

話題(そのⅠ)

R P I での測定研究

京大炉 中込良広

昨年1年間(1976年12月~1977年12月まで), 京大炉の小林捷平氏に引き継ぎ, 米国ニューヨーク州にあるレンスラー工科大学(Rensselaer Polytechnic Institute; RPI)に留学する機会を得た。RPIではProf. Robert C. Block(Gaerttner Linac Laboratory 所長)の下で, 100MeV電子線型加速器を使って, 主として ^{232}Th 及び ^{245}Cm の核分裂断面積測定の仕事を行なった。

ここではこれらの仕事を中心に, RPIで現在行われているまたは行なわれつつある核データに関係した測定研究を紹介する。又留学中 ^{245}Cm (n,f)測定結果のことでLawrence Livermore Laboratory(LLL)のDr. John C. Browneを訪問した折話題となったLLLでの核データ研究についても若干触れてみる。

なお, RPIを中心とする米国における核データ測定研究については, 既に小林捷平氏が昨年本誌¹⁾に詳細かつ要領よく報告されているので御参考されたい。

R P I

100MeVライナックを用いたRPIにおける中性子断面積の測定研究は, 主として次の2種類に大別される。

(1) 中性子捕獲断面積, 全断面積測定(TOF法)

- 25.68 m 飛行管と直径1.25 mの液体シンチレータ検出器を組合せた捕獲断面積の測定
- 28.32 m 飛行管と $^{10}\text{B}-\text{NaI}$ 検出器との組合せによる全断面積の測定

(2) 中性子による核分裂断面積の測定(SDT法)

1.8 m立方, 75トン鉛減速スペクトロメータ(Rensselaer Intense Neutron Spectrometer; RINS)とライナックの組合せにより, fission chamberを使用した減速時間(Slowing-Down Time)測定法による(n,f)断面積測定。

(1)の研究はLMFBRに関連したもののが主で, 既に小林氏が本誌で報告している¹⁾のでテーマのみを列挙し, その後進展したものについて述べる。

対象核種はFPの ^{99}Tc , ^{107}Pd , tag gas methodで注目される ^{78}Kr , それに Pr , ^{95}Mo , ^{97}Mo , ^{133}Cs , ^{143}Nd 等で私の留学中 ^{99}Tc , ^{107}Pd , $^{95,97}\text{Mo}$, ^{133}Cs , ^{143}Nd については一応

の結果が出たようである。

^{99}Tc の全断面積測定結果は Harvey-Atta 法を使って数個の低エネルギー共鳴について解析され、捕獲断面積データと合わせて共鳴パラメータが決定された。4 keV~80 keV 領域では ENDF/B-I V データより約 15 % 大きい σ_{nr} の値を得ており、近々 Γ_n , Γ_r , S_0 , S_1 , $\langle D \rangle$ 等の値が報告されるものと思われる。 ^{99}Tc の σ_{nr} の結果を Fig. 1 に示す。

^{107}Pd については Sulfer 及び Cd のフィルタを使って全断面積及び捕獲断面積測定が行なわれ、700 eV 以下のエネルギー領域で 3 回の ^{107}Pd の共鳴が観測され²⁾, $\langle D \rangle = (10.7 \pm 1.5) \text{ eV}$, $10^4 S_0 = (0.56 \pm 0.16)$ が得られた³⁾。又 ^{107}Pd の 6.834 eV 共鳴の解析から $\Gamma_r = (125 \pm 15) \text{ meV}$ が導出された。測定された 3 回の ^{107}Pd レベルの共鳴パラメータを Table I に, σ_{nr} の一部を Fig. 2 に示す。

現在実験が進行中のものとしては、数 keVまでの ^{78}Kr (gas) の全および捕獲断面積測定が行なわれており、既に測定された natural Kr のデータとの比較検討がなされている。この結果(共鳴パラメータ等)も今年中には発表されるものと期待される。

小林氏が R P I 留学中に行なった ^{238}U の self indication の実験結果は現在も別の角度(核物理的サイドから?)から解析が行なわれている。

新プロジェクトの 1 つとして、昨年 11 月よりスタートした 10 keV 以下における ^{232}Th の全および捕獲断面積の精密測定は、本年早々に実験が開始されるようである。更に TOF 法を使った ThO_2 体系中の中性子スペクトル測定が京大炉と R P I との共同研究で実験開始されることになっている⁴⁾。

前述の分類(2)の核分裂断面積の測定については、既に完結した 100 keV 以下の ^{238}U の subthreshold fission 断面積測定をはじめ、現在まで ^{232}Th の subthreshold fission 断面積 ($E_n = 1 \text{ eV} \sim 20 \text{ keV}$), $^{246}\text{Cm}(n, f)$ ($E_n = 1 \text{ eV} \sim 100 \text{ keV}$) 及び $^{235}\text{U}(n, f)$ ($E_n = 1 \text{ eV} \sim 100 \text{ keV}$) の断面積測定が行なわれている。これらの実験は、前述のようにすべてライナックと R I N S を組み合わせた強中性子源を用いて行なわれた。

R I N S は Fig. 3 に示すように中央部に Ta ターゲットを有し、核分裂計数管等の検出器を挿入する数個の測定孔を持つ。R I N S のエネルギー分解能 ($\Delta E/E$) は、これ迄の実験結果から 1 eV~100 keV 範囲で 39 % と通常の TOF 法に比べるとかなり悪いが、測定孔内で得られる中性子束は Table II で示すように TOF (5 m の flight path に相当) での中性子束の数千倍から 1 万倍の大きさである⁵⁾。このことから R I N S を使う目安として “ $10^{-6} \text{ g} \cdot \text{barn}$ ” という値が使われている。即ち 1 barn 程度の反応断面積をもつ核種の場合試料として 1 μg あればものを言うのに充分なデータが得られ、又 1 μbarn 程度の核種については 1 g の試料で充分である。

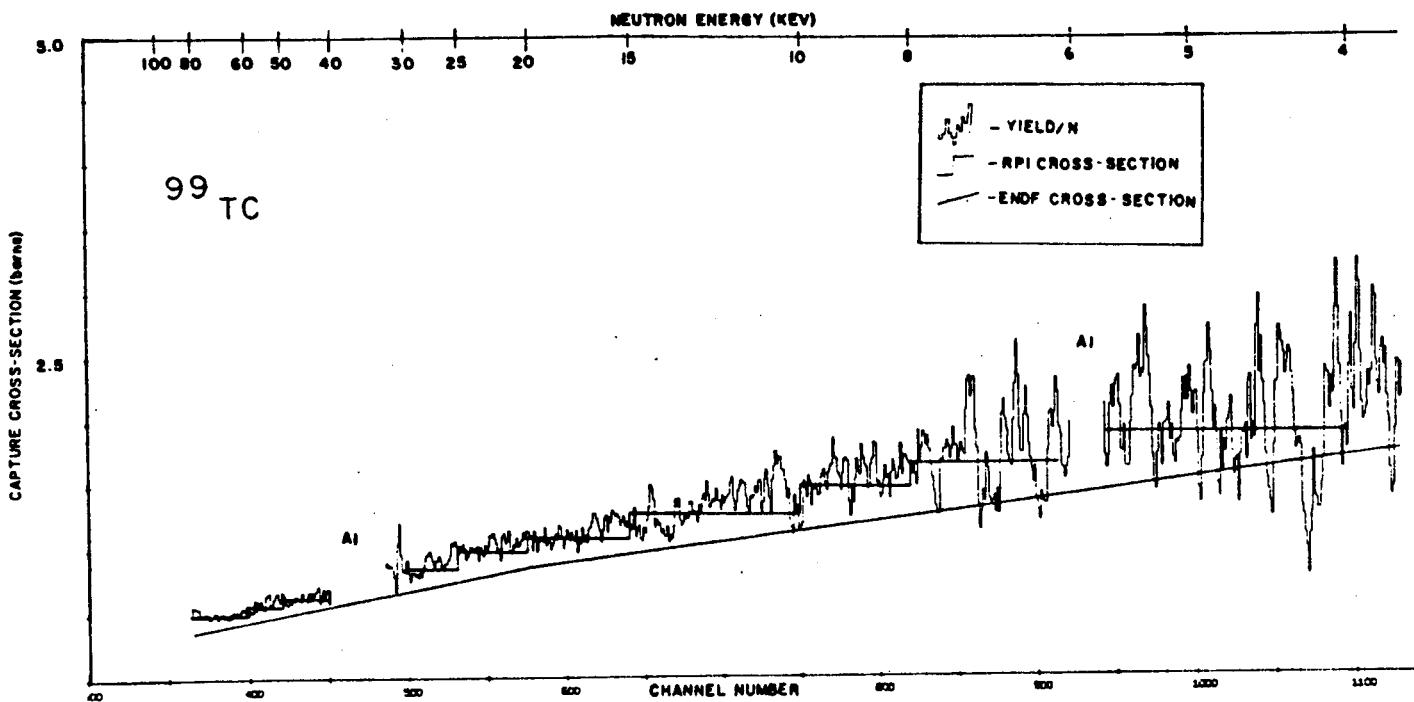


Figure 1

Neutron capture cross section of ^{99}Tc vs. time of flight. The straight line is ENDF/B-IV data, while the histogram is RPI data.

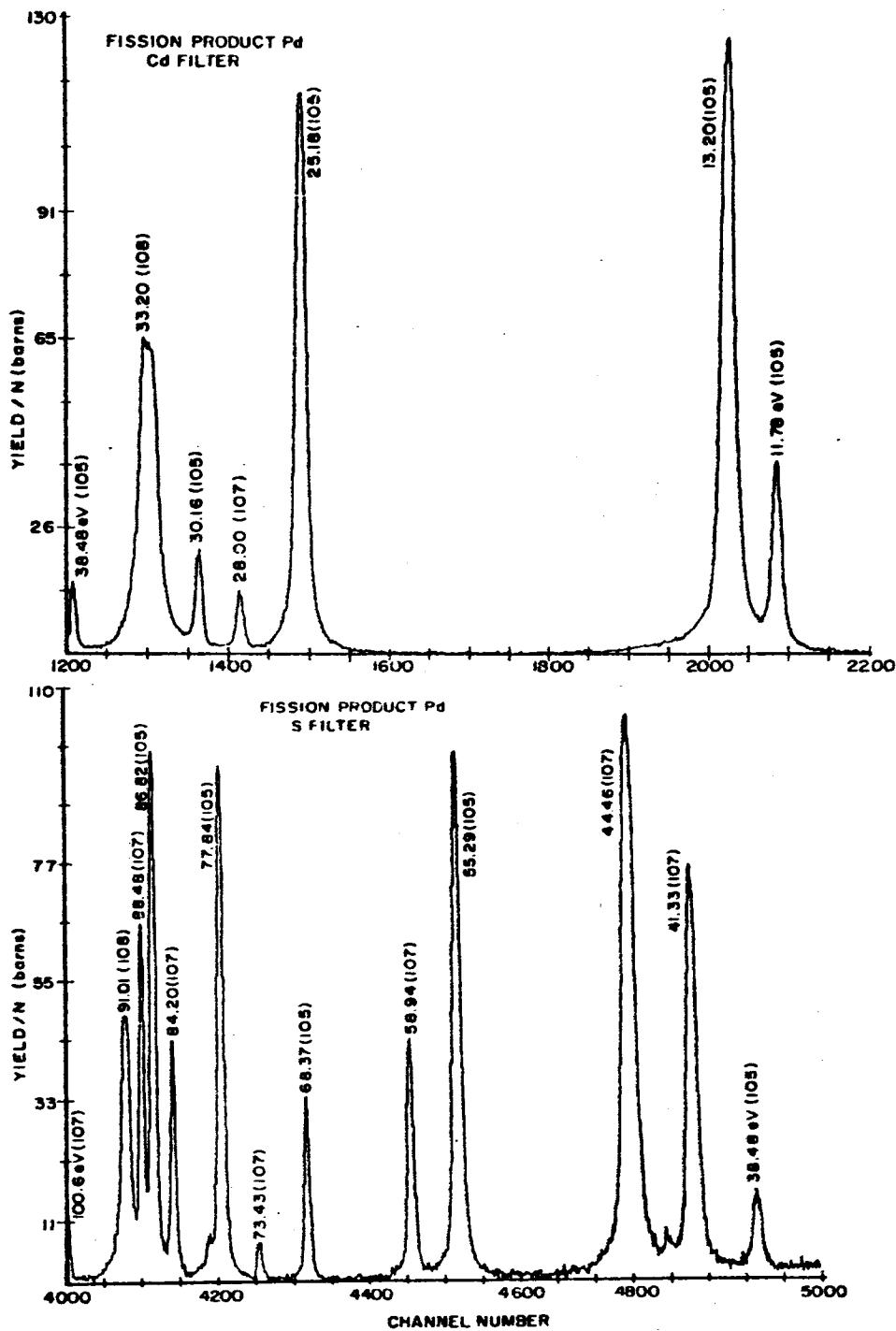


Fig. 2

TABLE I

Resonance Parameters for ^{107}Pd Levels

E_0 (eV)	$2g\Gamma_n$ (meV)	$\int(Y_{107}/N)dE$ (b-eV)	E_0 (eV)	$2g\Gamma_n$ (meV)	$\int(Y_{107}/N)dE$ (b-eV)
3.920	0.002 ± 0.0002	0.161 ± 0.016	211.5	2.0 ± 0.5	3.0 ± 0.8
5.200	0.023 ± 0.002	1.42 ± 0.12	222.9	10 ± 2	14.7 ± 2.9
6.834	0.049 ± 0.005	2.29 ± 0.23	232.6	18 ± 3	20.9 ± 3.5
26.09	0.58 ± 0.06	6.80 ± 0.70	272.0	6.5 ± 1.5	7.9 ± 1.8
41.33	9.62 ± 0.60	51.8 ± 3.2	292.0	40 ± 10	32.7 ± 8.1
44.46	35.3 ± 1.90	96.8 ± 5.2	301.0	15 ± 5	15.7 ± 5.2
58.94	7.17 ± 0.74	32.0 ± 3.3	325.5	60 ± 10	34.7 ± 5.8
73.43	22 ± 3	60.9 ± 8.3	369.2	180 ± 40	53.2 ± 11.8
84.20	13.1 ± 1.30	38.3 ± 3.8	376.3	15 ± 5	13.1 ± 4.4
88.48	26.5 ± 1.80	59.5 ± 4.0	380.7	15 ± 5	12.6 ± 4.2
100.6	2.0 ± 0.3	11.7 ± 1.8	472.3	60 ± 10	26.8 ± 4.5
114.9	17 ± 2	37.0 ± 4.4	489.3	40 ± 10	17.2 ± 4.3
132.2	16 ± 2	31.7 ± 4.0	538.7	60 ± 15	22.8 ± 5.7
140.5	27 ± 3	43.3 ± 4.8	559.1	80 ± 20	28.4 ± 7.1
152.4	38.1 ± 3.60	50.7 ± 4.5	587.2	70 ± 18	22.5 ± 5.8
172.7	125 ± 20	76.6 ± 12.2	626.0	160 ± 30	30.0 ± 5.6
196.3	4 ± 1	6.6 ± 1.6	654.6	170 ± 30	29.4 ± 5.2

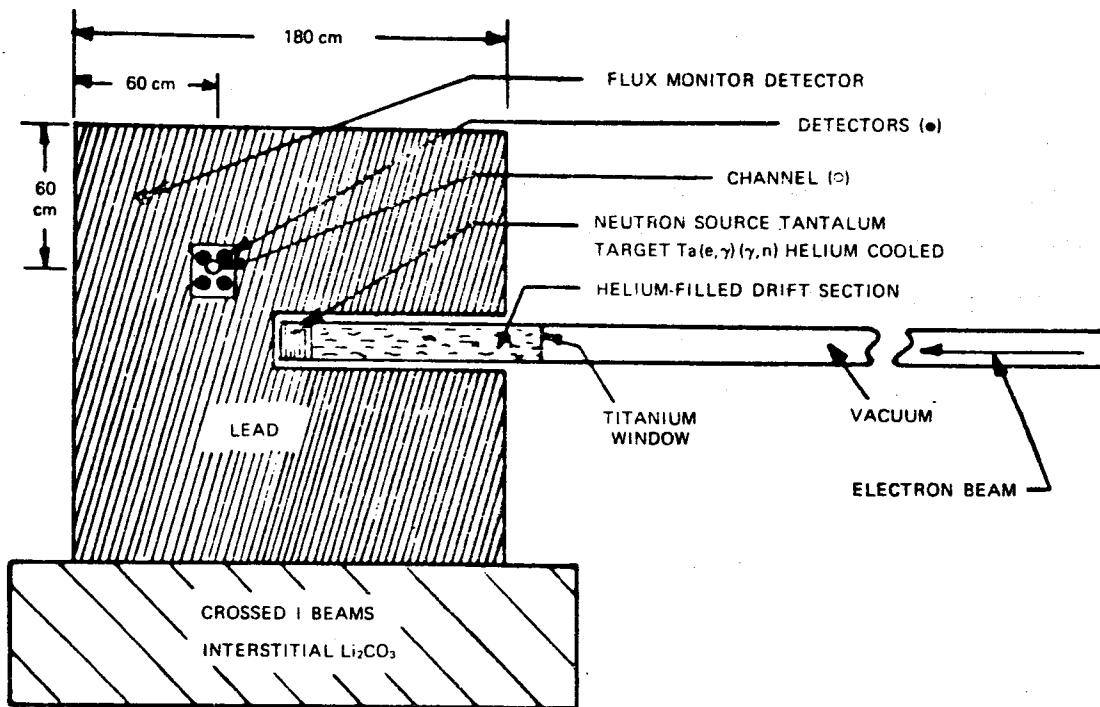


Fig. 3. The RINS lead slowing down spectrometer system.

TABLE II
Comparison of RINS Flux to TOF Flux
(at a 5-m Flight Path) for the
Same Power on Target

E_n (eV)	$\phi_{\text{RINS}}/\phi_{\text{TOF}}$
1000	5 800
100	7 800
10	10 500
1	14 300

$^{232}\text{Th}(\text{n}, \text{f})$ の実験では σ_f が μb オーダであるため約 230 mg の ^{232}Th fission chamber が用いられた。これまでに報告してきた $^{232}\text{Th}(\text{n}, \text{f})$ の R P I の結果⁶⁾ には約 50 % の $^{232}\text{Th}(\text{r}, \text{f})$ 反応による σ_f が含まれていることが分った。r 線は R I N S を構成する Pb の (n, r) 反応によるものであるため、これによる (r, f) の効果をできるだけ取除くべく ^{232}Th fission chamber のまわりに Bi を配して実験した⁷⁾⁸⁾。その結果が Fig. 4 の (b) である。Bi を使用しない場合のデータ ((a)) と比較すると σ_f の形および大きさに顕著な相違が見られ、特に (a) で見られた 2 keV 付近のピークが (b) ではまったく消え、新たに 4 keV 付近に共鳴ピークが現われた。このことから 2 keV の共鳴と見られたものは Pb の中性子捕獲 r 線による $^{232}\text{Th}(\text{r}, \text{f})$ 反応によるものと結論された。(b) になお含まれる (r, f) の効果を補正し ((c)), 更に Th 試料中に含まれる $^{235}\text{U}(<25\text{ ppb})$ の (n, f) の効果を補正した $^{232}\text{Th}(\text{n}, \text{f})$ の断面積測定結果を (d) に示す。500 eV 以下では σ_f は $1/\nu$ 断面積で良く表わされ、これを外挿すると熱中性子による核分裂断面積 $\sigma_f(\text{th}) = (54 \pm 6)\mu\text{b}$ が得られる。この値は MOL ($\sigma_f(\text{th}) = (48 \pm 6)\mu\text{b}$)⁹⁾ や USSR ($\sigma_f(\text{th}) = 60 \pm 30\mu\text{b}$)¹⁰⁾ の結果と良い一致を示すが、最近報告された Wagemans らの結果 ($\leq 2.5\mu\text{b}$)¹¹⁾ とは大きな不一致が見られている。現在 500 eV 以下の σ_f の $1/\nu$ 性および 4 keV 付近の共鳴について検討がなされている。

$^{245}\text{Cm}(\text{n}, \text{f})$ の断面積測定は、約 3 μg の ^{245}Cm を有する fission chamber を用いて行なわれた。 $^{245}\text{Cm}(\text{n}, \text{f})$ に関するデータは熱中性子については十数編報告されているが、epithermal 領域に対しては 0.32 eV ~ 115 eV で Dabbs ら¹²⁾ のおよび 0.01 eV ~ 35 eV での Browne ら¹³⁾ の TOF データと、20 eV ~ 3 MeV での Moore ら¹⁴⁾ の原爆実験のデータがあるのみである。我々が使用した ^{245}Cm fission chamber は L L L の Browne らが使用したものを譲り受けたもので、データは彼らの結果に規格化された。今までに得られた $^{245}\text{Cm}(\text{n}, \text{f})$ の断面積測定結果を Fig. 5 に示す。ヒストグラムが我々のデータで、曲線は Browne および Moore らのデータに R I N S のエネルギー分解能 ($\Delta E/E = 0.39$) を考慮した場合の核分裂断面積である。両者に相当の違いが見られ、現在この件につき検討している段階である。

$^{245}\text{Cm}(\text{n}, \text{f})$ 実験のよう μg オーダの試料を用いた核分裂断面積測定用に新型の小型半球状核分裂箱が製作され、 ^{252}Cf を用いた特性試験が行なわれた¹⁵⁾。この fission chamber で 1 μg ^{235}U の中性子核分裂断面積測定も R I N S を使用して行なわれ、ENDF/B-IV 評価データと良い一致を示した。Fig. 6 に $^{235}\text{U}(\text{n}, \text{f})$ の結果を示す。曲線は ENDF/B-IV の値に R I N S のエネルギー分解能を考慮した値で、30 keV 以上での違いは fission chamber の構造材のアルミの共鳴中性子吸収によるものである。2 ~ 3 eV 付近で実験値と合わない原因は不明である。

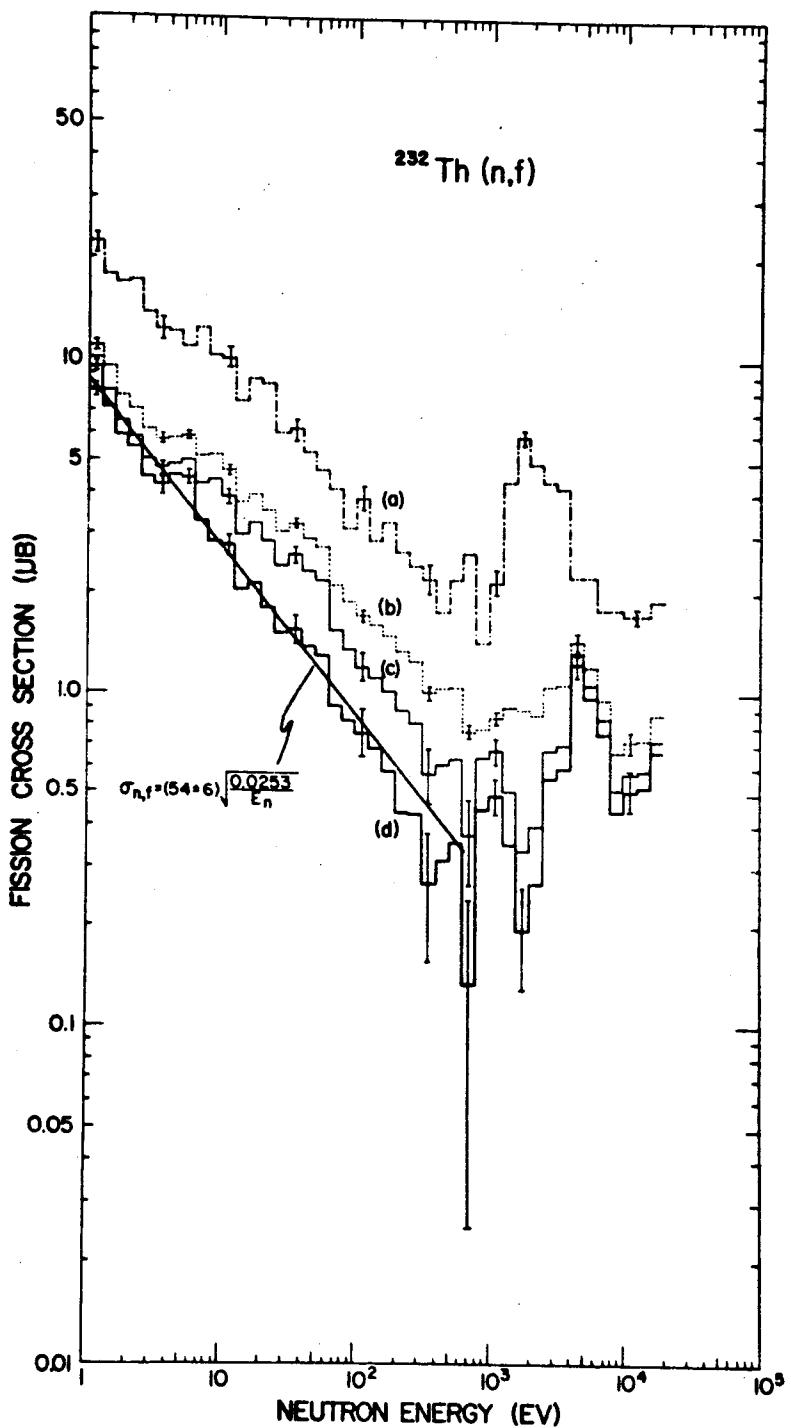


Fig. 4. ^{232}Th fission cross section

CM-245(N,F)

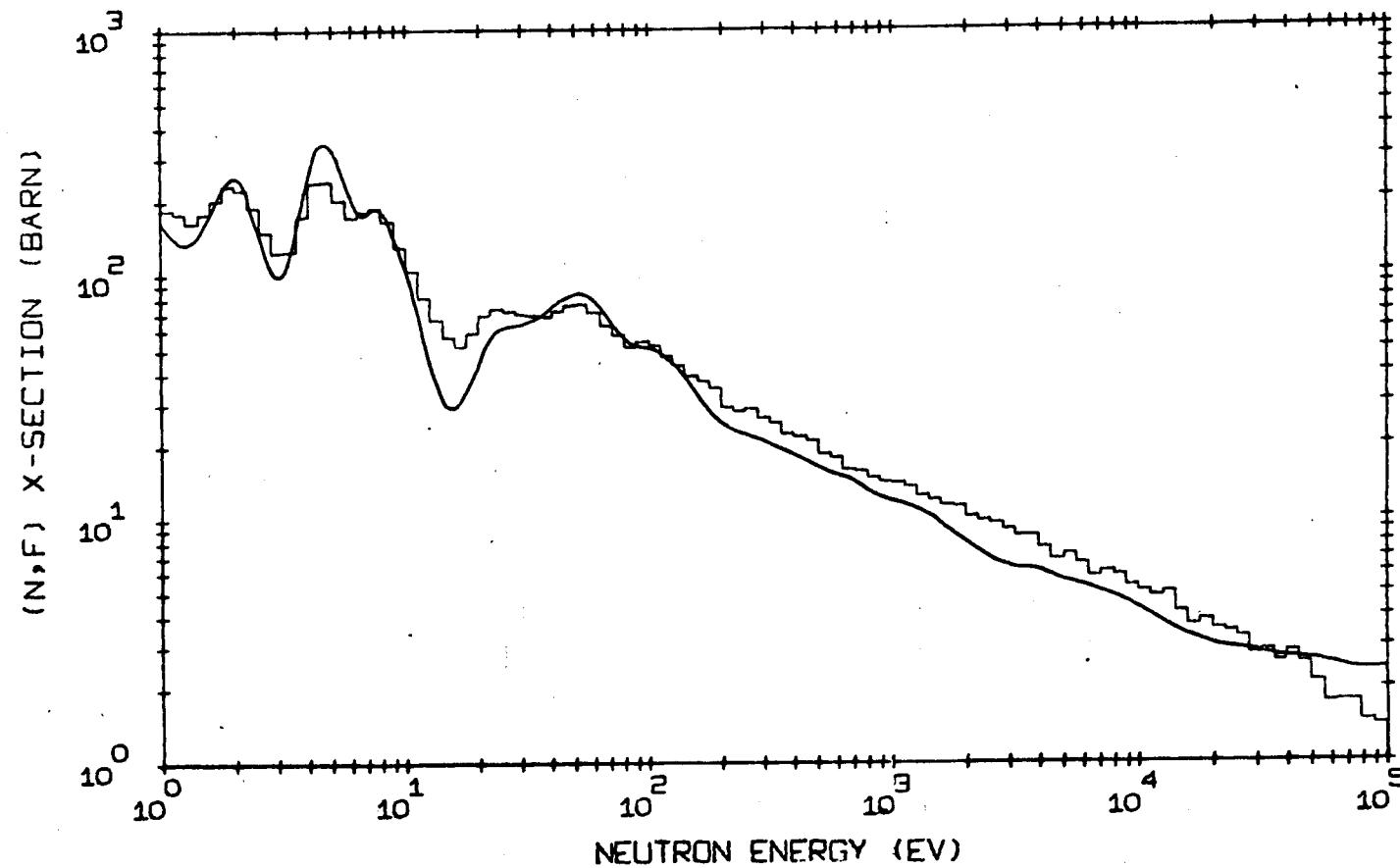


Fig.5. ^{245}Cm fission cross section

U-235(N,F)

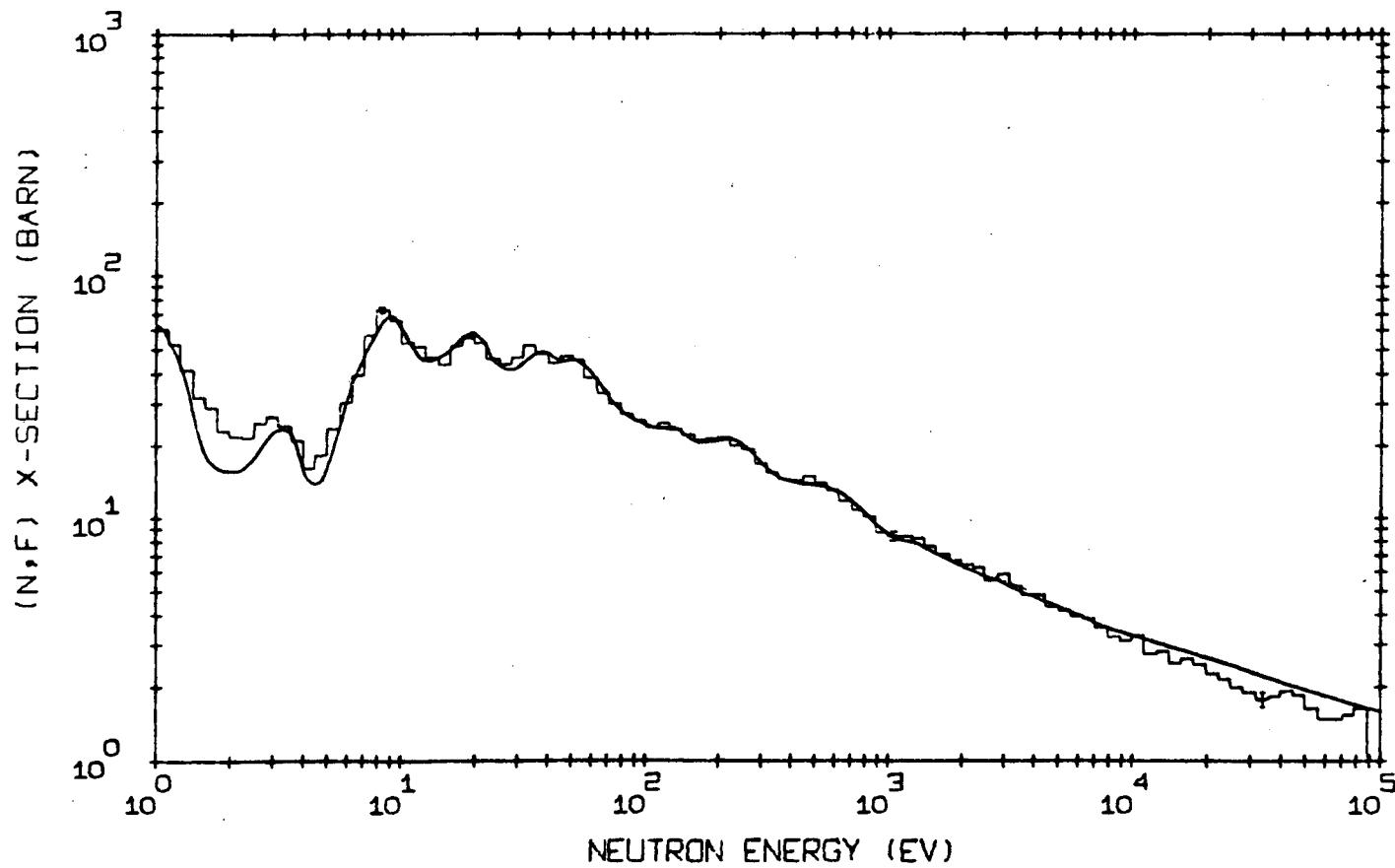


Fig. 6. ^{235}U fission cross section

この型の fission chamber を使って 1 eV～数 10 keV または 100 keV 領域での ^{251}Cf (n, f) (試料 : 1 μg 程度) の断面積測定実験が計画されている。

以上が Dr. Block を中心に, Knolls Atomic Power Laboratory の Dr. R. E. Slovacek (特に R I N S を使用した実験) らと共に行なったまたは行なわれつつある実験である。

一方核データに関する評価の仕事として Dr. M. Becker を中心としたグループがあり, PDP-15 を駆使して Graphic Analysis System 法で ENDF/B データとの比較検討が行なわれている。

私が関係していた R P I の Gaerttner Linac Lab. では, 個々の実験設備は特に我が国より優れているとは思われなかつたが, 全体として良く整備されており, 測定法, データ処理システム等においてまさに合理化された核データ製造研究所といった感がある。

LLL (Lawrence Livermore Laboratory)

留学中 $^{245}\text{Cm}(n, f)$ 断面積測定に関して手紙のやりとりをしていたカリフォルニア大 L L L の Dr. J. C. Browne を訪問する機会を得た。彼の所属する実験物理部門 (Experimental Physics Division) には 100 MeV ライナック, サイクロトロン, プアンデグラフおよび 400 keV コッククロフトウォルトンの 4 つの加速器があり, 精力的に核データの測定, 評価が行なわれている¹⁶⁾。

ライナックを使った実験としては, J. C. Browne らを中心 U, Pu, Cm 等の中性子核分裂断面積の精密測定, ν の測定, 種々の核種の (n, γ) 断面積および capture γ 線測定が行なわれて いる。一例として Browne ら¹³⁾ が T O F 法で測定した $^{245}\text{Cm}(n, f)$ の断面積データを Fig. 7 に得られた共鳴パラメータを Table III に示す。前述の R P I の $^{245}\text{Cm}(n, f)$ 測定結果はこのデータに規格化された。

現在は重イオン核分裂実験も手掛けている様子で ^{238}U に関する実験結果の解析を始めるとのことであった。

LLL ではライナック施設のみしか見学することができなかつたので他の施設のことは言えないが, ライナック施設ではデータ蓄積および解析に同時に数台のコンピュータを働かせ, できるだけ少ないマシンタイムで最大の収穫を得ようとする努力がありありと感じられた。そのため測定機器類は最新型のものが豊富に備えられており, 研究者, 技術者の仕事区分が驚く程はっきりしていて各々プロに徹して仕事をしている姿が L L L にあった。

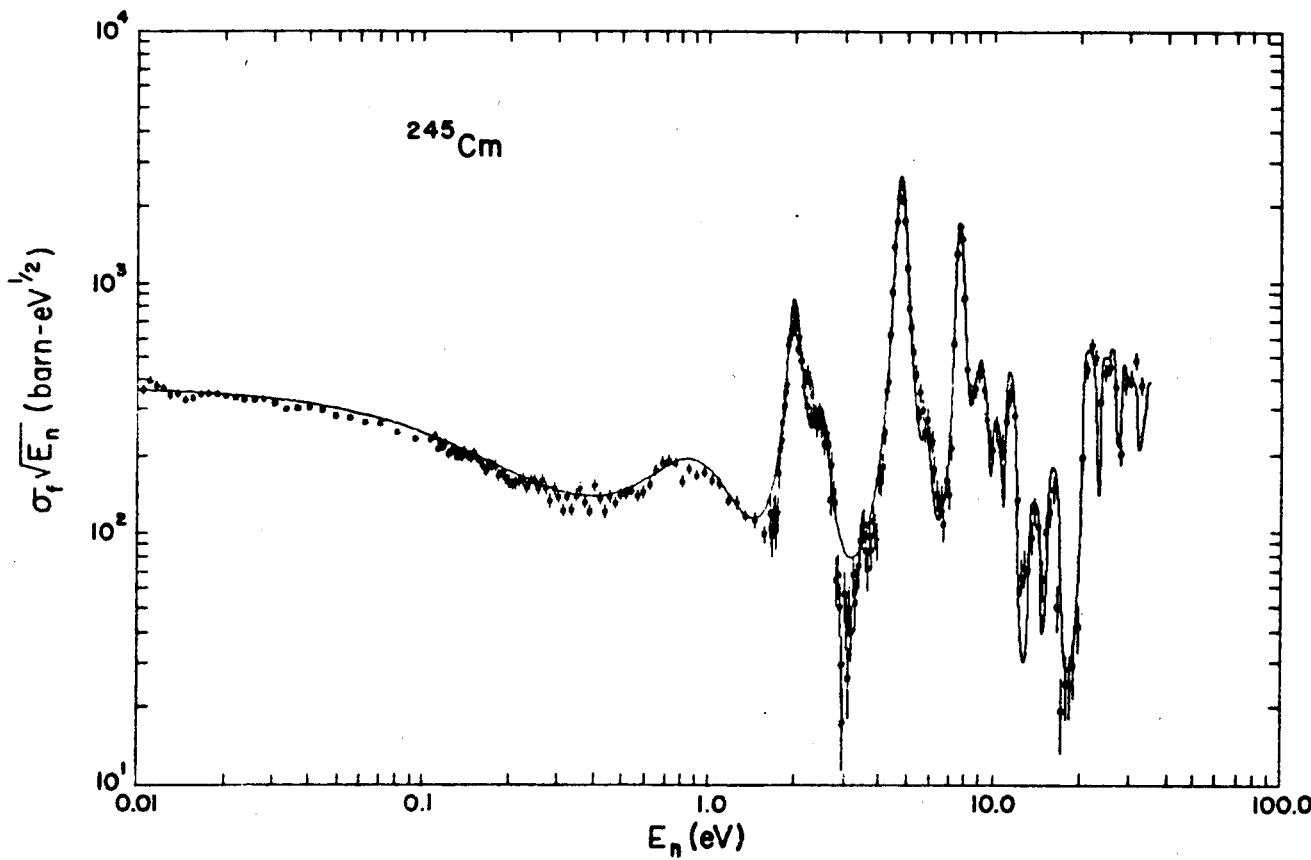


Fig. 7. The fission cross section of ^{245}Cm multiplied by $\sqrt{E_n}$ from 0.01 eV to 35 eV.

Table III. Resonance parameters for ^{245}Cm below 36 eV

E ₀ (eV)				2g Γ_n (meV)			Γ_n (meV)		
Present Results	Ref. 3	Ref. 1	Ref. 2	Present Results ^a	Ref. 1	Ref. 2	Present Results ^b	Ref. 1	Ref. 2
-3.1				0.144±0.014			300±50		
0.98	0.98			0.10±0.05			300±50		
1.35	1.99	1.95		0.2±0.03	0.319±0.035		175±15	215±5	
2.15	2.54			0.15±0.07			300±50		
2.55	4.72	4.67		2.10±0.02	2.077±0.032		325±30	370±5	
3.75				0.12±0.03			300±100		
4.55	7.53			1.91±0.11			300±30		
5.65	8.95			0.53±0.21			500±100		
6.15	9.22	9.17		0.39±0.11	1.60±0.12		200±50	150±30	
10.05	10.10			0.40±0.03			200±50		
11.35	11.42	11.34		0.89±0.10	0.71±0.10		150±15	170±15	
15.75	14.0	13.88		0.3±0.11	0.34±0.07		170±30	170±30	
16.1	15.65	16.0		0.68±0.21	1.20±0.4		400±100	400±100	
21.4	21.4	21.36		3.41±1.0	3.20±0.9	2.11	490±100	500±100	485
24.5	24.74	24.9		4.05±1.2	4.0±1.0	2.60	225±50	225±50	226
25.3		25.84		0.04		0.04	550		549
25.8		26.83		0.77		0.761	130		131
27.1	27.4	27.63		0.78±0.2	0.9±0.3	0.599	200±50	230±70	165
28.1	29.3	29.42		3.85±1.0	3.8±1.1	3.46	350±100	400±100	328
31.1		31.71		0.50		0.496	690		691
32.1		32.99		0.37		0.37	4		4
32.5		34.49		0.23		0.23	60		61
35.1		35.31		7.58		7.58	+165		+195
36.1		36.32		1.54		1.54	190		189

Note: A value of $\Gamma_n = 40$ meV was used for all resonances except for the bound level at -0.1 eV, where 50 meV was used.

^a) For this level, $2g\Gamma_n^0$ is listed.

^b) Where no uncertainties are listed under Present Results, the parameters of Ref. 2 were used.

Ref. 1 J. R. Berreth et al., Nucl. Sci. Eng. 49, 145 (1972)

Ref. 2 M.S. Moore and G.A. Keyworth, Phys. Rev. C3, 1656 (1971)

Ref. 3 J. Dabbs et al., Nucl. Cross Sections and Tech., NBS Spec. Publ. 425, vol. 1, p. 81 (1975)

参考文献

- 1) 小林捷平, 核データニュース No. 4 p.34(1977年7月) 日本原子力研究所
核データセンター
- 2) U.N. Singh, Y. Nakagome and R.C. Block, Trans. Am. Nucl. Soc., 27,
866(1977)
- 3) U.N. Singh, R.C. Block and Y. Nakagome, to be published
- 4) R.C. Block, 林 優平氏(現在RPI滞在中)私信
- 5) R.E. Slovacek et al., Nucl. Sci. Eng. 62 455(1977)
- 6) R.C. Block et al., Proc. Conf. on Neutron Interactions in Nucl.,
Lowell, Vol. II, p. 1400(1976)
- 7) R.C. Block, Y. Nakagome, R.E. Slovacek and E.B. Bean, Submitted for
presentation at the ANS Annual Meeting at San Diego, June 18-23,
1978
- 8) 中込良広 R.C. Block, R.E. Slovacek, 昭和53年日本原子力学会年会要旨集 C26
- 9) M. Neve de Mevergnies and P. del Marmol, Proc. Conf. on Neut. Cross
Sections and Tech., Washington, D.C., NBS Spec. Publ. 299, Vol II,
611(1968). P. del Marmol F. Hanappe and M. Monsecour, J. Inorg.
Nucl. Chem. 35 4323(1973)
- 10) E. Korneev, V. Skobkin and G. Flerov, JETP(Sov. Phys.) 10 29(1960)
- 11) C. Wagemans et al., Nucl. Phys. A259 423 (1976) and Nucl. Phys.
A285 32 (1977)
- 12) J. Dabbs et al., Nucl. Cross Sections and Tech., NBS Spec. Publ.
425, Vol. I, p. 81(1975)
- 13) J.C. Browne, R.W. Benjamin and D.G. Karraker, UCRL-79363 Rev. I,
(1977) and to be published
- 14) M.S. Moore and G.A. Keyworth, Phys. Rev. C3 1656(1971)
- 15) P.A. Bicknell, R.C. Block, Y. Nakagome and G. Krycuk, Bull. Am. Phys.
Soc. 22 644(1977)
- 16) J.D. Anderson and J.C. Browne, Status Report to ERDA Nuclear Data
Committee, UCID-17097(1976)