

新しいしきい検出器 $^{199}\text{Hg}(n, n')$ $^{199\text{m}}\text{Hg}$ の核データ および弥生炉中性子標準場における実証実験

原研 桜井 淳

1. はじめに

IAEA Nuclear Data Section の Vlasov ら⁽¹⁾は, fission あるいは fusion dosimetry に有用でしかも中性子断面積のあまりよく整理されていない核反応を list-up し, 現状を明確にした。list-up された核反応は, ENDF/B-V にはまだ file されていないが, 将来 file される候補と考えてよいであろう。

本稿で取り扱う核反応も Vlasov らにより list-up されたものの1つである。この反応についてはほとんどわかっておらず, 中性子測定あるいは neutron spectrum unfolding に利用された例は見当たらない。筆者は, この反応を利用した中性子測定あるいは neutron spectrum unfolding を試みている⁽²⁾。

本稿においては, 新しいしきい検出器 $^{199}\text{Hg}(n, n')$, $^{199\text{m}}\text{Hg}$ の核データ (abundance, half-life, gamma branching ratio, neutron cross section) を整理し, また弥生炉中性子標準場における実証実験について述べる。

2. $^{199}\text{Hg}(n, n')$ $^{199\text{m}}\text{Hg}$ 反応の核データ

2.1 abundance

しきい検出器として利用する場合, enriched ^{199}Hg を使えば技術的な問題はほとんどないといえるが, 実際には sample が高価 (1mg あたり約2万円) であるために natural (1g あたり約100円) を利用している。これまで使用した sample は natural の酸化第二水銀 HgO である。

Hg 元素には7つの同位体があり, それらの abundance は, ^{196}Hg (0.15%), ^{198}Hg (10.1%), ^{199}Hg (16.9%), ^{200}Hg (23.1%), ^{201}Hg (13.2%), ^{202}Hg (29.7%) および ^{204}Hg (6.8%) である⁽³⁾。natural を使用した場合の問題点については, 後ほど詳しくふれることにする。

2.2 ^{199m}Hg の half-life および gamma branching ratio

^{199}Hg の励起状態を図-1に示す。532keV の isomer の half-life は 4.26 ± 0.2 分であり, isomer level から 158keV level への transition は M4, 158keV level から ground への transition は E2 である⁽⁴⁾。gamma branching ratio は, 158 keV gamma transition に対して $5.23 \pm 0.5\%$, 374keV gamma transition に対して $1.23 \pm 0.5\%$ である⁽⁴⁾。

2.3 neutron cross section

$^{199}\text{Hg} (n, n') ^{199m}\text{Hg}$ 反応の断面積はほとんどわかっていなかった。これまでにいくつかの測定例があるが, それらの data からしきい検出器用の断面積を編集することは困難であった。

Swann and Metzger⁽⁵⁾ はしきい値 (約 500keV) から 2.2MeV までの値を測定した。Bornemisza⁽⁶⁾ は 2.8MeV における値, また Hankla⁽⁷⁾ は 14.4MeV における値を測定した。Swann and Metzger の測定は 25年前のものであり, また Bornemisza の値も不自然に小さい。そのため筆者ら⁽⁸⁾ は, 原研の 5.5MV V. d. G を利用して, しきい値から 6.3MeV までの値を測定し, Hankla らの 14.4MeV の data と組み合わせて, しきい検出器用の断面積を編集した。

3. 弥生炉中性子標準場における実証実験

新しいしきい検出器 $^{199}\text{Hg} (n, n') ^{199m}\text{Hg}$ の実証実験を弥生炉中性子標準場 (グローリホール) で行った。弥生炉グローリホールの neutron energy spectrum は, 計算および実験等の相互比較研究を通してよく検討されており, 中性子標準場として確立されている⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。

foil の照射は炉出力 500W で 30分行った。neutron energy spectrum の測定に使用した核反応と測定した反応率を表-1に示す⁽¹⁰⁾。表-1には, 東大の dosimetry group が測定した反応率⁽¹¹⁾と neutron spectrum unfolding に使用した neutron cross section も示してある。

unfolding に使用した計算 code は McElroy らが開発した⁽¹²⁾ SAND II であり, その neutron cross section library は, SAND II の付属 code である CSTAPE を利用して 620 群のエネルギー構造で編集した。unfolding に必要な guess spectrum は ANISN code で計算したものの⁽¹³⁾, あるいは相互比較研究を通して評価されたもの⁽¹⁰⁾ を利用した。表-1に示された 10 種の核反応を利用して neutron spectrum unfolding を行った。guess spectrum に ANISN code で計算した spectrum を利用した時の解析例が図-2である。各反応に対する測定した反応率 (M) と, guess spectrum あるいは iteration 後の spectrum と各反応の neutron cross section から計算した反応率 (C) の比を表-2に示す。guess spectrum に相互比較研究を通して評価された spectrum を利用した時, ^{199}Hg

表-1 弥生炉グローリホールで測定した反応率

Reaction	YAYOI glory-hole reaction rate (dps/atom)		Neutron cross section for unfolding
	Sakurai's data set ⁽¹⁾	東大 dosimetry group ⁽¹⁾	
$^{199}\text{Hg} (n, n') ^{199\text{m}}\text{Hg}$	$2.89-14^+ (\pm 4\%)$	-	文献 (8)
$^{59}\text{Co} (n, \alpha) ^{56}\text{Mn}$	-	$1.47-17 (\pm 2.4\%)$	ENDF/B-V
$^{56}\text{Fe} (n, p) ^{56}\text{Mn}$	-	$1.00-16 (\pm 2.8\%)$	"
$^{27}\text{Al} (n, p) ^{27}\text{Mg}$	-	$3.87-16 (\pm 8.4\%)$	"
$^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$	$6.91-17 (\pm 3\%)$	$6.74-17 (\pm 2.9\%)$	"
$^{24}\text{Mg} (n, p) ^{24}\text{Na}$	$1.40-10 (\pm 3\%)$	$1.47-16 (\pm 3.1\%)$	"
$^{23}\text{Na} (n, \gamma) ^{24}\text{Na}$	-	$7.85-17 (\pm 4.1\%)$	"
$^{47}\text{Ti} (n, p) ^{47}\text{Sc}$	-	$1.68-15 (\pm 11.5\%)$	"
$^{48}\text{Ti} (n, p) ^{48}\text{Sc}$	-	$2.57-17 (\pm 3.8\%)$	"
$^{115}\text{In} (n, n') ^{115\text{m}}\text{In}$	$2.14-14 (\pm 3\%)$	$2.12-14 (\pm 3.9\%)$	"

+ 2.89-14は 2.89×10^{-14} を意味する。

表-2 反応率のM/C

Reaction	Reaction rate M/C	
	guess spectrum	10 iteration spectrum
$^{59}\text{Co} (n, \alpha) ^{56}\text{Mn}$	0.9582	1.0264
$^{56}\text{Fe} (n, p) ^{56}\text{Mn}$	1.0144	1.0498
$^{27}\text{Al} (n, p) ^{27}\text{Mg}$	1.0497	1.0750
$^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$	0.8895	0.9690
$^{24}\text{Mg} (n, p) ^{24}\text{Na}$	0.9139	0.9850
$^{47}\text{Ti} (n, p) ^{47}\text{Sc}$	0.8491	0.8721
$^{48}\text{Ti} (n, p) ^{48}\text{Sc}$	0.8819	0.9463
$^{115}\text{In} (n, n') ^{115\text{m}}\text{In}$	1.2210	1.1380
$^{23}\text{Na} (n, \gamma) ^{24}\text{Na}$	1.2070	0.9941
$^{199}\text{Hg} (n, n') ^{199\text{m}}\text{Hg}$	1.0164	0.9466

(n, n') ^{199m}Hg 反応のM/Cは約1.1であった。この物理的意味については後ほど簡単にふれることにする。

guess spectrum および unfolded spectrum の全中性子束を比較しておこう。ANISN codeで計算した guess spectrum の全中性子束は $1.614 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, 相互比較研究を通して評価された spectrum の全中性子束は $1.875 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, これに対して unfolded spectrum の全中性子束は $1.826 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ であった。unfolded neutron spectrum から出した全中性子束は、相互比較研究を通して評価した spectrum から出した全中性子束とわずか2.6%の差である。 ^{199}Hg (n, n') ^{199m}Hg 反応を除外して求めた unfolded spectrum の全中性子束は1%ほど大きくなる。

4. discussion

natural sample を使用する場合、 ^{198}Hg (n, γ) ^{199m}Hg および ^{200}Hg $(n, 2n)$ ^{199m}Hg 反応の影響、また ^{199}Hg (n, p) ^{199}Au 反応の生成核の崩壊に伴う影響を検討しておかなければならない。弥生炉グローリホール neutron energy spectrum は非常に硬いので、 ^{198}Hg (n, γ) ^{199m}Hg 反応の影響は無視できるが、JMTRCのような熱中性子炉で照射する場合には Cd cover (厚さ1mm) をつけて (n, γ) 反応による ^{199m}Hg の生成をできるだけおさえる必要がある。Cd cover をつけても epi-thermal neutron による放射化が起こるので、この影響を精度よく評価する必要がある。 ^{200}Hg $(n, 2n)$ ^{199m}Hg 反応の fission spectrum averaged cross section は $5.5 \text{ mb}^{(14)}$ であり、fission spectrum あるいは fission spectrum に近い中性子場での照射では、この $(n, 2n)$ 反応による影響は約2%である。 ^{199}Hg (n, p) ^{199}Au 反応の fission spectrum averaged cross section は $0.009 \text{ mb}^{(14)}$ であり、 ^{199}Au の beta decay に伴う影響は無視できる。よって、弥生炉グローリホールでの照射においては、 $(n, 2n)$ 反応による影響が最も大きな補正要素である。

Swann and Metzger , Bornemisza らおよび Hankla らの neutron cross section から SAND II 用の neutron cross section library を編集すると、反応率のM/Cは約3であったが、筆者らが測定した neutron cross section と Hankla らの data から編集した library を使用すると、反応率のM/Cは1~1.1である。このように以前は定量的な評価ができなかったものが、比較的精度よく評価できるようになってきた。相互比較研究を通して評価された neutron energy spectrum と編集した neutron cross section から計算した反応率と測定した反応率の比M/Cは1.1であるが、この物理的な意味は、相互比較研究を通して評価された spectrum を真とすれば、編集した neutron cross section がわずかに過少評価されていることである。

^{199}Hg (n, n') ^{199m}Hg 反応は比較的 neutron cross section が大きく、また生成核の

半減期が4.26分なので, critical assemblyのように低い高速中性子束での照射でも十分定量可能な放射化ができる。またしきい値が $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応よりも低いので, $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ および $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応とともに reactor dosimetryにおいて利用しやすく, また有用なしきい検出器になるであろう。

問題点がいくつかある。しきい値付近の精度のよい data, また6.3~14.4MeVの data が必要である⁽¹⁵⁾。

文 献

- (1) M. F. Vlasov, et al., Review of Differential Neutron Data for Important Reactions not yet included in ENDF/B-V Dosimetry File, NUREG/CP-0004, II (1977) 855
- (2) 桜井 淳, 原子炉中性子線量評価法の実験的研究 (学位論文)
- (3) W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig and H. Munzel, Nuklidkarte, (1974)
- (4) C. Michael Lederer and Virginia S. Shirley, Table of Isotopes (Seventh Edition), John Wiley and Son, Inc. (1978)
- (5) C. P. Swann and F. R. Metzger, Production of $^{89\text{m}}\text{Y}$, $^{137\text{m}}\text{Ba}$ and $^{199\text{m}}\text{Hg}$ by Inelastic Neutron Scattering, Phys. Rev., 100, 5 (1955) 1329
- (6) P. Bornemisza, J. Karolyi and G. Peto, Measurements on the Excitation Cross Section of Isomeric States by Scattering of 2.8MeV Neutrons, Atomiki Kozlemenyek, 10 (1968) 112
- (7) A. K. Hankla, R. W. Fink and J. H. Hamilton, Neutron Activation Cross Sections at 14.4MeV for some Naturally Occurring Heavy Elements in the Region $76 \leq Z \leq 82$, Nucl. Phys., A180 (1972) 157
- (8) K. Sakurai, et al., Cross Section Measurement for the $^{199}\text{Hg}(n, n')^{199\text{m}}\text{Hg}$ Reaction from 0.78 to 6.3MeV, J. Nucl. Sci. and Technol. (to be published)
- (9) 中沢正治, 関口 晃, 「弥生」線量測定データ集 [I], UTNL-R-0037 (1976)
- (10) A. Sekiguchi, et al., Several Dosimetry Studies in the Fast Neutron Source Reactor YAYOI, NUREG/CP-0004, II (1977)

- (11) M. Nakazawa, et al., The YAYOI Blind Intercomparison on Multiple-Foil Reaction Rate Measurements, UTNL-R-0099 (1981)
- (12) W. N. McElroy, et al., A Computer-Automated Iterative Method for Neutron Flux Spectra Determination by Foil Activation, I and II, AFWL-TR-67-41 (1967)
- (13) W. W. Engle, A User's Manual for ANISN, K-1693 (1967)
- (14) J. C. Roy and J. J. Hawton, Table of Estimated Cross Sections for (n, p) , (n, α) and $(n, 2n)$ Reactions in a Fission Neutron Spectrum, CRC-1003 (1960)
- (15) S. Igarasi and WRENDA Group of Japanese Nuclear Data Committee, Japanese List of Requests for Nuclear Data, JAERI-M 9464, (1981) N. DayDay, World Request List for Nuclear Data, INDC (SEC)-78/URSF, (1981)

