

## 東工大における最近の keV 中性子捕獲実験

(1995 年 1 月 30 日受理)

東京工業大学原子炉工学研究所

井頭 政之

### 1. はじめに

本誌 44 号に「東工大における高速中性子実験用  $\gamma$  線検出器システムの整備」と題した報告を行ってから丁度 2 年が経過した。報告した  $\gamma$  線検出器システムは高分解能  $\gamma$  線検出器系と高効率  $\gamma$  線検出器系の 2 系統で構成されており（詳しくは本誌 44 号参照）、これらで中性子核反応の際に放出される  $\gamma$  線を精度良く測定することにより、捕獲断面積をはじめ種々の断面積を測定しようとするものである。

各  $\gamma$  線検出器系の基本的特性試験（検出効率、エネルギー分解能、時間分解能、応答関数等の測定）、実際に高速中性子を発生させて行なう、検出器遮蔽体を含めたシステム全体の特性試験（バックグランド成分の分析、SN 比（信号対雑音比）の測定等）、更に SN 比向上のためのシャドウ・バー並びに  $\gamma$  線コリメータの改良の後、高効率  $\gamma$  線検出器系を用いた keV 中性子捕獲実験を 1993 年の晩秋より開始した。

測定は現在、

- (1) 質量数 30 以下の核に対する部分及び全捕獲断面積、
- (2) 質量数 30 以下の核の幅の広い共鳴の部分及び全放射幅、
- (3) 核分裂生成物領域の核種に対する全捕獲断面積と捕獲  $\gamma$  線スペクトル、

について行なっている。(1) の全捕獲断面積データは原子力開発のみならず、宇宙初期及び恒星内での元素合成の研究に必要不可欠である。また、(1) 及び (2) の部分捕獲断面積あるいは部分放射幅は、中性子捕獲反応機構の解明に必要なデータである。(3) の（全）捕獲断面積データは、核燃料の高燃焼度化及び超ウラン元素の炉内燃焼を目指す原子力開発にとっては今にも増して重要となる。また変形核の捕獲  $\gamma$  線スペクトルは、現在話題となっている M1 シザーズ・モード<sup>1)</sup>（変形核の集団励起モードの 1 つで、詳しくは参考文献 1 を参照）の研究に重要な情報を供給すると考えられる。

これまで、(1) は  $^1\text{H}$ 、 $^{10, 11}\text{B}$ 、 $^{12}\text{C}$ 、 $^{19}\text{F}$ 、(2) は  $^{19}\text{F}$ 、(3) は  $^{140}\text{Ce}$ 、 $^{141}\text{Pr}$ 、 $^{148, 149, 152, 154}\text{Sm}$ 、 $^{161, 162, 163}\text{Dy}$ 、 $^{167}\text{Er}$  に対して測定を進めており、本報告ではこれらの測定結果の一部を紹介する。

### 2. 測定方法

代表的な実験配置の略図を図1に示す。東工大・原子炉研の3MVペレット加速器で加速したパルス化陽子ビーム（パルス幅：1.5 ns（FWHM）、繰り返し周波数：2あるいは4MHz、平均電流：7 $\mu$ A @ 2MHz、14 $\mu$ A @ 4MHz）をビーム延長管の終端に取り付けた金属リチウム・ターゲットに照射し、keV中性子をパルスの的に発生させる。このパルス化keV中性子を、陽子ビーム方向に対して0°方向、中性子源から12cm（ $E_n < 100\text{keV}$ の実験の場合）あるいは20cm（ $E_n=500\text{keV}$ 付近の実験の場合）に設置した測定用試料に入射させる。入射中性子の一部は試料中の原子核に捕獲され、捕獲 $\gamma$ 線が発生する。この捕獲 $\gamma$ 線を、陽子ビーム方向に対して125°方向、試料から86cmの位置に設置した直径15.2cm、長さ20.3cmのNaI（Tl）検出器で測定する。この検出器はコンプトン抑止型となっており、周囲を外径33.0cm、内径17.2cm、長さ35.6cmのコンプトン除去用大型環状NaI（Tl）検出器で囲まれている。これらの検出器全体は、ボロン入りポリエチレン、ボロン入りパラフィン、低バックグラウンド仕様の鉛、カドミウム、及び $^6\text{LiH}$ で構成されている重遮蔽体の中に納められており、バックグラウンドが極力減じられている。尚、試料へ入射する中性子のエネルギー・スペクトルは、 $E_n < 100\text{keV}$ の実験の場合、中性子源から30cmの位置に置かれた直径5mm、厚さ5mmの小型 $^6\text{Li}$ ガラス・シンチレーション検出器で、 $E_n=500\text{keV}$ 付近の実験の場合、直径10cm、厚さ0.6cmの $^6\text{Li}$ ガラス・シンチレーション検出器で測定される。

適切な測定用試料を準備することは実験の要点の一つであり、一般に、化学的純度及び同位体組成が高いものが必要である。化合物を使用する必要がある場合には、化合相手元素には測定邪魔にならないものを選ぶ必要がある。また、粉末試料を用いる場合は、圧縮焼結してセルフ・サポートのものにするか、極力薄く作ったグラファイト製の容器に封入して用いる必要がある（グラファイトは捕獲断面積が小さい）。また、試料中の水分が測定に大きな影響を及ぼすことがあるので、酸化物等の粉末試料を使用する場合には特に、実験前に極力水分を取り除き、更に実験中の水分吸収を監視する必要がある。データ処理においては勿論、この水分による影響の補正を行なう必要がある。

本測定では全て円盤状の測定用試料を用いた。直径は20、55、90mmの3種類で、厚さは3～30mmで試料によって大きく異なる。Ce、Sm、Dy、Er同位体については各々95%以上に同位体濃縮した酸化物粉末試料をグラファイト製容器に封入して用いた。 $^{140}\text{Ce}$ 試料は10g、他の同位体試料は1gである。ちなみに、1g当りの価格は25～70万円とかなり高価な試料である。他は天然の試料を用いた。B及びPrは粉末試料をグラファイト製容器に封入して用いた。 $^1\text{H}$ 試料としては、試料中の中性子多重散乱効果の補正の妥当性を検証するため、4種類の厚さ（1、2、3、4mm）のポリエチレンを用いた。 $^{12}\text{C}$ 試料にはグラファイト、 $^{19}\text{F}$ 試料にはテフロン（ $\text{CF}_2$ ）を用いた。標準試料としてAu試料を用いたが、その直径は測定用試料の直径に合わせ

て、各々  $20 \phi \times 2$ 、 $55 \phi \times 1.7$ 、あるいは  $90 \phi \times 1$  (mm) の形状のものを用いた。

測定には、中性子飛行時間 (TOF) 法を用い、 $\gamma$  線検出器の TOF 信号と波高 (PH) 信号の 2 次元データをリスト・モード (1 事象毎に TOF と PH の情報を記録する方法。) でワークステーションに取り込んだ。ワークステーションに取り込む情報量は  $\gamma$  線検出器の計数率に比例し、極力バックグランドを減じて、我々の高効率  $\gamma$  線検出器系では 1 週間の連続測定で 0.3 ~ 1G バイトになる。

測定は Au との相対測定とし、測定試料の測定 (S-run)、標準 Au 試料の測定 (Au-run)、何も試料を置かない測定 (BK-run) の 3 種類の測定を、実験条件の変化の影響を緩和させるため、サイクリックに行なった。各試料の測定において、S-run の合計時間は 20 ~ 100 時間、Au-run 及び BK-run の合計時間は各々 5 ~ 80 時間であった。

$\gamma$  線検出器で測定された TOF スペクトルの例を、 $^{149}\text{Sm}$  の場合について図 2 に示す。上のスペクトルは  $E_n=5 \sim 90\text{keV}$  の測定の場合で、下は  $E_n=550\text{keV}$  の測定の場合である。図において時間は右から左に流れており、 $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$  反応によるピークを 817 チャネルに合わせているが、両測定において、中性子源と測定用試料の距離 (L) 及び時間較正 (チャネル当りの時間) が異なっていることに注意してほしい。 $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$  反応によるピークの左側のピークは  $^{149}\text{Sm}(n,\gamma)^{150}\text{Sm}$  反応によるもので、連続エネルギー・スペクトルの中性子を用いた  $E_n=5 \sim 90\text{keV}$  の測定ではブロードなピークとなっており、準単色の中性子を用いた  $E_n=550\text{keV}$  の測定ではシャープなピークとなっている。(p, $\gamma$ ) ピークの幅は、陽子ビームのパルス幅及び  $\gamma$  線検出器の時間分解能を含めた実験系全体の時間分解能を表わしており、4ns (FWHM) 以下である。(p, $\gamma$ ) ピークと (n, $\gamma$ ) ピークとの時間差は、リチウム・ターゲットで発生した中性子が測定用試料までの距離を飛行する時間である。連続エネルギー・スペクトルの中性子を用いた場合 ( $E_n=5 \sim 90\text{keV}$  の測定)、中性子エネルギーによって飛行時間が異なるので、(n, $\gamma$ ) ピークはブロードなものになっている。準単色中性子を用いた場合 ( $E_n=550\text{keV}$  の測定)、飛行時間差が実験系の時間分解能よりも小さいので、シャープなピークとなっている。これらのピークから離れた平らな部分は、自然バックグランド及び実験室内に充滿している減速された中性子に起因するバックグランドによって形成されており、従って時間的に一定となっている。

$\gamma$  線検出器からの二次元データ及び中性子検出器からのデータを解析し、また試料中の中性子多重散乱の影響等の補正を行なうことにより、捕獲断面積及び捕獲  $\gamma$  線スペクトル等の最終結果を得ることができるが、その方法の説明は割愛する。

### 3. 測定結果

データ解析中のものもあり、又、解析の終了したものについても、紙面の都合上、全部を報告することは無理なので、代表的な測定結果について述べる。

#### (1) $^1\text{H}$ の結果

我々の  $E_n < 100\text{keV}$  の測定結果を、理論計算結果<sup>2-4)</sup>と比較して図3に示す。図には、捕獲断面積に入射中性子の速度(実験室系)を乗じたもの、 $\sigma v$ 、を実験室系の入射中性子エネルギーに対して示してある。もし、断面積が  $1/v$  依存であれば、 $\sigma v$  は入射中性子エネルギーに依存しない。前に述べた様に、我々は4種類の厚さのポリエチレン試料に対して測定を行なったが、図には4つの測定結果の平均値を示している。keV領域の測定は我々が初めてであるが、今回の測定結果は最近の計算結果<sup>3, 4)</sup>と良い一致を示している。尚、低エネルギー領域から400keV付近まではs波中性子捕獲とM1遷移が主であり、それ以上の中性子エネルギー領域ではp波中性子捕獲とE1遷移が主である。現在、 $E_n=400\text{keV}$  及び  $550\text{keV}$  の測定を行なっている。

#### (2) $^{10, 11}\text{B}$ の結果

$^{10}\text{B}$  の結果を表1に示す。今回の測定では4終状態への1次遷移が観測されたが、これらの遷移は熱中性子捕獲実験<sup>5)</sup>で観測されている全遷移である。表から分かる様に、今回得られた相対強度は熱中性子捕獲実験で得られた強度と非常に良く一致している。しかし、今回の部分捕獲断面積の和は、熱中性子全捕獲断面積と  $1/v$  則を用いて外挿し

表1  $^{10}\text{B}$  の部分捕獲断面積等

終状態 (MeV)	捕獲断面積 ( $\mu\text{b}$ )			相対強度 (%)	
	$\langle E_n \rangle = 23\text{keV}$	$\langle E_n \rangle = 40\text{keV}$	$\langle E_n \rangle = 61\text{keV}$	$\langle E_n \rangle = 40\text{keV}$	熱中性子 <sup>5)</sup>
0.0 (3/2-)	$20.6 \pm 2.8$	$11.4 \pm 1.9$	$11.6 \pm 2.3$	4.0	4.6
4.45(5/2-)	$228 \pm 18$	$162 \pm 12$	$144 \pm 16$	56.2	56
6.74(7/2-)	$129 \pm 17$	$83.7 \pm 10$	$76.2 \pm 13$	28.9	28
8.92(5/2-)	$46.2 \pm 8.4$	$31.5 \pm 5.1$	$26.0 \pm 5.6$	10.9	12
和	$424 \pm 26$	$288 \pm 17$	$258 \pm 21$		
$1/v$ 外挿 <sup>a)</sup>	$302 \pm 42$	$229 \pm 32$	$186 \pm 36$		

a) 熱中性子捕獲断面積<sup>5)</sup>を  $1/v$  則を用いて外挿した値。

表2  $^{11}\text{B}$  の部分捕獲断面積等

終状態 (MeV)	捕獲断面積 ( $\mu\text{b}$ )		
	$\langle E_n \rangle = 23\text{keV}$	$\langle E_n \rangle = 40\text{keV}$	$\langle E_n \rangle = 61\text{keV}$
0.0 (1+)	$9.5 \pm 3.2$	$5.2 \pm 0.9$	$5.9 \pm 1.4$
1.67 (2-)	$228 \pm 12$	$14.6 \pm 1.2$	$11.9 \pm 2.4$
部分断面積の和	$238 \pm 13$	$19.8 \pm 1.5$	$17.8 \pm 2.8$
Mooring <sup>6)</sup>	210	35	

た値より大きくなっている。

$^{11}\text{B}$  の結果を表2に示す。平均中性子エネルギー 23keV の結果の 1.67MeV 状態への部分捕獲断面積が非常に大きくなっているが、これは 20.8keV にある d 波共鳴 (3-) の影響である。Mooring 等<sup>6)</sup> は放射化法によって  $^{11}\text{B}$  の keV 中性子捕獲断面積を測定しているが、彼らと我々の結果の一致は、彼らの誤差を考慮すると良いと言える。

### (3) Sm 及び Dy 同位体の結果

核分裂生成物領域の核種に対する捕獲断面積測定結果例として、 $^{149}\text{Sm}$  の結果を図4に示す。我々の結果は Wisshak 等<sup>7)</sup> 及び Macklin 等<sup>8)</sup> の結果と良く一致している。Mizumoto<sup>9)</sup> の結果は試料中の水分の影響を大きく受けているものと考えられる。尚、JENDL-3.2 の評価では、Wisshak 等の測定値を基準にしている。

捕獲  $\gamma$  線スペクトルの測定結果例として、 $^{161}, ^{162}, ^{163}\text{Dy}$  の平均中性子エネルギー 30keV における結果を図5に示す。図から分かるように、全てのスペクトル中の 3MeV 付近にバンプが観測されている。データ解析が進んでいる Sm 同位体の  $\gamma$  線スペクトル中にも、同様なバンプが観測されている。まだ定量的な解析は行っていないが、このバンプの中心エネルギー位置は、以前の我々の得た系統性<sup>10)</sup> に合致している。以前の研究では、このバンプは E1  $\gamma$  線強度関数中の共鳴構造、即ち E1 ピグミー共鳴、に全て起因すると仮定して解析を行なったが、今度は M1 シザーズ・モードの寄与も考慮して解析する予定である。

## 4. おわりに

本報告で紹介したように、高効率  $\gamma$  線検出器系を用いた keV 中性子実験を現在順調

に行なっている。しかし、高分解能 $\gamma$ 線検出器系については、特性試験が未だ完了しておらず、中性子実験を開始するまでには更に半年を要する状態である。また本報告では触れなかったが、別の大型 $\gamma$ 線検出器系を1994年春に設置し、基礎特性試験を現在行なっている。全ての $\gamma$ 線検出器系を1部屋の中性子実験室に設置しているので、高効率 $\gamma$ 線検出器系を用いた中性子実験を行なっている間は、他の検出器の特性試験を行なうことができない。実験をどんどん進めたいし、他の検出器の特性試験も早く行なう必要がある。更に、加速器のイオン源の改良を行なって、当初の計画通り、現在の2~3倍の陽子ビーム電流を狙いたい。時間とマン・パワーの不足が悩みの種である。

#### 参考文献

1. N. Lo Iudice and F. Palumbo, Phys. Rev. Lett. 41 (1978) 1532; G. De Franceschi, F. Palumbo and N. Lo Iudice, Phys. Rev. C29 (1984) 1496
2. W. A. Foeler, G. R. Caughlan and B. A. Zimmerman, ARA&A, 5 (1967) 525
3. ENDF/B-VI data file for  $^1\text{H}$  (MAT=125), Revision 1, evaluated by G. M. Hale, D. D. Dodder, E. R. Sciliano and W. B. Wilson (1991)
4. H. Ohtsubo, T. Sato and T. Kobayashi, private communication, 1993
5. P. J. J. Kok, J. M. B. de Haas, K. Abrahams, H. Postma and W. J. Huiskamp, Z. Phys. A - Atomic Nuclei, 324 (1986) 271.
6. F. P. Mooring, J. E. Monahan and R. E. Segel, Phys. Rev. 178 (1969) 1612
7. K. Wisshak, K. Guber, F. Voss, F. Kappeler and G. Reffo, Phys. Rev. C48 (1993)1401
8. R. L. Macklin, J. H. Gibbons and T. Inada, Nature, 197 (1963) 369
9. M. Mizumoto, Nucl. Phys. A357 (1981) 90
10. M. Igashira, H. Kitazawa, M. Shimizu, H. Komano and N. Yamamuro, Nucl. Phys. A457 (1986) 301

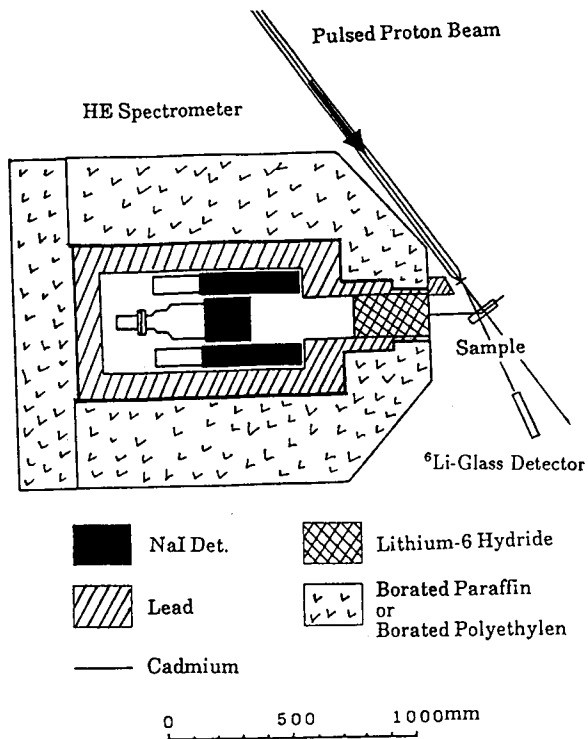


図1 keV中性子捕獲実験の実験配置略図

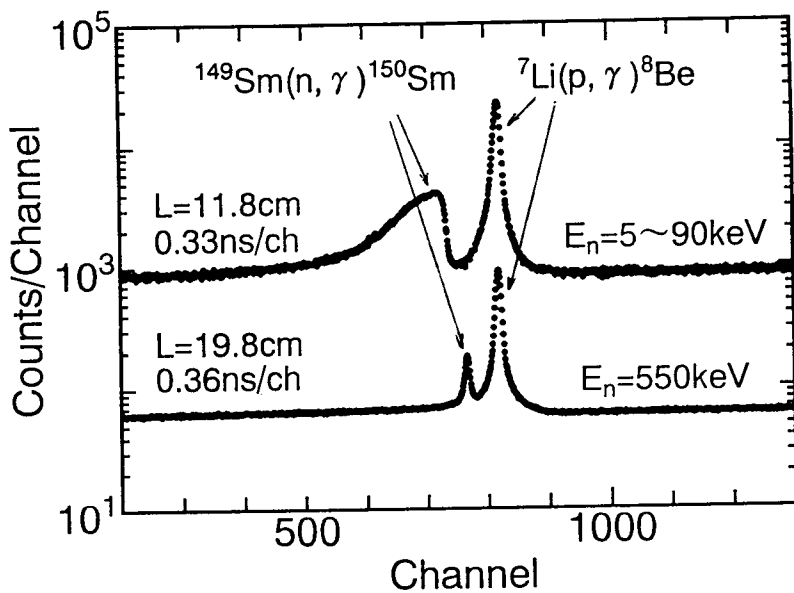


図2 高効率 $\gamma$ 線検出器系で測定したTOFスペクトルの例

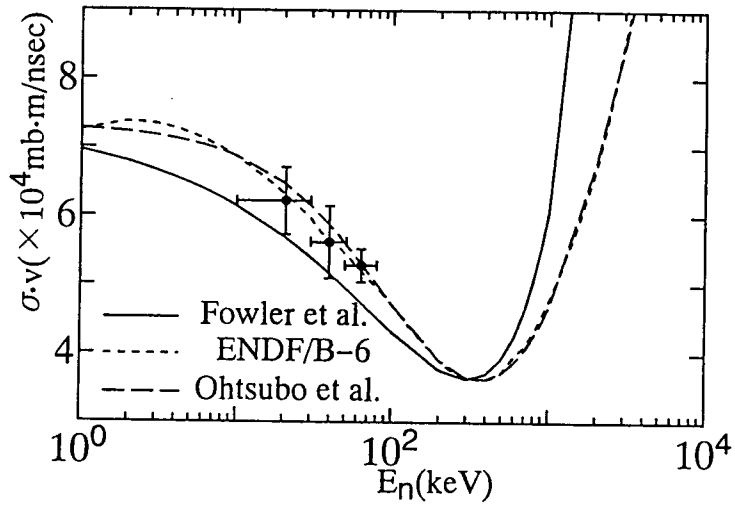


図3  $^1\text{H}$ の中性子捕獲断面積の測定結果と理論計算結果

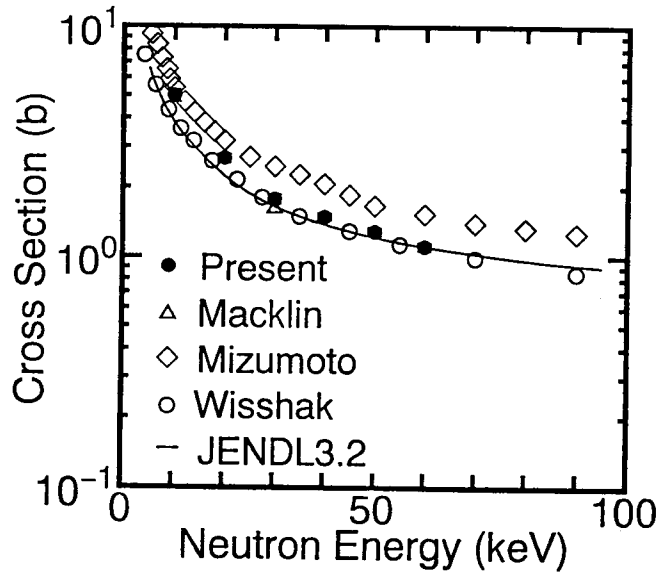


図4  $^{149}\text{Sm}$ の中性子捕獲断面積の測定結果



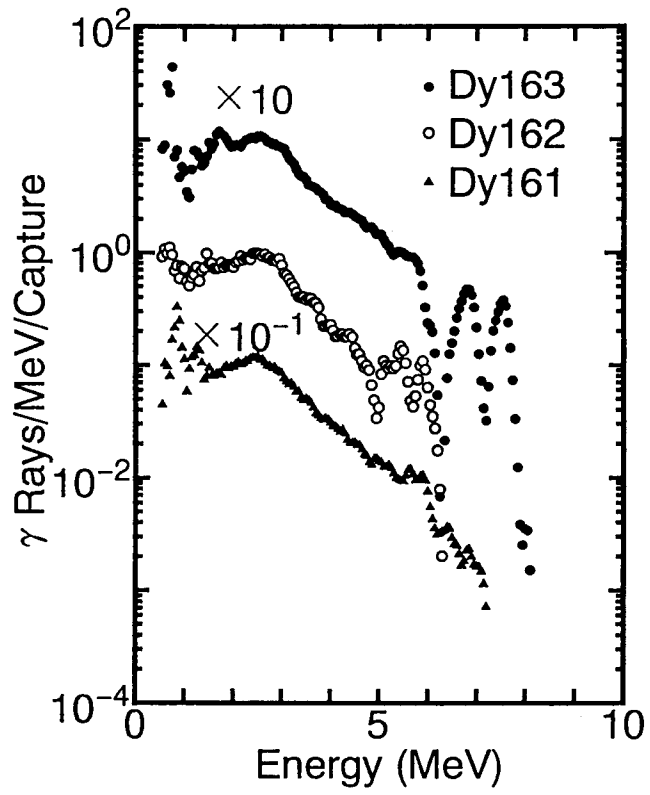


図5  $^{161}, ^{162}, ^{163}\text{Dy}$  の keV 中性子捕獲  $\gamma$  線スペクトル