

# keV 領域における ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 核反応データの精度向上へ向けて

(1996年1月31日受理)

東京工業大学理学部

嶋 達志

shima@nagai.ap.titech.ac.jp

## 1. はじめに

数 keV ~ 数 MeV のエネルギーの中性子によって起こる軽い核の核反応は、

- 1) 宇宙 (初期宇宙および天体内部) における様々な元素の起源
- 2) 原子核が持つ少数多体系としての性質

3) 原子力施設、加速器施設などの現場で発生する速中性子が、器材や人体、周辺環境に及ぼす影響など、様々な場面で重要な役割を果たす。従って、これらのテーマを研究する上で、正確かつ信頼度の高い核データが不可欠である。ところが、一般に軽核の非共鳴反応断面積は、重核に比較して非常に小さく、実験による測定が難しいため、核データの整備を進める上で必要な、精度のよい測定データが不足しがちである。中でも  ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  反応は、中性子を検出するための標準的な反応として広く利用されているにも関わらず、未だに十分な精度で断面積が評価されているとは言い切れない状況である。

我々東工大グループは、最近実用化に成功した “ガスシンチレーションドリフトチェンバー” と呼ばれる新型検出器を用いて、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  をはじめとする軽核の (n,p)、(n, $\alpha$ ) 反応の実験的研究を行っている。本稿では、我々が行っている研究を例として紹介し、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  反応断面積データの重要性と現在の問題点について述べる。

## 2. ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 断面積データの重要性と現状

### (1) ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 反応の重要性

${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  反応は、熱中性子領域から keV 領域にいたるまで、非常に断面積が大きく、また  ${}^3\text{He}$  プロポーションナルカウンタなどの形で容易に検出器として用いることができるため<sup>1)</sup>、中性子束の強度、エネルギー分布、時間・空間分布などを調べる目的で広く利用されている。さらに、(n,p)、(n, $\alpha$ ) 反応の測定において、標的核が気体として用意できる場合には、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  反応はとりわけ有用となる。これは、プロポ

ーショナルカウンターやワイヤーチェンバーの動作ガスとして、標的ガスと  $^3\text{He}$  ガスの混合気体を用いることにより、

- ・ 検出器が標的を兼ねているため、100% 近い検出効率を得られる、
- ・ 中性子強度の時間的・空間的変動や検出器の効率に付随する誤差が打ち消しあって小さくなるなどのメリットが期待できるためである。類似の特徴を備えたもうひとつの反応として、 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  反応があるが、 $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  反応の方が断面積が大きく、また MeV 領域までのエネルギー依存性がゆるやかであるという点で有利である。 $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  反応が持つこれらの特色を実際に利用している例として、筆者らが行っている keV 領域における  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  反応の測定について次節で述べる。

## (2) $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ 反応の応用例 ～ $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 反応測定の場合 ～

宇宙に存在する  $^{56}\text{Fe}$  よりも重い元素の合成過程のひとつに、恒星の内部で進行する遅い中性子捕獲過程 (s 過程) が考えられている<sup>2)</sup>。これは、ヘリウム燃焼期にある恒星のヘリウム燃焼殻中で起こる  $^{13}\text{C}(\alpha,n)^{16}\text{O}$ 、 $^{22}\text{Ne}(\alpha,n)^{25}\text{Mg}$  などの反応によって供給される中性子を、 $^{56}\text{Fe}$  が次々と捕獲し、徐々に重元素に換っていく過程である。ところが、ヘリウム燃焼殻にはヘリウム燃焼の前段階である CNO 水素燃焼によってつくられた C、N、O といった軽い元素が多く含まれており、それらの中性子反応断面積が大きすぎると、中性子が消耗され、s 過程による重元素合成が妨げられてしまう可能性がある。特に  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  反応は、 $^{14}\text{N}$  が CNO 水素燃焼の主生成物としてヘリウム燃焼殻中に多量に含まれること、およびヘリウム燃焼殻の温度 ( $10^8 \sim 10^9$  K) に相当する keV エネルギー領域での断面積が他の軽元素の (n,y) 反応などに比較して 2 桁程度以上大きいこと、s 過程の効率を大きく左右する可能性があり、極めて重要である。ところが、 $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  断面積の測定値として、Brehm et al.(独) は中性子のボルツマン平均エネルギー 25 keV において  $0.81 \pm 0.05$  mb<sup>3)</sup>、また Koehler et al.(米) は平均中性子エネルギー 25 keV に対して  $2.2 \pm 0.3$  mb<sup>4)</sup> という、互いに異なった結果を与えている。前者の結果によれば  $^{14}\text{N}$  の影響は問題にならないが、もし後者が正しければ  $^{14}\text{N}$  は s 過程を阻害する主要な物質となる。従って、s 過程による重元素合成を理解する上で、より信頼性の高いデータが不可欠である。一方工学的観点からも、この反応は、原子炉や加速器施設など中性子の発生する環境での空気の放射化の問題に関連しており、断面積データは重要である。そこで我々は “ガスシンチレーションドリフトチェンバー (GSDC)<sup>5)</sup>” と呼ばれる検出器を用いて、より信頼性の高い断面積測定を行った。

Fig. 1 は GSDC を横から見た概略図である。密閉容器の中に測定試料である  $\text{N}_2$  ガスと、ドリフトチェンバーの動作に必要な希ガスである He ガスの混合ガス (天然 He

78.8% +  $^3\text{He}$  0.3% + 天然  $\text{N}_2$  20.9%、全圧 600 torr) が封入されており、中性子を前面から入射させると、 $^{14}\text{N}$  原子核が (n,p) 反応を起こし、数百 keV の運動エネルギーを持つ陽子が放出される。この陽子はガス中で数 cm 飛行し、飛跡に沿って電離電子および励起原子を生成する。電離によって生じた電子はドリフト領域につくられた電場に従って移動 (ドリフト) し、センスワイヤー近傍の強電場で電子なだれを起こして信号をつくる。信号が現れたワイヤーの位置から、陽子の飛跡をセンスワイヤー面上に射影した 2 次元像を得る事ができる。一方励起された原子は数 nsec の寿命で蛍光を放出し、脱励起する。この蛍光を GSDC の側面に取り付けられた 4 本の光電子増倍管でキャッチすることにより (n,p) 反応が起こった時間を数 nsec の精度で知る事ができる。この時間信号を用いて、反応を起こした中性子のエネルギーを飛行時間法により測定することができる。さらに、与えられた電場強度における電離電子のドリフト速度は一定であるので、あらかじめドリフト速度を測定しておけば、蛍光の信号とセンスワイヤーからの信号との時間差から、陽子の飛跡のドリフト方向に沿った位置を算出することができ、センスワイヤー面上に射影された像と合わせて陽子の軌跡の 3 次元的位置・形状を決定する事が可能である。実際の測定で用いる入射パルス中性子線 (エネルギー 10 ~ 100 keV) は、本学原子炉工学研究所 3.2 MV ペレトロン加速器からのパルス陽子線を  $^7\text{Li}$  ターゲットに照射し、 $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  反応によって発生させる。この中性子線を GSDC 中に導入し、(n,p) 反応が起こった際に放出される陽子をカウントする。この時の陽子の計数率を  $R(^{14}\text{N})$ 、陽子の検出効率を  $\varepsilon(^{14}\text{N})$ 、有効な試料の量を  $N(^{14}\text{N})$ 、中性子線の強度を  $\phi(^{14}\text{N})$  とすると、

$$\sigma(^{14}\text{N}) = R(^{14}\text{N}) / (\varepsilon(^{14}\text{N}) \cdot N(^{14}\text{N}) \cdot \phi(^{14}\text{N})) \quad (1)$$

が成り立つ。また  $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  反応についても同様な関係

$$\sigma(^3\text{He}) = R(^3\text{He}) / (\varepsilon(^3\text{He}) \cdot N(^3\text{He}) \cdot \phi(^3\text{He})) \quad (2)$$

が成り立つので、(1)、(2) 式の比を取るにより、 $\sigma(^{14}\text{N})$  を

$$\begin{aligned} \sigma(^{14}\text{N}) &= (R(^{14}\text{N})/R(^3\text{He})) \times (\varepsilon(^3\text{He})/\varepsilon(^{14}\text{N})) \\ &\times (N(^3\text{He})/N(^{14}\text{N})) \times (\phi(^3\text{He})/\phi(^{14}\text{N})) \times \sigma(^3\text{He}) \end{aligned} \quad (3)$$

として  $\sigma(^{14}\text{N})$  を  $\sigma(^3\text{He})$  に対して相対的に求めることができる。ここで (3) 式の右辺に含まれる測定量は比として現れ、個々の測定量に付随する系統誤差の大半は

$^{14}\text{N}$ 、 $^3\text{He}$ それぞれの測定に共通であるため、お互いに打ち消しあい、比の値に伴う誤差を大幅に低減することができる。実際に測定を行った結果、 $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  反応断面積として  $1.9 \pm 0.4(\text{stat.}) \pm 0.2(\text{sys.}) \text{ mb}$  ( $E_n = 36.4 \text{ keV}$ )、 $1.6 \pm 0.2(\text{stat.}) \pm 0.2(\text{sys.}) \text{ mb}$  ( $E_n = 65.1 \text{ keV}$ ) が得られ、 $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  反応が s 過程に対して大きな影響を及ぼし得ることがわかった<sup>6)</sup>。ただしここで、断面積に含まれる系統誤差の 70% は  $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  反応断面積データの誤差に起因するものであるため、 $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  断面積の精度を向上させるには、より高精度な  $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  断面積のデータが必要となる。

### (3) $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ 断面積データの現状

前節の例からもわかるように、 $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  断面積データは他の中性子核反応の測定データの精度の向上に関して鍵となる量であり、高精度が望まれる。ところが、現在までに行われている測定実験の結果を見比べてみると (Fig.2 参照)、個々の測定での誤差はそれほど大きいわけではないが、各測定結果の間に誤差範囲を超える食い違いが見られる。これらのデータのばらつきを公平に考慮すると、 $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  断面積の誤差は  $1\sigma$  レベルで 10 ~ 15% 程度と見積もられる<sup>7)</sup>。これは、(n,γ) 反応の標準断面積として用いられている  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$  断面積の誤差が keV 領域で約 3% であることと比較すると、極めて不満足な現状であると言わざるを得ない。

個々の実験結果についてももう少し詳しく見てみると、Gibbons、Macklin による 1959 年<sup>8)</sup>、1965 年<sup>9)</sup> の値が、他の 2 グループに比較して大き目であることがわかる。実際には彼らのデータは  $^3\text{H}(p,n)^3\text{He}$  反応の測定から得られた断面積を、詳細平衡の原理を用いて  $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  断面積に換算したものである。これに対して他の 2 グループの結果は直接測定から得られたものであるため<sup>10, 11)</sup>、実験方法の違いに起因する誤差が生じている可能性もある。

評価済みデータライブラリに登録されているデータについても、ENDF/B-VI のデータはすべての実験値のほぼ平均的な値となっているのに対して、JENDL-3.2 では直接測定からのデータに近い値となっており、実験データ間の不一致がデータライブラリでの評価に反映していることがわかる。

### 3. $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ 断面積の高精度測定

我々は、2-(3) で述べたような状況から、 $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  断面積の再測定が必要であると考えている。具体的には以下の方法による測定を計画中である。

1) 中性子発生用  $^7\text{Li}$  ターゲットと GSDC の間に  $^{197}\text{Au}$  試料を置き、GSDC によ

る ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 反応の計測と同時に、 ${}^{197}\text{Au}(n,\gamma){}^{198}\text{Au}$ 反応からの $\gamma$ 線をNaI検出器で計測し、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 断面積を ${}^{197}\text{Au}(n,\gamma){}^{198}\text{Au}$ 断面積に対して相対的に決定する。ただしこの場合それぞれの反応に対する検出器が異なるため、それぞれの検出器の検出効率を十分正確に求めておく必要がある。

- 2) GSDC中に ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 薄膜を置き、 ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ 反応との相対測定を行う。この方法は、keV領域での ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ 断面積が1~2%の精度でわかっていること、またGSDCの検出効率が陽子、 $\alpha$ 粒子双方に対してほぼ同じ(~100%)であること、という2つの利点を備えているが、 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ は固体であるため、薄膜中で発生した $\alpha$ 粒子がGSDCの動作ガス中まで出てくる効率を正しく知っておかなければならない。なお、Borzakovらの測定も ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ 断面積に対して相対的に行われているため<sup>11)</sup>、この方法は彼らの結果を検証する実験としての意味も持っている。

この2つの方法を比較した場合、有効な入射中性子量に付随する誤差が小さくなるという点で後者の方が若干有利と思われる。しかし2-(3)でも述べたように、中性子による核反応断面積の測定では、実験方法そのものに伴う系統誤差が非常に問題となる。従って、異なる方法を用いてのクロスチェックが肝要であり、上記の2通りの実験の結果を比較・吟味することは重要である。

#### 4. まとめ

${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 断面積は、中性子による他の核反応断面積と比較して特に目立って精度が劣るわけではない。しかし冒頭で述べたように、この反応は、(n,p)、(n, $\alpha$ )反応など、荷電粒子を生成する反応の測定において比較参照のために用いることのできる数少ない反応のひとつである。従って、他の反応断面積よりも格段に高い精度が要求されており、実際 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 断面積データを高精度化することは、他の反応断面積の精度向上にもつながる。その意味で、現在入手可能なデータは、実験値、データライブラリで提供される値のいずれも改善の余地がある。我々も新しい測定を計画中であるが、他にも多くのグループによる様々な方法での確認が是非行われるべきであると思われる。

(本稿の執筆にあたり、有意義な助言を下された井頭政之先生(東京工業大学 原子炉研究所)に感謝いたします。)

## References

1. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, Wiley, New York, 1979  
N. Tsoufanidis, *Measurement and Detection of Radiation*, McGraw-Hill, New York, 1983, etc.
2. A.G.W. Cameron, Phys. Rev. 93, p.932, 1954
3. K. Brehm et al., Z. Phys. A330, p.167, 1988
4. P.E. Koehler and H.A. O'Brien, Phys. Rev. C39, p.1655, 1989
5. T. Shima et al., Nucl. Instr. Meth. A356, p.347, 1995
6. T. Shima et al., Proc. of the 6th Int. Symp. on Weak and Electromagnetic Interactions in Nuclei, p.621, World Scientific, Singapore, 1995
7. M.S. Smith, L.H. Kawano and R.A. Malaney, Astrophys. J. (Supplement) 85, p.219, 1993
8. J.H. Gibbons and R.L. Macklin, Phys. Rev. 114, p.571, 1959
9. R.L. Macklin and J.H. Gibbons, EANDC-50-S, Vol.1, Paper 13, 1965
10. R. Batchelor, R. Aves and T.H.R. Skyrme, Rev. Sci. Instr. 26, p.1037, 1955
11. S.B. Borzakov et al., Soviet J. Nucl. Phys. 35, p.307, 1982

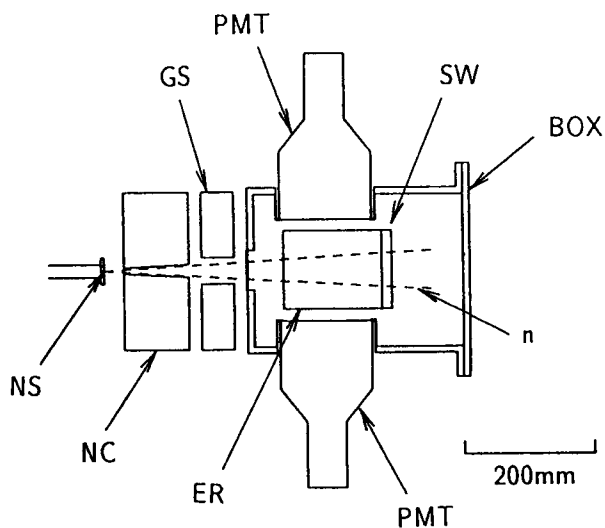


Fig. 1 GSDC の断面図（側方から見た図）。n: keV 中性子ビーム、PMT: 光電子増倍管、BOX: 密閉容器、NS:  $^7\text{Li}$  中性子源、ER: 有効領域 ( $10 \times 10 \times 15\text{cm}^3$ )、SW: センスワイヤー、GS:  $\gamma$ 線シールド (Pb 5cm)、NC: 中性子コリメータ (borated-paraffin 10cm)。

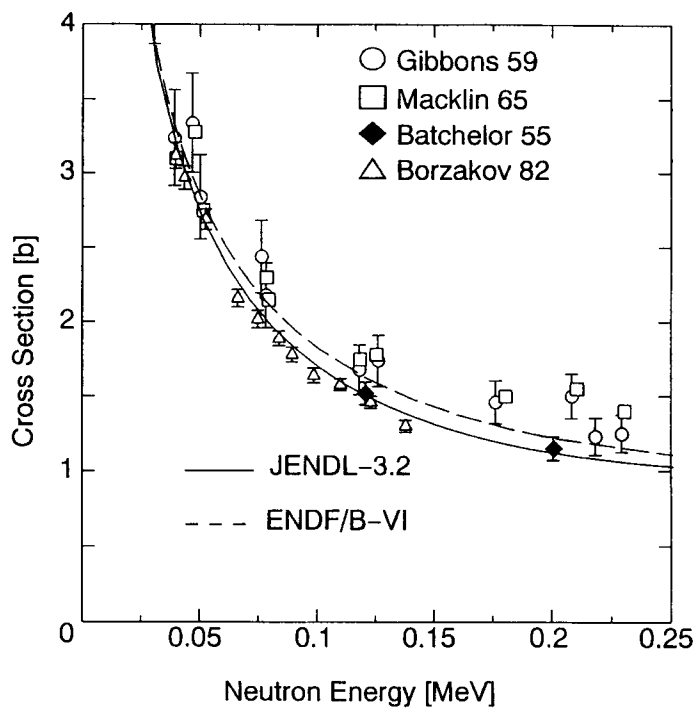


Fig. 2 2.5 ~ 250 keV における  $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$  断面積データの比較（データの出典については本文参照）