実験 (${}^{99}\text{Tc}$:図 3.6) および 16-90 keV 実験 (${}^{129}\text{I}$:図 3.8) では、30 keV 付近をピークとした連続分布として得られた。5 keV 以下のデータは、S/N が悪いのでカットした。図 3.6 および図 3.8 中の Gate は、NaI(Tl) 検出器で得られた TOF スペクトルを参考にして、解析する入射中性子エネルギー範囲が NaI 検出器系の時間分解能 (4.5 ns) より大きくなる様に設定した。この他の入射中性子エネルギーにおける実験では準単色の分布となっている。したがって、Gate としては 1 つを設けた。各 Gate の平均入射中性子エネルギーは、

$$\langle E_n \rangle = \frac{\int_{E_n^{min}}^{E_n^{max}} E_n \eta(E_n) dE_n}{\int_{E_n^{min}}^{E_n^{max}} \eta(E_n) dE_n} \quad (3.3)$$

で計算される。ここで、 E_n^{min} 、 E_n^{max} は Gate に入射する中性子の最小エネルギーと最大エネルギーである。

3.2 TOF スペクトル

NaI(Tl) 検出器によって検出された γ 線データは、前述のとおり TOF と PH の二次元データとして取り込んだ。

3.2.1 ${}^{99}\text{Tc}$

[Tc 実験 A] で NaI(Tl) 検出器によって得られた TOF スペクトルを図 3.10 に示す。図 3.10 中、左側の盛り上がり が ${}^{99}\text{Tc}(n,\gamma){}^{100}\text{Tc}$ 反応および ${}^{197}\text{Au}(n,\gamma){}^{198}\text{Au}$ 反応による

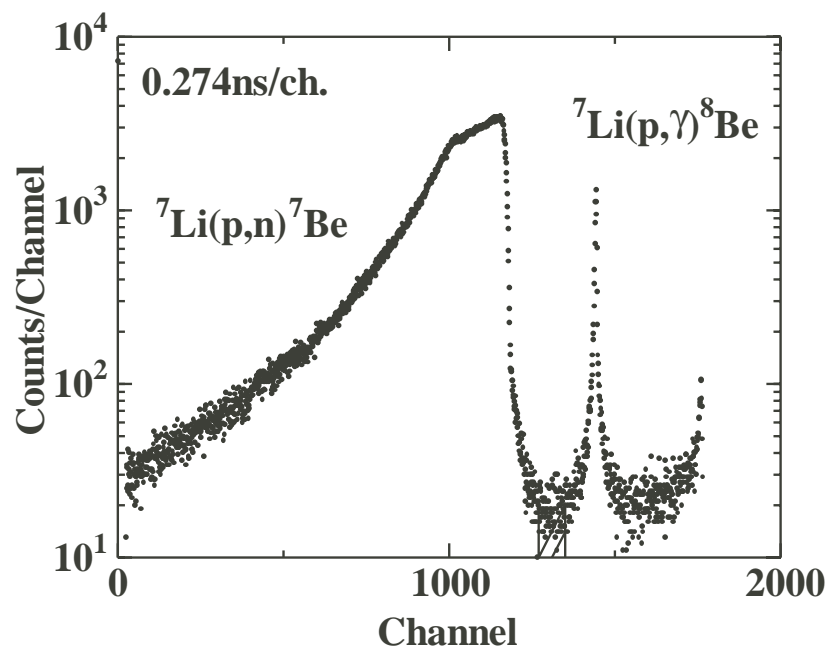


図 3.2: ^{99}Tc の 8-90 keV 実験における中性子 TOF スペクトル

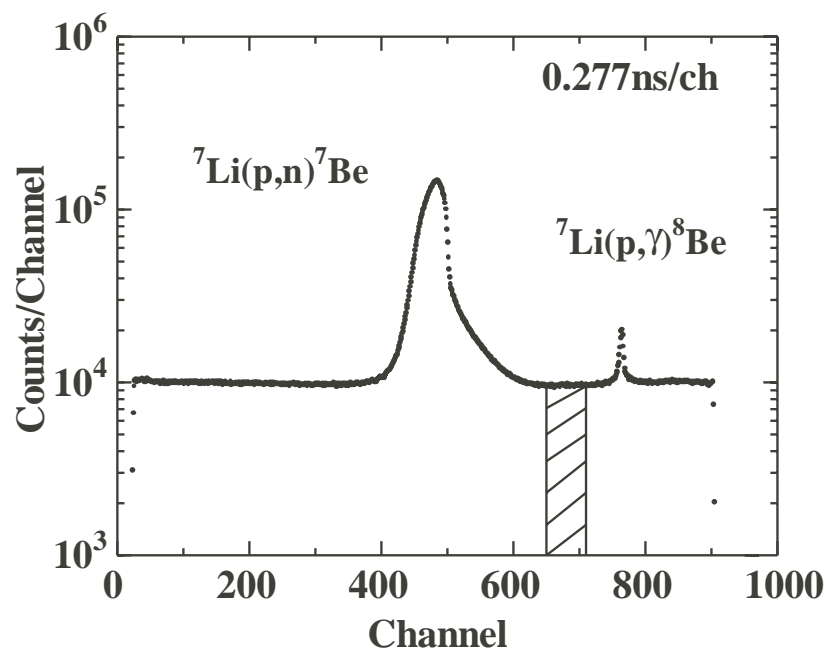


図 3.3: ^{99}Tc の 190 keV 実験における中性子 TOF スペクトル

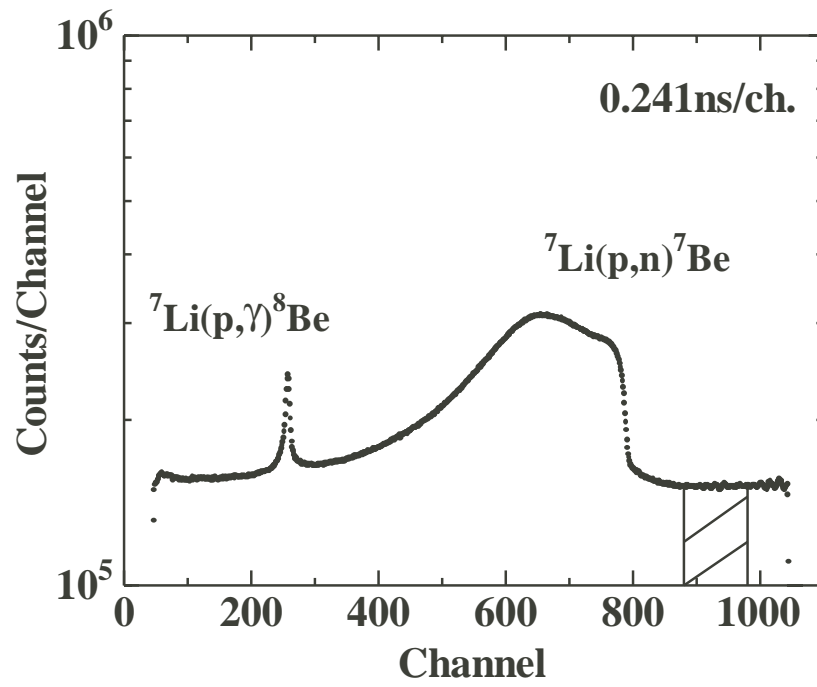


図 3.4: ^{99}Tc の 330 keV 実験における中性子 TOF スペクトル

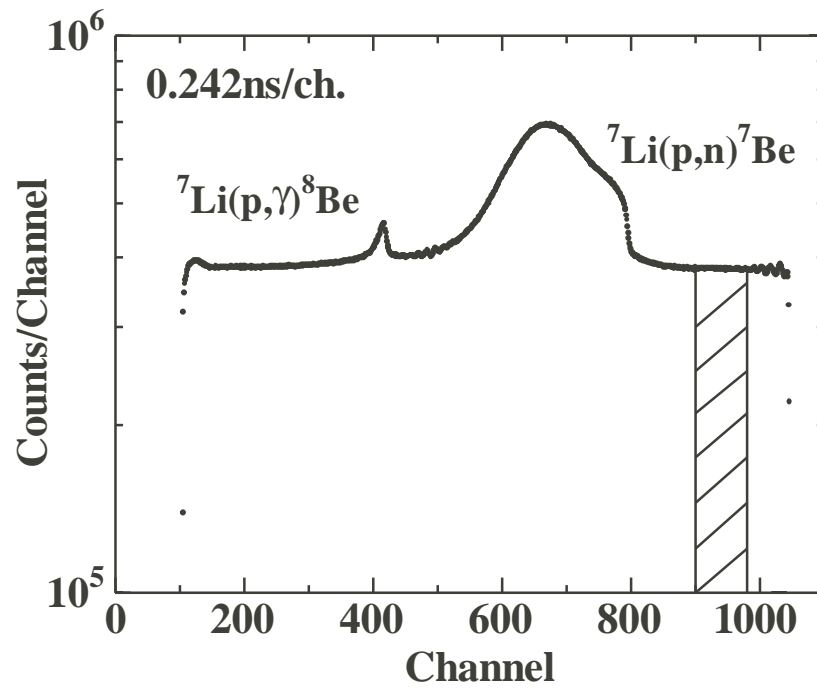


図 3.5: ^{99}Tc の 540 keV 実験における中性子 TOF スペクトル

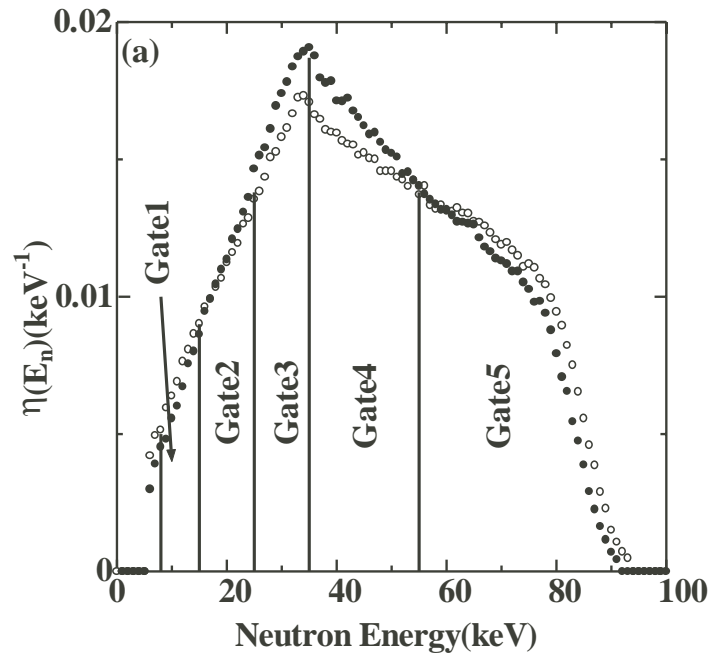


図 3.6: ^{99}Tc の 8-90 keV 実験における入射中性子スペクトル。黒丸が [Tc 実験 A]、白丸が [Tc 実験 B] における入射中性子スペクトルである。

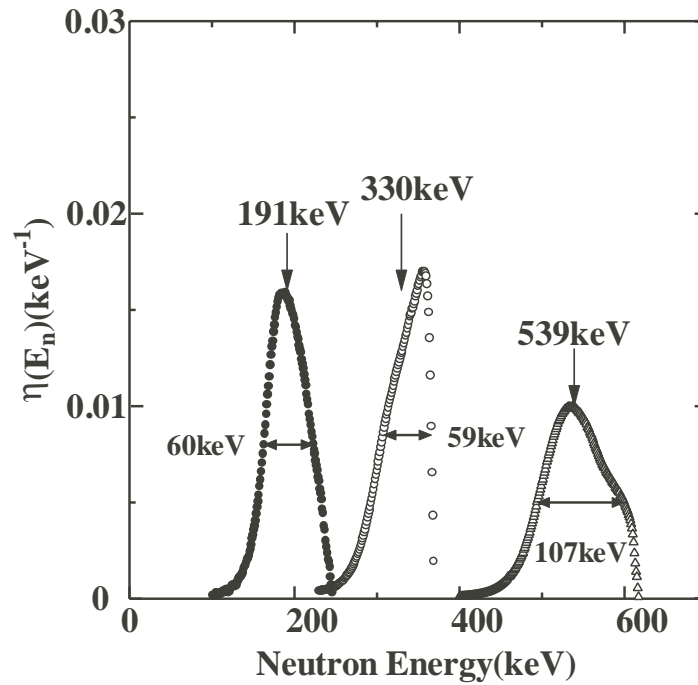


図 3.7: ^{99}Tc の 190 keV、330 keV、540 keV 実験における入射中性子スペクトル

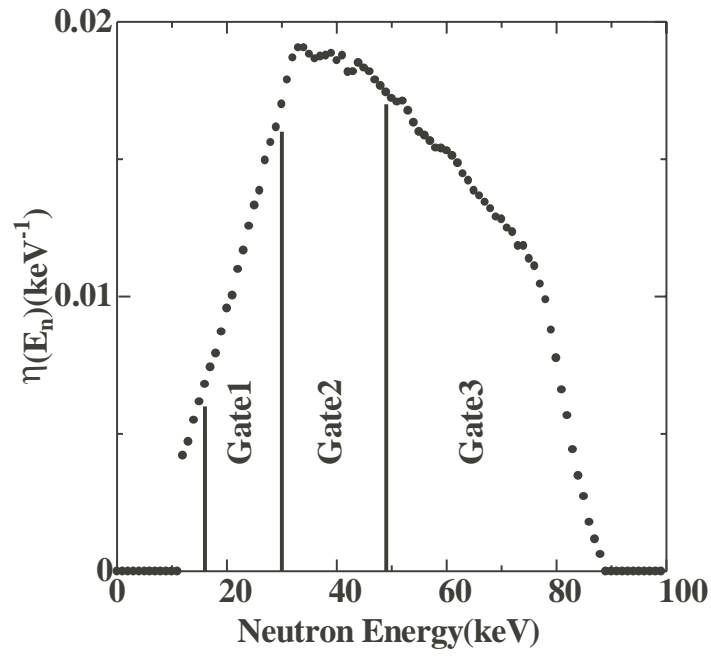


図 3.8: ^{129}I の 16-90 keV 実験における入射中性子スペクトル

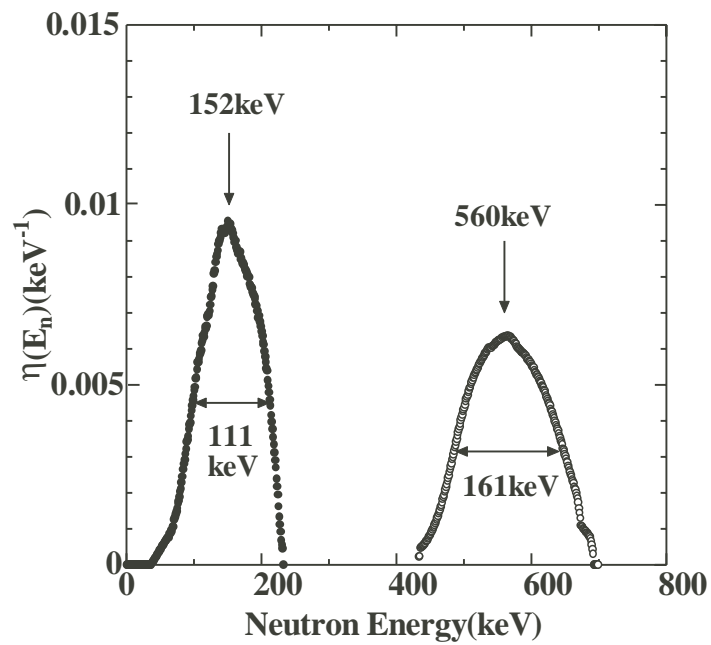


図 3.9: ^{129}I の 150 keV、560 keV 実験における入射中性子スペクトル

γ 線であり、右側の鋭いピークは ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ 反応による γ 線である。図 3.6 に示した Gate に対応する Gate を図中に示してある。なお、コンスタントバックグラウンド領域に Gate6 を設定した。190 keV、330 keV、540 keV 実験における Sample run の TOF スペクトルを図 3.11 に示す。左側の弱く、少し幅の広いピークが ${}^{99}\text{Tc}(n,\gamma){}^{100}\text{Tc}$ 反応からの γ 線である。これらの実験では中性子が準単色なので、 (n,γ) ピークの広がりには中性子スペクトルの幅と NaI(Tl) 検出器の時間分解能による。右側の鋭いピークは、図 3.10 と同様に ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ ピークである。

3.2.2 ${}^{129}\text{I}$

NaI(Tl) 検出器によって 16-90 keV 実験で得られた TOF スペクトルを図 3.12 に示す。図 3.12(a) の左側の盛り上がりは ${}^{129}\text{I}(n,\gamma){}^{130}\text{I}$ 反応、Ti ケース並びに不純物による中性子捕獲反応による γ 線である。図 3.12(a)(b) の 450ch. 以下の盛り上がりに見られる構造は Ti の共鳴構造によるものである。Gate を設ける際にも、この共鳴構造を考慮した。図中右側の鋭いピークは ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ 反応による γ 線である。150 keV および 560 keV 実験における Sample run の TOF スペクトルを図 3.13 に示す。スペクトルの構造は上記の ${}^{99}\text{Tc}$ の場合と同様である。

3.3 波高スペクトル

Sample run、Au run、Blank run で得られた NaI(Tl) 検出器の TOF スペクトルに設定した各 Gate に対応する PH スペクトルを、実験で得られた 2 次元生データからソートして求め、求められた各 PH スペクトルを用いて ${}^{99}\text{Tc}$ と ${}^{129}\text{I}$ の正味の PH スペクトルを導出する。正味の PH スペクトルを導出する際には、バックグラウンドを精度良く決定することが重要である。本実験系の主なバックグラウンドとして以下の 5 つが考えられる。

- (1) 自然バックグラウンド
- (2) 実験室内に充満する中性子が、実験室内の構造物と捕獲反応を起こして発生する γ 線バックグラウンドの内、
 - i 時間に依存しない成分
 - ii 時間に依存する成分
- (3) (p,γ) ピークのテイルの漏れ込み

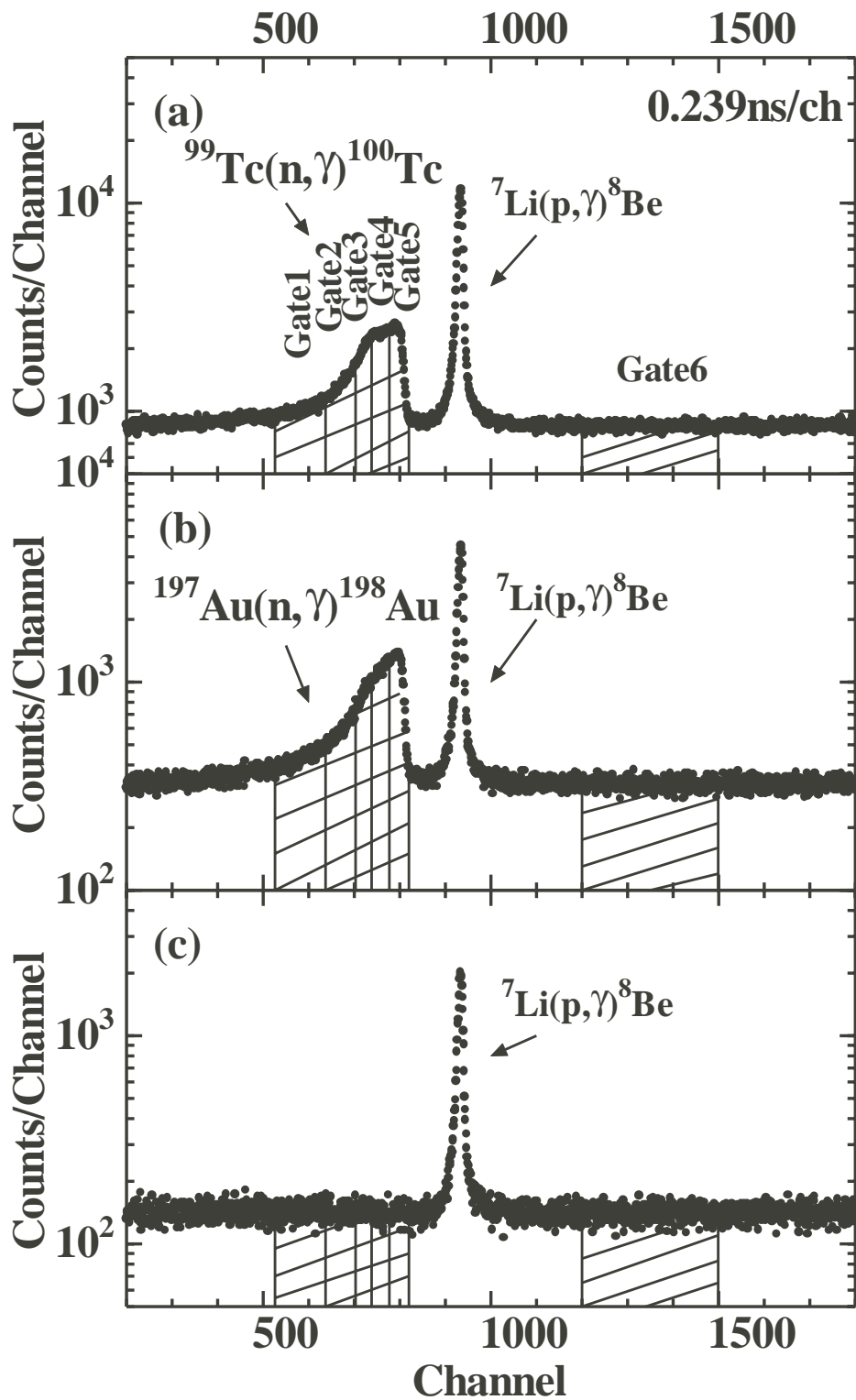


図 3.10: [Tc 実験 A] で NaI(Tl) 検出器によって観測された (a)Sample run、(b)Au run、(c)Blank run の TOF スペクトル

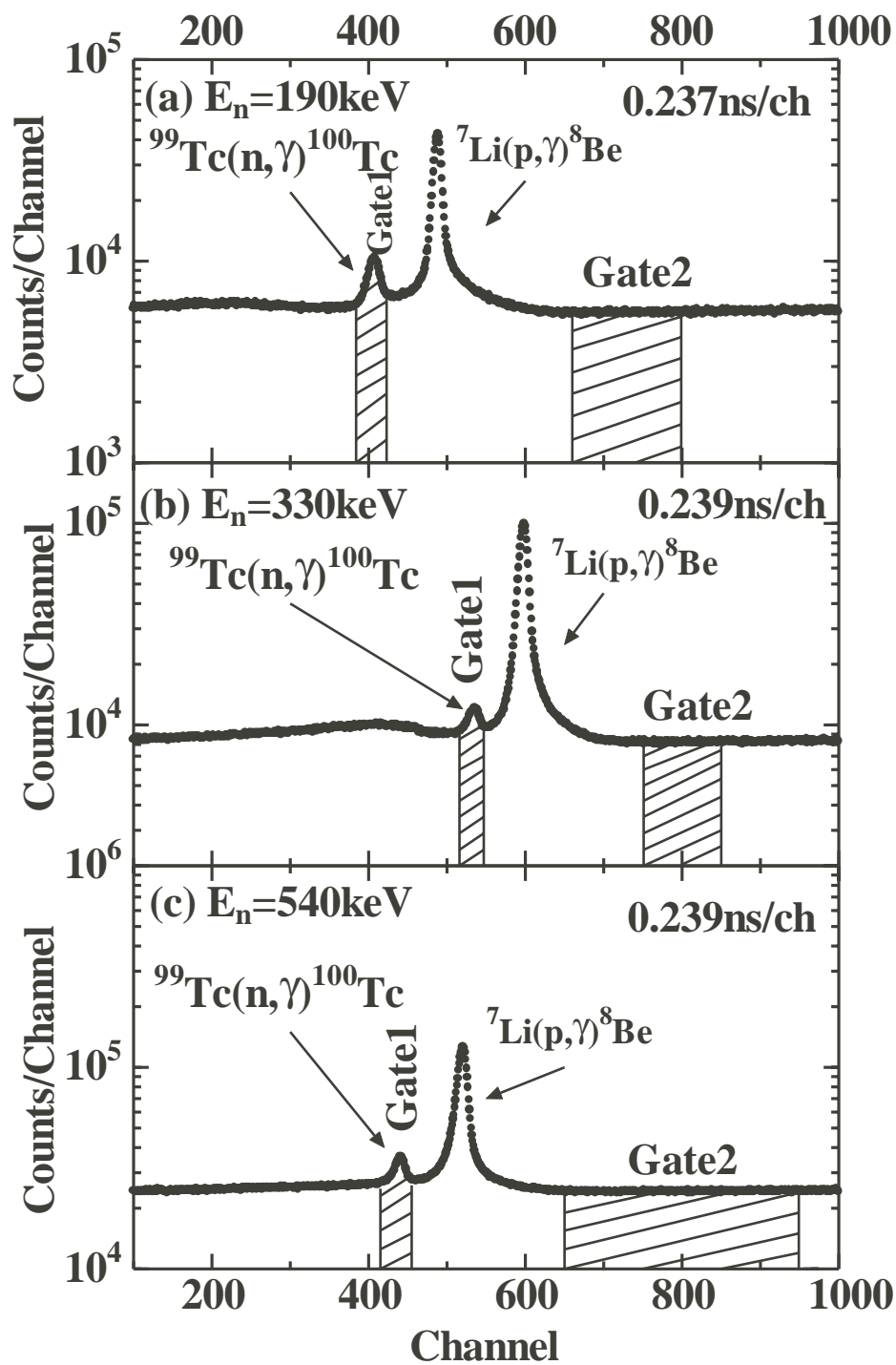


図 3.11: ^{99}Tc の (a)190 keV、(b)330 keV、(c)540 keV 実験で NaI(Tl) 検出器によって観測された Sample run の TOF スペクトル

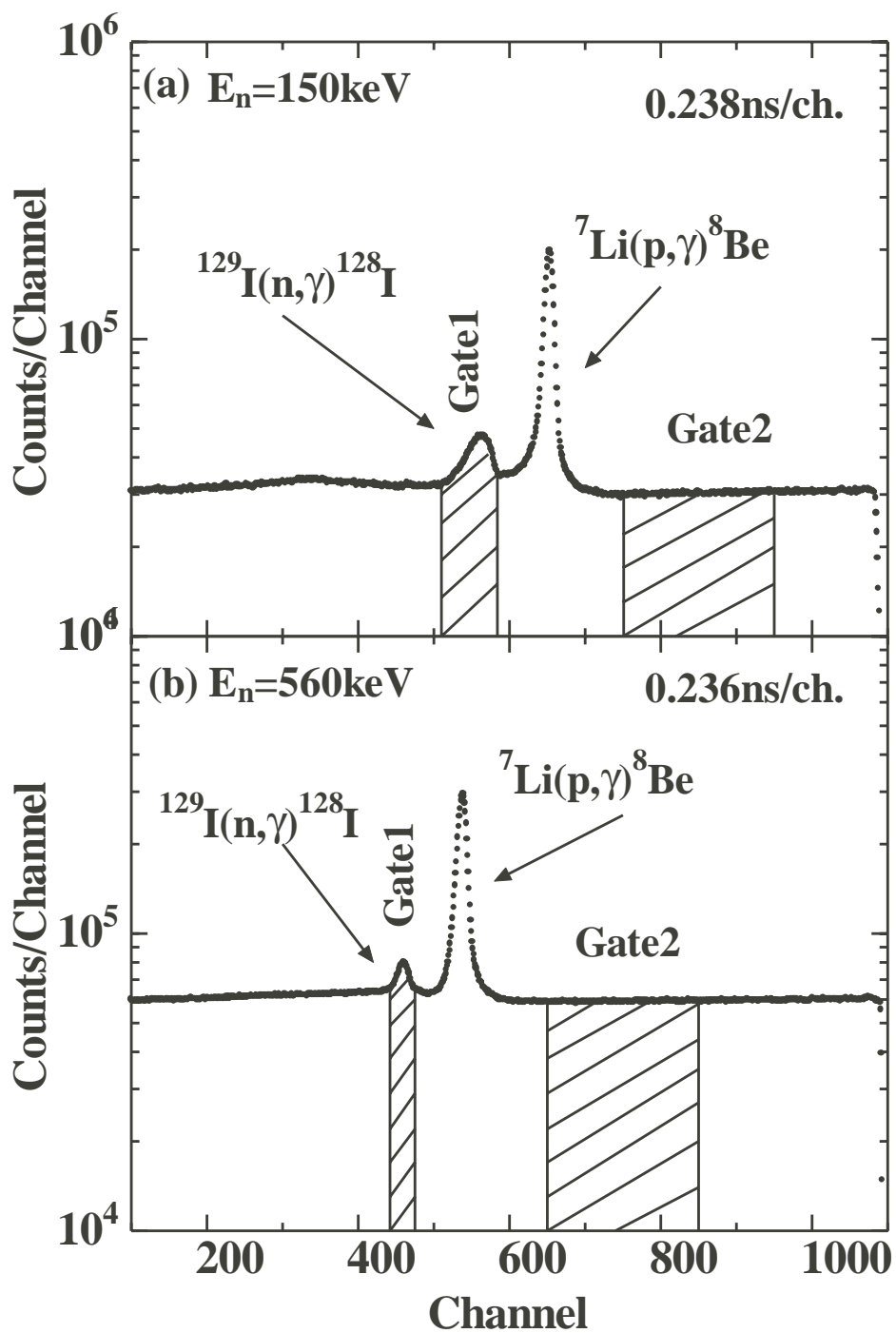


図 3.13: ^{129}I の (a) 150 keV、(b) 560 keV 実験において NaI(Tl) 検出器によって観測された Sample run の TOF スペクトル

(4) ケースおよび試料内の不純物の中性子捕獲反応によるバックグラウンド

入射中性子エネルギーが 100 keV 以下の実験においては、中性子が陽子ビーム方向に対して約 50° のコーンの中のみが発生し、このコーン中には NaI 検出器等の大きな構造物は存在しない。したがって、他の高いエネルギーの実験と比較して、(2) のバックグラウンドのレベルは低く、特に、(2)-ii については 15 keV 以下の TOF 領域のみに観測されている²⁹⁾。15 keV 以下の時間依存バックグラウンドに関しては、3.6 節補正のところで詳しく述べる。また、100 keV 以下の実験では中性子 TOF が長い為、(3) は無視できる。入射中性子エネルギーが 100 keV 以上では、(1)-(4) すべての成分を考慮する必要がある。このときの (2)-ii は主に、Li ターゲットからの中性子が直接 NaI(Tl) 検出器系に入射し、検出器系の構造体、遮蔽体との捕獲反応により発生した γ 線によるものである。以下に、 ^{99}Tc と ^{129}I それぞれの正味の PH スペクトルの導出方法を述べる。

3.3.1 ^{99}Tc の正味の波高スペクトルの導出

(I) 8-90 keV 実験

時間依存のないバックグラウンド ((1)+(2)-i) は Gate6 から得ることができる。図 3.14 に、[Tc 実験 A] で得られた Gate3 のフォアグラウンド PH スペクトルと Gate6 のバックグラウンド PH スペクトルを示す。バックグラウンドは、フォアグラウンド Gate 幅を用いて規格化してある。1.46 MeV に見えるピークは ^{40}K からの自然バックグラウンドである。まず、このフォアグラウンド PH スペクトルからバックグラウンド PH スペクトルを引き去る。この結果も図 3.14 に同時に示す。図中、7.7 MeV に見られるピークは Al ケースにおける $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ 反応によるものである。従って、Al 試料の測定によって得られた正味の PH スペクトルを 7.7 MeV γ 線ピークの面積で規格化を行い引き去ることで、 ^{99}Tc の正味の PH スペクトルを得た。図 3.15 に、Gate1 から 5 を足し合わせた正味の PH スペクトルを [Tc 実験 A](鉛板有り) と [Tc 実験 B](鉛板無し) について比較して示す。図 3.15 において、挿入した 5.0 mm 厚鉛板による減衰の効果が 1MeV 以下の部分において顕著なことが分かる。

(II) 190、330、540 keV 実験

時間依存のないバックグラウンド ((1)+(2)-i) は、8-90 keV の場合と同様に図 3.11 の Gate2 に対応するバックグラウンドを Gate1 のチャンネル幅で規格化して求めた。(2)-ii と (3) のバックグラウンド γ 線 PH スペクトルの形は、Blank run の Gate1 で得られた PH スペクトルから Gate2 で得られた PH スペクトルをチャンネル幅で規格化して引き去ることによって得られる。この PH スペクトルを Sample run の発生中性子量で規格化し

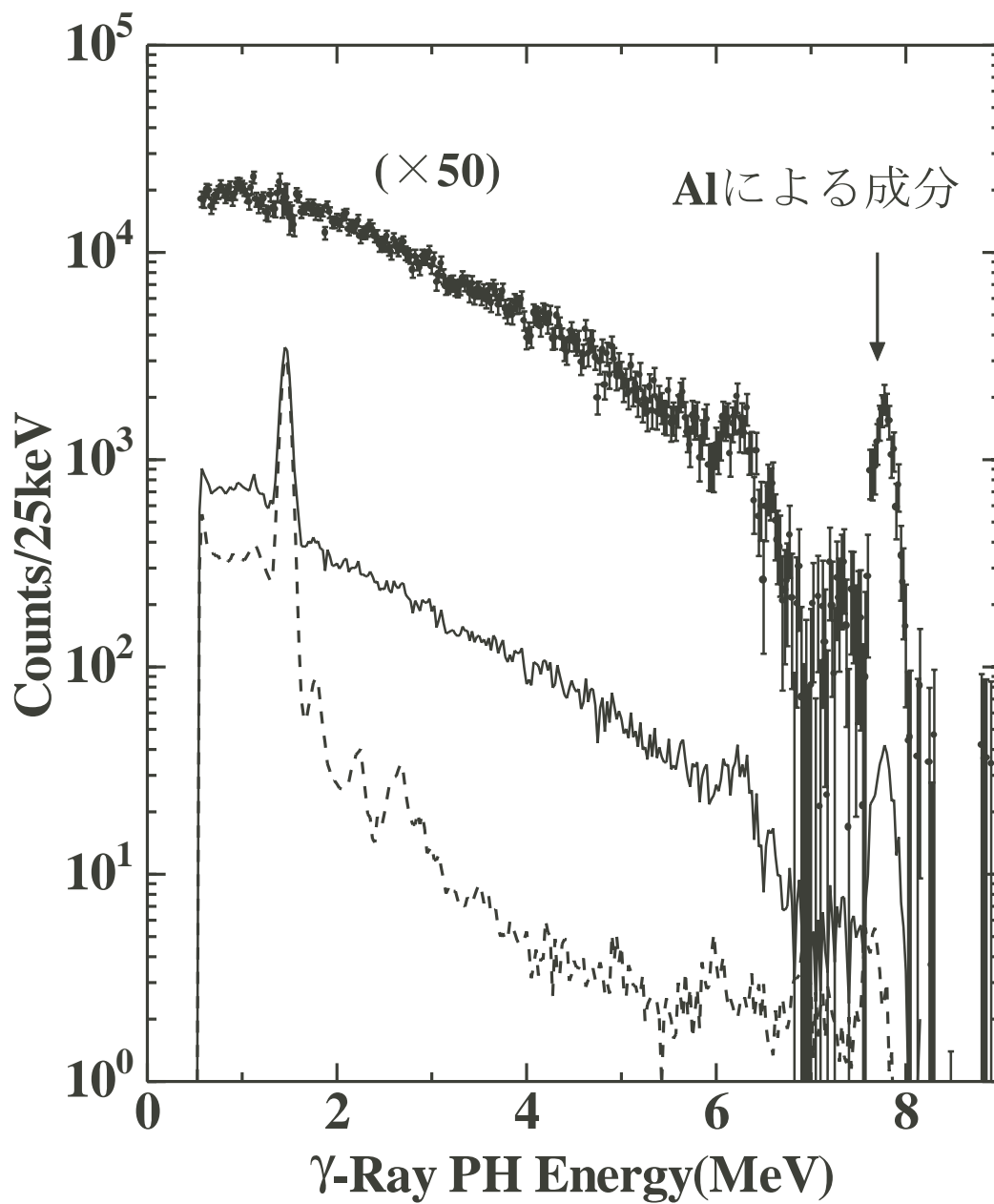


図 3.14: [Tc 実験 A] の Gate3 のフォアグラウンド PH スペクトル (実線) と Gate 幅で規格化したバックグラウンド PH スペクトル (破線)。(\cdot) は、フォアグラウンド PH スペクトルからバックグラウンド PH スペクトルを引き去った結果である。

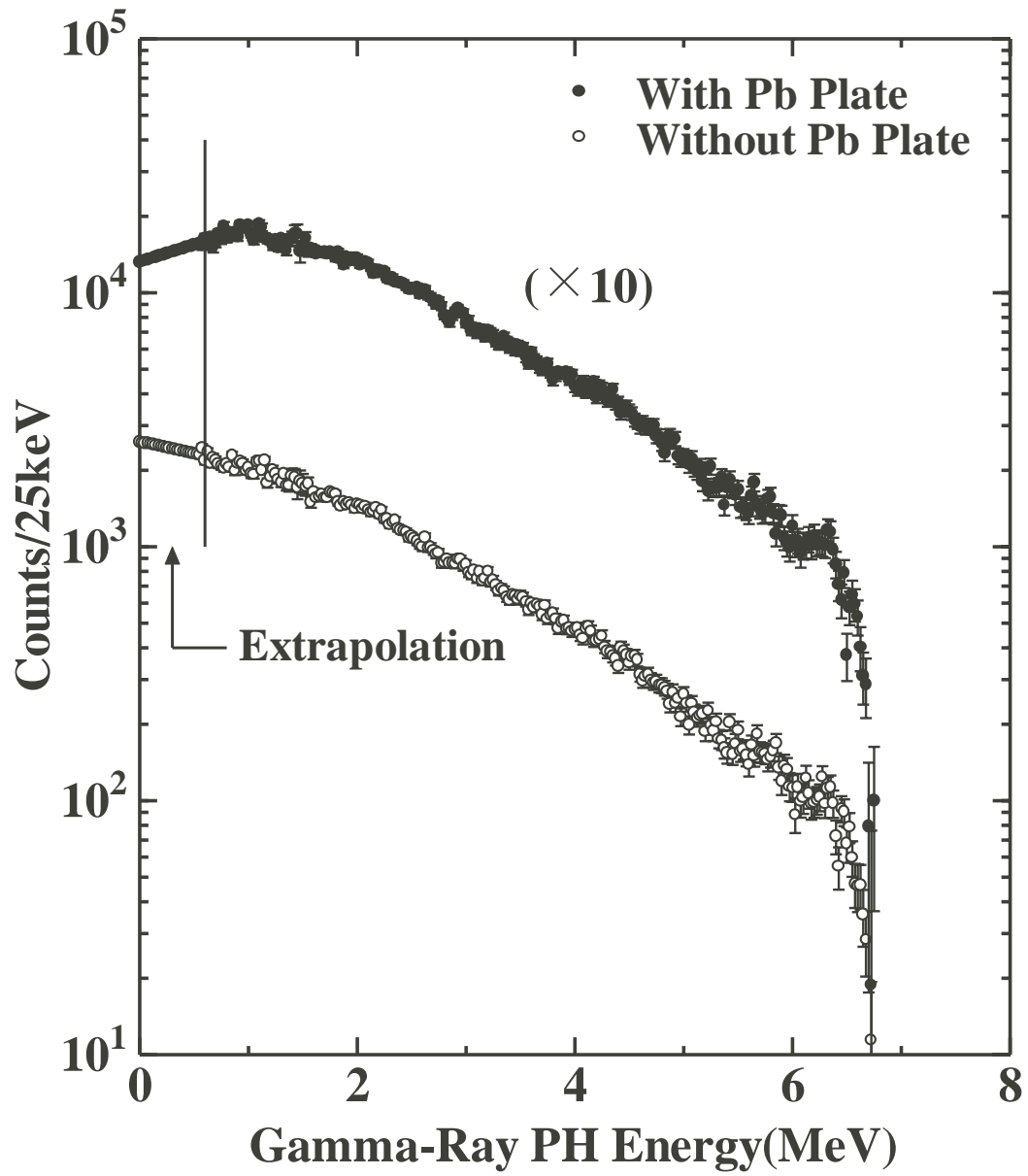


図 3.15: ^{99}Tc の正味の PH スペクトル (Gate1 ~ 5 の和)

時間に依存するバックグラウンド ((2)-ii+(3)) とした。さらに、Al ケースによるバックグラウンドを 8-90 keV 実験の場合と同様の方法で引き去り、正味の PH スペクトルを得た。図 3.16 に 190、330、540 keV 実験で得られた ^{99}Tc の正味の PH スペクトルを示す。

3.3.2 ^{129}I の正味の波高スペクトルの導出

^{129}I の実験では、16-90 keV 実験における ((1)+(2)-i) のバックグラウンド、150、560 keV 実験における (1)(2)(3) のバックグラウンドは、 ^{99}Tc の場合と同様の方法で求めた。 ^{129}I 実験では、試料に多くの不純物が含まれているため、正味の PH スペクトルを求める際に Ti ケースおよび不純物によるバックグラウンド ((4) の成分) を精度良く決定することが非常に重要である。 ^{129}I の正味の PH スペクトルを求める解析手順の概念図を図 3.17 に示す。以下に、(4) のバックグラウンド引き去る方法を示す。

(I)16-90 keV、150 keV 実験

16-90 keV 実験では、(4) の成分の決定に、ダミー試料の測定によって得られた PH スペクトルと $\text{Pb}^{127}\text{I}_2$ 試料の測定で得られた ^{127}I の PH スペクトルを用いた。まず、以下に各 PH スペクトルの記号を定義する。

- (i) $S_{sam}^L(\text{I})$: ^{129}I 試料の測定によって得られたフォアグラウンド PH スペクトル (図 3.12 の Gate1-Gate3) から時間依存のないバックグラウンド (Gate4) を引き去って得られた PH スペクトル (150 keV 実験の場合、更に時間依存のバックグラウンドも引き去る。)
- (ii) $S_{dum}^L(\text{I})$: ダミー試料の測定によって得られたフォアグラウンド PH スペクトルから時間依存のないバックグラウンドを引き去って得られた PH スペクトル (150 keV 実験の場合、更に時間依存のバックグラウンドも引き去る。)
- (iii) $S_{PbI}^L(\text{I})$: PbI_2 の測定によって得られた ^{127}I の正味の PH スペクトル (150 keV 実験の場合、更に時間依存のバックグラウンドも引き去る。)

ここで、I はチャンネルである。また、

- (a) $S_{29}^L : S_{sam}^L(\text{I})$ 内の ^{129}I による成分。すなわち ^{129}I の正味の PH スペクトル
- (b) $S_{27}^L : S_{sam}^L(\text{I})$ 内の ^{127}I による成分
- (c) $S_{Ti}^L : S_{sam}^L(\text{I})$ 内の Ti による成分
- (d) $S_{Sul}^L : S_{sam}^L(\text{I})$ 内の S(硫黄) による成分

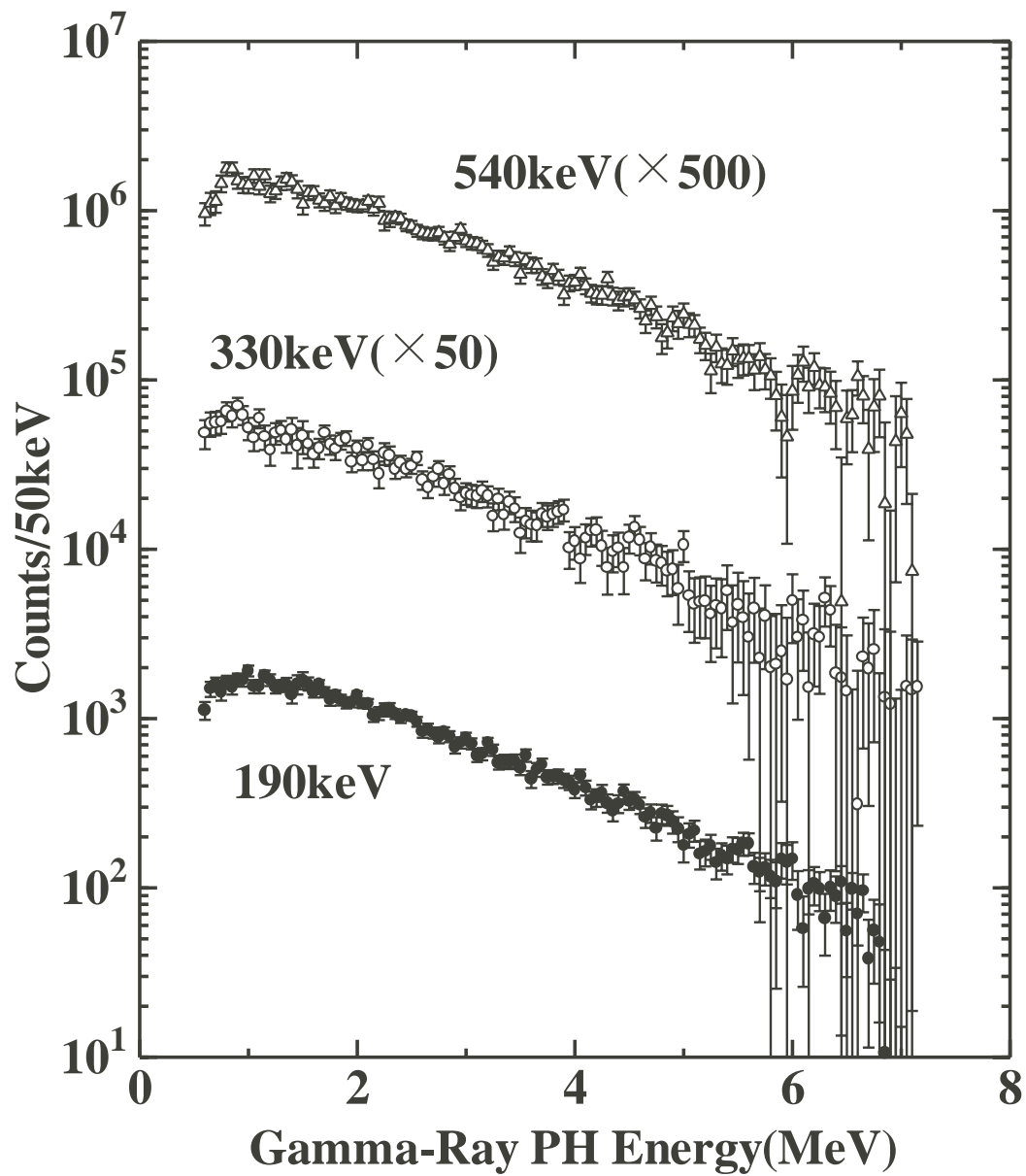


図 3.16: ^{99}Tc の 190keV、330keV、540keV 実験で得られた ^{99}Tc の正味の PH スペクトル

(e) $S_{Na}^L : S_{sam}^L$ (I) 内の ^{23}Na による成分

とすると、 S_{sam}^L (I) は、

$$S_{sam}^L(I) = S_{29}^L(I) + S_{27}^L(I) + S_{Ti}^L(I) + S_{Sul}^L(I) + S_{Na}^L(I) \quad (3.4)$$

と書くことができる。また、ダミー試料測定での入射中性子数を ^{129}I 試料測定の際の入射中性子数に規格化 (規格化定数を a^L) すると $a^L S_{dum}^L$ (I) は、

$$a^L S_{dum}^L(I) = \frac{1}{0.32} S_{27}^L(I) + S_{Ti}^L(I) + S_{Sul}^L(I) + S_{Na}^L(I) \quad (3.5)$$

と表すことができる。従って、 ^{129}I の正味の PH スペクトルは、 ^{129}I 試料中とダミー試料中の中性子自己遮蔽および多重散乱の効果は同じであると仮定すると、 S_{29}^L (I) は、

$$S_{29}^L(I) = \{a^L S_{dum}^L(I) - S_{sam}^L(I)\} + 0.68 b^L S_{PbI}^L(I) \quad (3.6)$$

と導出することができる。ここで、 $a^L = (^{129}\text{I}$ 測定用試料への入射中性子数) / (ダミー試料への入射中性子数)、 b^L は、

$$b^L = \frac{(B_{27} + \langle E_n \rangle) n_{27} \sigma_{27} \bar{\phi} C_{27}}{\sum_I W(I) S_{PbI}^L(I)} \quad (3.7)$$

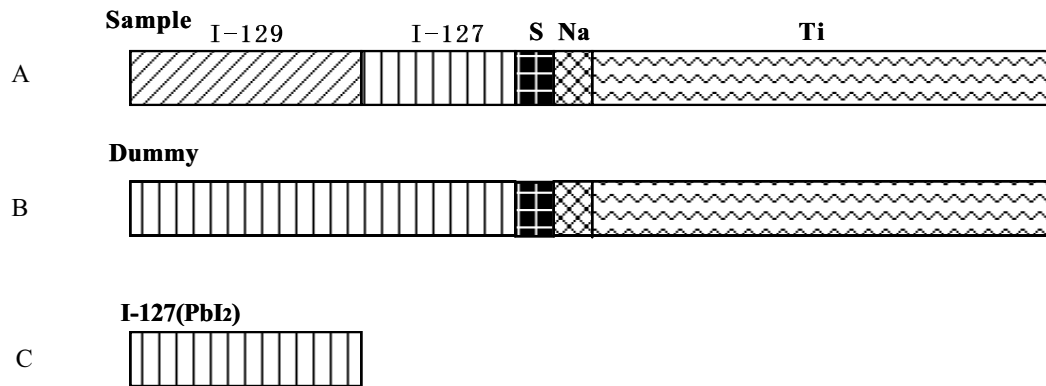
である。ここで、 B_{27} は ^{127}I の中性子結合エネルギー、 n_{27} はダミー試料中の ^{127}I の厚さ [atoms/b]、 ϕ は ^{129}I 試料への入射中性子数、 σ_{27} は各 Gate における ^{127}I の平均中性子捕獲断面積であり、 $\text{Pb}^{127}\text{I}_2$ 試料を用いた測定から求めた。また、 C_{27} は補正係数である。(3.5) 式で求めた ^{129}I の正味の PH スペクトルについて、バックグランド成分が精度良く引き去れているかどうかを調べるために得られた正味の PH スペクトルの $B_n + \langle E_n \rangle$ 以上のエネルギー領域においてカウント数の和を計算した。バックグランドが精度良く引き去れていれば統計誤差内で 0 に一致するはずである。結果は、16-90 keV 実験において Gate1 では -41 ± 152 、Gate2 では 119 ± 148 、Gate3 では -21 ± 176 であり、150keV 実験では 235 ± 439 であった。従って、バックグランドは引き去れていることが分かる。

(II) 560 keV 実験

3.3.2(I) 節と同様、以下のように記号を定義する。

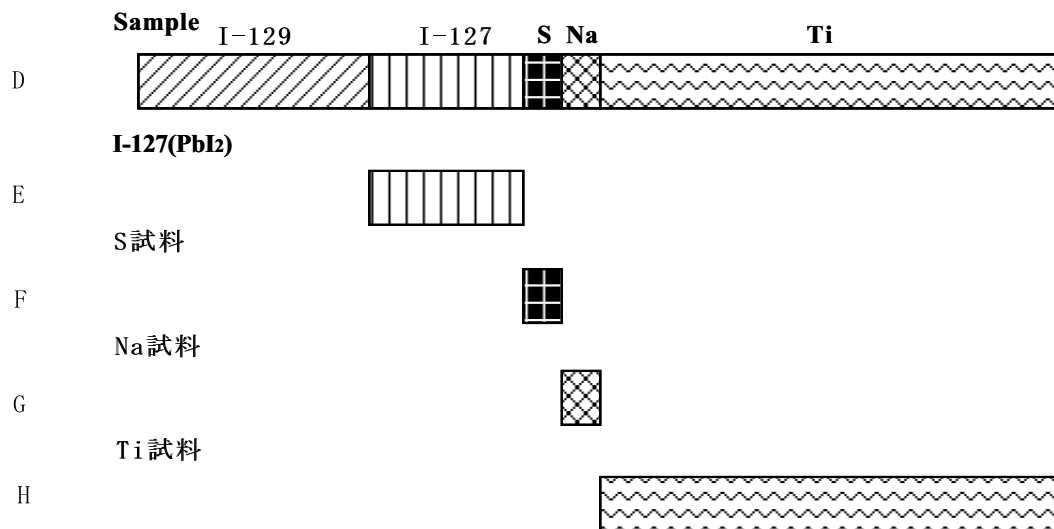
- (i) S_{sam}^H (I): ^{129}I 試料の測定によって得られたフォアグランド PH スペクトルから時間依存のないバックグランド (図 3.13 の Gate2) および時間依存のあるバックグランドを引き去った PH スペクトル

パターン1 (16-90keV、150keV実験)



正味のPHスペクトル=A-(B-C)

パターン2 (560keV実験)



正味の波高スペクトル=D-(E+F+G+H)

図 3.17: ^{129}I の正味の PH スペクトル導出方法の概念図

- (ii) $S_{PbI}^H(I)$: PbI₂ 試料の測定によって得られた ¹²⁷I の正味の PH スペクトル
- (iii) $S_{Ti}^H(I)$: Ti 試料の測定から得られた Ti の正味の PH スペクトル
- (iv) $S_S^H(I)$: S 試料の測定から得られた S の正味の PH スペクトル
- (v) $S_{Na}^H(I)$: Na 試料の測定から得られた ²³Na の正味の PH スペクトル

そして、次の手順で正味の PH スペクトルを求める。

- (1) まず、 S_{sam}^H から ²³Na と S の成分を、Na と S 試料の正味の PH スペクトルと JENDL-3.2 の捕獲断面積評価値から求めた平均中性子捕獲断面積を用いて引き去る。

$$\begin{aligned}
 S_{sam}^H(I) &= a^H S_{Na}^H(I) + b^H S_S^H(I) \\
 a^H &= \frac{(B_{Na} + \langle E_n \rangle) n_{Na} \sigma_{\bar{Na}} \phi C_{Na}}{\sum_I W(I) S_{Na}^H(I)} \\
 b^H &= \frac{(B_S + \langle E_n \rangle) n_S \bar{\sigma}_S \phi C_S}{\sum_I W(I) S_S^H(I)}
 \end{aligned} \tag{3.8}$$

ここで、 n_{Na} 、 n_S は ¹²⁹I 試料中の ²³Na と S の厚さ [atoms/b]、 ϕ は ¹²⁹I 試料に入射した中性子数、 C_{Na} と C_S は補正係数、 $\sigma_{\bar{Na}}$ と $\bar{\sigma}_S$ は JENDL-3.2 の捕獲断面積評価値 σ_{ev} と実験で得られた入射中性子エネルギー分布から、

$$\sigma_{\bar{Na}} = \frac{\int_{E_n^{min}}^{E_n^{max}} \sigma_{ev}(E_n) \eta(E_n) dE_n}{\int_{E_n^{min}}^{E_n^{max}} \eta(E_n) dE_n} \tag{3.9}$$

の様に求めた平均中性子捕獲断面積である。 B_{Na} 、 B_S は中性子結合エネルギーである。S(硫黄) は天然試料を用いたが ³²S が同位体組成 95 % であり、また、S の正味の PH スペクトルの大部分は ³²S によるものなので、 B_S は ³²S の中性子結合エネルギーを用いた。

- (2) 次に、Ti 成分を引き去る。

$$S_{sam}^H(I) - \{a^H S_{Na}^H(I) + b^H S_S^H(I)\} = c^H S_{Ti}^H(I) \tag{3.10}$$

規格化定数 c^H は、 $S_{sam}^H(I) - \{a^H S_{Na}^H(I) + b^H S_S^H(I)\}$ と $S_{Ti}^H(I)$ のスペクトルの 7.8 MeV から 15.0 MeV におけるカウント数の和の比で求めた。ここで、¹²⁹I と ¹²⁷I の中性子結合エネルギーはそれぞれ 6.5 MeV と 6.8 MeV であり、 $S_{sam}^H(I) - \{a^H S_{Na}^H(I) + b^H S_S^H(I)\}$ のスペクトルのエネルギーが 7.8 から 15 MeV の領域では Ti のみによる PH スペクトルである。

(3) 最終的に ^{127}I の成分を引き去り、 ^{129}I の正味の PH スペクトルを導出した。

$$S_{sam}^H(I) - \{a^H S_{Na}^H(I) + b^H S_S^H(I)\} - c^H S_{Ti}^H(I) - d^H S_{PbI}^H(I)$$

$$d^H = \frac{(B_{27} + \langle E_n \rangle) n_{27} \bar{\sigma}_{27} \phi C_{27}}{\sum_I W(I) S_{PbI}^H(I)} \quad (3.11)$$

この規格化定数中の $\bar{\sigma}_{27}$ は、中性子スペクトルを用いて (3.9) 式と同様に求めた。

16-90 keV、150 keV 実験におけるデータ解析では、560 keV 実験の場合と同様な解析を行うことはできない。その理由は、バックグラウンド測定用に用いた Ti 試料は、直径 60 mm、厚さ 5.2 mm と ^{129}I 試料に比べて大きいので、試料中における多重散乱効果が分離共鳴領域である 16-90 keV、150 keV においては大きく異なり、得られる Ti の PH スペクトルが ^{129}I 試料測定の場合と Ti 試料測定で異なるためである。16-90 keV、150 keV、560 keV 実験で得られた ^{129}I の正味の PH スペクトルを図 3.18 に示す。 ^{129}I の実験は、統計誤差が大きいので縦軸を Counts/200keV にして PH スペクトルを示している。

(III) ^{127}I 実験のデータ解析

^{129}I のデータ解析に必要な ^{127}I の中性子捕獲断面積を平均入射中性子エネルギー 16-90 keV と 150 keV で測定した。測定用試料として $\text{Pb}^{127}\text{I}_2$ 試料、55 mm ϕ ×1.0 mmt の標準金試料 (表 2.6、2.8 参照) を用いて測定を行った。Gate は ^{129}I の解析と同様のエネルギー領域に設定した。例として ^{127}I の 16-90 keV と 150 keV 実験で NaI(Tl) 検出器によって得られた TOF スペクトルを図 3.19 に示す。また、16-90 keV 実験の Gate1-3 と 150 keV 実験で得られた ^{127}I の正味の PH スペクトルを図 3.20 に示す。この PH スペクトルに波高重み用を適用し、後の 3.4 節で詳しく述べる方法で中性子捕獲断面積を求めた。 ^{127}I の中性子捕獲断面積は、入射中性子エネルギー 16-90 keV と 150 keV で誤差約 4 % で求められた。中性子捕獲断面積結果を表 3.1 と図 3.21 に示す。図 3.21 には、同時に過去の実験データ³⁷⁾¹³⁾ と JENDL-3.2²⁾ および ENDF/B-VI の評価値も示してある。過去の実験データおよび JENDL-3.2、ENDF/B-VI の評価値は、今回の結果と実験誤差内で良く一致している。今回、中性子エネルギー 560 keV では測定を行っていないが、以上のことから JENDL-3.2 の評価値は 560 keV において信頼性が高いと判断した。したがって、 ^{129}I の 560 keV 実験における解析では、上記の様に ^{127}I の中性子捕獲断面積として JENDL-3.2 の評価値を用いた。

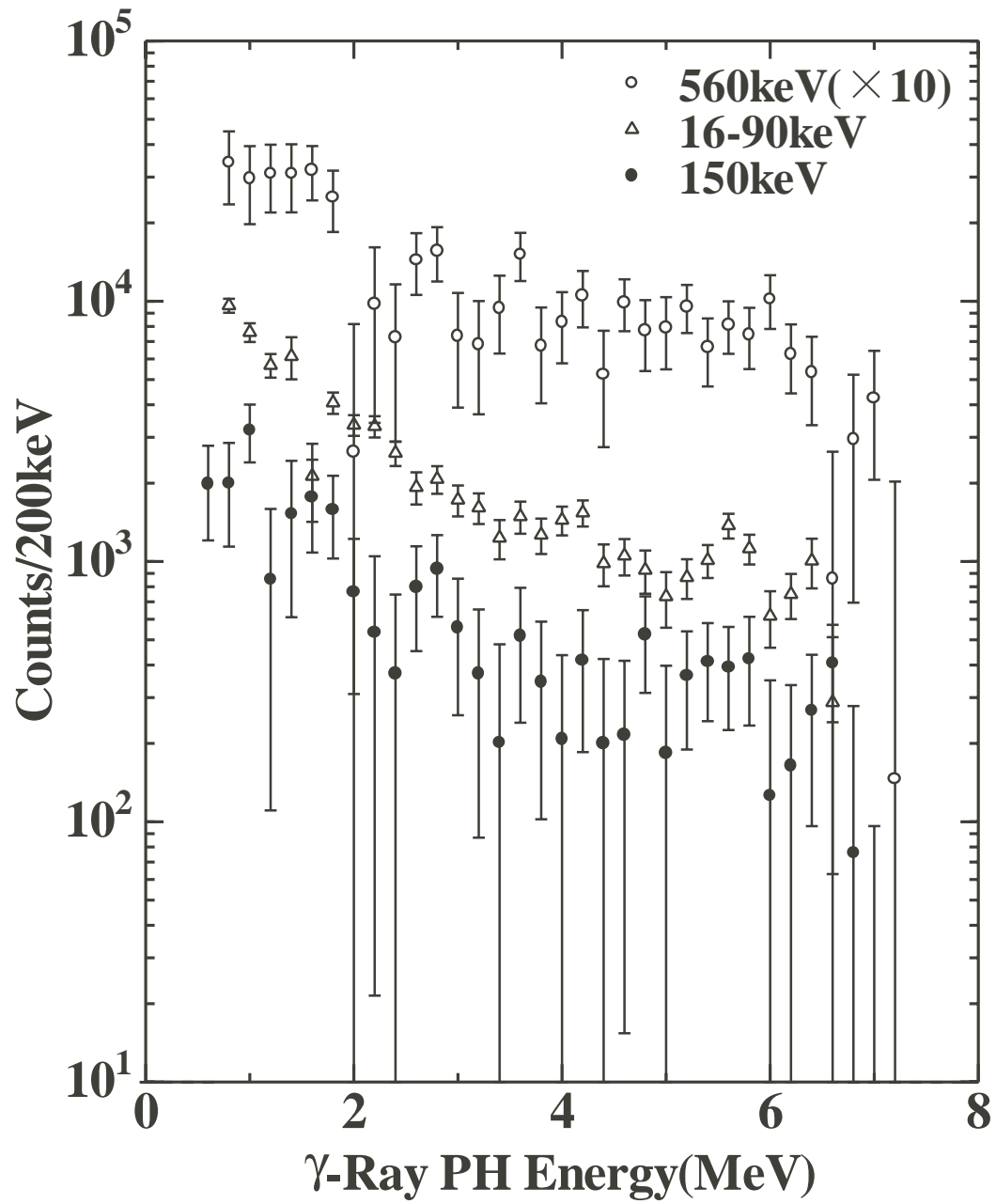


図 3.18: ^{129}I の正味の PH スペクトル

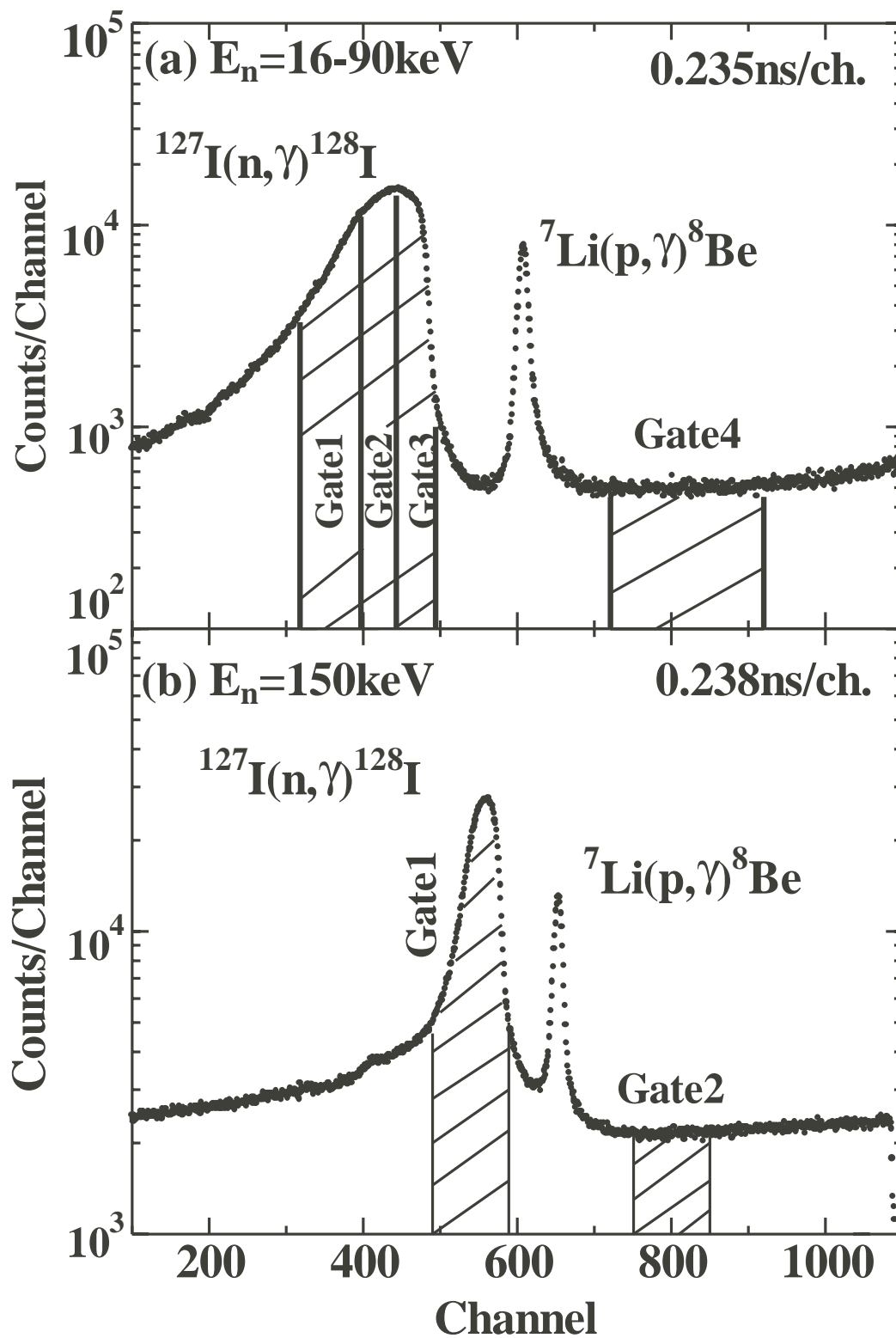


図 3.19: ^{127}I の (a)16-90 keV 実験と (b)150 keV 実験で NaI(Tl) 検出器によって観測された TOF スペクトル

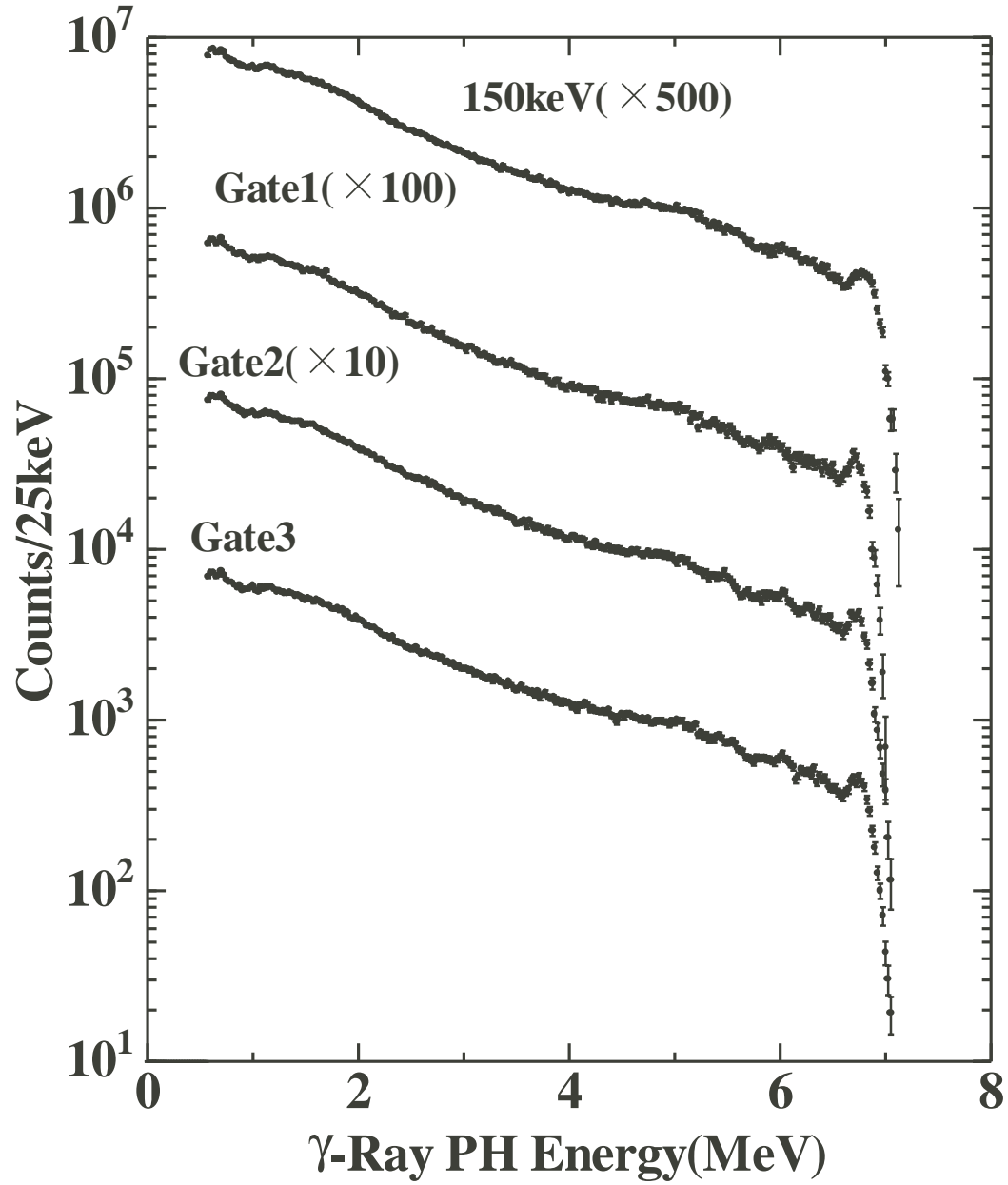
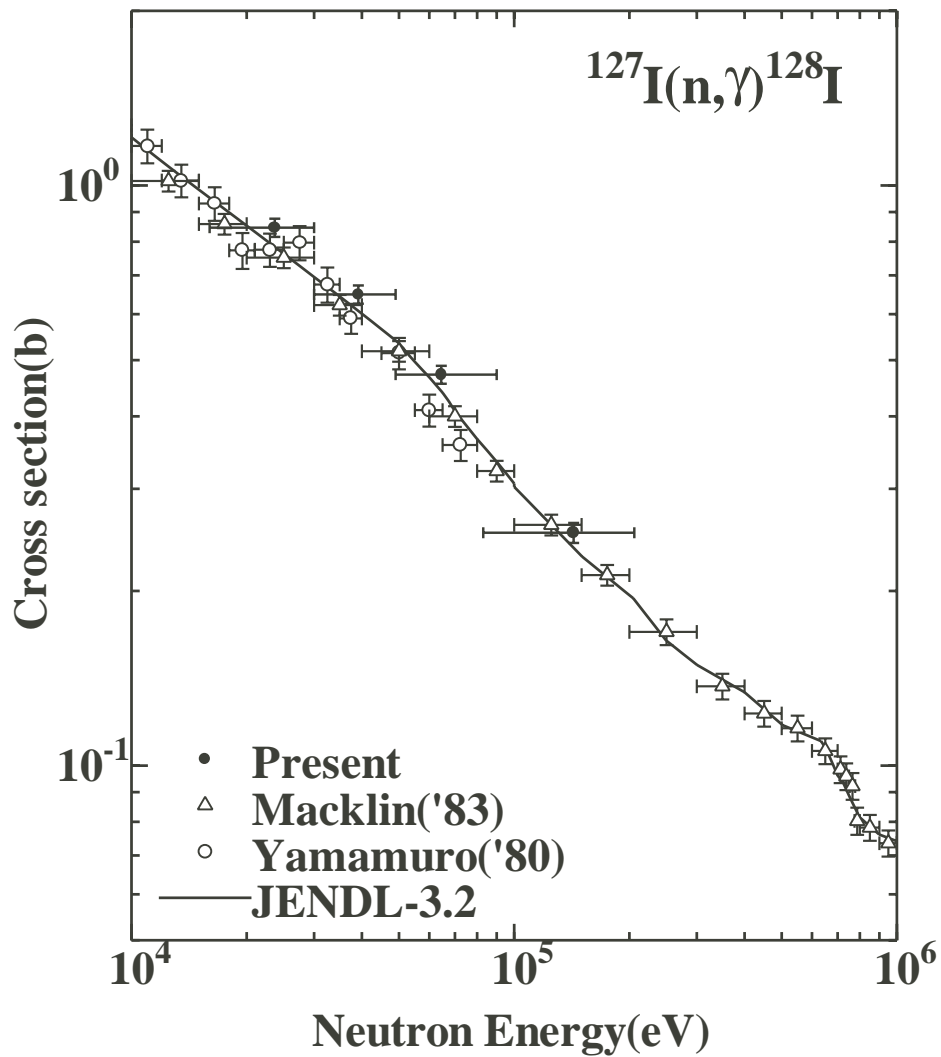


図 3.20: ^{127}I の 16-90 keV 実験の Gate1-3 と 150 keV 実験から得られた正味の PH スペクトル

表 3.1: ^{127}I の中性子捕獲断面積

Neutron Energy[keV]	Capture cross section(b)
24[16-30]	0.846 ± 0.031
39[30-49]	0.649 ± 0.024
64[49-90]	0.472 ± 0.017
143[121]	0.252 ± 0.010

図 3.21: ^{127}I の中性子捕獲断面積

3.4 中性子捕獲断面積

ある Gate における平均中性子捕獲断面積 σ_s は、次式

$$\langle \sigma_s \rangle = \frac{Y_s}{C_s n_s \phi_s} \quad (3.12)$$

で求めることができる。ここで、 Y_s は中性子捕獲イールドであり、正味の波高スペクトル $S(I)$ に 2.5.4 節で説明した波高重み法を適用することによって求めることができる。 n_s は [atoms/b] 単位で表される試料の厚さ、 ϕ_s は Sample run で設定した Gate に入射した中性子数、 C_s は試料中の中性子自己遮蔽および多重散乱効果の補正係数である。入射中性子数は、入射中性子スペクトルと ENDF/B-VI³⁸⁾ から得た ^{197}Au の標準中性子捕獲断面積から求めた平均中性子捕獲断面積 $\langle \sigma_{Au} \rangle$ を用いて、

$$\phi_s = \frac{S_s}{S_{Au}} \cdot \frac{LiC_s}{LiC_{Au}} \cdot \frac{T_{Au}}{T_s} \phi_{Au} \quad (3.13)$$

$$\phi_{Au} = \frac{Y_{Au}}{C_{Au} n_{Au} \langle \sigma_{Au} \rangle} \quad (3.14)$$

と書ける。ここで、 S_s 、 S_{Au} は中性子源からみた測定用試料と Au 試料の立体角、 LiC_s 、 LiC_{Au} は Sample run と Au run における M-Li 検出器の全計数、 T_s 、 T_{Au} は測定用試料と Au 試料の中性子に対する透過係数、 C_{Au} は Au 試料中における中性子自己遮蔽および多重散乱効果の補正係数である。立体角比については、 ^{99}Tc と ^{129}I 実験では、測定用試料と標準金試料の直径が同じものを用い、ターゲットと試料との距離も同じにして測定を行ったので 1 である。しかし、3.3.2 節で述べた ^{127}I のデータ解析では、測定用試料 (49 mm ϕ) と標準金試料 (55 mm ϕ) の直径が異なるため立体角比が重要となる。 T_s 、 T_{Au} は、 ^{99}Tc の 8-90 keV、190 keV 実験と ^{129}I の 16-90 keV 実験、150 keV 実験においては中性子モニタをしている ϕ -Li 検出器とターゲットとの間に試料が存在するので、試料による中性子遮蔽の影響を補正するために必要となる。 T_s 、 T_{Au} 、 C_s 、 C_{Au} については 3.6 節補正で詳しく述べる。

3.5 中性子捕獲 γ 線スペクトル

3.3 節で導出された PH スペクトルをアンフォールディングすることによって中性子捕獲 γ 線スペクトルを求めた。アンフォールディングには、計算コード FERDOR³⁰⁾ を用いた。以下、アンフォールディングの方法について簡単に述べる。

γ 線検出器にスペクトル $\nu(E_\gamma)$ の捕獲 γ 線が入射すると、検出器の応答関数 $R(I, E_\gamma)$ を用いて、捕獲 γ 線 PH スペクトル $S(I)$ は、

$$S(I) = \int R(I, E_\gamma) \nu(E_\gamma) dE_\gamma \quad (3.15)$$

となる。ここで、 E_γ は γ 線エネルギー、 I はチャンネルである。 E_γ を間隔 ΔE の不連続なエネルギー E_J とし、 $\nu(E_J)$ を E_J 列のベクトル、 $R(I, E_J)$ を I 行 E_J 列の行列と考えると、

$$S(I) = R(I, E_J) \cdot \nu(E_J) \Delta E \quad (3.16)$$

と書くことができる。従って、捕獲 γ 線スペクトル $\nu(E_J)$ が、

$$\nu(E_J) = R^{-1}(I, E_J) \cdot S(I) / \Delta E \quad (3.17)$$

と求まる。

3.6 補正

3.6.1 中性子自己遮蔽・多重散乱効果

試料は無限に薄いものを用いるのが理想的であるが、実際には有限の厚さを持っているために、試料内における中性子束の減衰や中性子の多重散乱の影響について考えなくてはならない。そこで、試料が有限の厚さであるために起こる試料中における中性子の振る舞いについて、モンテカルロ法による補正計算コードを用いて補正を行う。

有限の厚さをもった試料の全中性子捕獲イールドを Y_γ 、試料が極限に薄いと仮定した場合の中性子捕獲イールドを Y_0 とすると、補正係数は

$$C = \frac{Y_\gamma}{Y_0} \quad (3.18)$$

と表すことができる。ここで、

$$Y_\gamma = Y_\gamma^1 + Y_\gamma^2 + Y_\gamma^3 + \dots \quad (3.19)$$

Y_γ^i は、 i 回目の中性子と試料との相互作用における中性子捕獲イールドである。このとき、補正係数 C は二つの部分に分けて考えることができる。

$$C = C_{ns} \cdot C_{nm} \quad (3.20)$$

C_{ns} は自己遮蔽効果の補正で、

$$C_{ns} = \frac{Y_\gamma^1}{Y_0} \quad (3.21)$$

C_{nm} は多重散乱効果の補正で、

$$C_{nm} = \frac{Y_\gamma^1 + Y_\gamma^2 + Y_\gamma^3 + \dots}{Y_\gamma^1} \quad (3.22)$$

である。自己遮蔽効果の補正効果は1より小さく、多重散乱効果の補正効果は1より大きい。

ところで、 ^{99}Tc については、100 keV 以下の中性子領域において共鳴領域であるが非分離領域である。そこで本研究では、 ^{99}Tc の 8-90keV 実験の解析においてより精度良い中性子捕獲断面積を導出するために、共鳴構造の効果を考慮した補正計算コード²⁹⁾³²⁾ を用いて補正を行った。

Doppler Broadening を考慮した一準位共鳴公式と狭い共鳴幅による近似 (NR:Narrow Resonance 近似) を用い、中性子捕獲イールド Y_0 、 Y_γ^1 、 Y_γ^2 ... を計算する。ただし、計算の中で、共鳴とポテンシャル散乱の干渉は無視した。また、以下の説明の中で入射中性子数は1個とした。

捕獲イールド $Y_0(E_n)$ は、

$$Y_0(E_n) = n_t \sigma_\gamma(E_n) \eta(E_n) \quad (3.23)$$

で定義される。ここで、 n_t は [atoms/b] 単位で表される試料の厚さ、 $\sigma_\gamma(E_n)$ は共鳴構造が考慮されている実際の中性子捕獲断面積、 $\eta(E_n)$ は実験で得られた入射中性子エネルギー分布、 E_n は入射中性子エネルギーである。ここで、エネルギー E_0 に共鳴があるとき、エネルギー領域 $\Delta E = E_0 - \frac{1}{2}D \sim E_0 + \frac{1}{2}D$ に中性子1個が入射した時の平均中性子捕獲イールド Y_0 は、

$$Y_0 = n_t \left\langle \int_{\Delta E} \sigma_\gamma(E_n) \frac{dE_n}{D} \right\rangle \quad (3.24)$$

と書ける。ここで、 D は平均準位間隔であり、 D の領域で $\eta(E_n)$ は一定とした。また、 $\langle \rangle$ は、 $\langle \rangle$ 内の共鳴の Γ_n (中性子幅)、 Γ_γ (放射幅)、 Γ (全幅)、 D を統計的平均値 (平均共鳴パラメータ) で表現することを意味する。試料が有限の厚さのとき、中子と試料の一回目の相互作用での中性子捕獲イールド $Y_\gamma^1(E_n)$ は、

$$Y_\gamma^1(E_n) = (1 - e^{-n_t \sigma_t(E_n)}) \frac{\sigma_\gamma(E_n)}{\sigma_t(E_n)} \eta(E_n) \quad (3.25)$$

であり、平均捕獲イールド Y_γ^1 は、

$$Y_\gamma^1 = \left\langle \int (1 - e^{-n_t \sigma_t(E_n)}) \frac{\sigma_\gamma(E_n)}{\sigma_t(E_n)} \frac{dE_n}{D} \right\rangle \quad (3.26)$$

と書ける。ここで、 $\sigma_t(E_n)$ は共鳴構造を考慮した全断面積である。以下では $\langle \rangle$ の表示を省略する。

中性子共鳴捕獲断面積として

$$\sigma_\gamma(E, \eta) = \frac{\sigma_0 \Gamma_\gamma}{\Gamma} \Psi(\eta, x) \quad (3.27)$$

の表現を用いると、式 (3.24) は、次のように変形することができる。

$$\begin{aligned}
 Y_0 &= n_t \int_{\Delta E} \frac{\sigma_0 \Gamma_\gamma}{\Gamma} \Psi(\eta, x) \frac{dE}{D} \\
 &= n_t \int_{-\frac{D}{\Gamma}}^{\frac{D}{\Gamma}} \sigma_0 \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} \Psi(\eta, x) \frac{1}{D} \frac{\Gamma}{2} dx \\
 &= n_t \sigma_0 \frac{\Gamma_\gamma}{2D} \int_{-\frac{D}{\Gamma}}^{\frac{D}{\Gamma}} \Psi(\eta, x) dx
 \end{aligned} \tag{3.28}$$

ここで、 σ_0 は peak cross section、 $\eta = \Gamma/2\Delta$ 、 Δ は Doppler width、 $x = 2(E - E_0)/\Gamma$ 、 $\Psi(\eta, x)$ は Doppler broadening shaping function で

$$\Psi(\eta, x) = \frac{\eta}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp[-\eta^2(x-y)^2]}{1+y^2} dy \tag{3.29}$$

$$y = \frac{2}{\Gamma}(E_c - E_0) \tag{3.30}$$

と表される。 E_c は、重心系における標的核と中性子の全運動エネルギーである。更に、エネルギー E_0 近傍の共鳴との重ね合わせ効果を考慮すると、

$$\begin{aligned}
 Y_0 &= \frac{1}{2} n_t \sigma_0 \frac{\Gamma_\gamma}{D} \int_{-\infty}^{\infty} \Psi(\eta, x) dx \\
 &= \frac{\pi}{2} n_t \sigma_0 \frac{\Gamma_\gamma}{D}
 \end{aligned} \tag{3.31}$$

$$= \frac{\pi}{2} \alpha \frac{\Gamma_\gamma}{D} \tag{3.32}$$

と書くことができる。ここで $\alpha = n_t \sigma_0$ である。

次に、 Y_γ^1 についても式 (3.27) を用いて変形する。まず、全断面積は、ポテンシャル散乱断面積 σ_{pot} 、希釈断面積 σ_D を用いて

$$\sigma_t = \sigma_0 \Psi + \sigma_{pot} + \sigma_D \tag{3.33}$$

と書ける。ここで、希釈断面積は、例えば酸化物試料中の酸素の全断面積を考慮するために導入されている。さらに、

$$\beta = \frac{\sigma_{pot} + \sigma_D}{\sigma_0} \tag{3.34}$$

を導入する。このとき、

$$\begin{aligned}
 Y_\gamma^1 &= \frac{\Gamma_\gamma}{2D} \int_{-\frac{D}{\Gamma}}^{\frac{D}{\Gamma}} \{1 - \exp(-\alpha(\Psi + \beta))\} \frac{\Psi}{\Psi + \beta} dx \\
 &\simeq \frac{\Gamma_\gamma}{2D} \int_{-\infty}^{\infty} \{1 - \exp(-\alpha(\Psi + \beta))\} \frac{\Psi}{\Psi + \beta} dx
 \end{aligned} \tag{3.35}$$

と近似的にできる。ここで、 Ψ は重ね合わせ効果を考慮した Doppler broadening shaping function である。式 (3.35) の積分は解析的に行えないので数値計算をしなくてはならないが、モンテカルロ計算において中性子が入射する毎に毎回計算するのは大変に時間がかかる。そこで、

$$Y_\gamma^1 = \frac{\Gamma_\gamma}{D} F(\alpha, \beta, \eta) \quad (3.36)$$

となるような $F(\alpha, \beta, \eta)$ を定義し、あらかじめ α 、 β 、 η のいろんな組み合わせに対する F を計算し、表にしてプログラムに組み込んだ。

次に、2 回目以降の相互作用における中性子捕獲イールド $Y_\gamma^i (i \geq 2)$ を求めるためには、(i-1) 回目の相互作用における中性子散乱イールドを評価しなくてはならない。この計算コードでは、まず入射中性子の透過率 $T(E_n)$ を計算してから 1 回目の相互作用における散乱イールド $Y_n^1(E_n)$ を評価する。透過率 $T(E_n)$ と中性子捕獲イールド $Y_\gamma^1(E_n)$ を用いて

$$Y_n^1(E_n) = 1 - T(E_n) - Y_\gamma^1(E_n) \quad (3.37)$$

と表せる。この時、 $Y_\gamma^2(E'_n)$ は、

$$Y_\gamma^2(E'_n) = Y_n^1(E_n) Y_\gamma^1(E'_n) \quad (3.38)$$

となる。 E' は 1 回目の散乱後の中性子エネルギーである。 $Y_\gamma^1(E'_n)$ を計算する際の試料の厚さは、1 回目の衝突点から中性子が試料外に出るまでの距離とする。

透過率は全断面積 $\sigma_t(E_n)$ を用いて、

$$T(E_n) = \exp(-n_t \sigma_t(E_n)) \quad (3.39)$$

と書ける。ここでも、中性子捕獲イールドの計算のときと同様に、エネルギー範囲 D での平均透過率 T を考える。そうすると式 (3.39) から、

$$T = \int \exp(-\alpha(\Psi + \beta)) \frac{dE}{D} \quad (3.40)$$

と書け、さらに、

$$T = \frac{\Gamma}{2D} \int_{-\frac{D}{2}}^{\frac{D}{2}} \exp(-\alpha\Psi) dx \exp(-\alpha\beta) \quad (3.41)$$

と変形できる。ところで、式 (3.32) からエネルギー領域 D における平均捕獲断面積は $\sigma_\gamma = Y_0/n_t = \pi\sigma_0\Gamma_\gamma/2D$ であるから、平均全断面積は、

$$\sigma_t = \sigma_0 \left(\frac{\pi}{2} \frac{\Gamma}{D} + \beta \right) \quad (3.42)$$

表 3.2: ^{99}Tc の 8-90 keV 実験の際の補正計算に用いた平均共鳴パラメータ

	^{99}Tc	^{197}Au
$\langle D \rangle (\text{eV})$	12.8	16.5
$\langle \Gamma_\gamma \rangle (\text{meV})$	186	128
$S_0^\dagger (\times 10^{-4})$	0.41	2.0

\dagger_s 波中性子強度関数

と書ける。試料が有限の厚さの場合、厚さを考慮に入れた実効平均全断面積 σ_T を変数 f を導入して、

$$\sigma_T = \sigma_0 \left(\frac{\pi \Gamma}{2D} f + \beta \right) \quad (3.43)$$

と表すと、式 (3.41) の平均透過率は、

$$\begin{aligned} T &= \exp(-n_t \sigma_T) \\ &= \exp \left[-\alpha \left\{ \frac{\pi}{2} \cdot \frac{\Gamma}{D} \cdot f \left(\alpha, \eta, \frac{D}{\Gamma} \right) + \beta \right\} \right] \end{aligned} \quad (3.44)$$

と書ける。式 (3.41) と (3.44) を比較して、導入した f は

$$f \left(\alpha, \eta, \frac{D}{\Gamma} \right) = -\frac{2D}{\pi} \frac{1}{\Gamma} \frac{1}{\alpha} \ln \left(\frac{\Gamma}{2D} \int_{-\frac{D}{\Gamma}}^{\frac{D}{\Gamma}} \exp(-\alpha \Psi(\eta, x)) dx \right) \quad (3.45)$$

と書ける。この f についても F 因子と同様に各パラメータの組み合わせについてあらかじめ計算して表にし、プログラムに組み込んだ。

$Y_\gamma^i (i \geq 2)$ についても同様に導出できる。実験では中性子 TOF 法を用いており、TOF と中性子エネルギーが 1 対 1 対応しているとして解析を行っているので、この補正計算の中でも時間を追って中性子の振る舞いをシミュレートしている。

^{99}Tc の 8-90 keV 実験の際の補正計算に用いた平均共鳴パラメータ³⁴⁾を表 3.2 に示す。

なお、 ^{99}Tc の 190 keV、330 keV、540 keV 実験、 ^{129}I の各実験の解析には、共鳴構造が現れない連続領域と仮定して、(3.23)、(3.25) 式において JENDL-3.2 および ENDF/B-VI の評価値から得られた全断面積および捕獲断面積を用いて補正計算³⁵⁾を行った。 ^{99}Tc と ^{129}I の各実験における補正係数を表 3.3 と 3.4 に示す。

表 3.3: ^{99}Tc 試料中の中性子自己遮蔽および多重散乱効果の補正係数

Correction factor	Neutron energy region							
	8-15 [†]	15-25 [†]	25-35 [†]	35-55 [†]	55-90 [†]	190	330 [†]	540
Tc C_{ns}	0.981	0.982	0.970	0.966	0.978	0.969	0.976	0.972
Tc C_{nm}	1.052	1.052	1.205	1.096	1.053	1.145	1.082	1.090
Tc $C=C_{ns} \times C_{nm}$	1.032	1.033	1.169	1.058	1.029	1.110	1.056	1.060
Au C_{ns}	0.956	0.960	0.963	0.965	0.968	0.951	0.959	0.965
Au C_{nm}	1.138	1.130	1.120	1.107	1.092	1.132	1.111	1.095
Au $C=C_{ns} \times C_{nm}$	1.088	1.084	1.078	1.069	1.057	1.076	1.065	1.056

[†] 鉛板がない場合の測定

表 3.4: ^{129}I 試料中の中性子自己遮蔽および多重散乱効果の補正係数

Correction factor	Neutron energy region					
	16-30	30-49	49-90	150	560	
^{129}I C_{ns}	0.863	0.958	0.961	0.987	0.988	
^{129}I C_{nm}	1.744	1.272	1.153	1.083	1.066	
^{129}I $C=C_{ns} \times C_{nm}$	1.506	1.219	1.108	1.068	1.054	
Au C_{ns}	0.961	0.964	0.967	0.946	0.965	
Au C_{nm}	1.129	1.112	1.094	1.114	1.094	
Au $C=C_{ns} \times C_{nm}$	1.085	1.073	1.059	1.081	1.055	

表 3.5: Carbon 散乱実験の測定時間と平均ビーム電流

	測定時間	平均ビーム電流
Carbon	46.3	5.7
Blank	12	5.6

表 3.6: Carbon 測定と Blank 測定で得れた TOF スペクトルにおける各 Gate の Net Count を (ビーム電流 × 測定時間) で割った値

	Gate1	Gate2	Gate3	Gate4	Gate5
Carbon	11.29±1.52	0.58±1.12	-0.22±0.79	1.69±0.84	3.29±0.79
Blank	11.15±1.74	1.10±1.23	0.86±0.90	0.49±0.96	3.90±0.90

3.6.2 100 keV 以下の実験における Gate1(8-15 keV) に存在する時間依存バックグラウンドの補正

100 keV 以下の中性子捕獲実験において、試料で散乱される中性子等による時間依存バックグラウンドの影響を解明するために、Carbon 試料による散乱実験を行った。Carbon は、30 keV における中性子捕獲断面積が約 $12 \mu\text{b}$ なのでほぼ純粋な散乱体と考えることができる。実験は、 ^{99}Tc の 8-90 keV 実験や ^{129}I の 16-90 keV 実験と同様の実験配置で行われた(ただし、コリメタ内の 5.0 mm 厚鉛板を挿入しない場合の配置)。Carbon 散乱実験の測定時間と平均ビーム電流を表 3.5 に示す。

図 3.22(a) に、NaI(Tl) 検出器で測定された Carbon 測定と Blank 測定の TOF スペクトルを示す。図 3.22(b) には、比較しやすくするために、TOF スペクトルを 5Ch. でバンチングシフォアグラウンド領域を拡大した図を示す。Gate は、 ^{99}Tc の 8-90 keV 測定の際に設定した Gate と同じである。Blank 測定のスペクトルは、過去に同様の実験配置で測定されたスペクトルも加え合わせたものであり、全測定時間は 38 時間、平均ビーム電流は $5.6 \mu\text{A}$ である。図 3.22 における Gate6 をコンスタントバックグラウンドとして引き去ることにより、各 Gate の Net Count を求めた。表 3.6 に Carbon 測定と Blank 測定で得れた TOF スペクトルにおける各 Gate の Net Count を (ビーム電流 × 測定時間) で割った値を示す。

表 3.6 から、Carbon 測定と Blank 測定において Gate1 は明らかに正の値を示していることが分かる。Gate2 から Gate4 は、統計誤差内で 0 となっている。Gate5 が正の値を示しているのは、 $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$ ピークの漏れ込みによるものと考えられる。本研究では、Gate5 の S/N は良いので、この漏れ込みによる効果については無視した。また、Carbon 測定と Blank 測定の Gate1 における値は統計誤差内で一致し、さらに両者の

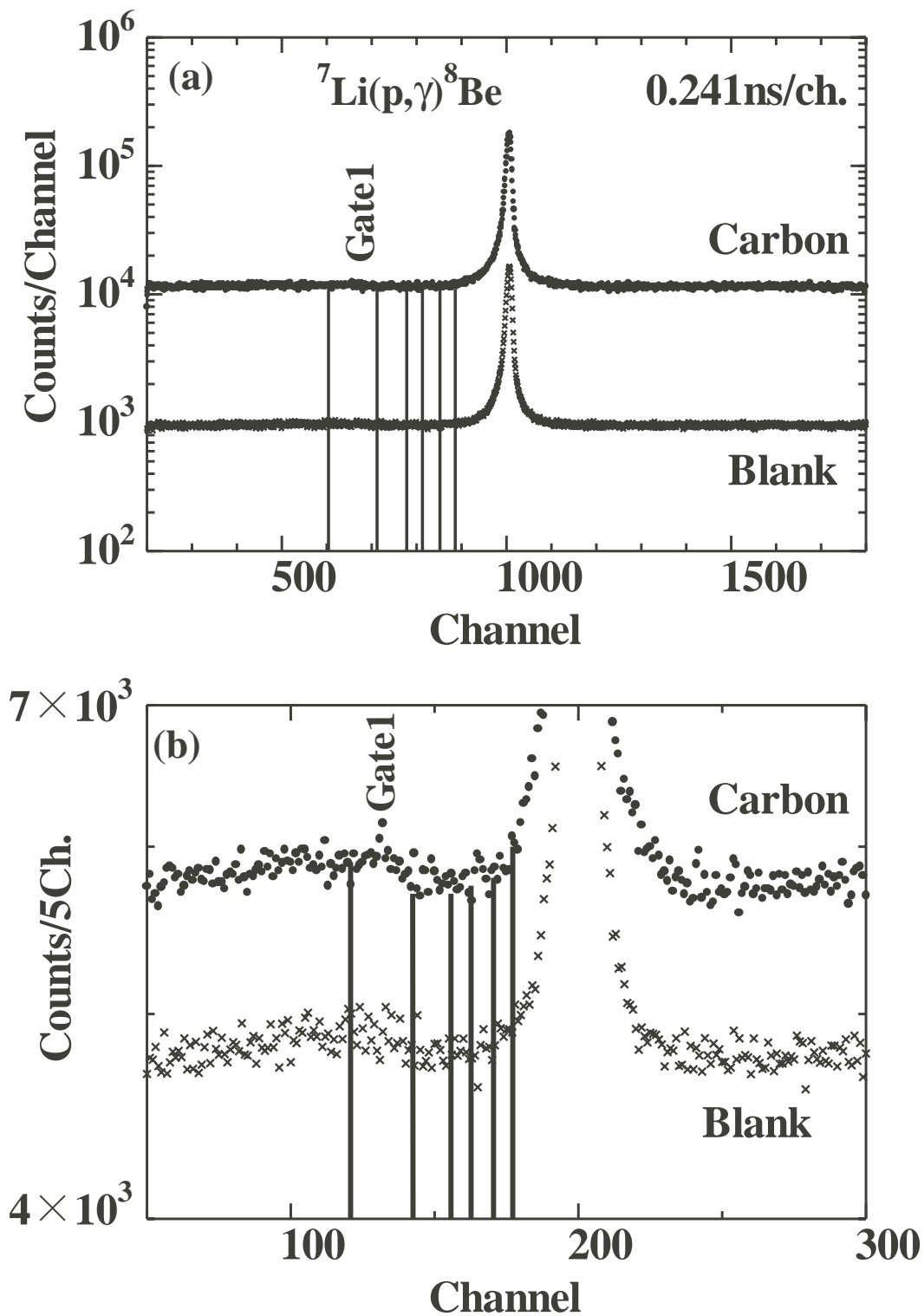


図 3.22: Carbon 測定と Blank 測定の (a)TOF スペクトルと (b)5ch. でバンチングした TOF スペクトル

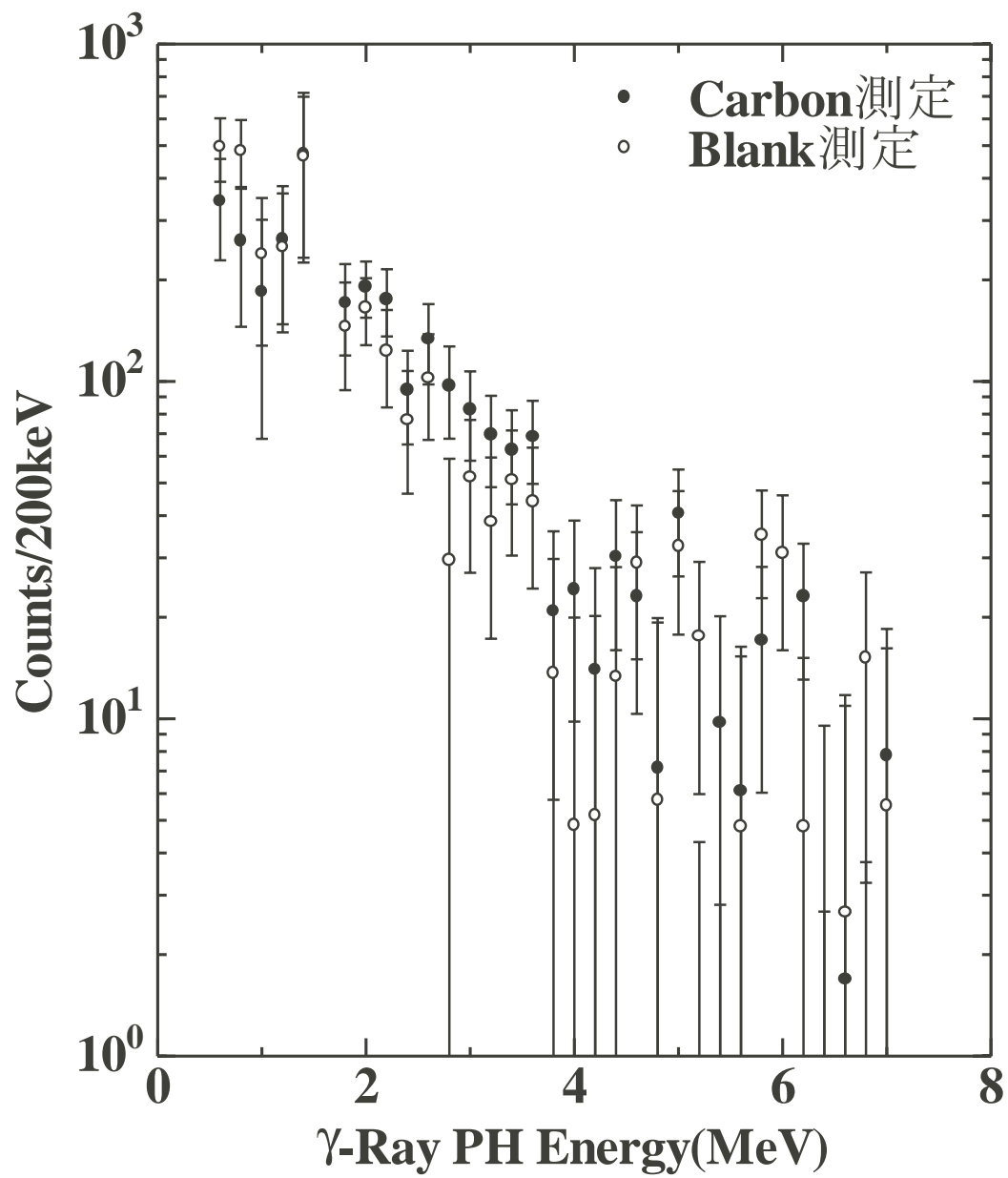


図 3.23: Carbon 測定と Blank 測定の Gate1 における PH スペクトル

PH スペクトル (図 3.23) も統計誤差内で一致する。このことは、Gate1(8-15 keV) において「試料による中性子散乱の効果」は少なく、むしろ Li ターゲット自身による散乱、 ${}^6\text{Li}$ 検出器等の構造物による散乱の効果が大きいことが分かった。

そこで、本研究の [Tc 実験 B] の Gate1 において、Blank 測定の Gate1 で得られた正味の PH スペクトルを (平均ビーム電流 × 測定時間) で規格化して、Tc と Au の PH スペクトルから引き去ることによって ${}^{99}\text{Tc}$ の中性子捕獲断面積の補正を行った。これによって断面積は約 3 % 下方修正された。

3.6.3 γ 線発生位置依存・多重散乱効果

試料内で中性子捕獲反応によって発生した γ 線は、その発生位置によって γ 線検出器を見込む立体角が異なるために、その検出効率は試料中心での検出効率とは異なる。また、試料内で発生した γ 線の一部は試料中において散乱や吸収されるため、検出器に向かう γ 線は捕獲反応によって発生した γ 線とは違って来る。従って、試料内で発生した γ 線の試料内における振る舞いをシミュレートし補正する必要がある。そこで、試料中で一様等方的に発生した単色 γ 線に対して、検出器に向かう γ 線のスペクトルを求め、更に、検出器の応答関数と合わせて合成応答関数というものを考えた。これについて、以下に説明する。

試料中での γ 線の相互作用としては、光電効果、コンプトン散乱、電子対生成、コヒーレント散乱を考えた。これらの相互作用の結果、試料表面から検出器に向かう γ 線のエネルギー分布を $\nu_s(E_\gamma)$ とすれば、実際に検出器で観測される波高スペクトル $S_r(I)$ は検出器の応答関数を $R(I, E_\gamma)$ として、(3.15) 式と同様に次式のように書ける。

$$S_r(I) = \int \nu_s(E_\gamma) R(I, E_\gamma) dE_\gamma \quad (3.46)$$

この γ 線エネルギー分布 $\nu_s(E_\gamma)$ と捕獲 γ 線スペクトル $\nu(E_\gamma)$ は、上記の様に異なる。そこで $R_s(E_\gamma, E'_\gamma)$ を導入して、 $\nu(E_\gamma)$ と $\nu_s(E_\gamma)$ を、

$$\nu_s(E_\gamma) = \int \nu(E'_\gamma) R_s(E_\gamma, E'_\gamma) dE'_\gamma \quad (3.47)$$

で関連づけると、(3.47) 式を (3.46) 式に代入することで、次式が導かれる。

$$\begin{aligned} S_r(I) &= \iint \nu(E'_\gamma) R_s(E_\gamma, E'_\gamma) R(I, E_\gamma) dE'_\gamma dE_\gamma \\ &= \int \nu(E'_\gamma) \left(\int R_s(E_\gamma, E'_\gamma) R(I, E_\gamma) dE_\gamma \right) dE'_\gamma \\ &= \int \nu(E'_\gamma) R_r(I, E'_\gamma) dE'_\gamma \end{aligned} \quad (3.48)$$

ここで、 $R_r(I, E_\gamma)$ を合成応答関数と呼び、モンテカルロシミュレーションによるプログラム³⁶⁾を用いて各試料に対して計算し、2.5.4 節で述べた重み関数 (合成重み関数) を作成した。

表 3.7: 各試料に対する重み関数の係数

	a	b	c	d
$^{99}\text{Tc}^\dagger$	1.18e+3	-2.16e+2	2.04e+1	-4.01e-1
^{99}Tc	2.21e+2	-9.50e+0	4.00	-2.45e-2
^{129}I	2.55e+2	-1.73e+1	4.62	-4.09e-2
$^{197}\text{Au}(20\text{mm}\phi\times 1\text{mmt})^\dagger$	1.31e+3	-2.47e+2	2.28e+1	-4.45e-1
$^{197}\text{Au}(20\text{mm}\phi\times 2\text{mmt})^\dagger$	1.50e+3	-2.88e+2	2.58e+1	-4.99e-1
$^{197}\text{Au}(20\text{mm}\phi\times 1\text{mmt})$	3.53e+2	-4.21e+1	6.55	-8.02e-2
$^{197}\text{Au}(20\text{mm}\phi\times 2\text{mmt})$	4.86e+2	-7.36e+1	9.09	-1.36e-1
$^{127}\text{I}(\text{PbI}_2)$	4.24e+2	-6.53e+1	8.96	-1.52e-1
$^{197}\text{Au}(55\text{mm}\phi\times 1\text{mmt})$	3.40e+2	-3.81e+1	6.17	-6.88e-2

† 鉛有り

合成応答関数から重み関数を求める際の試行関数を、

$$W(I) = aI^{\frac{1}{2}} + bI + cI^{\frac{3}{2}} + dI^2 \quad (3.49)$$

として、各試料について係数を求めた。各試料に対する係数を表 3.7 に示す。

3.6.4 正味の波高スペクトルのディスクリレベル以下の外挿補正

測定では、PH スペクトルの 600 keV にディスクリミネーションレベルを設けている。また、 ^{129}I の 560 keV 実験では中性子が 700 keV まで発生しているので 600 から 700 keV の間に非弾性散乱反応による γ 線が観測された。そのため解析の際 700 keV 以下のデータをカットした。そこで、波高重み法による断面積導出の際には、600 keV あるいは 700 keV 以下を 0.6-1.5 MeV 付近の PH スペクトルの形を考慮して外挿した。例として、[Tc 実験 A] と [Tc 実験] で得られた ^{99}Tc の正味の PH スペクトルの外挿を図 3.15 に示す。[Tc 実験 A] では、5.0 mm 厚鉛板による減衰の効果のため、[Tc 実験 B] とは外挿の傾きが逆になっている。

3.6.5 その他の補正

(I) 不純物

微量の不純物に対する補正は以下の式を Y_s に掛けることによって行った²⁶⁾。

$$C_i = 1 + \frac{\sum_l (B_n^l + E_n^l) n^l \sigma^l}{(B_n + E_n) n_s \langle \sigma_s \rangle} \quad (3.50)$$

ここで、 B_n^l は、不純物 l の原子核の中性子結合エネルギー、 n^l は試料中の不純物 l の厚さ、 σ^l は不純物の平均捕獲断面積、 E_n^l は不純物 l に対する重心系での入射中性子エネルギーである。

(II) デッドタイム

- γ 線検出器系の回路において、ADC より前の部分では1カウントあたりのデッドタイムを $5 \mu\text{sec}$ と見積もり、後の部分では、スケーラーによってカウントされたイベント数と実際にワークステーションに取り込まれたイベント数から計算した。
- 中性子検出器系の回路において、MCA より前では γ 線検出器系と同様に1カウントあたりのデッドタイムを $5 \mu\text{sec}$ と見積もった。MCA におけるデッドタイムは、実験の際に表示され約 1-9 %であった。

3.7 誤差

統計誤差以外に以下の誤差について考慮した。

(1) Au の標準捕獲断面積

^{197}Au の標準捕獲断面積として ENDF/B-VI の評価値を用いた。この断面積の誤差を 3 %とした。

(2) 重み関数の誤差

応答関数の誤差 3-6 %と試行関数の誤差約 2 %から重み関数の誤差は 4-6 %であると見積もった。しかしながら、中性子捕獲断面積を求める際の式で、重み関数は分母分子両方に掛かるため、捕獲断面積に与える影響は約 1 %であった。

(3) 捕獲 γ 線 PH スペクトルのディスクリレベル以下への外挿補正の誤差

測定用試料と Au 試料について、ディスクリレベル以下の PH スペクトルの中性子捕獲イールドへの寄与は 5-6 %である。しかしながら、測定用試料と Au 試料の PH スペクトルは、中性子捕獲断面積を求める際の式で、分母分子の両方に現れるため捕獲断面積に与える影響は小さくなり、約 2 %とした。

(4) 補正係数の誤差

中性子補正計算に用いた計算コードでは、近似が使われており、また入力データの平均共鳴パラメータや中性子断面積も誤差を持っている。そこで、中性子補正の誤差として補正量の10%を仮定した。したがって、誤差は1-5%となった。他の補正計算における誤差は小さいとして考慮しなかった。

(5) ^{127}I の捕獲断面積の誤差

^{129}I の解析に用いる ^{127}I の捕獲断面積の誤差は、16-90 keV と 150 keV 実験の解析では、本研究の測定で得られた実験誤差約4%を用いた。560 keV の解析では、誤差を4%とした。

第4章 実験結果と考察

4.1 ^{99}Tc の実験結果と考察

4.1.1 [Tc 実験 A] と [Tc 実験 B] の比較

[Tc 実験 A] と [Tc 実験 B] で得られた中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルの比較を図 4.1 と図 4.2 に示す。図 4.1 から分かるように 2 種類の実験で得られた捕獲断面積結果は実験誤差内で良く一致した。以上のことから、5.0mm 厚の鉛板をコリメータ内に挿入するか否かで変化した γ 線検出器の重み関数および PH スペクトルのディスクリレベル以下の外挿補正の信頼性が確かめられた。また図 4.2 は、2 つの実験で得られた捕獲 γ 線スペクトルが大変良く一致していることを示している。これにより、鉛板が有る場合と無い場合の γ 線検出器の応答行列の信頼性も確認できた。なお、 ^{99}Tc の 8-90 keV における中性子捕獲断面積の最終結果は、得られた 2 つの結果を誤差で重みをつけて平均することによって得た。

4.1.2 中性子捕獲断面積

^{99}Tc の中性子捕獲断面積を入射中性子エネルギー領域 8-90 keV と平均入射中性子エネルギー 190、330、540 keV において誤差約 5 % で導出することができた。 ^{99}Tc の中性子捕獲断面積を図 4.3 と表 4.1 に示す。図 4.3 中では、これまでこの測定結果および JENDL-3.2 と ENDF/B-VI の評価値も掲載した。以下では、これまでに行われている測定結果および JENDL-3.2 と ENDF/B-VI の評価値との比較を示す。

Chou and Werle⁵⁾ は中性子エネルギー領域 1 eV-50 keV で捕獲断面積を測定した。Karlsruhe の 14 MeV 中性子源と鉛減速スペクトロメータを用いている。また、 γ 線検出器として Ar ガスを用いた比例計数管を使用している。中性子検出器としては BF_3 カウンターを用いている。彼らのデータは、10-50 keV の領域で今回の結果に比べて約 30 % 小さな結果となっている。

Little and Block⁶⁾ は、中性子エネルギー領域 4-80 keV で捕獲断面積を測定した。Rensselaer Polytechnic Institute の電子線形加速器による光核反応中性子源、および捕獲 γ 線を測定するために直径 1.25 m の液体シンチレーションタンク検出器を用いた。

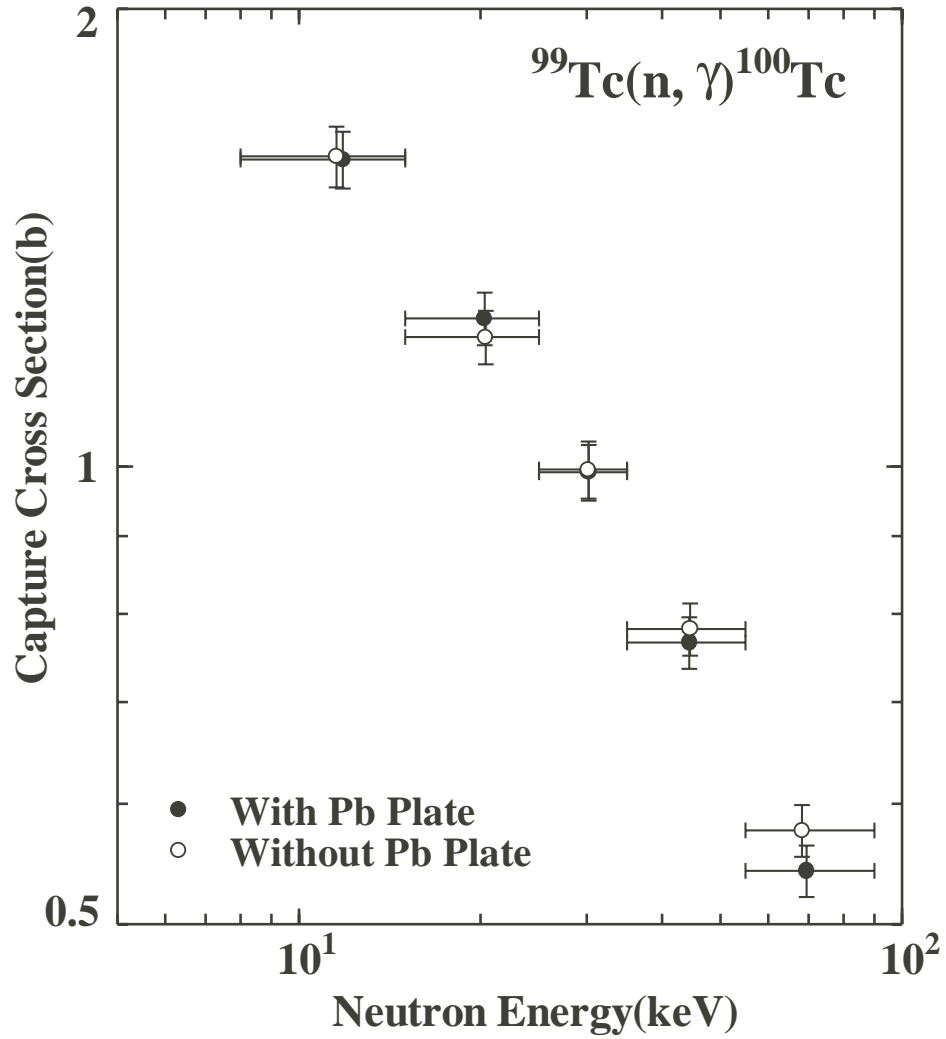


図 4.1: [Tc 実験 A](鉛板有り)と [Tc 実験 B](鉛板無し) から導出された中性子捕獲断面積の比較

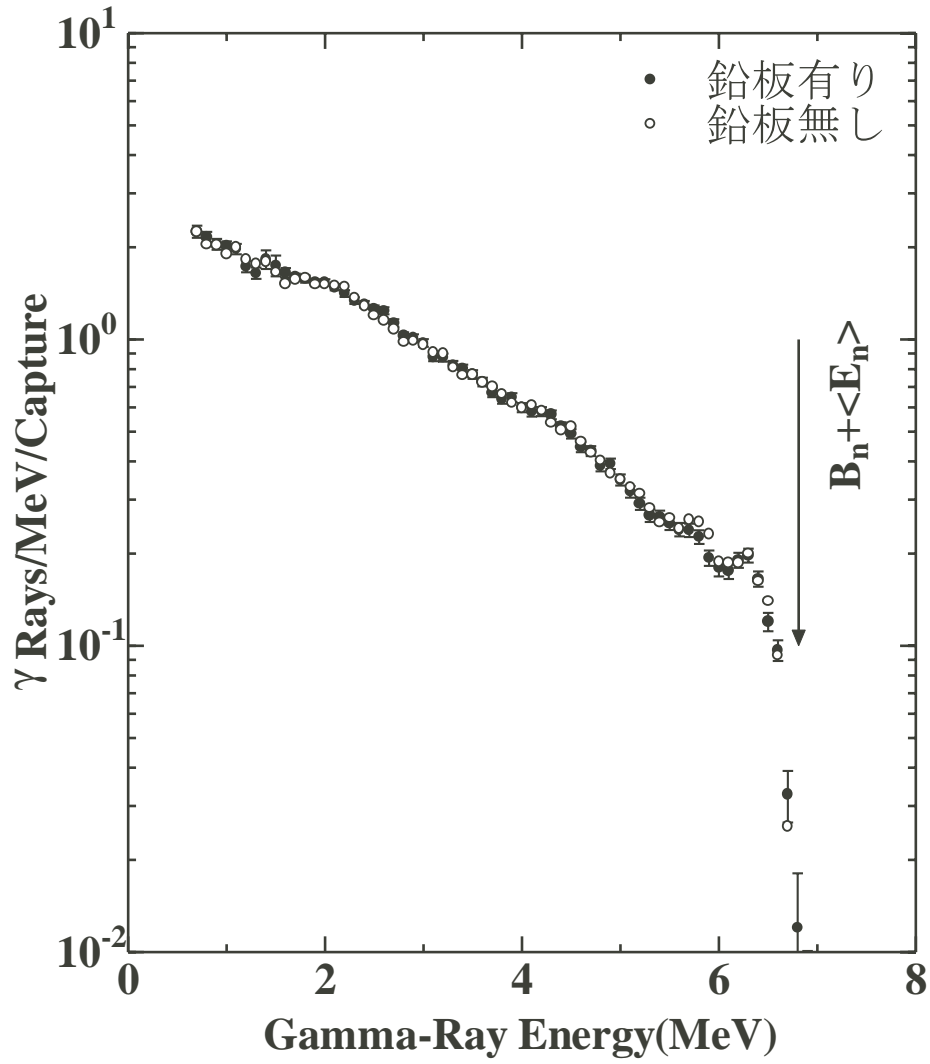


図 4.2: [Tc 実験 A](鉛板有り) と [Tc 実験 B](鉛板無し) から導出された捕獲 γ 線スペクトルの比較

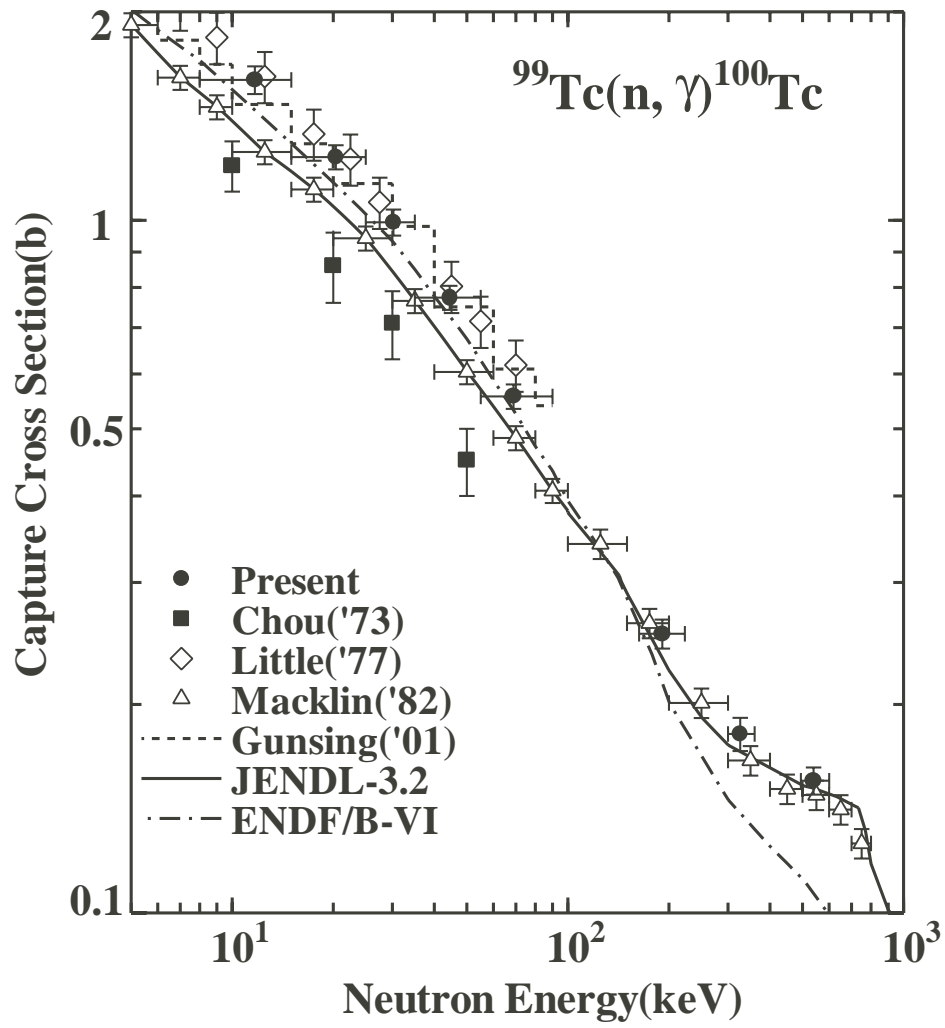


図 4.3: ^{99}Tc の中性子捕獲断面積

表 4.1: ^{99}Tc の中性子捕獲断面積

Average neutron energy	
[Energy region(keV)]	Capture cross section(b)
12[8-15]	$1.595 \pm 0.074 (4.6\%)$
20[15-25]	$1.234 \pm 0.050 (4.1\%)$
30[25-35]	$0.994 \pm 0.043 (4.3\%)$
44[35-55]	$0.773 \pm 0.031 (4.0\%)$
69[55-90]	$0.557 \pm 0.023 (4.0\%)$
191[60 [†]]	$0.253 \pm 0.012 (4.7\%)$
330[52 [†]]	$0.177 \pm 0.008 (4.5\%)$
539[106 [†]]	$0.155 \pm 0.007 (4.5\%)$

[†] 半値幅

捕獲イールドは、低エネルギーにおける ^{10}B -NaI 検出器による透過実験データを用いて規格化された。彼らの結果は、10-80 keV において今回の結果と実験誤差内で一致している。

Macklin⁷⁾ は、中性子エネルギー領域 0.05-800 keV で、Oak Ridge 電子線形加速器 (ORELA) による光核反応中性子源を用いて捕獲断面積を測定した。彼は捕獲 γ 線を C_6F_6 シンチレーション検出器で測定した。彼は C_6F_6 検出器を Total energy detector として用い、捕獲イールドを導出するために本研究でも用いた波高重み法を採用した。また、入射中性子フラックスを得るために、 ^{197}Au の 4.9 eV 共鳴における Saturated resonance method を用いた。彼の結果は、8-90 keV で今回の結果より 15-20 %小さいが、150 keV から 600 keV の領域で今回の結果と実験誤差内で一致している。すなわち、Macklin のデータは本研究結果と比較して、捕獲断面積の入射中性子エネルギー依存性が異なっている。

本研究開始後の 2001 年に、Gunsing *et al.*⁸⁾ によって中性子エネルギー 3-90 keV の領域で捕獲断面積が報告された。彼らは、Geel の電子線形加速器 (GELINA) による光核反応中性子源を用いて、 γ 線検出器として C_6D_6 液体シンチレーション検出器を用いて捕獲 γ 線を測定した。彼らも、捕獲イールドを求める際に波高重み法を採用している。彼らの結果は誤差が与えられていないが、今回の結果と近い値となっている。

JENDL-3.2²⁾ の評価は、100 keV 以下では Macklin の結果を参考にして行われた。したがって、8-90 keV において、JENDL-3.2 の評価値は今回の結果に比べて 15-20 %小さい。100 keV 以上では、球形光学ポテンシャルを用いた統計モデルによる計算値を、100 keV における Macklin の結果に規格化することによって評価された。190、330、540 keV

では、今回の結果と実験誤差内で一致している。2002年に公開された JENDL-3.3³⁹⁾ の評価値は、まだ 10 keV 以上においては、JENDL-3.2 の評価値とほとんど同じである。

ENDF/B-VI⁹⁾ の評価は、Macklin の測定以前に行われ、Little and Block の結果を主に参考にして行われた。従って、8-90 keV において JENDL-3.2 の評価値よりも今回の結果と近い値となっているが、200 keV 以上においては本研究の結果よりも小さく、550 keV においては約 30 % 小さい値となっている。

4.1.3 中性子捕獲 γ 線スペクトル

⁹⁹Tc の捕獲 γ 線スペクトルを、入射中性子エネルギー 8-90 keV (平均エネルギー 45 keV) と 190、330、540 keV において導出した。求めた捕獲 γ 線スペクトルを図 4.4 に示す。図 4.4 のスペクトルは、約 5.5 MeV 以下で全体的に滑らかであるが、8-90 keV、540 keV 実験で得られたスペクトルには 2.2 MeV 付近にわずかな傾きの変化 (ショルダー) が見られる。このショルダーは、縦軸を拡大してある図 4.2 に、より明確に見られる。190、330 keV で得られたスペクトルでは誤差が大きいため、ショルダーの判別が付かない。これまで、本研究室で希土類核種 (Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Dy, Er) の keV 中性子捕獲断面積及び捕獲 γ 線スペクトルについて研究^{26)40)–43)} してきたが、これらの核種の捕獲 γ 線スペクトル中には 2-3 MeV にアノマラスショルダー (バンプ) が観測されている。アノマラスショルダーについては、M1 シザーズモード励起による解釈の検討が試みられている⁴⁴⁾ が、今回の ⁹⁹Tc の捕獲 γ 線スペクトル中で観測された 'ショルダー' が、希土類核種のアノマラスショルダーと同じ物理現象を起源としたものか否かを調べるためには、質量数 100 付近の核種について系統的に捕獲 γ 線スペクトルデータを得る必要がある。

5.5 MeV 以上では、¹⁰⁰Tc の低励起状態へのプライマリ遷移が観測されている。しかし、図 4.2 から分かるように基底状態へのプライマリ遷移が観測されていない。⁹⁹Tc の基底状態 (9/2+) と ¹⁰⁰Tc の基底状態 (1+) のスピン差は 7/2 あり、同じパリティである。従って、*s*-, *p*-, *d*- 波中性子による捕獲を考えたとき、中性子捕獲状態から ¹⁰⁰Tc の基底状態への遷移に対して電磁遷移の中で最も優位な電気双極子 (E1) 遷移が起こらないことを図は示している。

4.2 ¹²⁹I の実験結果と考察

4.2.1 中性子捕獲断面積

¹²⁹I の中性子捕獲断面積を入射中性子エネルギー領域 16-90 keV と平均中性子エネルギー 150 keV、560 keV において誤差 7-12 % で求めた。得られた ¹²⁹I の中性子捕獲断面

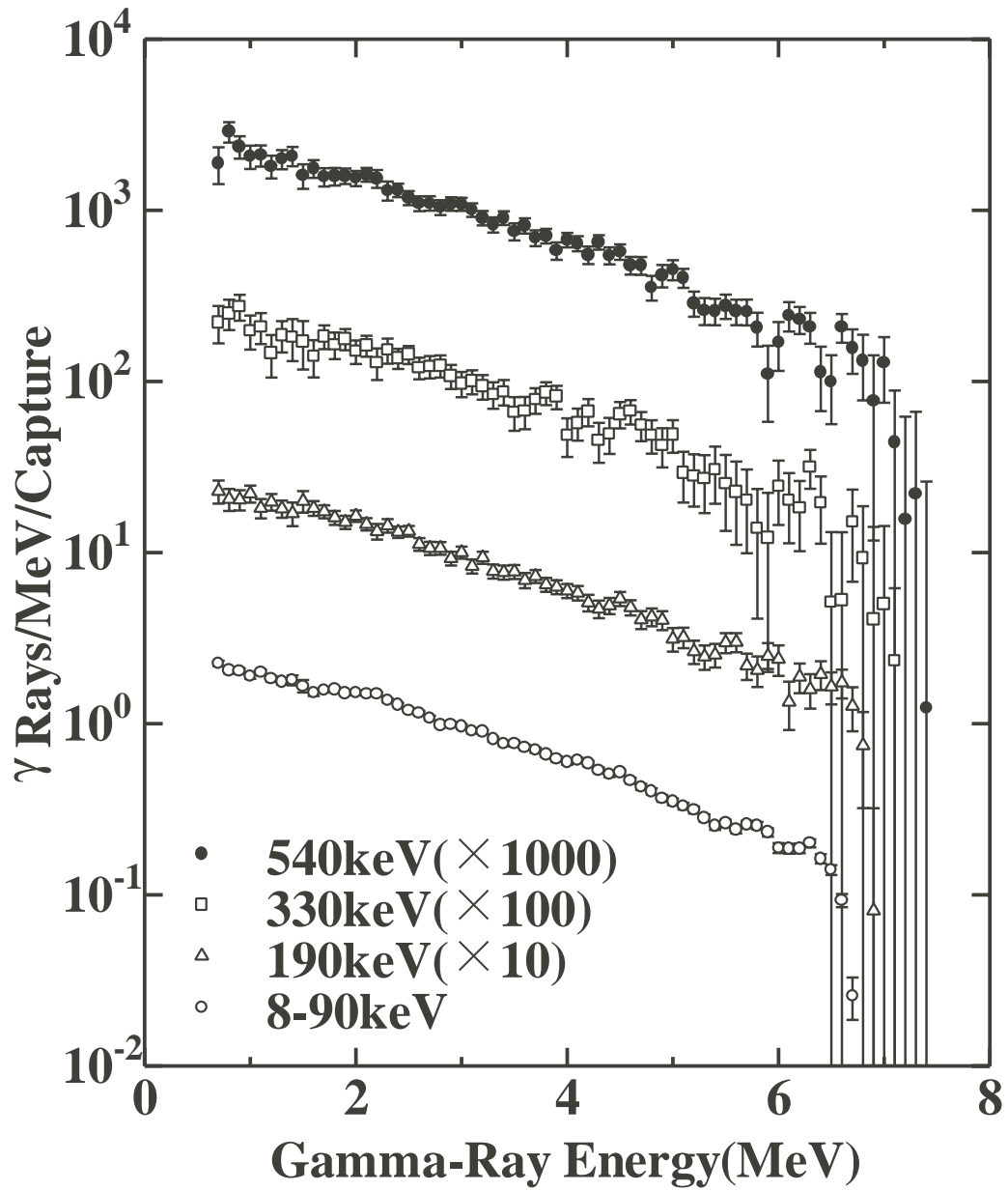


図 4.4: 測定によって得られた ^{99}Tc の捕獲 γ 線スペクトル

表 4.2: ^{129}I の中性子捕獲断面積

Average neutron energy	
[Energy region(keV)]	Capture cross section(b)
24[16-30]	0.419±0.030(7.2%)
39[30-49]	0.257±0.015(5.8%)
64[49-90]	0.183±0.011(6.0%)
152[111 [†]]	0.116±0.014(12.1%)
561[161 [†]]	0.066±0.005(7.6%)

[†] 半値幅

積を図 4.5 と表 4.2 に示す。図 4.5 中では、これまでに行われている唯一の実験データである Macklin の結果¹³⁾ および JENDL-3.2²⁾ と ENDF/B-VI¹⁴⁾ の評価値を比較して載せた。

Macklin¹³⁾ は中性子エネルギー領域 3-500 keV で捕獲断面積を測定した。実験方法は ^{99}Tc の場合と同様である。彼が用いた試料は、同位体組成が 83 %で、 ^{129}I の含有量が 20.2 weight%の PbI_2 試料であった。彼の結果は、今回の結果に比べ 30-40 %大きい値である。

JENDL-3.2 の評価は、100 keV 以下においては Macklin の実験データに従っている。100 keV 以上においては、球形光学ポテンシャルを用いた統計模型計算によって評価された。従って、10-200 keV のエネルギーでは今回の結果より 30-40 %大きく、560 keV において 50 %程度大きい。

ENDF/B-VI¹⁴⁾ の評価は、Macklin の測定よりも前に行われたため、計算のみの評価であるが、今回の結果と偶然に近い値となっている。

^{129}I の解析を通して、LLFP の測定において不純物安定同位体の中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線 PH スペクトルが精度良く分かっているならば、不純物として安定同位体が混在した試料を用いても LLFP の中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルを求めることができることが分かった。また、今回の測定では、本研究室で開発された大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器系を用いることによって、正味の質量が約 0.3 g という少量の試料を用いても中性子捕獲断面積及び捕獲 γ 線スペクトルを求めることが分かった。このことは、これまで通常の keV 中性子捕獲実験では、多量の高純度試料が必要であったため LLFP 試料の調達が容易でなかったが、この問題を解決あるいは緩和する見通しが見ついたと言える。即ち、 ^{129}I の実験データ解析を通して得られた手法を用いることによって、他の LLFP 核種の中性子捕獲断面積及び捕獲 γ 線スペクトルの測定が可能になったと考えられる。

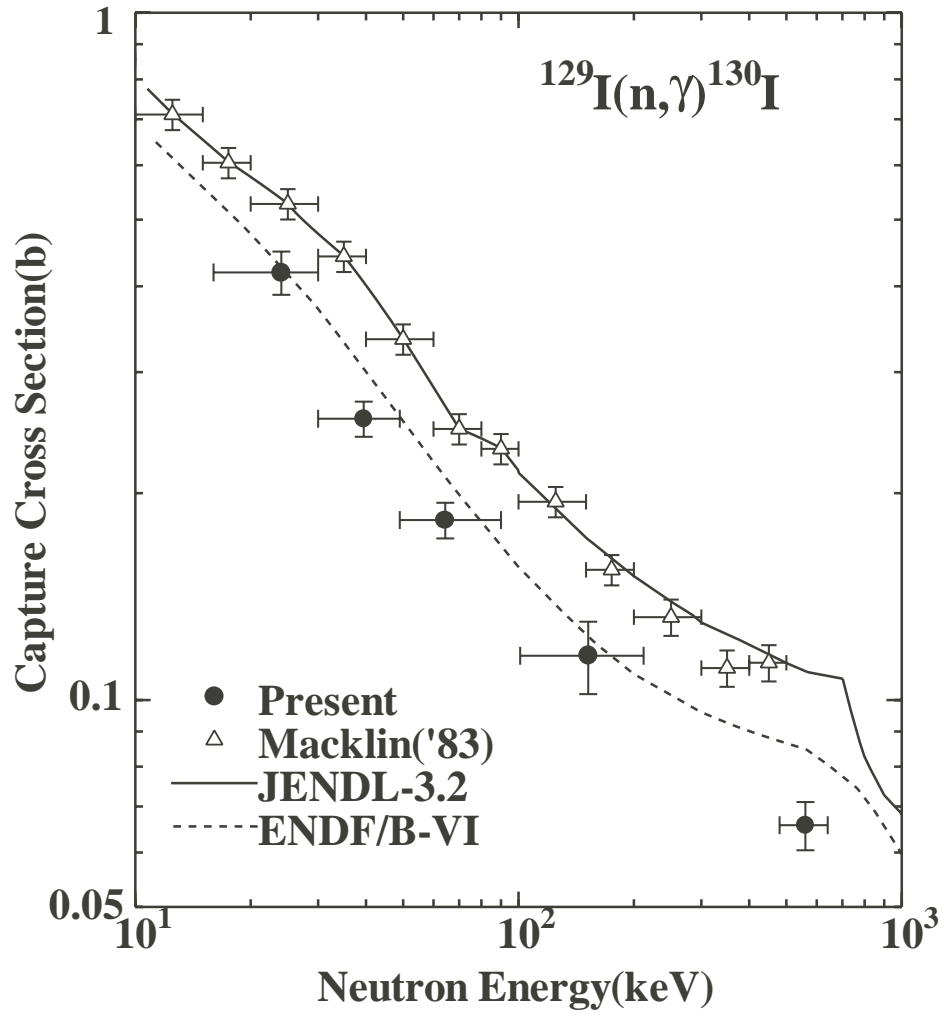


図 4.5: ^{129}I の中性子捕獲断面積

4.2.2 中性子捕獲 γ 線スペクトル

^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルを入射中性子エネルギー 16-90 keV(平均エネルギー 48 keV)で求めることができた。求めた捕獲 γ 線スペクトルを図 4.6 に示す。150、560 keV 実験においては、PH スペクトルの誤差が大きく、信頼性のある捕獲 γ 線スペクトルは得られなかった。

スペクトル中の 4.2、5.8、6.5 MeV 付近にピークが観測されているが、全体的に見て ^{129}I の keV 中性子捕獲 γ 線スペクトルで特徴的なことは、 $E_\gamma > 4$ MeV において全体的にもりあがっていることである。同様のもりあがりとは図 4.7 に示した安定同位体 ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルにも観測されている。また、 ^{129}I と ^{127}I のスペクトルは、 $1 \text{ MeV} < E_\gamma < 4 \text{ MeV}$ における傾きに類似性が見られる。 ^{129}I と ^{127}I のスペクトル解釈については 5 章で詳しく考察を行う。

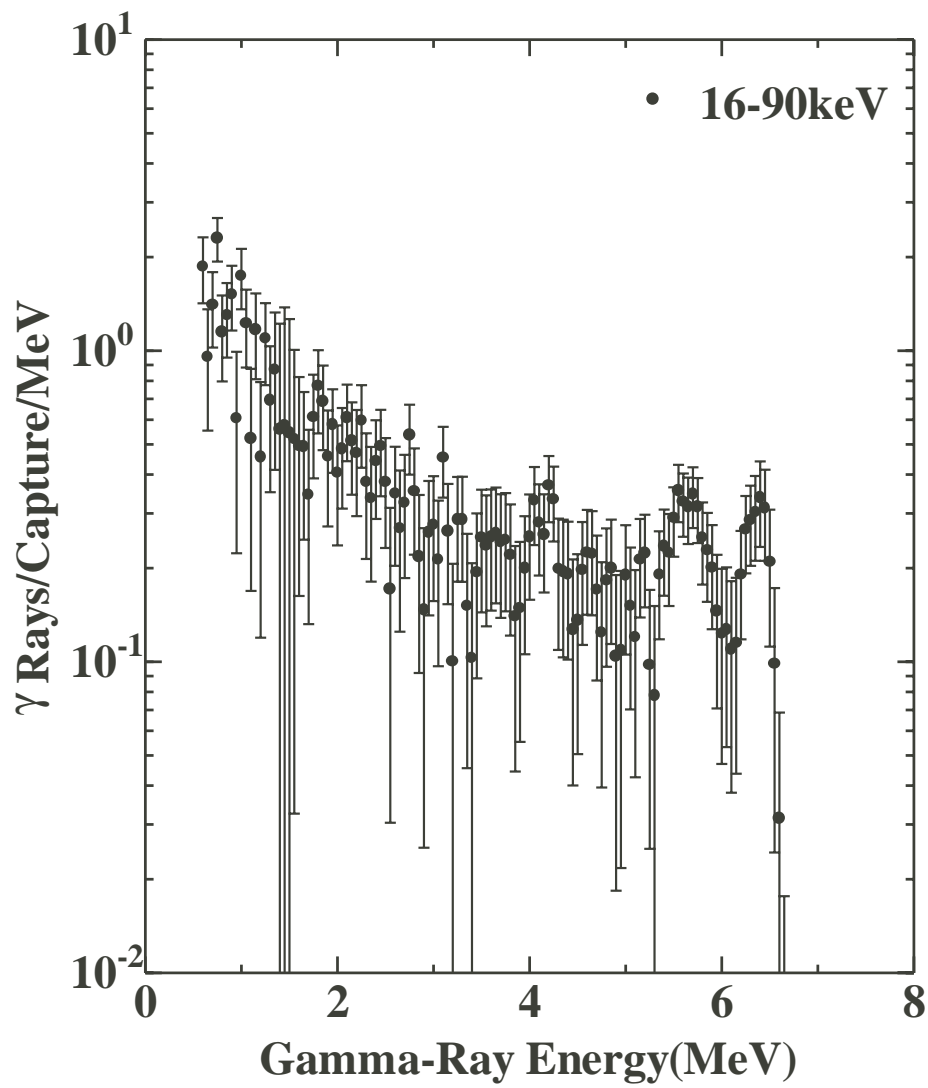


図 4.6: 測定で得られた ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトル

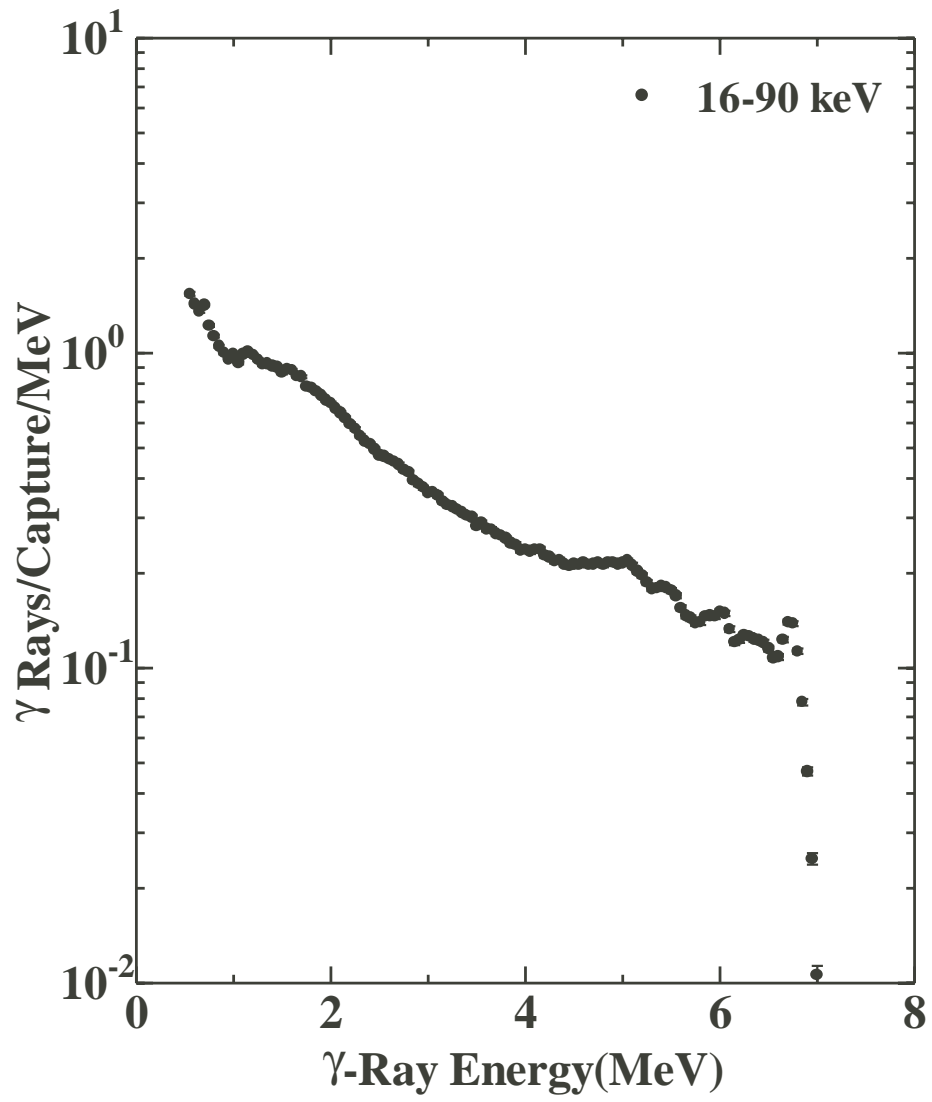


図 4.7: 測定で得られた ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトル

第5章 理論解析の方法と結果

本研究では、中性子捕獲断面積および中性子捕獲 γ 線スペクトルの理論計算には計算コード CASTHY⁴⁵⁾を用いた。

CASTHYは、光学模型を用いて中性子全断面積、複合核生成断面積、形状弾性散乱断面積を計算し、さらに統計模型を導入することによって中性子捕獲断面積、複合核弾性散乱断面積、非弾性散乱断面積を計算することができ、さらに捕獲 γ 線スペクトルも計算することができる。統計模型の計算は、共鳴準位が入射中性子エネルギー幅よりも密に存在し、観測される断面積が入射中性子エネルギー幅の中で平均値として求まるとき有効である。統計模型による中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線の計算方法については以下に簡単に示す。また、統計模型による捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルの計算では原子核準位密度関数と γ 線強度関数が大変重要であり、従ってこれらの関数を決定するパラメータが重要となる。本研究では⁹⁹Tcと¹²⁹Iだけでなく、LLFP核種と安定同位体との関係を探るために¹²⁷Iについても計算を行った。今回計算に用いたこれらの物理量および得られた計算結果と前章で得られた実験結果との比較について以下に述べる。

5.1 中性子捕獲断面積の計算

Hauser-Feshbach の理論⁴⁶⁾によれば、中性子捕獲断面積は、

$$\sigma_{\gamma}(E_n) = \frac{\pi}{k_n^2} \sum_{J\Pi jl} g_J \frac{\dot{T}_{njl}^{J\Pi}(E_n) T_{\gamma}^{J\Pi}(E_n)}{\dot{T}^{J\Pi}(E_n)} \quad (5.1)$$

と書ける。ここで、 J, Π は複合核のスピン・パリティ、 k_n は入射中性子の波数、 l は軌道角運動量、 j はチャンネルスピン、 g_J は統計因子である。また、 $T_{\gamma}^{J\Pi}(E_n)$ は γ 線透過係数であり、中性子結合エネルギー B_n 以下のエネルギー準位への遷移に対応する γ 線透過係数 $T_{\gamma 1}^{J\Pi}(E_n)$ と $B_n + E_n$ 以下のエネルギー準位への遷移に対応する γ 線透過係数 $T_{\gamma 2}^{J\Pi}(E_n)$ に分けて定義されている。

$$T_{\gamma 1}^{J\Pi}(E_n) = C_0^{J\Pi} \sum_{I=|J-1|}^{J+1} \int_{E_n}^{B_n+E_n} d\epsilon \epsilon^3 f_{\gamma}(\epsilon) \rho_c^I(B_n + E_n - \epsilon) \quad (5.2)$$

$$T_{\gamma 2}^{J\Pi}(E_n) = C_0^{J\Pi} \sum_{I=|J-1|}^{J+1} \int_0^{B_n+E_n} d\epsilon \epsilon^3 f_\gamma(\epsilon) \rho_c^I(B_n + E_n - \epsilon) \quad (5.3)$$

ここで、 f_γ は γ 線強度関数、 ϵ は γ 線エネルギー、 ρ_c^I は原子核準位密度関数である。また $C_0^{J\Pi}$ は規格化因子⁴⁵⁾⁴⁴⁾である。ここで、全 γ 線透過係数 $T_\gamma^{J\Pi}(E_n)$ を、

$$T_\gamma^{J\Pi} = T_{\gamma 1}^{J\Pi} + (T_{\gamma 2}^{J\Pi} - T_{\gamma 1}^{J\Pi}) \frac{T_{\gamma 2}^{J\Pi}}{\dot{T}^{J\Pi}} \quad (5.4)$$

$$= T_{\gamma 1}^{J\Pi} + \delta T_\gamma^{J\Pi} \frac{T_{\gamma 2}^{J\Pi}}{\dot{T}^{J\Pi}} \quad (5.5)$$

で近似する。 $\delta T_\gamma^{J\Pi}$ は捕獲状態付近から B_n 以上のエネルギー準位への γ 線遷移に対応する透過係数を意味する。また、 $T_{njl}^{J\Pi(E_n)}$ を全中性子透過係数として、捕獲状態からの中性子放出 ($\dot{T}_{njl}^{J\Pi}$) と、 B_n 以上のエネルギー準位へ γ 線遷移した後の中性子放出 ($\delta T_{njl}^{J\Pi}$) に分けて

$$T_{njl}^{J\Pi} = \dot{T}_{njl}^{J\Pi} + \delta T_{njl}^{J\Pi} \quad (5.6)$$

$$= \dot{T}_{njl}^{J\Pi} + \delta T_\gamma^{J\Pi} \frac{\dot{T}_{njl}^{J\Pi}}{\dot{T}^{J\Pi}} \quad (5.7)$$

と近似する。ここで、 $\dot{T}^{J\Pi}$ や $\dot{T}_{njl}^{J\Pi}$ の上部について \cdot は光学模型によって得られた物理量を意味する。 $\dot{T}^{J\Pi}(E_n)$ は全反応の透過係数であり、

$$\dot{T}^{J\Pi} = \sum_{n'j'l'} \dot{T}_{n'j'l'}^{J\Pi} + T_{\gamma 2}^{J\Pi} \quad (5.8)$$

と定義される。従って、中性子捕獲断面積は、(5.1) 式に各透過係数を代入して、

$$\sigma_\gamma = \frac{\pi}{k_n^2} \sum_{J\Pi jl} g^J \frac{\dot{T}_{njl}^{J\Pi}}{\dot{T}^{J\Pi}} \left\{ T_{\gamma 1}^{J\Pi} + T_{\gamma 2}^{J\Pi} \frac{\delta T_\gamma^{J\Pi}}{\dot{T}^{J\Pi}} \right\} \quad (5.9)$$

となる。

5.2 捕獲 γ 線スペクトルの計算

捕獲 γ 線スペクトルは状態に対する population probability と分岐比の積を、可能な遷移に対して足し合わせることによって得られるが、以下に簡単に説明する。

エネルギー E_n の中性子が入射し複合核状態 (スピン J_0 、パリティ Π_0 、励起エネルギー $E_0 = B_n + E_n$) を作る確率 R は、

$$R(E_0, J_0, \Pi_0) = \sum_{jl} g_{J_0} T_{nlj}^{J_0\Pi_0}(E_n) / \sum_{J\Pi jl} g_J T_{nlj}^{J\Pi}(E_n) \quad (5.10)$$

となる。この複合核状態を經由して、カスケードプロセスも考慮して、励起エネルギー E の状態 (スピン J 、パリティ Π) を形成する確率は、

$$\begin{aligned}
 P(E_0, J_0, \Pi_0 \rightarrow E, J, \Pi) &= \delta(E_0 - E)R(E_0, J_0, \Pi_0) \\
 &+ R(E_0, J_0, \Pi_0)B_\gamma(E_0, J_0, \Pi_0 \rightarrow E, J, \Pi) \\
 &+ \sum_{J'\Pi'} \int_E^{E_0} dE' P(E_0, J_0, \Pi_0 \rightarrow E', J', \Pi') \cdot \\
 &B_\gamma(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi)
 \end{aligned} \tag{5.11}$$

によって表される。第1項は中性子の入射によって複合核状態 (E_0, J_0, Π_0) を励起する確率、第2項は複合核状態から直接 γ 線遷移して状態 (E, J, Π) が形成される確率、第3項は複合核状態からカスケードプロセスを經由して状態 (E, J, Π) が形成される確率である。また、 $B_\gamma(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi)$ は状態 (E, J, Π) から状態 (E', J', Π') へ γ 線遷移する分岐比であり、CASTHYでは、電気的雙極子 (E1) 遷移、磁氣的雙極子 (M1) 遷移、電気的四重極子 (E2) 遷移が考慮され、

$$\begin{aligned}
 B_\gamma(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi) &= B_\gamma^{E1}(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi) \\
 &+ B_\gamma^{M1}(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi) \\
 &+ B_\gamma^{E2}(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi)
 \end{aligned} \tag{5.12}$$

で与えられる⁴⁴⁾。ただし、

$$\begin{aligned}
 B_\gamma^{E1}(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi) &= \\
 &\frac{2\pi\Delta(J', 1, J)\delta_{\Pi', -\Pi} \cdot C_0^{J'\Pi'}(E' - E)^3 F_\gamma(E' - E)\rho_c^{J\Pi}(E')}{\dot{T}^{J'\Pi'}} \\
 B_\gamma^{M1}(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi) &= \\
 &\frac{2\pi\Delta(J', 1, J)\delta_{\Pi', -\Pi} \cdot C_0^{J'\Pi'}(E' - E)^3 \times 2.072 \times 10^{-2}\rho_c^{J\Pi}(E')/C_f}{\dot{T}^{J'\Pi'}} \\
 B_\gamma^{E2}(E', J', \Pi' \rightarrow E, J, \Pi) &= \\
 &\frac{2\pi\Delta(J', 2, J)\delta_{\Pi', -\Pi} \cdot C_0^{J'\Pi'}(E' - E)^5 \times 4.790 \times 10^{-8}A^{4/3}\rho_c^{J\Pi}(E')/C_f}{\dot{T}^{J'\Pi'}}
 \end{aligned} \tag{5.13}$$

である。ここで δ はクロネッカーのデルタ、 $\Delta(J', s, J)$ は γ 線遷移におけるスピン選択則を表し、

$$\begin{aligned}
 \Delta(J', s, J) &= 1 \quad (|J' - s| \leq J \leq |J' + s|) \\
 &= 0 \quad (\textit{otherwise})
 \end{aligned}$$

となる。また

$$C_f = \frac{10^6}{3\pi^2(\hbar c)^2} \tag{5.14}$$

であり、 c は光速である。

したがって、状態 (E, J, Π) への Population probability は、(5.11) 式を始複合核状態について和をとり、

$$P(E, J, \Pi) = \sum_{J_0 \Pi_0} P(E_0, J_0, \Pi_0 \rightarrow E, J, \Pi) \quad (5.15)$$

と得られる。

CASTHY では、低励起離散準位の情報を最大 30 まで入力することができる。入力した離散準位の最大エネルギーを E_c とし、それよりも高いエネルギー領域を連続準位領域としている。そこで、捕獲 γ 線スペクトルは連続領域から連続領域、連続領域から離散準位、離散準位から離散準位の遷移に分離して計算し、足し合わせることで以下のように得られる。

$$\begin{aligned} \nu(\epsilon_\gamma) = & \sum_{J\Pi J'\Pi'} \int_{E_c+\epsilon_\gamma}^{E_0} dE P(E, J, \Pi) B_\gamma(E, J, \Pi \rightarrow E - \epsilon_\gamma, J', \Pi') \\ & + \sum_{J\Pi} \sum_{k=1}^{k_0} P(E_k + \epsilon_\gamma, J, \Pi) B_\gamma(E_k + \epsilon_\gamma, J, \Pi \rightarrow E_k, J_k, \Pi_k) \\ & + \sum_{k=1}^{k_0} \sum_{k'=k+1}^{k_0} P(E_k, J_k, \Pi_k) B_\gamma(E_{k'}, J_{k'}, \Pi_{k'} \rightarrow E_k, J_k, \Pi_k) \delta(E_{k'} - E_k - \epsilon_\gamma) \end{aligned} \quad (5.16)$$

第 1 項が連続領域から連続領域への遷移、第 2 項が連続領域から離散準位への遷移、第 3 項が離散準位間の遷移を表している。

5.3 原子核準位密度関数

準位密度関数として Gilbert and Cameron の式⁴⁷⁾ を用いた。Gilbert and Cameron⁴⁷⁾ によると Free fermi gas model による準位密度関数は、

$$\rho_G^{J\Pi}(U) = \rho_G(U) \rho_{GJ}(U) \rho_{G\Pi}(U) \quad (5.17)$$

$$\rho_G(U) = \frac{\exp\{2\sqrt{aU}\}}{24\sqrt{2}\sigma^3(E)a^{\frac{1}{4}}U^{\frac{5}{4}}} \quad (5.18)$$

$$\rho_{GJ}(U) = (2J + 1) \exp\left\{\frac{-J(J + 1)}{2\sigma^2(U)}\right\} \quad (5.19)$$

$$\rho_{G\Pi}(U) = \frac{1}{2} \quad (5.20)$$

と書ける。ここで、 $\rho_G(U)$ は励起エネルギーに依存する部分、 $\rho_J(U)$ はスピン J の分布、 $\rho_\Pi(U)$ はパリティ Π の分布である。U は実効励起エネルギーで、pairing energy Δ

を用いて $E - \Delta$ で表される。 Δ は Mengoni⁴⁸⁾ によって、

$$\Delta = \begin{cases} 2 \times \frac{12}{\sqrt{A}} & \text{偶 - 偶核} \\ 1 \times \frac{12}{\sqrt{A}} & \text{奇 - 偶核} \\ 0 & \text{奇 - 奇核} \end{cases} \quad (5.21)$$

と評価されている。 $\sigma^2(E)$ は、 spin cutoff factor で

$$\sigma^2(U) = \frac{0.4\mu_0 r_0^2 A^{5/3} U^{1/2}}{a^{1/2} \hbar^2} \quad (5.22)$$

である。ここで、 μ_0 は核子質量、 r_0 は radius parameter、 a は準位密度パラメータである。

また、低励起エネルギー領域において constant temperature model で記述される準位密度関数は、

$$\rho_T^{J\Pi}(U) = \rho_T(U) \rho_{TJ}(U) \rho_{T\Pi}(U) \quad (5.23)$$

$$\rho_T(U) = \frac{C}{2\sigma_T^2(U)} \exp\left(\frac{U}{T}\right) \quad (5.24)$$

$$\rho_{TJ}(U) = \frac{(2J+1)}{2\sigma_T^2(U)} \exp\left\{\frac{-J(J+1)}{2\sigma_T^2(U)}\right\} \quad (5.25)$$

$$\rho_{T\Pi}(U) = \frac{N_+ + 0.5 \exp\{(U - U_x)/D\}}{1 + \exp\{(U - U_x)/D\}} \quad (5.26)$$

$$U_x = (U_0 + U_c)/2$$

$$D = |U_0 - U_c|/8$$

となる。ここで、 $\sigma_T^2(U)$ は constant temperature model における spin cutoff factor、 U_c は離散準位と連続部分の境界の実効エネルギー、 N_+ は離散準位における + パリティの割合である。 $E = E_x(U_0 = E_x - \Delta)$ で滑らかにつなぐ必要があるので、 (5.17) 式と (5.23) 式から、

$$\rho_G^{J\Pi}(U_0) = \rho_T^{J\Pi}(U_0) \quad (5.27)$$

$$\frac{d}{dU} \rho_G^{J\Pi}(U)|_{U=U_0} = \frac{d}{dU} \rho_T^{J\Pi}(U)|_{U=U_0} \quad (5.28)$$

の条件が課される。なお、 spin cutoff factor は次式のように与えた。

$$\sigma_T^2(U) = \sigma_T^2(0) + \{\sigma^2(U_0) - \sigma_T^2(0)\} \frac{U}{U_0} \quad (5.29)$$

以上から a 、 Δ 、 C 、 T 、 $U_0 (= E_x - \Delta)$ 、 $\sigma_T^2(0)$ を決定すれば準位密度関数が得られる。 a 、 T は参考文献³⁴⁾ より引用し、 Δ は (5.21) 式から計算し、 $\sigma_T^2(0)$ は離散準位データ¹⁷⁾ から求め、 C と U_0 は (5.27) と (5.28) 式の条件から得た。各パラメータを表 5.1 に示す。

表 5.1: 準位密度関数のパラメータ

	^{100}Tc	^{130}I	^{128}I
a	16.2	16.0	17.3
T	0.73	0.64	0.71
E_x	6.3	4.4	6.4
Δ	0.0	0.0	0.0
$\sigma_T^2(0)$	21.9	4.3	32.0

5.4 γ 線強度関数

状態 i (エネルギー E_i 、スピン J 、パリティ Π) から状態 f (エネルギー E_f) へエネルギー $E_\gamma = E_i - E_f$ ($E_i > E_f$) の γ 線を放出して遷移するときの γ 線強度関数は、

$$F_{XL}^{J\Pi}(E_\gamma) = \frac{\bar{\Gamma}_{XL}^{J\Pi}(E_\gamma)\rho^{J\Pi}(E_i)}{E_\gamma^{2L+1}} \quad (5.30)$$

で定義される。ここで、 X は電氣的遷移 (E) か磁氣的遷移 (M) を区別しており、 L は 2^L 重極遷移であることを示している。また、 $\Gamma^{J\Pi}(E_\gamma)$ は、状態 i から状態 f への遷移の部分放射幅の平均値、 $\rho^{J\Pi}(E_i)$ は始状態における準位密度である。CASTHY では、電氣的双極子 (E1)、磁氣的双極子 (M1)、電氣的四重極子 (E2) 遷移について計算を行っているが、本研究では、電磁氣的遷移の中で最も優位な E1 γ 線強度関数のパラメータ決定に着目し、M1、E2 遷移については Blatt and Weisskopf の単一粒子模型⁵³⁾ による計算、即ち γ 線強度関数が一定であるとした。 γ 線強度関数の情報は光吸収断面積⁴⁹⁾ $\sigma_a(E_\gamma)$ から得られる。しかしながら、光吸収断面積データは、主に E1 巨大共鳴付近の 10 ~ 20 MeV に集中しており、中性子捕獲 γ 線スペクトルの計算に必要な中性子結合エネルギー B_n 以下のデータはほとんどない。従って、 B_n 以下の光吸収断面積を 10-20 MeV のデータから予測する必要がある。一般に、E1 γ 線吸収断面積の形を表す関数として Lorentz 型関数が広く用いられている。このとき、個別つりあいの原理、Brink の仮説⁵¹⁾ を用いると E1 γ 線強度関数は次式のようなになる⁵²⁾。

$$F_{E1}(E_\gamma) = \frac{1}{3(\pi\hbar c)^2} \frac{\sigma_a(E_\gamma)}{E_\gamma} \quad (5.31)$$

$$= \frac{1}{3(\pi\hbar c)^2} \sum_{j=1}^2 \frac{\sigma_j \Gamma_j^2 E_\gamma}{(E_\gamma^2 - E_j^2)^2 + (E_\gamma \Gamma_j)^2} \quad (5.32)$$

ここで、 E_j (MeV)、 σ_j (mb)、及び Γ_j (MeV) はそれぞれ E1 巨大共鳴の共鳴エネルギー、ピーク断面積、及び共鳴幅である。 ^{100}Tc 、 ^{130}I 、及び ^{128}I で用いた巨大共鳴パラメータを表 5.2 に示す。安定核種ではない ^{100}Tc 、 ^{128}I 、 ^{130}I の E1 巨大共鳴データは現在存

表 5.2: E1 γ 線巨大共鳴パラメータ

	^{99}Tc	$^{127}\text{I} (^{129}\text{I})$
E_1	16.2	14.8
Γ_1	7.26	3.34
σ_1	191.0	111.0
E_2	-	15.9
Γ_2	-	6.44
σ_2	-	156.0

在しない。そこで、 ^{100}Tc については質量数が近い安定核種である ^{103}Rh のデータ⁴⁹⁾、 ^{128}I と ^{130}I については ^{127}I のデータ⁴⁹⁾ を用いた。この Lorentz 型の E1 γ 線強度関数は、 B_n 以下のエネルギー領域では過大評価しているという指摘⁵⁰⁾ もあるが、本研究ではまず (5.32) 式の強度関数を用いて計算を行った。

5.5 捕獲 γ 線スペクトルの計算結果と実験結果の比較 1

^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{127}I について計算した捕獲 γ 線スペクトルの結果を実験結果と比較して図 5.1-5.3 に示す。

^{99}Tc の場合、計算結果と測定値は全体的にかなりよく一致しているが、 $E_\gamma > 4.0$ MeV において計算値は少しスペクトルを過小評価している。すなわち、実際の ^{99}Tc の捕獲 γ 線スペクトルの 4.0 MeV 以上では、わずかに '盛り上がり' があると解釈することができる。また、前章で指摘した 2.2 MeV 付近の 'ショルダー' 以下の部分でも計算結果はわずかにスペクトルを過小評価している。なお、計算結果において $E_\gamma < 3.0$ MeV では、E1 よりも M1 遷移がかなり強調されている。これは、入力した離散準位の + パリティと - パリティの割合が 8:2 となっていて、パリティ分布に偏りがあるためと考えられる。もう一つの原因としては、Lorentz 型 E1 γ 線強度関数は $E_\gamma \rightarrow 0$ MeV で $F_{E1}(E_\gamma) \rightarrow 0$ となり、低エネルギー領域で E1 強度が過小評価されていることが考えられる。

^{129}I の場合、計算結果は実験結果に比べてかなりソフトなスペクトルとなっている。即ち、 ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルで特徴的な 4.0 MeV 以上に観測されている '盛り上がり' が全く再現されていない。また 2 MeV 以下の領域においては、計算では実験のスペクトルの傾きを全く再現していない。

^{127}I の場合も ^{129}I の場合と同様に、4.0 MeV 以上に観測されている '盛り上がり' が計算では全く再現されていない。また、2.0 MeV 以下の領域の状況も ^{129}I の場合と同様である。

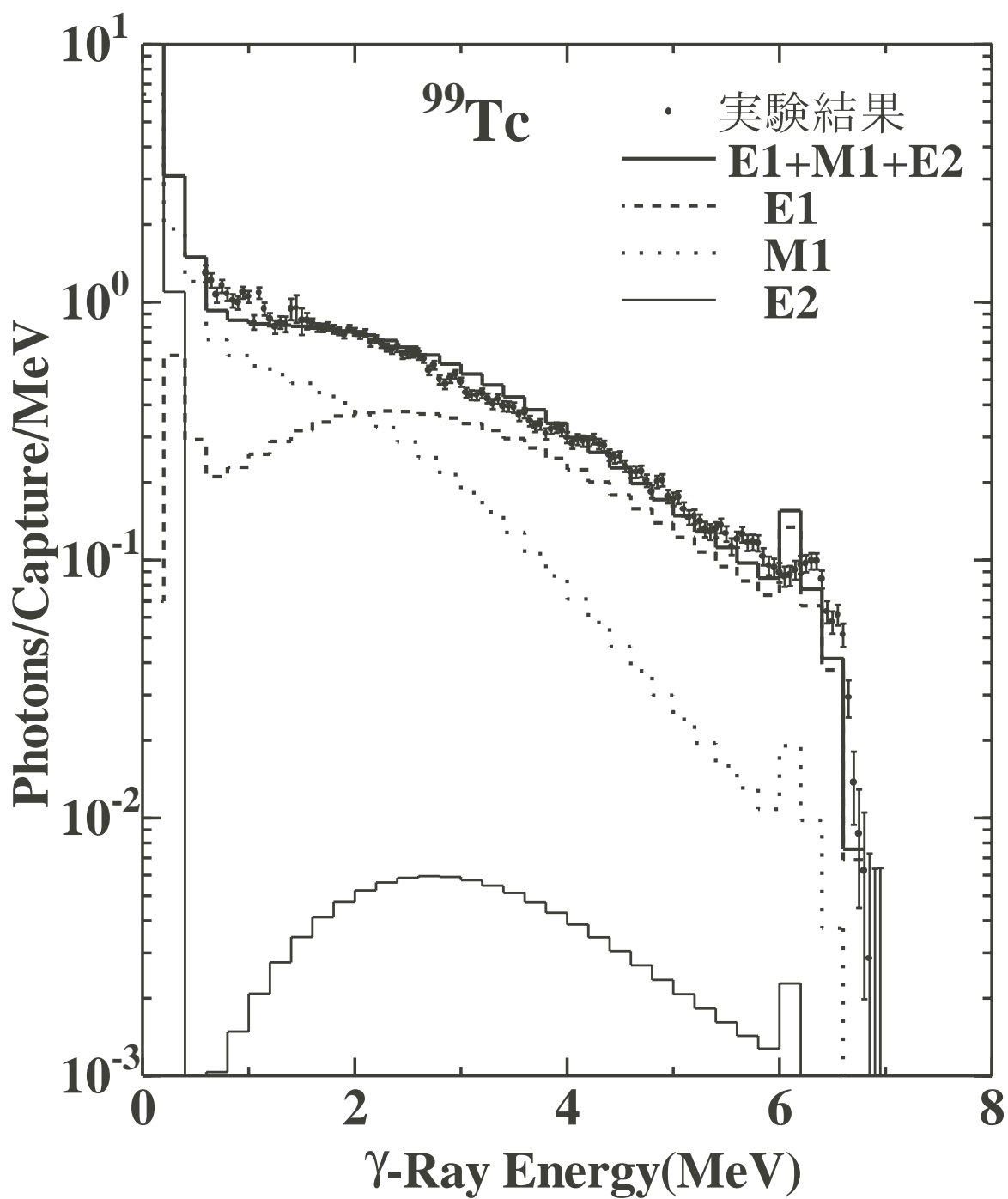


図 5.1: ^{99}Tc の平均入射中性子エネルギー 45 keV における捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較

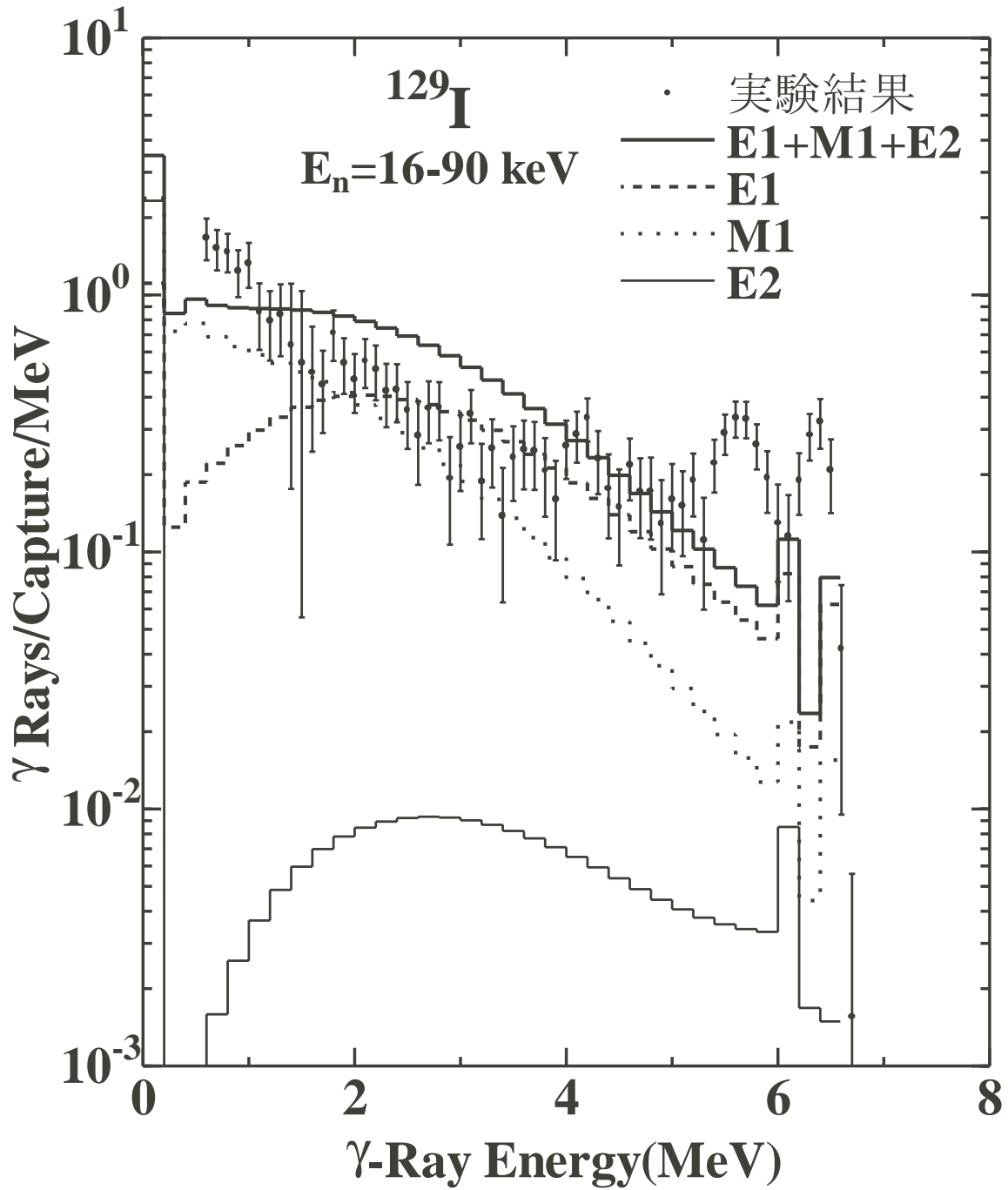


図 5.2: ^{129}I の平均入射中性子エネルギー 48 keV における捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較

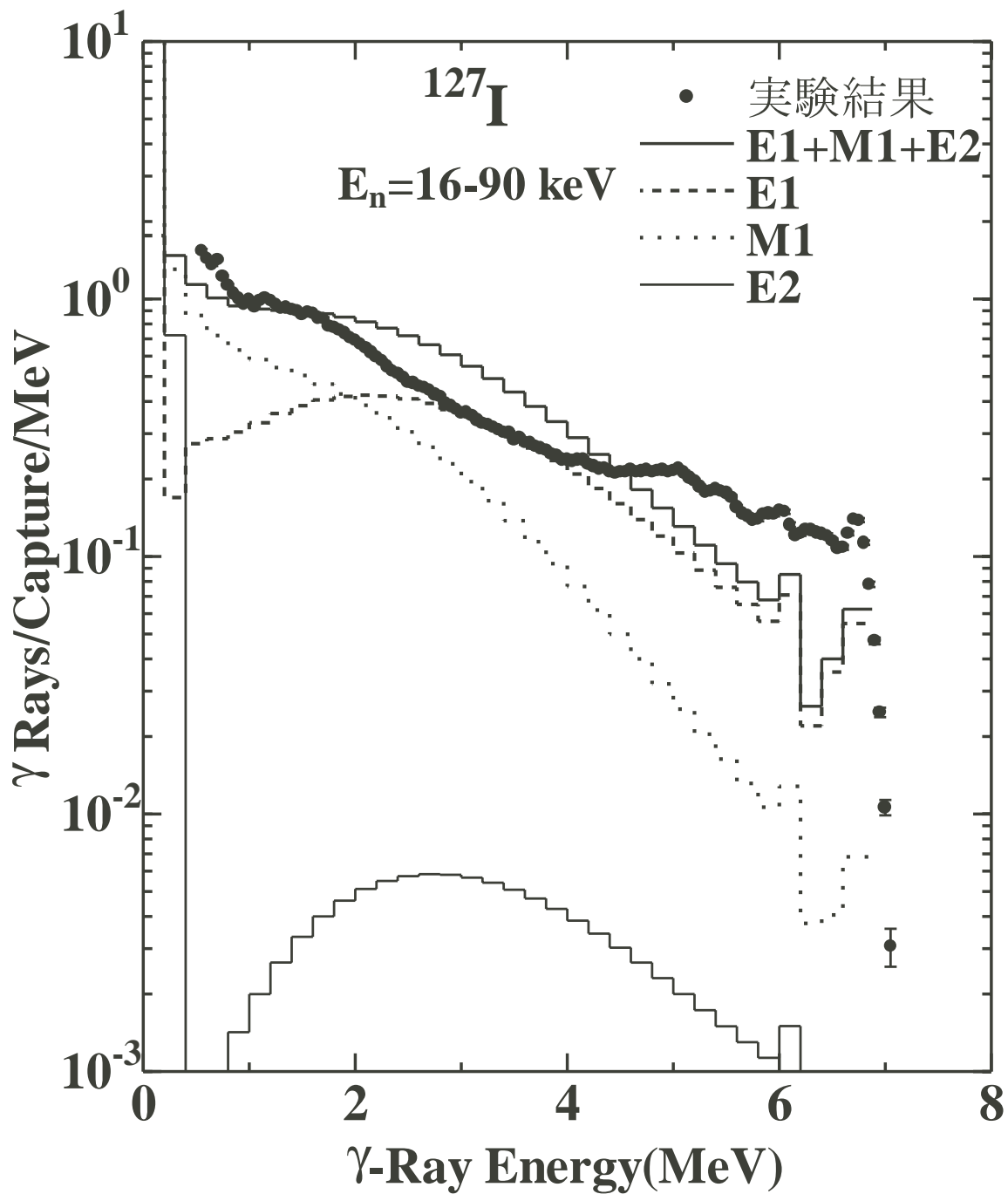


図 5.3: ^{127}I の平均入射中性子エネルギー 48 keV における捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較

5.6 捕獲 γ 線スペクトルの計算結果と実験結果の比較 2

5.6.1 $E1\gamma$ 線強度関数の修正

捕獲 γ 線スペクトルの計算値が実験値を再現するように $E1\gamma$ 線強度関数を修正することにした。そこで、 $\exp\{\alpha(E_\gamma - E_j)\}$ という Depression factor を導入した。また、パラメータ E_W を導入し、 $E_\gamma < E_W$ においては単一粒子 γ 線強度関数 (即ち一定) とした。この時、 $E1\gamma$ 線強度関数は、

$$F_{E1}^d(E_\gamma) = \frac{k}{3(\pi\hbar c)^2} \sum_{j=1}^2 \frac{\exp\{\alpha(E_\gamma - E_j)\} \sigma_j \Gamma_j^2 E_\gamma}{(E_\gamma^2 - E_j^2)^2 + (E_\gamma \Gamma_j)^2} \quad (E_\gamma \geq E_W) \quad (5.33)$$

$$F_{E1}^d(E_\gamma) = F_{E1}^d(E_W) \quad (E_\gamma < E_W) \quad (5.34)$$

と表される。さらに、実験で得られたスペクトルの 4.0 MeV 以上の '盛り上がり' を再現し、また 2 MeV 以下の計算と実験の不一致を緩和させるため、 $E1\gamma$ 線強度関数中に 2 個の小さな共鳴 (ピグミー共鳴) を Lorentz 型で導入した。最終的に、以下の式を修正 $E1\gamma$ 線強度関数の試行関数とした。

$$F_{E1}^m(E_\gamma) = F_{E1}^d(E_\gamma) + \frac{1}{3(\pi\hbar c)^2} \sum_{j=1}^2 \frac{\sigma_{pj} E_\gamma \Gamma_{pj}^2}{(E_\gamma^2 - E_{pj}^2)^2 + (E_\gamma \Gamma_{pj})^2} \quad (5.35)$$

ここで、 E_{pj} 、 σ_{pj} 、 Γ_{pj} はそれぞれピグミー共鳴のエネルギー、ピーク断面積、共鳴幅である。なおこの方法は、これまでも多くの核種の捕獲 γ 線スペクトルについての系統的研究⁵²⁾ に用いられている。

(5.35) 式の試行関数を用いて実験スペクトルを解析した結果得られたパラメータを表 5.3 に示す。また、これらのパラメータを用いた修正 $E1\gamma$ 線強度関数を修正前の強度関数と比較して図 5.4、5.5 に示す。なお、図中の破線は (5.35) 式の $F_{E1}^d(E_\gamma)$ の寄与のみを示している。

5.6.2 ^{99}Tc

修正した $E1\gamma$ 線強度関数を用いて得られた ^{99}Tc の捕獲 γ 線スペクトルの計算値を測定値と比較して図 5.6、5.7 に示す。中性子エネルギー 540 keV の計算でも同じパラメータを用いている。1.5 MeV $< E_\gamma < 5.5$ MeV の領域では、計算と測定的一致は非常に良い。 $E_\gamma > 5.5$ MeV では、計算は少し過小評価している。このエネルギー領域では、捕獲状態から低励起離散準位への遷移 γ 線が主である。 $E_\gamma < 1.5$ MeV でも、計算値はわずかにスペクトルを過小評価している。この領域では、低励起準位間の遷移によるカ

表 5.3: 解析で得られた E1 γ 線巨大共鳴パラメータ

	⁹⁹ Tc	¹²⁷ I(¹²⁹ I)
E_{p1}	2.5	1.5
Γ_{p1}	1.0	1.7
σ_{p1}	0.2	0.45
E_{p2}	5.0	5.7
Γ_{p2}	2.0	1.8
σ_{p2}	1.0	16.0
k	2.0	1.2
α_1	0.10	0.17
α_2	-	0.14
E_W	2.2	3.0

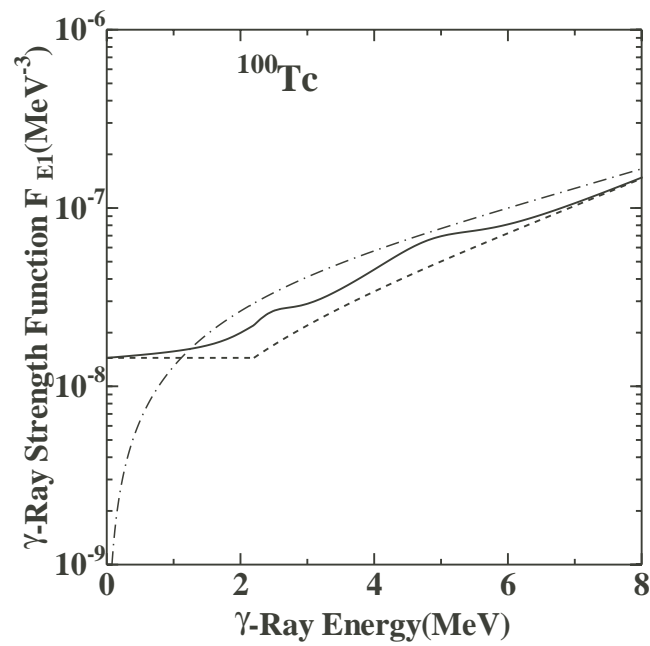


図 5.4: 実験で得られた捕獲 γ 線スペクトルの解析から導出された¹⁰⁰TcのE1 γ 線強度関数(実線)。一点鎖線はLorentz型のE1 γ 線強度関数で、破線は $F_{E1}^d(E_{\gamma})$ 項の寄与分。

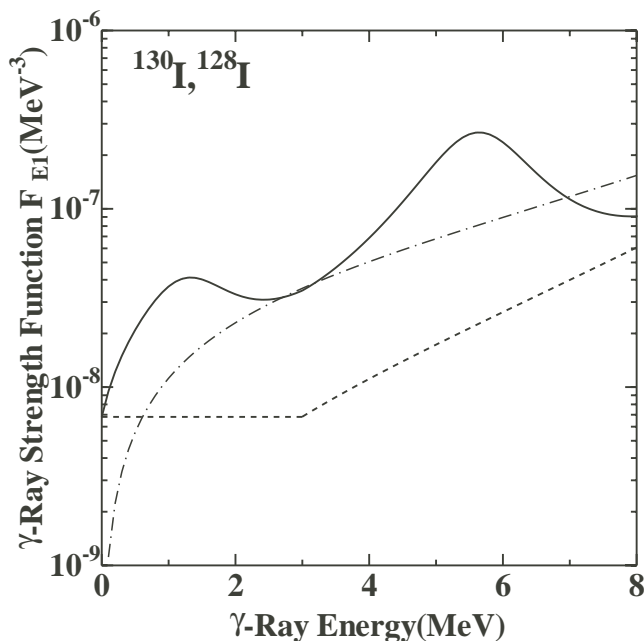


図 5.5: 実験で得られた捕獲 γ 線スペクトルの解析から導出された ^{130}I と ^{128}I の修正 $E1\gamma$ 線強度関数。一点鎖線は Lorentz 型の $E1\gamma$ 線強度関数で、破線は $F_{E1}^d(E_{\gamma})$ 項の寄与分。

スケード γ 線の寄与が大きく、即ち核の個性が強いが、計算ではそれを少し再現できていない。

5.6.3 ^{129}I と ^{127}I

I の計算では、まず誤差の小さい ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルについてスペクトルフィットを行い、修正 $E1\gamma$ 線強度関数を求めた。修正した $E1\gamma$ 線強度関数を用いて得られた ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値を図 5.8 に示す。計算で得られた ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルは、 $1.0 \text{ MeV} < E_{\gamma} < 6.0 \text{ MeV}$ の連続領域において測定値を良く再現している。しかし、 $E_{\gamma} < 1.0 \text{ MeV}$ と $E_{\gamma} > 6.0 \text{ MeV}$ の領域では、計算値はスペクトルをかなり過小評価している。

次に、 ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルのフィットで得られた修正 $E1\gamma$ 線強度関数のパラメータを用いて、 ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルの計算を行った。計算結果と測定結果を比較して図 5.9 に示す。 $1.0 \text{ MeV} < E_{\gamma} < 5.0 \text{ MeV}$ の連続領域では ^{127}I の場合と同様に、計算は実験誤差内で測定値と一致した。すなわち、 4.0 MeV 以上の '盛り上がり' が再現できた。 $E_{\gamma} > 5.0 \text{ MeV}$ の高エネルギー領域では、これも ^{127}I の場合と同様に、計算

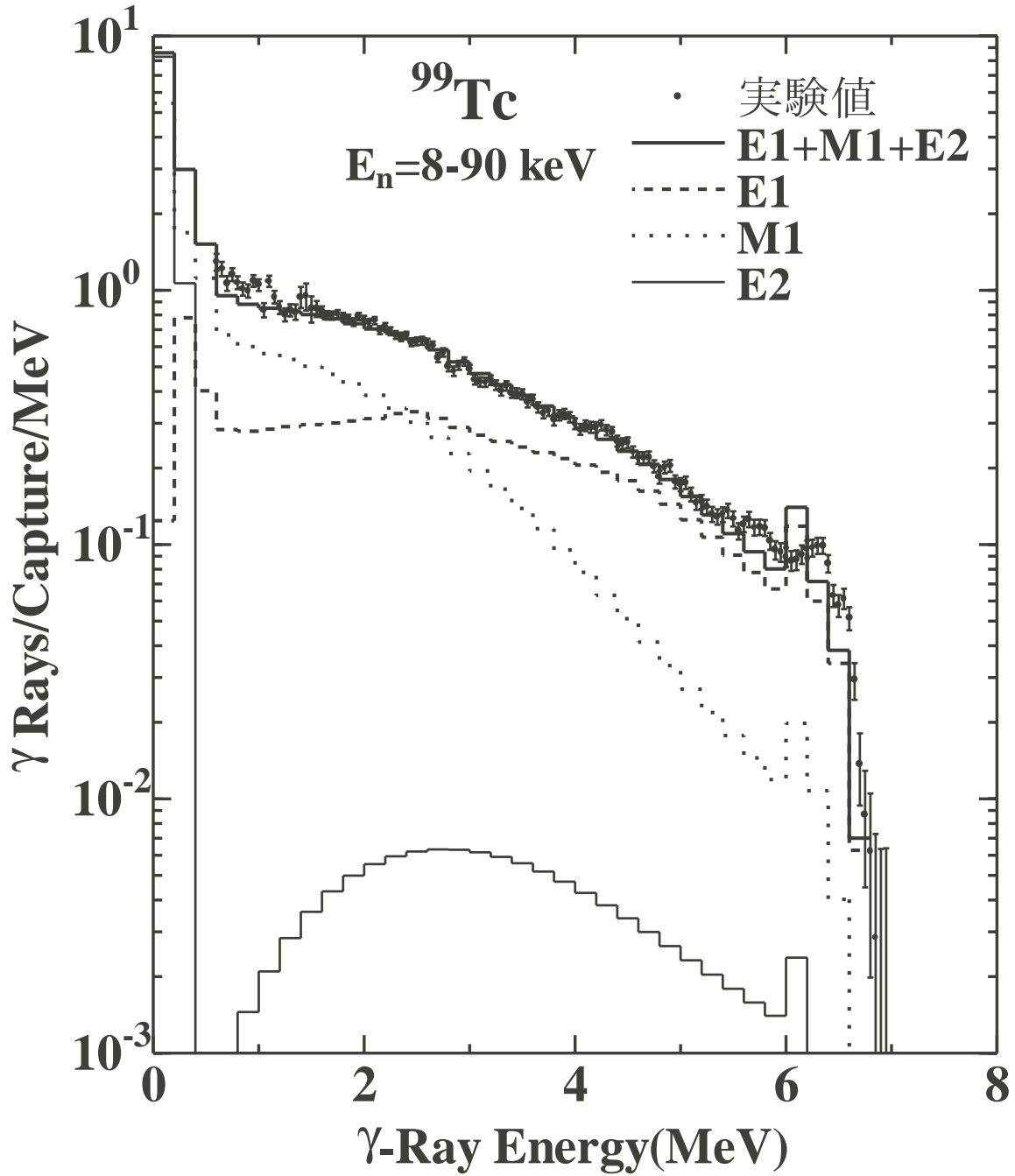


図 5.6: 修正した E1 γ 線強度関数を用いて計算した ^{99}Tc の捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較。平均入射中性子エネルギーは 45 keV である。

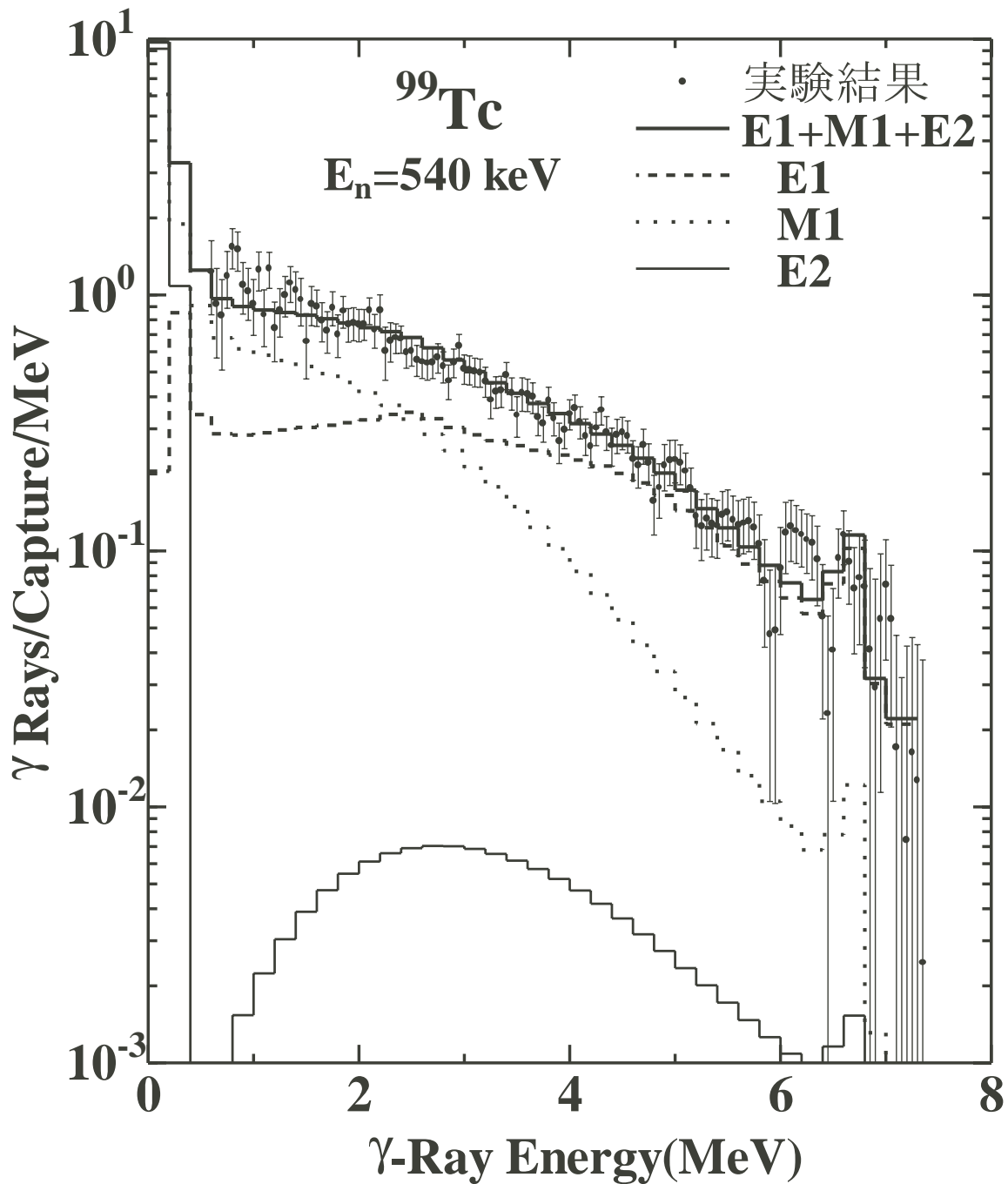


図 5.7: 修正した E1 γ 線強度関数を用いて計算した ^{99}Tc の捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較。平均入射中性子エネルギーは 540 keV である。

値は測定値を再現できていない。同じく $E_\gamma < 1.0$ MeV の低エネルギー領域でも計算値は測定値を再現していない。これは、 ^{130}I の低励起準位のスピンパリティや分岐比のデータが乏しいため、捕獲状態から低励起状態へのプライマリ遷移や低励起準位間のカスケード遷移による γ 線が計算では再現されていないと考えられる。

5.7 中性子捕獲断面積の計算結果と実験結果の比較

中性子捕獲断面積の計算結果を本研究で得られた実験結果 (^{127}I の場合は Macklin の実験結果も) と比較して図 5.10-5.12 に示す。図中、破線で示した計算結果は Lorentz 型の $E1\gamma$ 線強度関数を用いて計算した結果であり、実線は修正した $E1\gamma$ 線強度関数を用いて計算した結果である。なお、 ^{99}Tc の計算結果は 44 keV の実験値に、 ^{129}I と ^{127}I の計算結果は 39 keV の実験値に規格化してある。

^{99}Tc の場合、Lorentz 型の $E1\gamma$ 線強度関数を用いた計算結果は実験値と非常に良く一致している。 $E1\gamma$ 線強度関数を修正することで捕獲断面積の傾きがすこし緩やかになったが、実験誤差とそれぞれの実験値の中性子エネルギー幅を考慮すると、計算値と測定値の一致は依然として良いと言える。

^{129}I の場合、修正前の $E1\gamma$ 線強度関数を用いた計算結果は、24 keV で少し過小評価しているが、全体的には実験値の誤差内で一致している。修正した $E1\gamma$ 線強度関数を用いた計算結果は、 ^{99}Tc の場合と同様に捕獲断面積の傾きが少し緩やかになり、そのため 24 keV での過小評価の程度が大きくなり、また、560 keV では少し過大評価となった。

^{127}I の場合は、約 70 keV 以上の領域で、2つの計算結果は実験結果よりもかなり大きくなっている。これは、 ^{127}I の第1励起状態 (58 keV) 及び第2励起状態 (203 keV) への非弾性散乱断面積が過小評価されたためと考えられる。また、 $E1\gamma$ 線強度関数の変化による捕獲断面積の傾きの変化の傾向は ^{99}Tc や ^{129}I の場合と同じである。

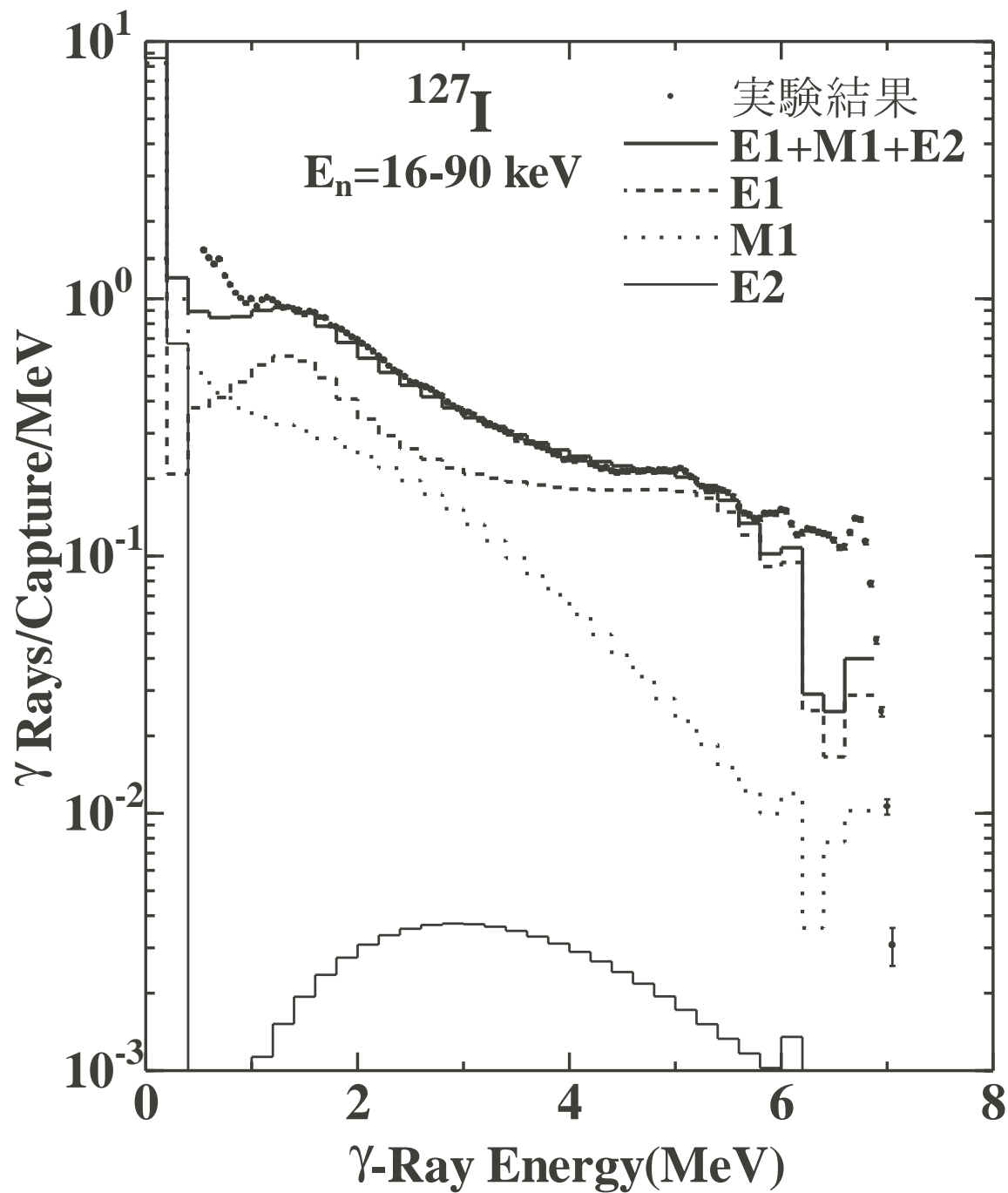


図 5.8: 修正した E1 γ 線強度関数を用いて計算した ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較

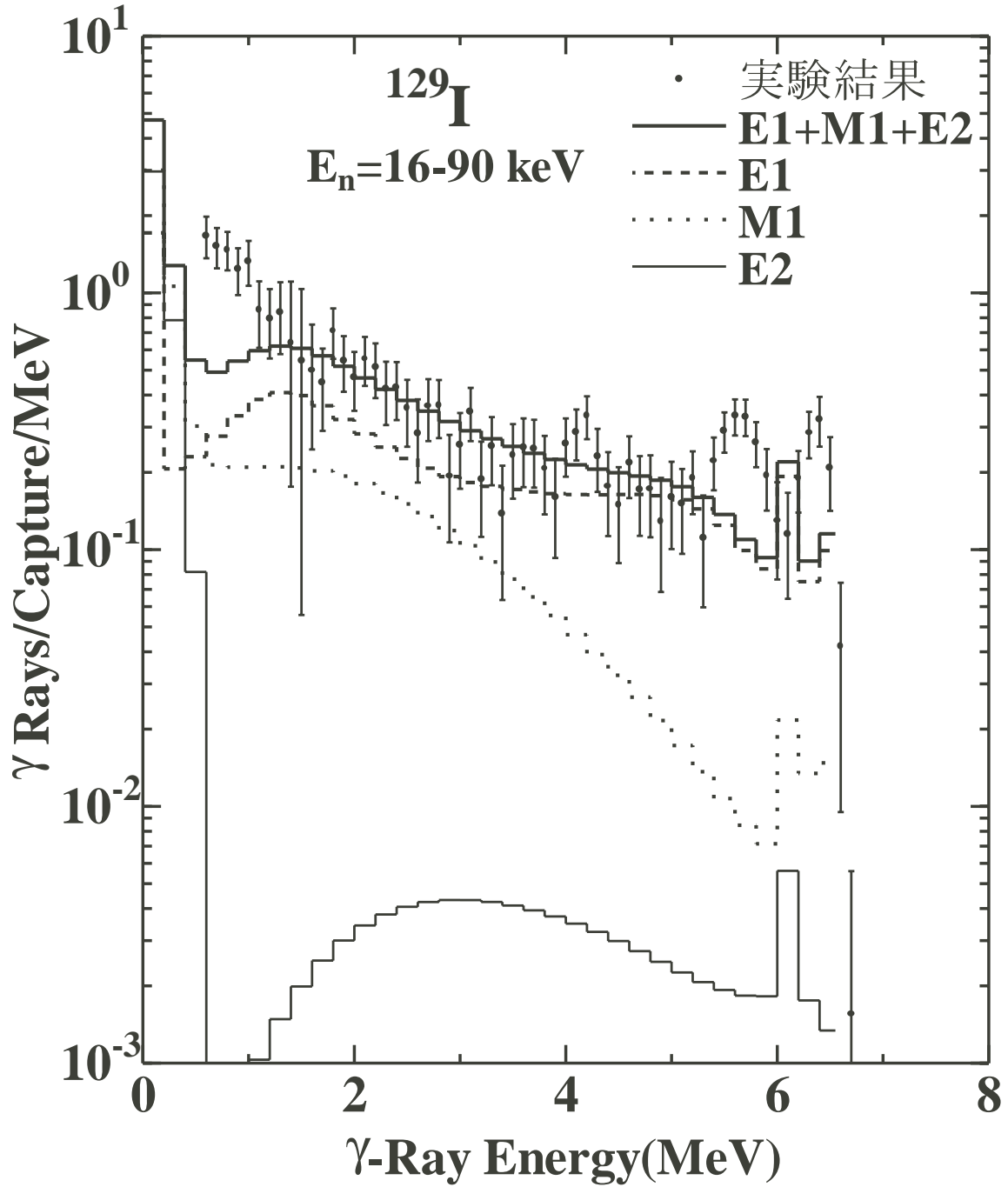


図 5.9: 修正した E1 γ 線強度関数を用いて計算した ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルの計算値と測定値の比較

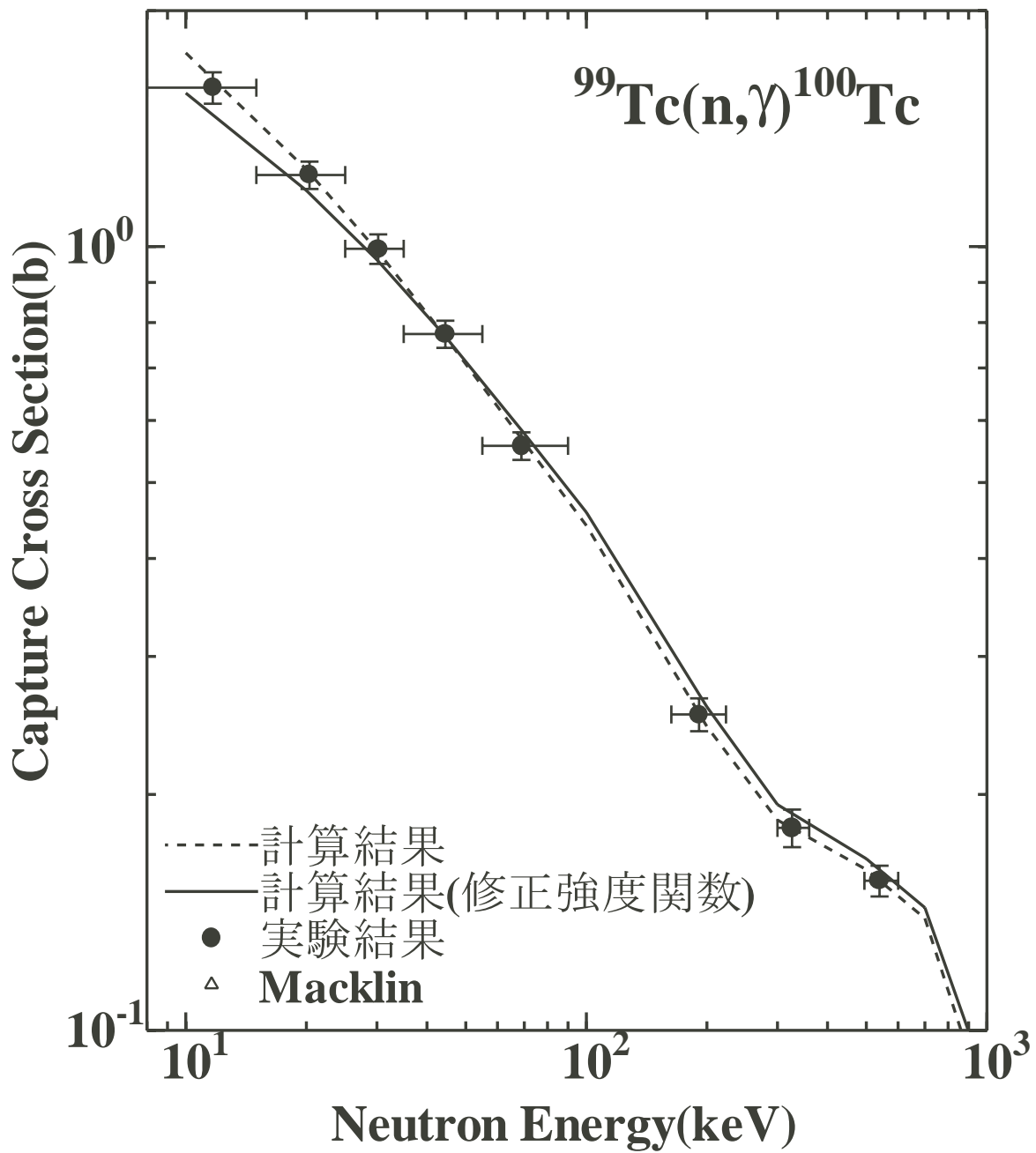


図 5.10: ^{99}Tc の中性子捕獲断面積の計算値と測定値の比較

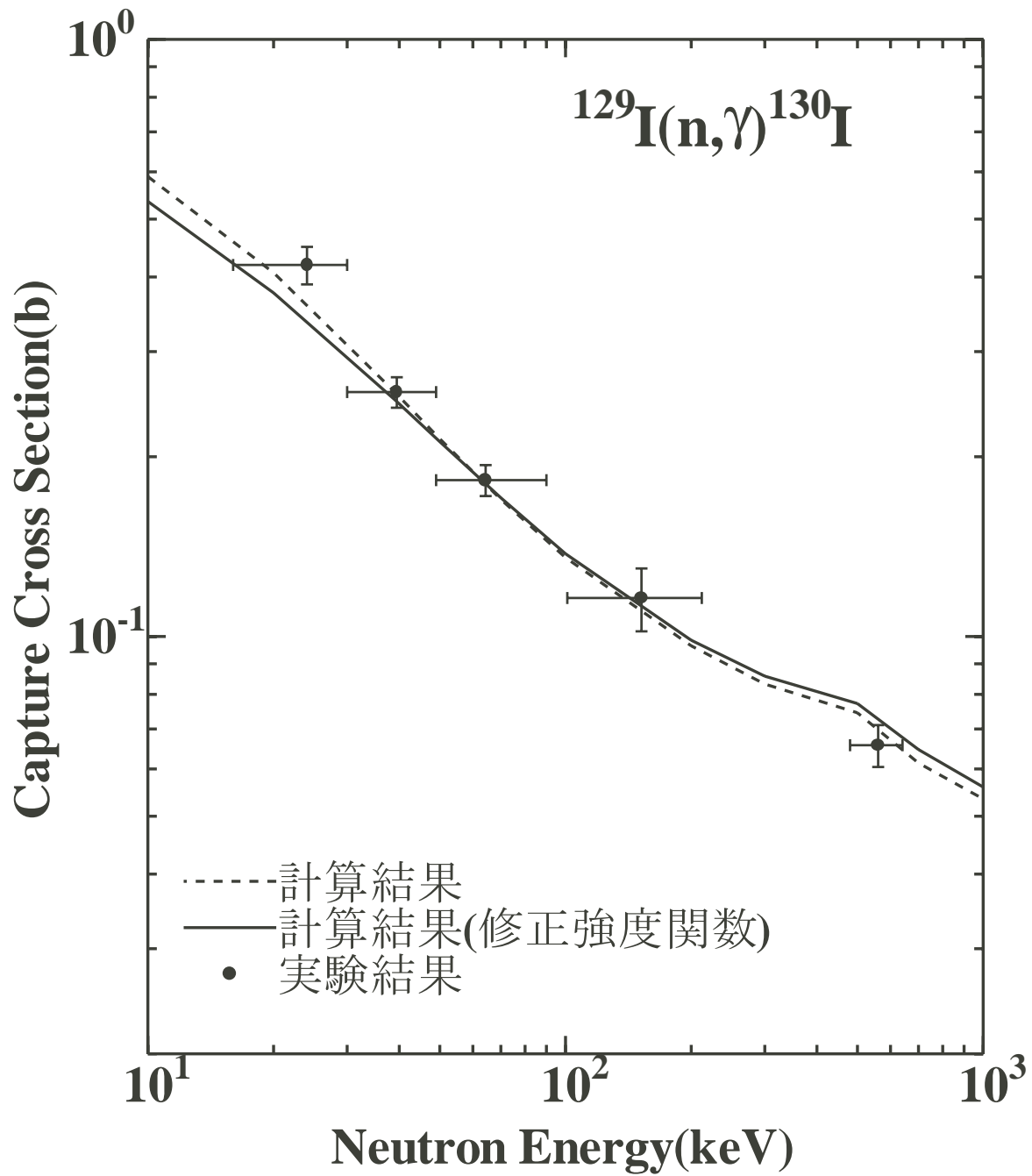


図 5.11: ^{129}I の中性子捕獲断面積の計算値と測定値の比較

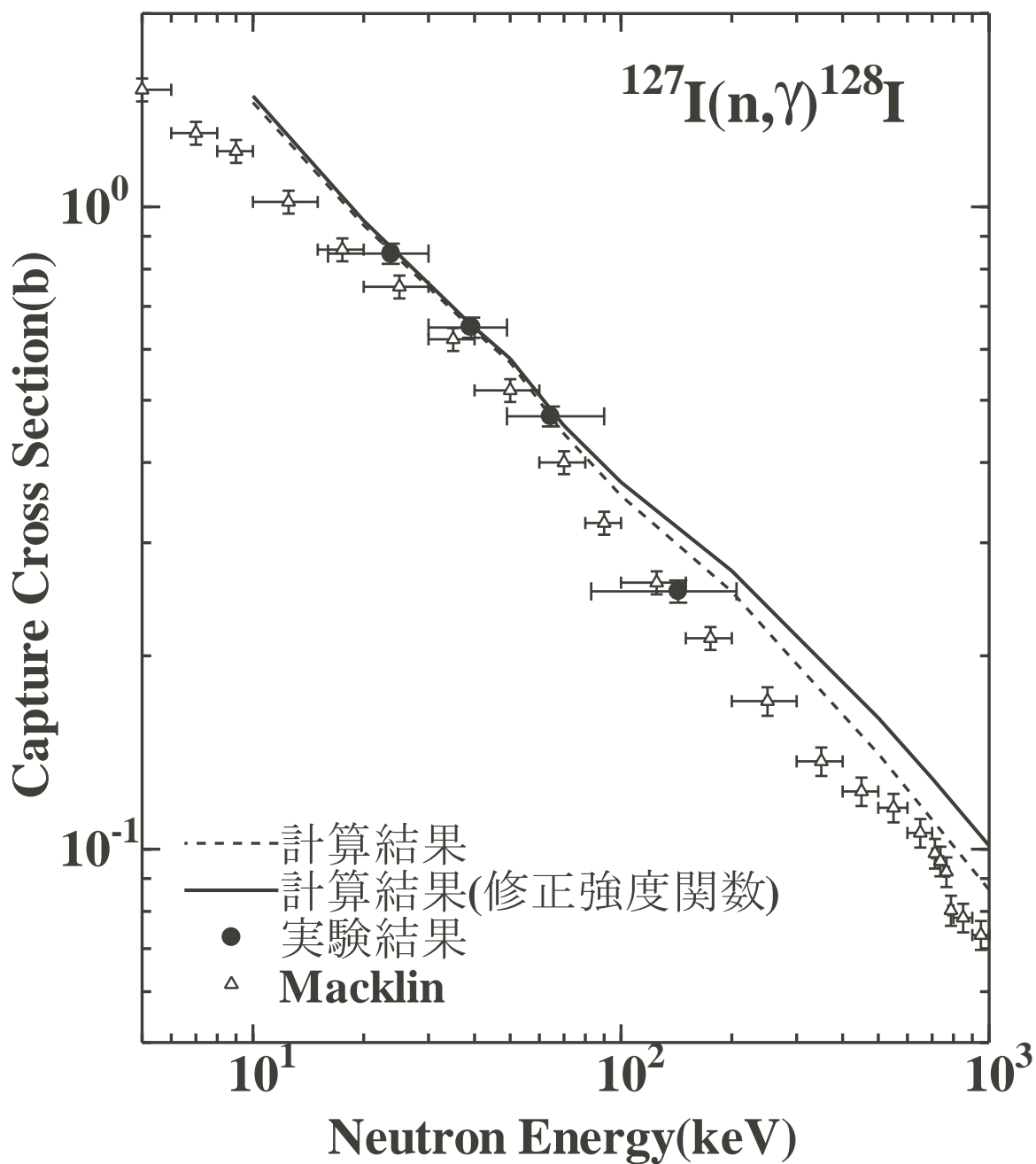


図 5.12: ^{127}I の中性子捕獲断面積の計算値と測定値の比較

第6章 結論

本研究では、長寿命核分裂生成物の中で最も重要な核種である ^{99}Tc および ^{129}I について、パルス化 keV 中性子源と大型コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器を用いた中性子飛行時間法によって、keV 中性子捕獲 γ 線を精度良く測定した。その結果、

- (1) ^{99}Tc の中性子捕獲断面積を入射中性子エネルギー領域 8-90 keV と平均入射中性子エネルギー 190、330、540 keV において誤差約 5 %で導出することができた。
- (2) 本研究の ^{99}Tc の測定結果と我が国の評価済み核データライブラリ JENDL-3.2 に格納されている評価値と比較した結果、JENDL-3.2 の評価値は 8-90 keV において本研究の測定結果よりも 15-20 %小さいが、190、330、540 keV においては本研究の測定結果と実験誤差内で一致することが分かった。
- (3) ^{99}Tc の中性子捕獲 γ 線スペクトルを入射中性子エネルギー領域 8-90 keV と平均入射中性子エネルギー 190、330、540 keV において導出することができた。精度良く導出できた 8-90keV 領域のスペクトルおよび 540 keV のスペクトル中の 2.2 MeV 付近に、スペクトルの傾きの変化を観測することができた。尚、本研究の keV 領域における ^{99}Tc の中性子捕獲 γ 線スペクトルの結果は最初の測定結果であった。
- (4) ^{99}Tc の測定において、コンプトン抑止型 NaI(Tl) 検出器のコリメータ内に 5.0 mm 厚の鉛板を挿入した場合と挿入しない場合の測定を行い、両測定の結果が良く一致することを確認することにより、本研究の波高重み法を用いた実験データ解析の信頼性を確認することができた。
- (5) ^{129}I の測定では、多量の不純物を含み、かつ正味の質量が 0.3 g という少量の試料しか用いることができなかったにもかかわらず、中性子捕獲断面積を入射中性子エネルギー領域 16-90 keV と平均入射中性子エネルギー 150、560 keV において誤差約 10 %で導出することができた。
- (6) 本研究の ^{129}I の測定結果と JENDL-3.2 の評価値と比較した結果、JENDL-3.2 の評価値は本研究の測定結果に比べて 30-50 %大きいことが分かった。

- (7) ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルを中性子エネルギー領域 16-90 keV で導出することができた。尚、本研究の keV 領域における ^{129}I の中性子捕獲 γ 線スペクトルの結果は最初の測定結果であった。
- (8) 本研究における ^{129}I の実験データ解析を通して、多量の化学的・同位体的不純物が混在した試料を用いた測定から中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルを精度良く導出する際の要点を明らかにした。このことにより、試料中に多量の化学的・同位体的不純物が混在すると予測される他の長寿命核分裂生成物についても、keV 中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルの測定が可能になったと考えられる。

また、本研究で得られた実験結果を理論解析するために、統計模型に基づいて、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、および ^{127}I の keV 中性子捕獲断面積および捕獲 γ 線スペクトルの計算を行った。その結果、

- (9) Lorentz 型の電気的雙極子 (E1) γ 線強度関数を用いた計算では、 ^{99}Tc と ^{129}I の捕獲断面積の計算値と実験値は全体的に一致したが、 ^{127}I の捕獲断面積は 70 keV 以上において実験値より大きな値となった。また、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルの計算は、測定されたスペクトルの 4 MeV 以上に観測された '盛り上がり' を再現することができなかった。
- (10) 計算が ^{99}Tc と ^{127}I の捕獲 γ 線スペクトルを再現するように、 ^{100}Tc と ^{128}I の E1 γ 線強度関数を修正した。その結果、 $1 \text{ MeV} < E_\gamma < 5 \text{ MeV}$ の領域ではスペクトルの計算値と測定値との一致は非常に良くなったが、 $E_\gamma < 1 \text{ MeV}$ と $E_\gamma > 5 \text{ MeV}$ では計算は測定を充分には再現できなかった。得られた ^{128}I の修正 E1 γ 線強度関数を用いて ^{129}I の捕獲 γ 線スペクトルを計算した結果、 $1 \text{ MeV} < E_\gamma < 5 \text{ MeV}$ の領域では ^{127}I の場合と同様に計算と測定は良く一致した。
- (11) 修正 E1 γ 線強度関数を用いて ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{127}I の keV 中性子捕獲断面積を計算した結果、修正を行わなかった場合と比較して、捕獲断面積の傾きが少し緩やかになった。

以上を纏めると、本研究によって、長寿命核分裂生成物の核変換技術研究において非常に重要な核データである ^{99}Tc および ^{129}I の keV 中性子捕獲断面積が精度良く得られ、また、長寿命核分裂生成物の keV 中性子捕獲反応機構解明のために重要な核データである捕獲 γ 線スペクトルが初めて得られた。また本研究により、多量の不純物を含む試料に対する keV 中性子捕獲実験のデータ解析の際の要点を明らかにした。更に、本研究の ^{99}Tc および ^{129}I に対する理論解析によって、通常の E1 γ 線強度関数を用いた統計模型計算でこれらの核種の keV 中性子捕獲断面積をかなり良く再現できるが、捕獲 γ 線スペクトルについては再現しないことが分かった。

付録 A ^{129}I 試料の放射化分析

^{129}I 試料中における ^{129}I の同位体組成を確認するために、 ^{129}I 試料の熱中性子放射化分析を行った。

A.1 実験

実験では、 ^{99}Tc や ^{129}I の keV 中性子捕獲実験の場合と同様に得た keV 中性子を、パラフィンを用いて熱化して ^{129}I 試料に照射した。Li ターゲットと試料表面との間の距離を 10 cm とし、その間にパラフィンを配置した。さらに試料の後方にも 5 cm 厚のパラフィンを置いた。実験配置を図 A.1 に示す。照射試料のからの γ 線の測定には、高純度 (HP)Ge 検出器を用いた。試料は HPGe 検出器前面から 20 cm のところに置いた。測定は照射終了から約 13 分後から開始し、まずは半減期約 25 分の ^{128}I の γ 線を測定するため 30 分おきに 2 時間測定した。その後、半減期約 12 時間の ^{130g}I と半減期約 15 時間の ^{24}Na からの γ 線を測定するために 3~5 時間の測定を計 50 時間行った。最後に、エネルギー較正および測定位置における検出効率を求めるために、標準線源 (^{152}Eu 、 ^{137}Cs 、 ^{22}Na 、 ^{133}Ba) の測定を行った。

A.2 解析

HPGe 検出器を用いて最初の 30 分の測定で得られた PH スペクトルと 50 時間の測定で得られた PH スペクトルを各々図 A.2 と A.3 に示す。以下に、 ^{129}I 試料中の ^{127}I と ^{129}I の同位体組成を求める方法を示す。

A.2.1 検出効率

試料測定位置における HPGe 検出器の検出効率曲線を求めるために、標準線源で得られた全エネルギーピーク検出効率の測定結果を以下の関数でフィットした。

$$\ln(\epsilon(E_\gamma)) = \sum_{i=1}^3 a_i \{\ln(E_\gamma)\}^{i-1} \quad (\text{A.1})$$

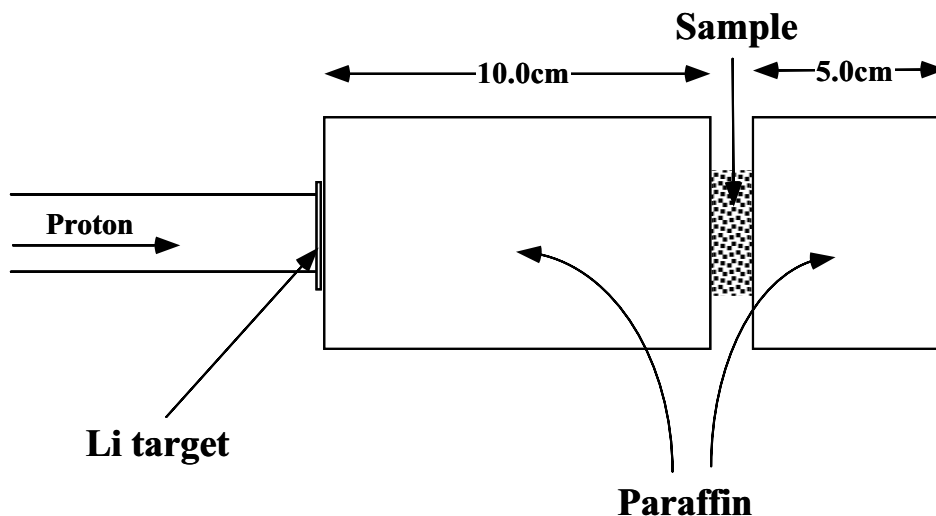


図 A.1: 実験配置図

表 A.1: HPGe 検出器の全エネルギーピーク検出効率の測定結果をフィットして得られた (A.1) 式の定数

a_1	-6.30
a_2	-0.64
a_3	-0.16

ここで、 $\epsilon(E_\gamma)$ は全エネルギーピーク検出効率、 E_γ は γ 線エネルギーである。フィットした結果得られた定数を表 A.1 に示す。また、得られた検出効率曲線を図 A.4 に示す。

A.2.2 入射中性子フラックスの導出

試料への入射中性子フラックスを求めるために、試料中に混入している ^{23}Na (1.18×10^{22} atoms) を利用した。 ^{23}Na の熱中性子捕獲反応によって生成した ^{24}Na は半減期約 15 時間で β^- 崩壊した後、1368.3 keV (γ 放出率 $I(\%)=100$) と 2754.0 keV ($I=99.9$) の γ 線を放出する (図 A.3 参照)。本研究では、 γ 線放出率 100% の 1368.3 keV γ 線のピーク面積から崩壊曲線を作成し、照射終了時の ^{24}Na の放射能を求めた。得られた照射終了時の放射能 A_0 から入射中性子フラックス ϕ_p ($/\text{cm}^2/\text{s}$) は、

$$\phi_p = \frac{A_0}{n_{Na} \sigma_{Na} (1 - \exp(-\lambda t_{ir}))} \quad (\text{A.2})$$

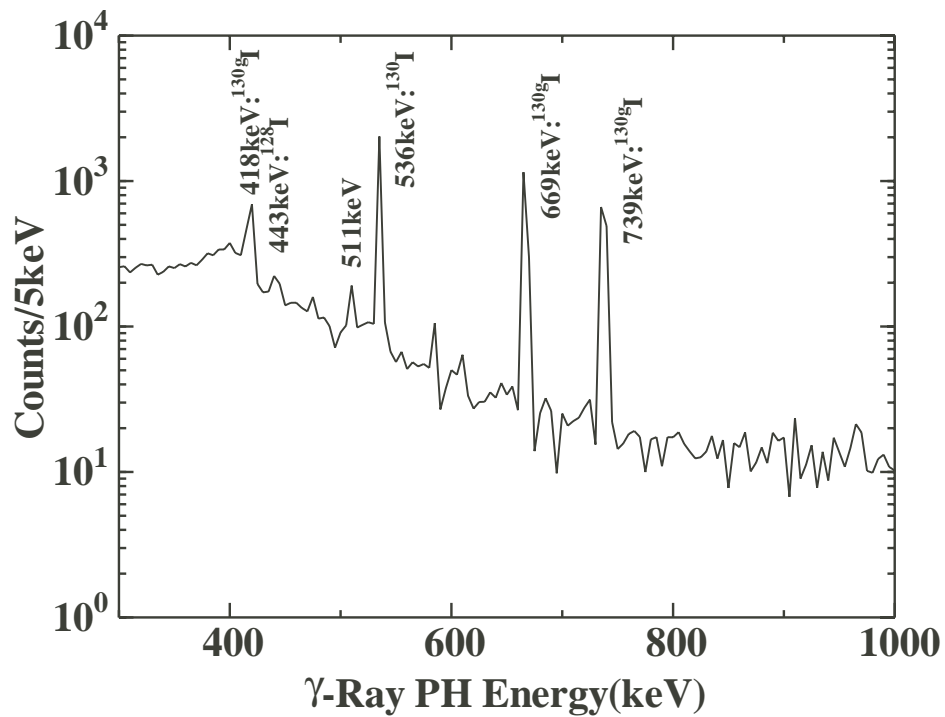


図 A.2: 照射終了直後の 30 分の測定で得られた波高スペクトル

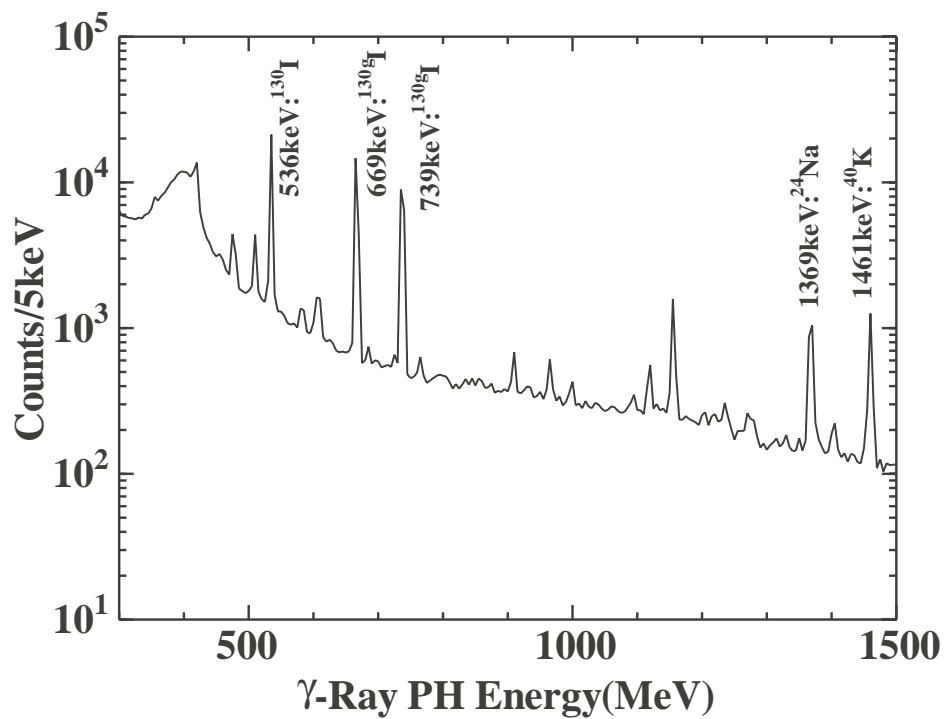


図 A.3: 50 時間の測定で得られた波高スペクトル

から求められる。ここで、 t_{ir} は照射時間、 n_{Na} は ^{23}Na の原子核数、 σ_{Na} は熱中性子捕獲による ^{24}Na の生成断面積、 λ は ^{24}Na の崩壊定数である。1368.3 keV γ 線の試料中における発生位置依存性、多重散乱の補正を行って入射中性子フラックスは、 $\phi_p = 9.89\text{e}+4$ (/cm²/s) と求まった。

A.2.3 ^{127}I と ^{129}I の原子核数の導出

^{127}I の中性子捕獲反応によって生成した ^{128}I は、半減期約 25 分で β^- 崩壊した後、主に 442.9 keV (I=12.2) と 526.6 keV (I=1.6) の γ 線を放出する。照射終了直後の 30 分の測定で 442.9 keV γ 線は観測できたが、526 keV γ 線は観測できなかった (図 A.2 参照)。得られた 442.9 keV γ 線ピークの面積と ^{128}I の半減期から照射直後の ^{128}I の放射能を求め、(A.2) 式と同様の式と前節で求めた入射熱中性子フラックスから ^{127}I の原子核数を求めた。

また、 ^{129}I は中性子捕獲反応によって ^{130g}I もしくは ^{130m}I になる (g は基底状態を、m は準安定状態を意味する)。 ^{130g}I は半減期 12.4 時間で β^- 崩壊した後、主に 536.1 keV (I=99.0)、668.5 keV (I=96.1)、739.5 keV (I=82.3) の γ 線を放出する。 ^{130m}I は半減期 9.0 分で、84.2% が Isomeric transition (IT) で ^{130g}I になり、他は β^- 崩壊した後、主に 536.1 keV (I=15.7)、586.1 keV (I=1.1) の γ 線を放出する。そこで、ここでは ^{130g}I の 739.5 keV γ 線に注目し、 ^{130g}I の照射終了直後の放射能 A_{29} を崩壊曲線 (図 A.5) から求めた。試料中の ^{129}I の原子核数 n_{29} は、

$$\frac{dN_m(t)}{dt} = n_{29}\sigma_m\phi_p - \lambda_m N_m(t) \quad (\text{A.3})$$

$$\frac{dN_g(t)}{dt} = n_{29}\sigma_g\phi_p + b\lambda_m N_m(t) - \lambda_g N_g(t) \quad (\text{A.4})$$

を解いて、

$$\begin{aligned} N_g &= \frac{A_{29}}{\lambda_g} \\ &= \frac{n_{29}\sigma_g\phi_p(1 - e^{-\lambda_g t_{ir}})}{\lambda_g} + \frac{bn_{29}\sigma_m\phi_p}{\lambda_g(\lambda_m - \lambda_g)}(1 - e^{-\lambda t_{ir}}) - \frac{bn_{29}\sigma_m\phi_p}{\lambda_m(\lambda_m - \lambda_g)}(1 - e^{-\lambda_m t_{ir}}) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

から求まる。ここで、 $N_g(t)$ と $N_m(t)$ は ^{130g}I と ^{130m}I の照射中の原子核数、 N_g は ^{130g}I の照射終了直後の原子核数、 σ_g と σ_m は熱中性子捕獲による ^{130g}I と ^{130m}I 生成断面積、 λ_g と λ_m は ^{130g}I と ^{130m}I の崩壊定数、 b は IT の割合である。なお、 ^{130g}I と ^{130m}I の生成断面積と半減期は kato et al.⁵⁴⁾ と Nakamura et al.⁵⁵⁾ の結果を用いた。その他のデータは "Table of Isotopes¹⁷⁾" から引用した。用いた各データを表 A.2 に纏める。

表 A.2: 解析に用いた物理量のデータ

^{130g}I 生成断面積 (b)	12.5
^{130m}I 生成断面積 (b)	17.8
^{128}I 生成断面積 (b)	6.2
^{24}Na 生成断面積 (b)	0.53
^{130g}I 半減期 (h)	12.4
^{130m}I 半減期 (m)	9.0
^{128}I 半減期 (m)	25.0
^{24}Na 半減期 (h)	15.0
b(%)	84.2

表 A.3: 放射化分析で得られた ^{129}I 試料の同位体組成

nuclei	原子核数 ($\times 10^{20}$ atoms)	同位体組成 (%)
^{129}I	16.1 ± 1.1 (6.7 %)	69.5 ± 4.7
^{127}I	8.30 ± 1.7 (20.3 %)	37.3 ± 7.2

A.3 結果

^{129}I 試料の熱中性子放射化分析で得られた ^{129}I の同位体組成を表 A.3 に示す。この結果は、小林²⁸⁾の結果 (^{129}I : 68 ± 2 %, ^{127}I : 32 ± 2 %) と実験誤差内で一致している。

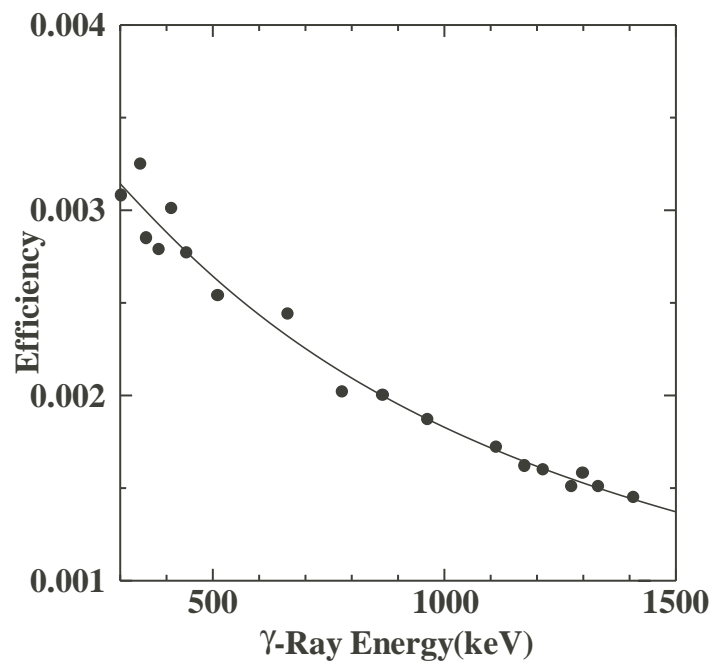


図 A.4: HPGe 検出器の全エネルギーピーク検出効率曲線

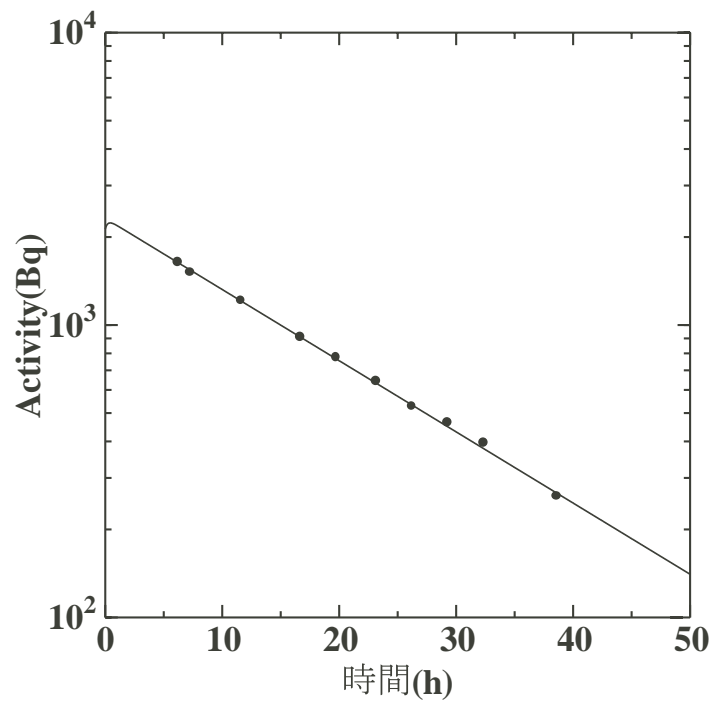


図 A.5: ^{130}I の崩壊曲線

関連図書

- [1] 消滅処理研究の現状-新しい原子力技術の可能性を求めて-: 社団法人原子力学会 (1994)
- [2] M. Kawai, S. Iijima, T. Nakagawa, T. Sugi, T. Watanabe, H. Matsunobu, M. Sasaki, A. Zukeran: J. Nucl. Sci. Technol.,29, 195 (1992)
- [3] R. L. Macklin: Astrophys. Space Sci., 115, 71 (1985)
- [4] ENDF/B-VI data file for ^{93}Zr (MAT=4034), evaluated by R. E. Schenter and F. Schmittroth (1974)
- [5] J. C. Chou and H. Werle: J. Nucl. Energy, 27, 811 (1973)
- [6] R. C. Little and R. C. Block: Trans. Am. Nucl. Soc., 26, 574 (1977)
- [7] R. L. Macklin: Nucl. Sci. Eng., 81, 520 (1982)
- [8] F. Gunsing, A. Lepretre, C. Mounier, C. Paepssaet, C. Bastian, F. Corvi and J. Gonzalez, Nucl. Phys., A688, 496c (2001)
- [9] ENDF/B-VI data file for ^{99}Tc (MAT=4325), evaluated by R. E. Schenter and F. Schmittroth (1978)
- [10] R. L. Macklin: Nucl. Sci. Eng., 89, 79 (1985)
- [11] ENDF/B-VI data file for ^{107}Pd (MAT=4640), evaluated by R. Q. Wright and R. E. Schenter (1989)
- [12] ENDF/B-VI data file for ^{126}Sn (MAT=5067), evaluated by R. E. Schenter and F. Schmittroth (1974)
- [13] R. L. Macklin: Nucl. Sci. Eng., 85, 350 (1983)

- [14] ENDF/B-VI data file for ^{129}I (MAT=5331), evaluated by R. E. Schenter and F. Schmittroth (1980)
- [15] ENDF/B-VI data file for ^{135}Cs (MAT=5531), evaluated by R. E. Schenter and F. Schmittroth (1974)
- [16] S. Jaag, F. Kappeler and P. Koehler: Nucl. Phys., A621, 247c (1997)
- [17] R. B. Firestone and V. S. Shirley: Table of Isotopes, John Wiley & Sons, New York (1996)
- [18] H. Ihara(Ed), JAERI-M 89-204, (1989)
- [19] 浅沼徳子: 東京工業大学, 博士論文 (2001)
- [20] H. Liskien and A. Paulsen: Atomic Data and Nucl. Data Tables, 15, 57 (1975)
- [21] 駒野治樹: 東京工業大学, 博士論文 (1984)
- [22] M. Igashira, K. Tanaka and K. Masuda: proc. 8th Int. Symp. on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, Fribourg, Switzerland, Sept. 20-24, 1993, (edited by J. Kern), World Scientific, Singapore, p. 992 (1994)
- [23] M. Igashira, H. Kitazawa and N. Yamamuro: Nucl. Instrum. Methods, A245, 432 (1986)
- [24] 増田浩二: 東京工業大学, 修士論文 (1994)
- [25] 黒河暢雄: 東京工業大学, 修士論文 (1999)
- [26] S. Mizuno, H. Igashira and K. Masuda: J. Nucl. Sci. Technol., 36, 493 (1999)
- [27] R. L. Macklin and J. H. Gibbons: Phys. Rev., 159, 1007 (1967)
- [28] 小林捷平:私信
- [29] 松本哲郎: 東京工業大学, 修士論文 (2000)
- [30] H. Kendrick and S. M. Sperling: GA-9882(1970)
- [31] ENDF/B-VI data file for ^{107}Pd (MAT=4640), evaluated by R. Q. Wright and R. E. Schenter (1989)
- [32] M. Mizumoto and M. Sugimoto: Nucl. Instrum. Methods, A282, 324 (1989)

- [33] K. Senou, Y. Nagai, T. Shima, T. Ohsaki and M. Igashira: Nucl. Instrum. Methods, A339, 556 (1994)
- [34] RIPL: Reference Input Parameter Library; Handbook for Calculations of Nuclear Reaction Data, Rep., IAEA-TECDOC-1304, International Atomic Energy Agency, IAEA (1998)
- [35] 東京工業大学、永井研究室: 計算コード TIM (1992)
- [36] 大崎敏郎: 東京工業大学, 博士論文 (1998)
- [37] N. Yamamuro, K. Saito, T. Emoto, T. Wada, Y. Fujita and K. Kobayashi: J. Nucl. Sci. Technol., 17, 582 (1980)
- [38] ENDF/B-VI data file for ^{197}Au (MAT=7925), evaluated by P. G. Young, (1991)
- [39] K. Shibata, T. Kawano, T. Nakagawa et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 39, 1125 (2002)
- [40] B. Duamet, M. Igashira, M. Mizumachi, S. Mizuno, J. Hori, K. Masuda and T. Ohsaki: J. Nucl. Sci. Technol., 36, 865 (1999)
- [41] T. Veerapaspong, M. Igashira, S. Mizuno, J. Hori and T. Ohsaki: J. Nucl. Sci. Technol., 36, 855 (1999)
- [42] S. Harnood, M. Igashira, T. Matsumoto, S. Mizuno and T. Ohsaki: J. Nucl. Sci. Technol., 37, 740 (2000)
- [43] A.K.M. Harun-Ar-Rashid, T.I. Ro, M. Igashira and T. Ohsaki: J. Nucl. Sci. Technol., 37, 421 (1999)
- [44] 川崎正幹: 東京工業大学, 修士論文 (2002)
- [45] S. Igarasi and T. Fukahori: JAERI 1321 Program CASTHY. (1991)
- [46] W. Hauser and H. Feshbach: Phys. Rev., 87, 366 (1952)
- [47] A. Gilbert and A. G. W. Cameron: Can. J. Phys., 43, 1446 (1965)
- [48] A. Megoni, Y. Nakajima: J. Nucl. Sci. Technol., 36, 493 (1994)
- [49] S. S. Dietrich and B. L. Berman: At. Data Nucl. Data Tables, 38, 199 (1988)
- [50] J. Kopecky and M. Uhl: Phys. Rev., 41, 1941 (1990)

- [51] D. M. Brink: Thesis, Oxford (1955)(unpublished)
- [52] 井頭政之: 東京工業大学, 博士論文 (1987)
- [53] J. M. Blatt and V. F. Weisskopf: Theoretical Nuclear Physics, John Wiley and Sons, (1952)
- [54] T. Katoh, S. Nakamura, H. Harada and Y. Ogata: J. Nucl. Sci. Technol., 36, 223 (1999)
- [55] S. Nakamura, H. Harada, T. Katoh and Y. Ogata: J. Nucl. Sci. Technol., 33, 283 (1996)

謝辞

本論文は、多くの方の御支援と御協力を頂き完成することができました。深く感謝いたします。

特に、井頭政之助教授には実験、論文執筆、研究の進め方および考え方など多くの御指導、御助言を頂き、感謝の気持ちは筆舌に尽くせないほどです。学部、修士の時も含めて6年間で先生から学んだことを、これからも続けていく研究のなかで活かし、更に頑張っていきたいと思います。また、就職に関しても大変お世話になり、本当に有り難うございました。

本論文を審査していただいた小川雅生教授、関本博教授、服部俊幸教授、小栗慶之助教授には、多くのコメントを頂き、良い勉強となりました。有り難うございました。

大崎敏郎助手には、研究のあらゆる部分において御助言をいただきました。特に、ナトリウム試料を作製したときには大変お世話になり有り難うございました。

登坂健一技官には、実験やフィラメントの作製、研究室における日常生活などに至るまでお世話になりました。

また、私が研究室に在籍した6年間にいっしょに過ごした学生の方々にも大変お世話になりました。既に卒業されました水野さんと堀さんには、データ解析の方法や実験、研究について教わったり、日常のことについて色々相談に乗ってもらうなど公私共に大変お世話になりました。特に水野さんには、卒業された後も度々実験シフトに入らせていただくなどお世話になり有り難うございました。倉田さん、都築さん、山本さん、黒河さん、川上君、川崎君には、実験を手伝って頂いただけではなく、研究室における日常生活の色々な面でお世話になりました。

現役の齋藤君、大釜君、西山君には、実験において多大な御協力を頂いたことに大変感謝しています。特に、大釜君には¹²⁷Iの150keV実験のデータ解析をしてもらいました。有り難うございました。

その他多くの方々に援助を頂きました。ここに、改めて感謝の意を表します。