

Improvement of Experimental Data Accuracy for Neutron Capture Cross Section

(中性子捕獲断面積測定データの
精度向上に関する研究)

李 在 洪

目 次

第1章 緒言	1
1.1 本研究の背景と目的	1
1.2 中性子捕獲断面積データの評価法の現状	3
1.3 実験施設の現状	6
1.4 測定手法の現状と系統誤差要因の抽出	9
1.4.1 中性子捕獲断面積測定法の現状	9
1.4.2 中性子捕獲断面積導出の原理及び系統誤差要因の抽出	11
1.5 測定対象核種の選定理由と精度の高い実験の必要性	14
1.6 本論文の構成とその概要	21
参考文献	22
第2章 京大炉ライナックにおける中性子捕獲断面積測定の現状と課題	25
2.1 京大炉ライナックの概要	25
2.2 京大炉ライナック中性子源の概要	28
2.3 中性子捕獲断面積測定の実況と課題	30
2.4 まとめ	35
参考文献	36
第3章 中性子捕獲イールドの決定法の高度化	37
3.1 バックグラウンドの評価法の検討	40
3.1.1 C_6D_6 検出器に対する散乱中性子の影響評価	40
3.1.2 C_6D_6 検出器に対する散乱ガンマ線の影響評価	42
3.1.3 BG0検出器に対する散乱中性子の影響評価	44
3.1.4 BG0検出器に対する散乱ガンマ線の影響評価	47
3.1.5 試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンドの評価	49

3.2	中性子捕獲イールドの規格化	56
3.2.1	波高重み法を用いた規格化	56
3.3	まとめ	61
	参考文献	62
第4章	補正方法の高度化	63
4.1	評価済核データライブラリを用いた従来の補正法の検討	64
4.1.1	断面積の信頼性が高い場合の補正	64
4.1.2	断面積の信頼性が確認されていない場合の補正	69
4.2	共鳴解析コードを用いた補正方法の開発	77
4.2.1	共鳴解析	78
4.2.2	共鳴解析を適用した補正法	88
4.3	まとめ	90
	参考文献	91
第5章	全エネルギー検出器を用いた ¹⁵¹ Eu、 ¹⁵³ Euの中性子捕獲断面積測定	92
5.1	測定試料	92
5.2	実験体系	94
5.3	測定	95
5.4	データ処理	98
5.4.1	試料の原子核数の決定	100
5.4.2	中性子捕獲計数率の導出	101
5.4.3	規格化因子の決定	102
5.4.4	デッドタイムの補正	103
5.4.5	試料中の同位体による不純物効果の補正	105
5.4.6	試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正	107
5.4.7	入射中性子束の導出	109

5.5	誤差評価	111
5.6	結果と考察	118
5.6.1	^{151}Eu の中性子捕獲断面積	119
5.6.2	^{153}Eu の中性子捕獲断面積	119
5.7	まとめと結論	122
	参考文献	123

第6章	全吸収型検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定	124
6.1	測定試料	124
6.2	実験体系	126
6.3	測定	127
6.4	データ処理	130
6.4.1	試料の原子核数の決定	132
6.4.2	中性子捕獲計数率の導出	133
6.4.3	規格化因子の決定	137
6.4.4	デッドタイムの補正	138
6.4.5	試料中の同位体による不純物効果の補正	140
6.4.6	試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正	142
6.4.7	入射中性子束の導出	144
6.5	誤差評価	146
6.6	測定結果の検討	150
6.7	共鳴解析	153
6.8	共鳴解析を適用した試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正	156
6.9	結果と考察	157
6.9.1	^{151}Eu の共鳴パラメータ	157
6.9.2	^{151}Eu の中性子捕獲断面積	157
6.9.3	^{153}Eu の共鳴パラメータ	158

6.9.4 ^{154}Eu の中性子捕獲断面積	158
6.10 まとめと結論	163
参考文献	164
第7章 結論	165
謝辞	169
発表論文の一覧	171

図の目録

図1.2-1 JENDL-4.0に収納されている金の中性子捕獲断面積	4
図1.2-2 中性子反応断面積データの評価の流れ	5
図1.5-1 燃焼度の増加に伴う無限増倍率の変化(冷却期間を5年間とした場合)	17
図1.5-2 PWR使用済み燃料(30GWd/t)中のFP核種の中性子吸収割合と冷却期間	17
図1.5-3 ^{153}Eu における ^{155}Gd の生成過程	18
図1.5-4 ^{153}Eu の中性子断面積の実験値と評価値の現状	18
図1.5-5 ^{151}Eu の中性子断面積の実験値と評価値の現状	19
図1.5-6 2.5～8.5eV領域における ^{151}Eu の中性子捕獲断面積の評価値の比較	19
図2.1-1 京都大学原子炉実験所の電子線型加速器(京大炉ライナック)の概略	26
図2.1-2 京大炉ライナックの配置図	27
図2.2-1 Ta-Targetの断面図	29
図2.3-1 C_6D_6 検出器の外観	32
図2.3-2 BG0検出器の構造	33
図3.1-1 C_6D_6 検出器の散乱中性子検出感度	41
図3.1-2 Blank及び共鳴フィルタの測定結果の比較	43
図3.1-3 BG0検出器の散乱中性子検出感度	45

図3. 1-4	^{10}B 試料に対する各測定で得たTOFスペクトル	48
図3. 1-5	各試料の試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンドの $^{\text{nat}}\text{Zr}$ に対する割合と原子番号に対する相関関係	51
図3. 1-6	計算体系概要図	53
図3. 1-7	八角形の水モデレータ体系	53
図3. 1-8	八角形の水モデレータから発生する2. 2MeVのガンマ線の検出時間分布	54
図3. 1-9	バックグラウンド評価結果の比較	54
図3. 2-1	中性子捕獲によって形成された複合核の崩壊モード	59
図3. 2-2	C_6D_6 検出器に対する応答関数	60
図3. 2-3	C_6D_6 検出器に対する波高重み関数	60
図4. 1-1	評価済核データライブラリにおける ^{10}B 反応断面積の不確かさ	66
図4. 1-2	評価済核データライブラリにおける ^{10}B 反応断面積	66
図4. 1-3	補正前後の相対入射中性子束の比較	67
図4. 1-4	厚さ2、4、8mmの ^{10}B 試料に対する相対入射中性子束の比較	67
図4. 1-5	金の中性子捕獲断面積の補正前後の比較	68
図4. 1-6	^{232}Th から ^{233}U が生成される過程	71
図4. 1-7	厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (21～25eV領域)	72
図4. 1-8	厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (58～72eV領域)	73
図4. 1-9	厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (110～134eV領域)	74
図4. 1-10	厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (160～210eV領域)	75
図4. 1-11	厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正後の共鳴面積の比較	76
図4. 2-1	共鳴解析を用いた補正法を適用したときの厚さの異なる ^{232}Th 試料 に対する補正後の共鳴面積の比較	89
図5. 2-1	C_6D_6 検出器を用いた測定における中性子ビームラインの配置図	94

図5. 3-1	C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定の測定回路	97
図5. 4-1	C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定に対するデータ処理の流れ	99
図5. 4-2	¹⁵¹ Eu試料におけるC ₆ D ₆ 検出器のデッドタイム補正係数	104
図5. 4-3	¹⁵¹ Eu、 ¹⁵³ Eu試料中の同位体による不純物効果に対する補正係数	106
図5. 4-4	C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定における試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数	108
図5. 4-5	C ₆ D ₆ 検出器型を用いた測定における入射中性子束	110
図5. 5-1	JENDL-4. 0、ENDF/B-VII. 1を用いた ¹⁵¹ Eu試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数(上)と評価済核データライブラリ間の補正係数の比較(下)	115
図5. 5-2	JENDL-4. 0、ENDF/B-VII. 1を用いた ¹⁵³ Eu試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数(上)と評価済核データライブラリ間の補正係数の比較(下)	116
図 5. 5-3	JENDL-4. 0、ENDF/B-VII. 1を用いたときの ¹⁵¹ Eu試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数間の差の最大値と中性子エネルギービン幅との関係	117
図5. 6-1	C ₆ D ₆ 検出器を用いて測定した ¹⁵¹ Euの中性子捕獲断面積と評価値等との比較	120
図5. 6-2	C ₆ D ₆ 検出器を用いて測定した ¹⁵³ Euの中性子捕獲断面積と評価値等との比較	121
図6. 2-1	BGO検出器を用いた測定における中性子ビームラインの配置図	126
図6. 3-1	BGO検出器を用いたTOF測定の測定回路	129
図6. 4-1	BGO検出器を用いた測定におけるデータ処理の流れ	131
図6. 4-2	¹⁵¹ Eu試料で散乱した中性子と2. 2MeVガンマ線のバックグラウンドの効果(上)及びその効果を補正した ¹⁵¹ Eu中性子捕獲断面積の評価値との比較(下)	135
図6. 4-3	¹⁵³ Eu試料で散乱した中性子と2. 2MeVガンマ線のバックグラウンドの効果(上)及びその効果を補正した ¹⁵³ Eu中性子捕獲断面積の評価値との比較(下)	136
図6. 4-4	¹⁵¹ Eu試料におけるBGO検出器のデッドタイム補正係数	139
図6. 4-5	¹⁵¹ Eu、 ¹⁵³ Eu試料中の同位体による不純物効果に対する補正係数	141
図6. 4-6	BGO検出器を用いた測定における試料中での中性子自己遮蔽・多重	

散乱効果の補正係数	143
図6. 4-7 BGO検出器を用いた測定における入射中性子束の相対値	145
図6. 6-1 本測定で得られた ¹⁵¹ Euの中性子捕獲断面積（1eV～10eV領域）と評価値との比較（上）及び両者の差異（下）	151
図6. 6-2 本測定で得られた ¹⁵³ Euの中性子捕獲断面積（1eV～10eV領域）と評価値との比較（上）及び両者の差異（下）	152
図6. 8-1 JENDL-4. 0及び修正された評価値を用いた ¹⁵¹ Eu試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数（2. 5eV～8. 5eV領域）	156
図6. 9-1 BGO検出器を用いた ¹⁵¹ Eu中性子捕獲断面積（上）とC ₆ D ₆ 検出器とBGO検出器を用いた ¹⁵¹ Eu中性子捕獲断面積の比較（下）	159
図6. 9-2 BGO検出器を用いた ¹⁵¹ Eu中性子捕獲断面積（10～20eV領域）と評価値との比較（上）及び両者の差異（下）	160
図6. 9-3 BGO検出器を用いた ¹⁵³ Eu中性子捕獲断面積（上）とC ₆ D ₆ 検出器とBGO検出器を用いた ¹⁵³ Eu中性子捕獲断面積の比較（下）	161
図6. 9-4 BGO検出器を用いた ¹⁵³ Eu中性子捕獲断面積（10～21eV領域）と評価値との比較（上）及び両者の差異（下）	162

表の目録

表1. 3-1 中性子核反応断面積測定が行われているTOF施設の特徴	8
表1. 5-1 ¹⁵³ Euの熱中性子捕獲断面積の過去の実験値と評価値の比較	20
表1. 5-2 ¹⁵¹ Euの熱中性子捕獲断面積の過去の実験値と評価値の比較	20
表2. 3-1 京大炉ライナックを用いた中性子捕獲断面積測定に対する主な研究成果	34
表3. 1-1 測定試料の仕様	50
表4. 1-1 補正後の金の4. 9eV共鳴面積の比較	68
表4. 1-2 測定試料の仕様	71
表4. 2-1 共鳴解析で得られた ²³² Thの共鳴パラメータ	87
表5. 1-1 C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定で使用した試料の仕様	92
表5. 1-2 C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定の試料の不純物一覧	93
表5. 3-1 C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定における京大炉ライナックの運転条件	96

表5.3-2	C ₆ D ₆ 検出器を用いた測定における各runの測定時間	96
表5.5-1	¹⁵¹ Eu、 ¹⁵³ Euの測定試料の統計誤差	111
表5.6-1	¹⁵¹ Eu、 ¹⁵³ Euの熱中性子捕獲断面積と共鳴積分の本測定結果と Leinweberらの結果及び評価値との比較	118
表6.1-1	BG0検出器を用いた測定で使用了試料の仕様	124
表6.1-2	BG0検出器を用いた測定の試料の不純物一覧	125
表6.3-1	BG0検出器を用いた測定における京大炉ライナックの運転条件	128
表6.3-2	BG0検出器を用いた測定における各runの測定時間	128
表6.5-1	¹⁵¹ Eu、 ¹⁵³ Euの測定試料の統計誤差	146
表6.5-2	BG0検出器を用いた中性子捕獲計数率の系統誤差	149
表6.7-1	共鳴解析で得られた ¹⁵¹ Euの共鳴パラメータ	154
表6.7-2	共鳴解析で得られた ¹⁵³ Euの共鳴パラメータ	155

第1章 緒言

1.1 本研究の背景と目的

中性子断面積は、原子力分野、医学分野、天体核物理分野等の幅広い分野で必要とされる物理量である。特に中性子捕獲反応は、原子炉内の中性子の振る舞いを詳しく知るために重要な反応の一つであり、中性子捕獲断面積データは原子炉の安全設計を行うために重要な役割を担っている。中性子と原子核の相互作用に関する物理データ（総称して核データという）は評価済核データライブラリと呼ばれるデータベースとしてまとめられている。評価済核データライブラリの整備は、国家的エネルギーセキュリティの観点から、各国で独自の核データライブラリを整備し維持するための活動が進められてきた。日本では国産のライブラリとして JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) が整備され、JENDL-4.0 [1]が最新版として公開されている。JENDL-4.0 は、収納核種数とその信頼性において、米国の ENDF/B-VII.1 (Evaluated Nuclear Data File) [2]や欧州の JEFF-3.2 (Joint Evaluated Fission and Fusion File) [3]と並び立つ世界三大核データライブラリの一つとして高い評価を受けている。原子力システムの核特性予測には、モデル化や計算手法に伴う誤差と計算に用いる核データに起因する誤差が伴うが、近年の計算機性能や計算手法の飛躍的な進歩により、計算に伴う誤差の割合が減少し、核データ誤差の占める割合が支配的になりつつある。核データの誤差に起因する核特性予測の不確かさを定量的に評価することが必要になるが、それには誤差の大きさ（分散）とともにそれらの相関（共分散）の情報が必要となる。そのため、核データライブラリには核データの不確かさを表す共分散データの整備が要求されており、JENDL-4.0 においても一部の核種について共分散データが追加されている。核データを用いて原子炉の設計を行う場合、核データの不確かさは原子炉の設計裕度と密接に関連しているため、核データの不確かさは原子炉の安全性と経済性に影響を与える重要な情報である。

核データライブラリ整備のための核データ評価は、過去に行われた実験と理論計算に基づいて行われる。ところが、過去に行われた実験値の間には誤差の範囲を超えた不一致が見られることがしばしばあり、そのような場合、評価者は両方の実験値の誤差を包含するような大きい誤差を採用することが多い。実験値の間に誤差範囲を超えた差異が存在するということは、実験の系統誤差を見落としている可能性があり、認識しきれていない系統誤差を明らかにしない限り、核データの不確かさを低減することは困難である。

そこで、本研究では従来の中性子捕獲断面積測定手法において見過ごされていた系統誤差要因を明らかにするとともに、それらの系統誤差を低減するための手法を開発することにより、核データの高精度化に資することを目的とした。1.2 節以降では、中性子捕獲断面積データの評価法の現状、実験施設の現状、測定手法の現状をレビューした後、現状の中性子捕獲断面積測定法における系統誤差要因の可能性

について検討する。さらに、本研究で測定対象とする核種の選定理由と精度の高い測定の必要性について述べ、最後に本論文の構成とその概要についてまとめる。

1.2 中性子捕獲断面積データの評価法の現状

中性子捕獲断面積の中性子エネルギー依存性の一例として、JENDL-4.0 に収納されている金 (^{197}Au) の中性子捕獲断面積を図 1.2-1 に示す。中性子エネルギー領域は、熱中性子領域、分離共鳴エネルギー領域、非分離共鳴エネルギー領域に大別される。中性子共鳴反応は中性子捕獲によって生成される残留核の内部波動関数のエネルギー固有値と外部から入射する中性子の波動関数がマッチングしたときに局所的に断面積が極値を持つ物理現象であるため、複合核の内部波動関数がわからない限りその共鳴エネルギーや幅を理論的に予測することは困難である。そこで、分離共鳴エネルギー領域の中性子捕獲断面積は、中性子飛行時間分析法（以後は TOF 法という）等によって測定された微分実験データを R-matrix 理論に基づいた共鳴解析コード[4, 5, 6]を用いてフィッティングすることで評価される。分離共鳴エネルギー領域の中性子捕獲断面積は、共鳴パラメータ（共鳴エネルギー E_R 、全角運動量 J 、軌道角運動量 l 、チャネルスピン s 、共鳴の全幅 Γ 、中性子幅 Γ_n 、放射幅 Γ_γ 、核分裂幅 Γ_f 等）を与えれば R-matrix 理論[7, 8]に基づいて断面積を一意的に表すことができる。前述したように、共鳴反応のエネルギーは複合核の内部波動関数の固有値であるので、中性子の運動エネルギーが 0 以下の領域（中性子束縛エネルギー以下の領域）にも共鳴反応エネルギーは存在する。このような共鳴を negative resonance というが、negative resonance は測定によって直接共鳴を観測することは不可能である。しかしながら negative resonance の存在は熱中性子領域の断面積に影響を与えるため、熱中性子捕獲断面積の絶対値が既知であれば、その値を再現するように共鳴パラメータを決定することができる。このように、熱～分離共鳴領域の中性子捕獲断面積は理論的な予測が難しいため、微分測定から得られた分離共鳴領域の共鳴パラメータと、放射化法等から決定される熱中性子捕獲断面積の絶対値が極めて重要となる。

非分離共鳴エネルギー領域では、核反応モデル計算コード[9, 10]を利用して断面積を理論的に予測することが可能である。核反応断面積は、直接過程、前平衡過程及び複合核過程を記述する核モデル（光学モデル、歪曲波ボルン近似、励起子モデル、統計モデルなど）によって計算される。核反応モデルを計算するためには、透過係数 T_g 、レベル密度 ρ 、中性子強度関数 S_n 、ガンマ強度関数 S_γ などの平均パラメータが必要である。ところが、非分離共鳴エネルギー領域では共鳴の平均幅が共鳴間隔を上回っているため、実験的に個々の共鳴を分離して測定することは物理的に不可能なので、実験では平均断面積しか取得することはできない。そこで非分離共鳴エネルギー領域の平均パラメータは、分離共鳴エネルギー領域で実験的に取得した共鳴パラメータの統計的振る舞いから平均値を推定する。さらに、理論計算によって得られた断面積は、実験で得られた平均断面積を再現するように規格化されるため、非分離共鳴エネルギー領域の平均断面積の実験値も重要である。核データ評価の流れを図 1.2-2 に示す。

以上のことから、評価済核データライブラリの中性子反応断面積データの品質は

実験データの精度に強く依存することがわかる。特に重要なのは、熱中性子エネルギー領域と非分離共鳴エネルギー領域における平均断面積の絶対値と、分離共鳴エネルギー領域の共鳴パラメータの実験値である。そこで、本論文では、熱～非分離共鳴エネルギー領域における TOF 法を用いた微分断面積測定を研究対象とした。

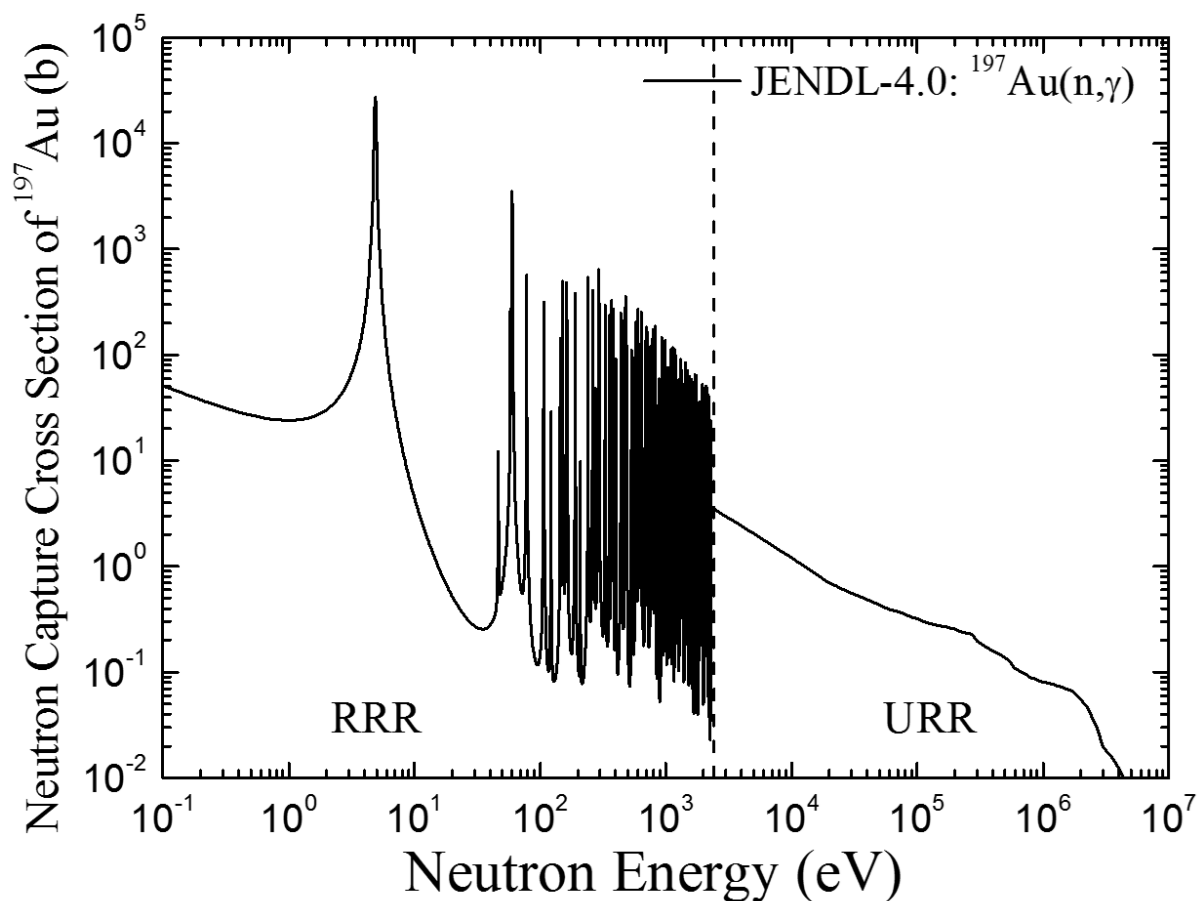


図 1.2-1 JENDL-4.0 に収納されている金の中性子捕獲断面積

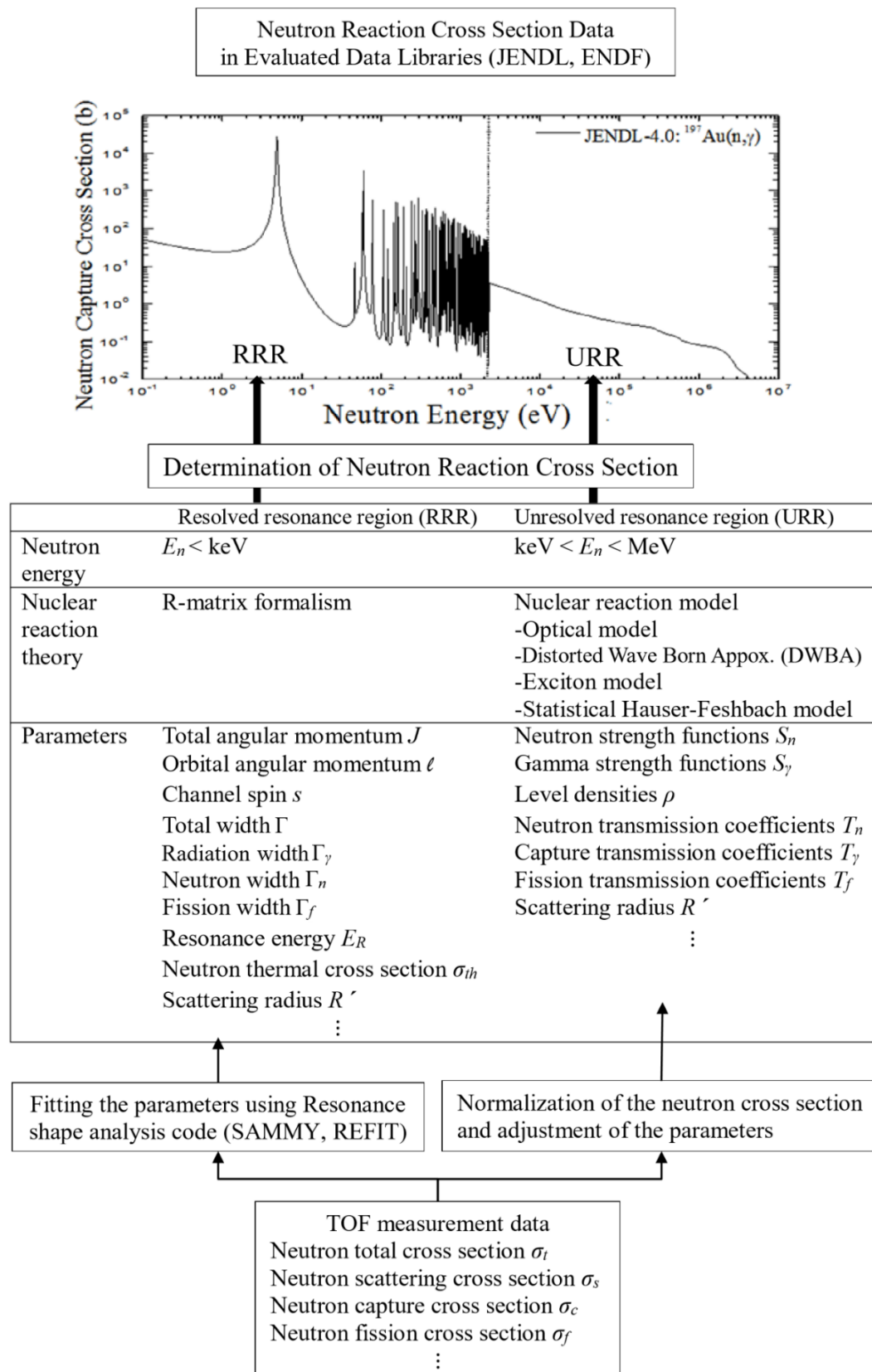


図 1. 2-2 中性子反応断面積データの評価の流れ

1.3 実験施設の現状

中性子反応断面積データの精度向上のニーズを受けて、以前から国内外ではパルス中性子源を用いた TOF 法による核データ測定研究が行われている。本節では TOF 法を用いた核データ測定に供されるパルス中性子源施設の現状をレビューする。

パルス中性子源としては、加速した電子を重金属のターゲットに照射することで発生する制動 X 線による光中性子反応を利用した電子ベースの加速器中性子源と、加速した陽子などの荷電粒子を重金属のターゲットに照射することで核反応または核破砕反応を引き起こして中性子を発生させる荷電粒子ベースの加速器中性子源に大別される。核データ測定に利用されている代表的な中性子源を表 1.3-1 に示す。

電子ベースの加速器中性子源としては、米国のオークリッジ国立研究所の電子線型加速器 (ORELA) [11]、米国の RPI 研究所の電子線型加速器[12]、日本の京大炉ライナック (KURRI-LINAC) [13]、欧州委員会共同研究センターの標準物質及び計量技術研究所 (EC-JRC-IRMM) の GELINA[14]等が挙げられる。電子ベースの加速器中性子源では、光核反応から蒸発スペクトルを有する MeV 中性子を発生させることが可能であるため、中性子モデレータを最適化することにより、熱～MeV 領域の白色中性子スペクトルを発生させることができる。電子の加速エネルギーは 30～100MeV、パルス幅は施設によって異なるが 2ns～4μs の範囲が用いられる。GELINA では post-acceleration bunching technique と呼ばれる技術により、パルス幅 10ns、ピーク電流 10A のパルスを、パルス幅 1ns、ピーク電流 100A に圧縮することにより、高輝度の短パルスを実現している[15]。京大炉ライナックでも short mode と long mode の 2 種類の運転モードを選択することが可能なため、100ns のパルス幅で約 5A のピーク電流を得ることができる。しかしながら、電子 1 個あたりの発生中性子数が約 10^{-3} 程度と少ないため、後で述べる核破砕中性子源に比べると中性子束は小さい。また、中性子の発生に伴って強力な制動 X 線（ガンマフラッシュという）が発生することが高エネルギー領域の核データ測定を困難にする一つの要因となる。

荷電粒子ベースの加速器中性子源としては、(d,n)反応、(p,n)反応などの核反応を利用する方法と、核破砕反応を利用する方法がある。前者の反応では keV 領域の核データ測定に ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応が一般的に利用される。 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応を利用したパルス中性子源では、同反応のしきい値の 1.881MeV を上回るエネルギーの陽子をターゲットに照射すると keV 領域に準単色の中性子を発生させることができる。 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応を利用したパルス中性子源としては、日本では東京工業大学のペレトロン加速器 [16, 17]、欧州ではドイツ・カールスルーエ研究所の Van de Graff 加速器[18, 19]が精力的に keV 領域の中性子捕獲断面積の測定を行っている。東工大のペレトロン施設は、パルス幅は約 1.5ns と短い、中性子飛行距離を約 0.1m と短くすることで中性子束を増やす工夫をしており、エネルギー分解能よりむしろ高感度且つ高い SN 比で断面積を取得することに重点を置いた研究を行っている。

近年の加速器技術の飛躍的な進歩によって、高エネルギー大強度陽子加速器を利用した核破砕中性子源が利用可能になっている。高エネルギー陽子加速器を利用し

ている研究施設として、欧州では、欧州原子核研究機構（CERN）において n_TOF プロジェクト[20, 21]が 1999 年から開始されており、また米国では、ロスアラモス国立研究所中性子源施設（LANSCE）[22, 23, 24]において核破砕反応による大強度パルス中性子源を用いた測定が行われている。日本では、大強度陽子加速器施設（J-PARC）の物質・生命科学実験施設（MLF）において、中性子核反応測定装置（ANNRI）[25, 26]が開発・設置され、測定が行われている。n_TOF 施設では、パルス幅が 6ns と短く、中性子飛行距離も約 185m と長く、微細な共鳴構造を高いエネルギー分解能で測定することに重点を置いた研究を進めている。LANSCE と J-PARC ではパルス幅は 100ns 程度、中性子飛行距離は約 20m と比較的短いため、エネルギー分解能では n_TOF に劣るが、大強度の中性子束で実験を行える利点を生かし、mg オーダーの微量な試料を用いた測定に重点を置いた研究を進めている。J-PARC の ANNRI 装置ではビーム出力 300kW の時点で LANSCE と同程度のフラックスを確認しており、最終目標としているビーム出力 1MW では世界最高の中性子束を実現できる見通しである。しかし、J-PARC の場合、基本運転モードがダブルバンチ運転であり、約 100ns のパルス幅を持つビームが約 500ns のインターバルを持って 2 つずつ発生するダブルパルスとなっているため、実質的な時間分解能は約 700ns となり、100eV 以上のエネルギー領域で共鳴の微細構造を測定するのは難しいという事情がある。

パルス中性子源施設の現状を整理すると以下のとおりである。世界の現状としては GELINA と n_TOF 施設が短パルス且つ中性子飛行距離の長いビームラインを有しており、高エネルギー分解能測定では最先端の中性子源である。一方、核破砕中性子源による高強度中性子束を利用した高感度測定を行える施設としては、LANSCE と J-PARC が最先端の中性子源である。非分離共鳴エネルギー領域の平均断面積測定では東工大のペレトロン施設やカールスルーエ研究所の Van de Graff 加速器施設の準単色中性子源が重要な役割を担っている。国内の現状としては、熱～熱外中性子エネルギー領域の核データ測定を行える施設は、J-PARC 施設と京大炉ライナックだけである。ところが J-PARC 施設の場合、前述のとおりダブルパルスの問題により共鳴パラメータの測定に困難を伴う問題があり、さらには核燃料物質や非密封放射性同位体の使用ができないため、京大炉ライナックは J-PARC 施設とは相補的な中性子源施設としての役割が大きい。そこで、本研究では京大炉ライナックの特徴を生かし、熱領域及び分離共鳴エネルギー領域の測定に着目して系統誤差要因の抽出を行った。本研究で得られた知見は J-PARC での実験解析にも適用することが可能である。京大炉ライナックのスペックについては次章で詳しく述べる

表1. 3-1 中性子核反応断面積測定が行われているTOF施設の特徴

Facility	Type	Particle Energy (MeV)	Target	Pulse width (ns)	Frequency (Hz)	Flight length (m)	Moderator	Country	Neutron Energy
PNF [27]	e ⁻	65	Ta	1000	10	12	water	Korea	0.01 - 200eV
nELBE [28,29]	e ⁻	30	Pb	0.005	102-203kHz	5-7	-	Germany	10keV - 10MeV
ORELA [11]	e ⁻	140	Ta	2-30	1-1000	9-200	water	USA	0.01eV - 1MeV
RPI [12]	e ⁻	60	Ta	5-1000	500	15,25,30,100,250	water, polyethylene, graphite, lead	USA	0.001eV - 20MeV
GELINA [14]	e ⁻	80-140	U	1	50-800	10-400	water	Belgium	0.01eV - 20MeV
KURRI-LINAC [13]	e ⁻	30	Ta	100	50,200	10, 12.7, 24	water	Japan	0.01eV - 100keV
KIT [18,19]	p	3.7	Li	1	250kHz	0.3	-	Germany	3 - 225keV
TIT [16,17]	p	3	Li	1.5	2,4MHz	0.1, 0.2	-	Japan	10 - 90,550keV
LANSCÉ-Lujan [22,23,24]	p	800	W	135	20	20.3	LH ₂ , water	USA	0.01eV - 1MeV
LANSCÉ-WNR [19,20]	p	800	W	0.1	13900	8-90	-	USA	100keV - 600MeV
n_TOF [20,21]	p	20000	Pb	6	0.4	185	water	Switzerland	0.01eV - 250MeV
J-PARC/MLF-ANNRI [25,26]	p	3000	Hg	100 ^{a)}	25	21.5, 27.9	H ₂	Japan	0.01eV - 10keV

a) Double-bunch mode: pulsed protons consist of two bunches, each with a pulse width of 100ns, at intervals of 500ns.

1.4 測定手法の現状と系統誤差要因の抽出

1.4.1 中性子捕獲断面積測定法の現状

中性子捕獲断面積の測定法は、放射化法による測定と即発ガンマ線法による測定に大別される。

放射化法は中性子捕獲反応の残留核が放射性核種である場合にのみ適用可能な方法であり、測定される物理量は平均断面積である。この手法は主に熱中性子捕獲断面積の絶対値決定に利用される重要な手法の一つではあるが、TOF 法を用いた微分断面積測定ではないので本研究の対象とはしていない。

即発ガンマ線法は中性子捕獲反応の残留核の励起状態からの即発ガンマ線を測定することによって捕獲反応数を定量する方法であり、あらゆる核種に適用できる。さらに、即発ガンマ線検出のタイミング情報から、TOF 法を用いて微分断面積を求めることができる。即発ガンマ線法には、全エネルギー検出器を用いる手法と全吸収型検出器を用いる手法がある。

前者の方法では、検出効率がガンマ線のエネルギーに比例する検出器を用いることより、捕獲イベントに対する検出確率を一定に保つことができる。ただし、検出効率を十分小さくして、中性子捕獲イベント当たり 2 本以上の捕獲ガンマ線を同時に検出しないことが前提条件となる。そのため、バックグラウンドを小さくすることができるが、統計精度が低いという短所がある。このような検出器として、1963 年に Moxon-Rae 検出器[30]が開発されたが、ガンマ線のエネルギーが 0.5MeV より小さくなると検出効率がガンマ線のエネルギーに比例しなくなる問題点などがあつた。この対案として、1967 年に Macklin らによって波高重み法を適用した断面積導出手法が開発された[31]。波高重み法を用いれば、あらゆる検出器に対して前者の方法を適用することが可能となる。Macklin らは C_6F_6 検出器に波高重み法を適用したが、 C_6F_6 検出器に含まれるフッ素がバックグラウンドの要因となることが問題点として指摘された。そのような理由から、現在では、中性子感度が小さい重水素を用いた C_6D_6 検出器が主流となっている。GELINA[32, 33]、ORELA[34]、n_TOF[35, 36]、京大炉ライナック[12]でも C_6D_6 検出器を使用している。

後者の方法では、試料を多数の検出器で取り囲むことによって検出効率を十分高くすることにより（理想的な検出器は幾何学的には 4π 、100%の検出効率を持つ）、捕獲ガンマ線スペクトルとガンマ線多重度に依存することなく、捕獲イベントに対する検出効率を一定に保っている。そのため、統計精度の高いデータを得ることができるが、試料による散乱中性子等の影響を受けやすく、バックグラウンドが大きくなるという短所がある。このような検出器としては、1970 年代までは、直径 1m 以上の大型タンクから成る大型液体シンチレータタンクが、ORELA、RPI などで利用されていた。しかし、試料によって散乱された中性子がタンク中のシンチレータ内で減速、吸収されて、水素による 2.2MeV の中性子捕獲ガンマ線が発生することによってバックグラウンドが非常に大きくなるという問題があつた。最近では、バツ

クグラウンドを低減するために、密度が高く原子番号の大きい原子から成る無機シンチレータを用いることによって小型化している。RPI では 16 台の NaI(Tl)シンチレータを取り合わせた検出器[37]、LANSCE では DANCE と呼ばれている 162 台の BaF₂シンチレータを取り合わせた検出器[38]、n_TOF では TAC と呼ばれている 40 台の BaF₂シンチレータを取り合わせた検出器[39]、京大炉ライナックでは、12 台の BGOシンチレータを取り合わせた検出器[40, 41]が開発され、中性子捕獲断面積測定に用いられている。

その他の手法としては、ANNRI では全立体角 Ge 検出器を用いて、基底遷移ガンマ線の遷移強度を測定することによって分析する新たな手法も開発されているが、本手法は開発段階の手法なので研究対象とはしていない。

1.4.2 中性子捕獲断面積導出の原理及び系統誤差要因の抽出

本節では TOF 法による中性子捕獲断面積導出の原理について説明し、系統誤差要因の抽出を行う。

TOF 法は、中性子源より放出された中性子が試料に到達するまでの時間を測定し、その中性子のエネルギーを求める手法である。即発ガンマ線法では即発ガンマ線を検出したタイミングを中性子が試料に到達したタイミングであるとみなし、即発ガンマ線の検出のタイミングと中性子発生タイミングの時間差をとることによって、次式から入射中性子のエネルギー情報を得る。

$$E_n = \frac{1}{2} m_n v^2 = \frac{m_n}{2} \left(\frac{L}{T} \right)^2 \quad (1.4.1)$$

ここで、 E_n は中性子エネルギー、 m_n は中性子の質量、 v は中性子の飛行速度、 L は中性子の飛行距離、 T は中性子の飛行時間を示す。

中性子エネルギー E_n は (1.4.1) 式から

$$E_n (eV) = \left(\frac{72.3 \times L (m)}{T (\mu sec)} \right)^2 \quad (1.4.2)$$

となる。

中性子捕獲イールド（単位時間あたりに試料中で中性子が捕獲された事象数） Y_s は、試料の厚さ n_s (atoms/cm²)、単位時間あたりに試料に入射する中性子数 ϕ_n (/s) を用いて、

$$Y_s = \phi_n \cdot n_s \cdot \sigma_\gamma \quad (1.4.3)$$

と表すことができる。ここで、 σ_γ は中性子捕獲断面積 (cm²) である。(1.4.3) 式より、中性子捕獲断面積 σ_γ は、

$$\sigma_\gamma = \frac{Y_s}{n_s \cdot \phi_n} \quad (1.4.4)$$

となる。TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定では、試料に入射する中性子数を求めるのに、断面積が既知の標準試料を用いるのが一般的である。標準として国際的に良く用いられる反応としては、¹⁰B(n,αγ)反応、¹⁹⁷Au(n,γ)反応、²³⁵U(n,f)反応が挙げられる。熱～熱外中性子領域では ¹⁰B(n,αγ)反応がしばしば用いられるので、ここで

は標準試料を用いた場合の変数には添え字で B を付することとする。(1.4.3)式より試料に入射する中性子数 ϕ_n は、

$$\phi_n = \frac{Y_B}{n_B \cdot \sigma_B} \quad (1.4.5)$$

と表される。ここで、 Y_B は標準試料の中性子捕獲イールド、 n_B は標準試料の原子核数、 σ_B は標準断面積である。式(1.4.4)、式(1.4.5)から、次式が導かれる。

$$\sigma_\gamma = \frac{n_B}{n_s} \cdot \frac{Y_s}{Y_B} \cdot \sigma_B \quad (1.4.6)$$

ただし、(1.4.6)式は無限に薄く不純物の含まれていない理想的な試料に対するものであって、実際には様々な補正が必要である。測定試料と標準試料に対する補正項をそれぞれ f_s 、 f_B と定義すると、中性子捕獲断面積は次式で表される。

$$\sigma_\gamma = \frac{n_B}{n_s} \cdot \frac{Y_s}{Y_B} \cdot \frac{f_s}{f_B} \cdot \sigma_B \quad (1.4.7)$$

すなわち、中性子捕獲断面積は試料の厚さに関する項、中性子捕獲イールドに関する項、補正に関する項と標準断面積の積によって導出される。

以下では、それぞれの項について、系統誤差要因を検討した。それぞれの項の系統誤差要因として、以下のことが考えられる。

- ・ 試料の厚さに関する項

試料の厚さの決定は、一般には試料の重量及び寸法の測定により行われる。一方、試料が密封された放射性核種である場合には、放射能計測、カロリメータによる熱量計測等の非破壊分析による方法が用いられる。本論文では、重量・寸法測定による方法を測定対象とした。なお、非破壊分析による方法については、近年重要性が認識され、国内では日本原子力研究開発機構の原田らのグループが研究プロジェクトとして取り組んでいる[42]。

試料の厚さの決定は、試料中の原子核数、試料のサイズや一様性、中性子束の均一性、照射された試料の位置も重要なファクターとなる。本論文で行うデータ解析では、これらの誤差要因についても考慮することとした。

- ・ 中性子捕獲イールドに関する項

中性子捕獲イールドの決定では、TOF スペクトル中のバックグラウンドの決定と絶対値を求めるための規格化因子の決定が系統誤差要因となり得る。

バックグラウンド成分は施設固有のものなので、施設毎に評価方法を検討する必

要があるが、京大炉ライナックにおいてはバックグラウンド評価手法が十分に確立されているとは言い難い。また、規格化因子の決定法については、手法は既に確立されているが、京大炉ライナックでの実験には反映されていないのが現状である。そこで、本論文ではバックグラウンドの決定及び規格化因子の決定について検討し、その結果を本論文で行うデータ解析に反映させた。

- ・補正に関する項

測定のデッドタイム、試料中の不純物、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正が必要であり、それらの補正は系統誤差の要因となり得る。

測定のデッドタイム補正、試料中の不純物効果に関する補正については、先行研究で手法は確立されているので、本論文での解析ではこれらの補正に対する誤差評価を行った。試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正方法については、これまで十分な検証が行われていないのが現状である。そこで、本論文では最適な補正方法について検討を行い、本論文で行うデータ解析に反映させた。

- ・標準断面積に関する項

解析に用いた標準断面積の誤差は系統誤差の要因となり得る。標準断面積の誤差の低減と評価は重要な課題の一つではあるが、本論文では研究対象とはしなかった。本論文のデータ解析では、評価済核データライブラリの誤差を参照して誤差評価を行った。

1.5 測定対象核種の選定理由と精度の高い測定の必要性

本節では測定対象核種である ^{153}Eu 及び ^{151}Eu の選定理由について説明し、過去の実験値と共に評価済核データライブラリ間の比較検討を行い、高い精度の中性子捕獲断面積測定が必要である理由について説明する。

使用済み核燃料取扱施設で最も重要な安全管理上の問題の一つとして、燃料が臨界にならないように管理する臨界安全管理がある。使用済み核燃料取扱施設の臨界安全設計では、多くの場合、新燃料中の核種組成データに基づいた計算値を用いて臨界に達しないことが担保されている。このような臨界安全設計手法では、燃料の燃焼に伴う中性子実効増倍率の低下は考慮されておらず、使用済み燃料貯蔵体系には過度の安全裕度が含まれることとなる。ところが、近年の発電用原子炉の運転長期化、高燃焼度化に伴い、過度な安全裕度のために貯蔵施設で保管できる燃料の体数が大幅に減少することによる経済的なデメリットが現実の問題となりつつある。そのため、将来の核燃料サイクル開発においては、燃料の燃焼に伴う中性子実効増倍率の低下を考慮すること、すなわち、実態に合った効率的な臨界安全評価を取り入れる必要性が認識されている。実態に合った効率的な臨界安全管理を行うためには、使用済み燃料中での燃焼に伴うアクチニドの生成・消滅及び核分裂生成物 (FP) の蓄積による反応度減少 (燃焼度クレジット) を考慮することが必要である。燃焼度クレジット導入における主要な FP としては ^{147}Sm 、 ^{149}Sm 、 ^{150}Sm 、 ^{152}Sm 、 ^{103}Rh 、 ^{143}Nd 、 ^{145}Nd 、 ^{133}Cs 、 ^{99}Tc 、 ^{155}Gd 、 ^{95}Mo 、 ^{153}Eu の 12 核種が選択されている[43]。ここで、ウラン濃縮度 3%の PWR 使用済み燃料集合体の燃焼度と無限増倍率の関係として、文献[44]で報告されている計算結果の一例を図 1.5-1 に示す。図 1.5-1 では、燃焼度クレジットとしてアクチニドのみを考慮した場合と、アクチニドに加えて FP を考慮した場合の燃焼計算結果が示されている。どちらの計算結果も燃焼度の増加と共に無限増倍率が減少する傾向を示しているが、両者を比較すると、無限増倍率の変化率は FP を考慮することによって 3 割程度大きくなっている。このことから、燃焼度クレジットとして FP を考慮することが重要であることがわかる。次に、PWR から取り出された使用済み燃料に含まれる FP 核種組成の冷却時間に伴う変化として、文献[45]で報告された ORIGEN2 コード[46]による計算結果の一例を図 1.5-2 に示す。ただし、FP 核種組成は中性子吸収割合として表わされている。取り出し直後においては、 ^{149}Sm 、 ^{103}Rh 、 ^{143}Nd 、 ^{133}Cs 、 ^{131}Xe 、 ^{147}Pm 、 ^{99}Tc 、 ^{151}Sm 、 ^{152}Sm 、 ^{153}Eu の順に多く、本研究対象の ^{153}Eu は 10 番目に割合の大きい核種であるため、燃料クレジット対象核種として選定されている。冷却時間が長くなるにつれて、短寿命の ^{147}Pm の寄与は小さくなり、代わりに ^{155}Gd の寄与が増加し、取り出しから 30 年が経過すると ^{155}Gd の中性子吸収割合は 3 番目に大きい値となる。このように ^{155}Gd は長期冷却後の使用済み燃料に対して燃焼度クレジットを導入する際に最も考慮すべき重要な核種である。 ^{155}Gd は、図 1.5-3 に示すように ^{155}Eu の β 崩壊または、 ^{154}Eu の β 崩壊の娘核種 ^{154}Gd の中性子捕獲反応によって生成される。いずれの生成過程においても ^{154}Eu の生成量が ^{155}Gd の生成に深く関わっている。 ^{154}Eu は ^{153}Eu の中性子捕獲反応によって蓄積され

るため、 ^{155}Gd の生成量を評価する観点において、 $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ 反応は重要な役割を担っている。以上の理由により、本研究では中性子捕獲断面積の測定対象核種として ^{153}Eu を選定した。なお、 ^{151}Eu は ^{153}Eu 試料中に不純物として含まれている安定同位体であるため、試料中の不純物効果を評価するために必要なので併せて測定対象とした。

^{153}Eu の中性子捕獲反応に対して、過去の実験値と評価済核データライブラリ間の比較を図 1.5-4 と表 1.5-1 に示す。

熱中性子捕獲断面積は、放射化法、パイルオシレータ法、透過中性子法、TOF 法によって測定されている。放射化法を用いた Sims ら[47]、Kim ら[48]、Lucas ら[49]、Arbocco ら[50]の実験値間には最大約 2 倍の差が見られている。透過中性子法による Pattenden[51]の実験値は、原子炉の Fast chopper を用いた TOF 法による Widder[52]の実験値より約 17%大きくなっている。最近の実験としては 2014 年の Basunia ら[53]による即発ガンマ線測定実験と Arbocco ら[50]の放射化法による実験が報告されている。ところが Basunia ら[52]の実験結果と Arbocco ら[50]の実験結果には誤差範囲を超える差異が存在している。このように、 ^{153}Eu の熱中性子捕獲断面積の実験値間には誤差範囲を超える不一致が見られている。なお、分離共鳴エネルギー領域においては、TOF 法を用いた一番最近の実験として Leinweber ら[54]による RPI 研究所の電子線型加速器を用いた共鳴パラメータの測定・解析実験が報告されている。

非分離共鳴エネルギー領域では、Konks ら[55]による鉛スペクトロメータの実験や Moxon ら[56]、Macklin ら[57]、水本ら[58]、Kononov ら[59]、Bokhovko ら[60]による TOF 法を用いた keV 領域の中性子捕獲断面積の実験が報告されている。捕獲ガンマ線検出器としては、Moxon ら[56]は Moxon-Rae 検出器、Macklin ら[57]は C_6F_6 液体シンチレータ、水本ら[58]はタンク型液体シンチレータ、Kononov ら[59]、Bokhovko ら[60]はバンデグラフ型加速器を用いている。Moxon ら[56]、Macklin ら[57]は中性子捕獲収率の絶対値を得ているが、水本ら[58]は相対断面積を測定し、 ^{153}Eu の 8.84eV 共鳴に対して規格化を行っている。また、最近になって $^7\text{Li}(p,n)$ 反応中性子源を用いた放射化法の実験が Weuxiang ら[61]、Yijun ら[62]によって行われており、keV 領域の捕獲断面積を数点与えている。このように、非分離共鳴エネルギー領域においては多くの実験が報告されているが、図 1.5-4 に示すように評価値との一致は必ずしも良くないのが現状である。特に TOF 法による実験は 1991 年以前に行われたものであり、最近は報告されていない。

^{153}Eu の評価済核データライブラリの JENDL-4.0、ENDF-B/VII.1、JEFF-3.2 では、熱中性子エネルギー領域に対して ENDF-B/VII.1 の評価値が JENDL-4.0 や JEFF-3.2 の評価値に比べて約 14%過大となっている。この理由は ENDF-B/VII.1 の評価者が ENDF-B/VII.0 file を利用した計算結果と積分実験の測定結果[62]との -11%の反応度評価値の不一致を考慮し、ENDF-B/VII.1 では ENDF-B/VII.0 の熱中性子捕獲断面積 312b を 358b に変更したためである。このような不一致を解決するためには、評価済核データライブラリの熱中性子捕獲断面積の妥当性を実験的に検討する必要がある。

^{151}Eu の中性子捕獲反応に対して、これまでに報告されてきた過去の実験値と評価済核データライブラリの間の比較を図 1.5-5 と表 1.5-2 に示す。

^{151}Eu に対しては、特に評価済核データライブラリ間に大きな不一致が見られている。熱中性子エネルギー領域では、0.03eV~0.2eV 領域において ENDF-B/VII.1 の評価値が JENDL-4.0 と JEFF-3.2 より約 20%まで過大となっている。分離共鳴エネルギー領域に対しては図 1.5-6 からわかるように 3.36eV の共鳴ピークで、ENDF-B/VII.1 と JEFF-3.2 の評価値が JENDL-4.0 の約 2 倍となっている。7.02eV の共鳴ピークについては、JEFF-3.2 の評価値が JENDL-4.0 と ENDF-B/VII.1 の約 10 倍となっている。このような不一致を解決するためには、評価済データライブラリの共鳴パラメータの検討が要求される。

以上の理由から、本論文では測定対象核種である ^{153}Eu 及び ^{151}Eu 対して、熱領域から非分離領域までの中性子エネルギーにおける高い精度の中性子捕獲断面積測定を行った。

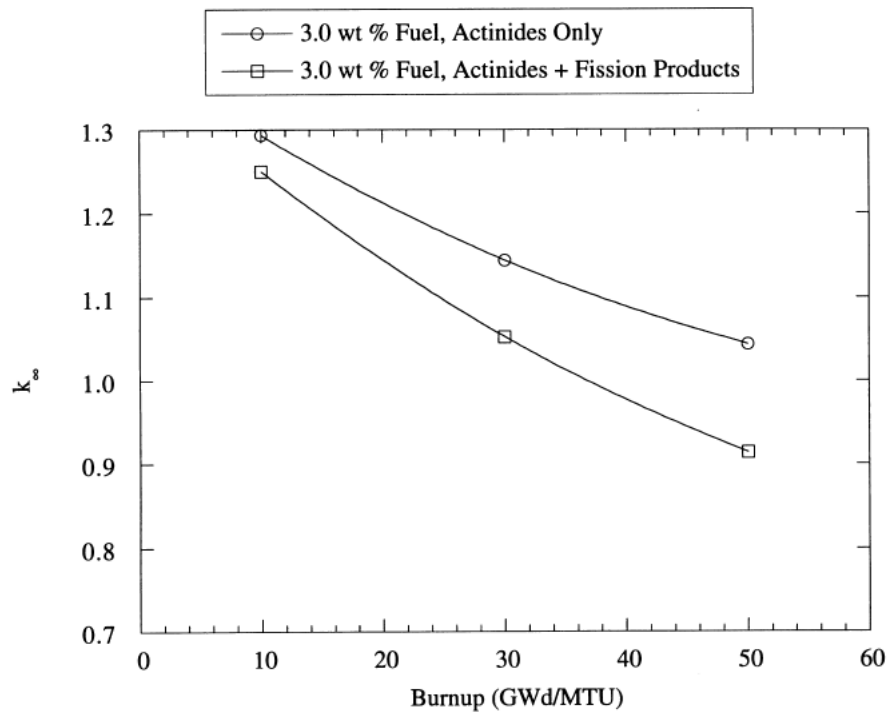


図 1.5-1 燃焼度の増加に伴う無限増倍率の変化（冷却期間を5年間とした場合）
（文献[44]より引用）

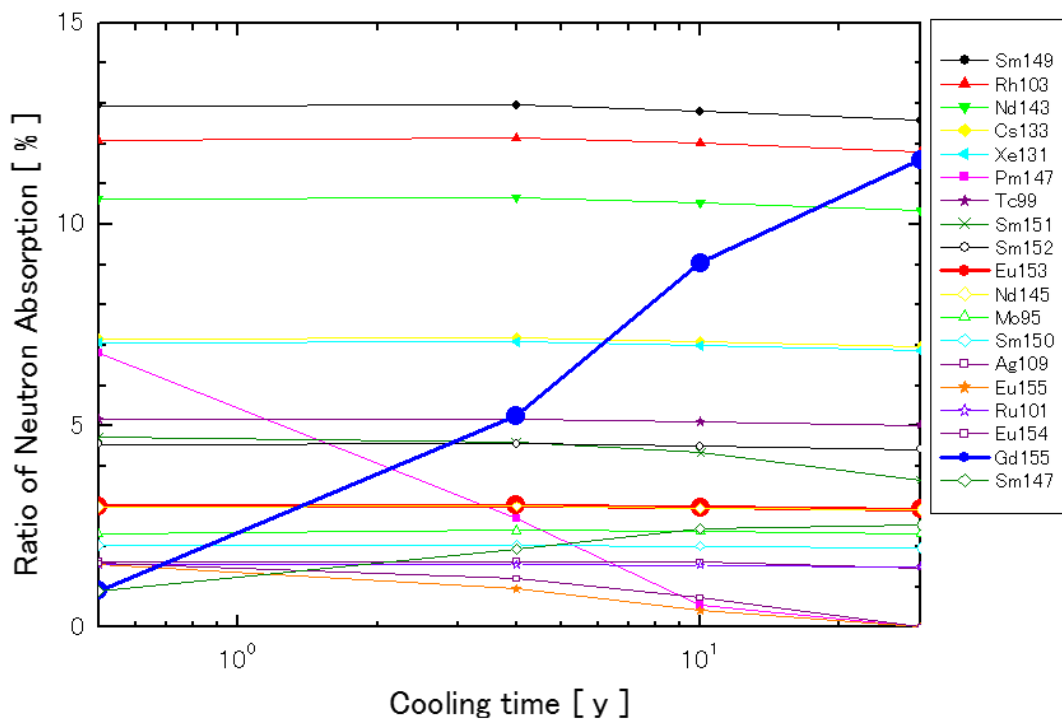


図 1.5-2 PWR 使用済み燃料(30GWd/t)中のFP核種の中性子吸収割合と冷却期間
（文献[45]より引用）

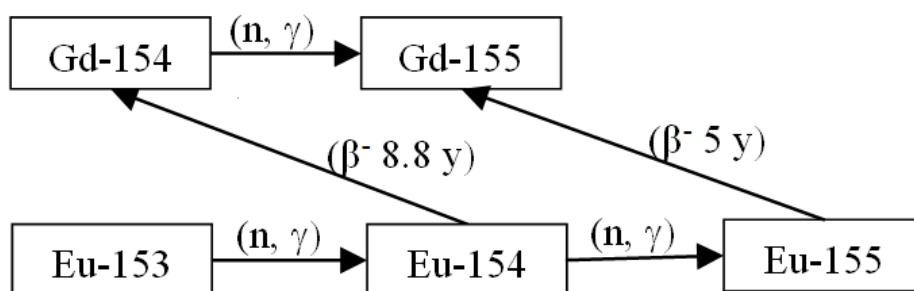


図 1.5-3 ^{153}Eu における ^{155}Gd の生成過程

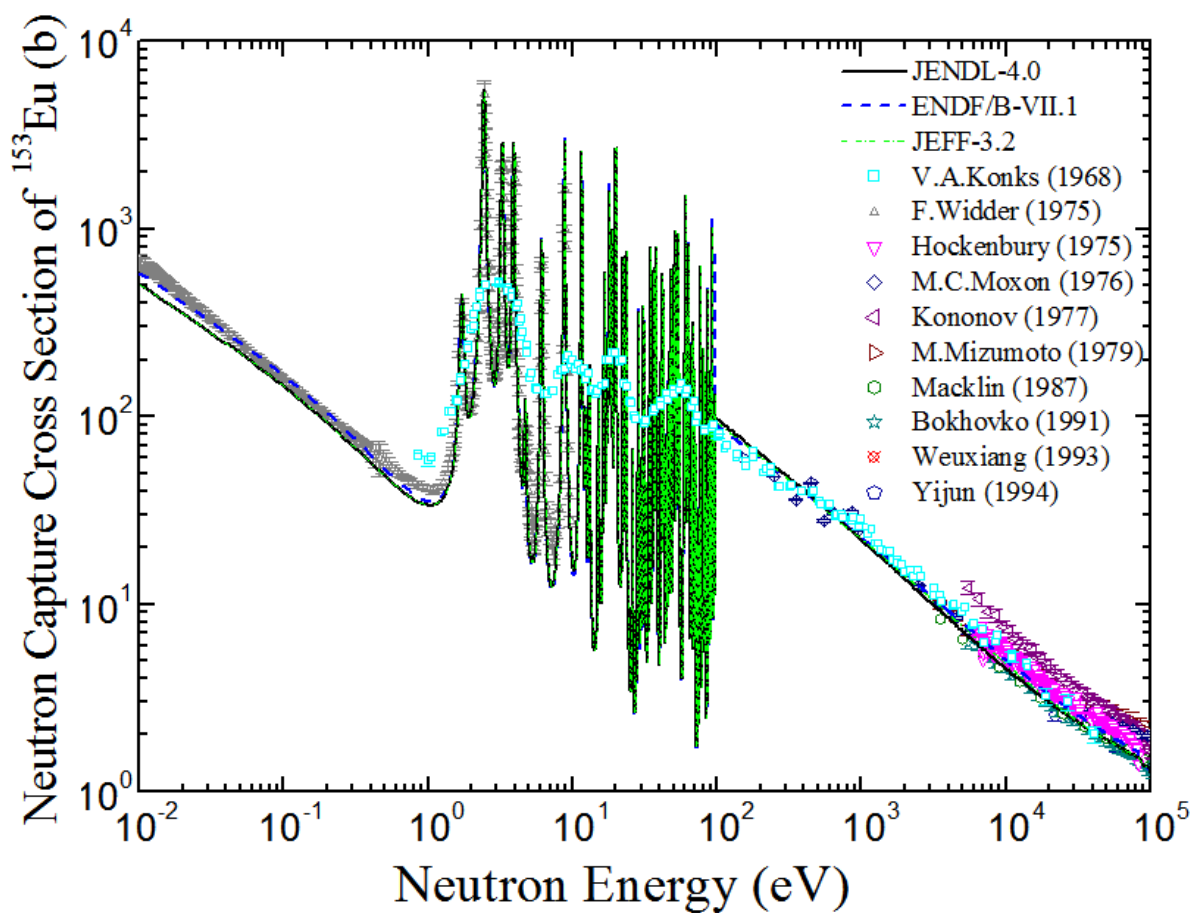


図 1.5-4 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の実験値と評価値の現状

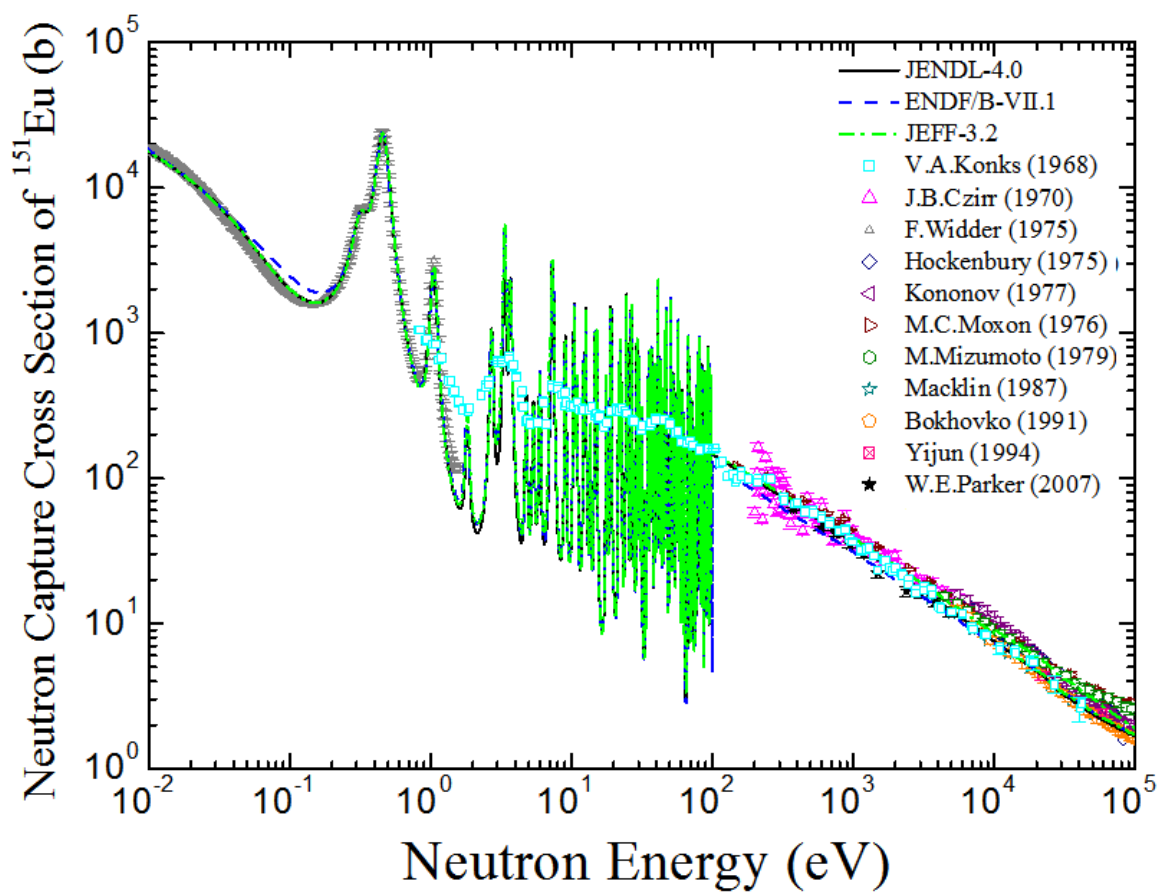


図 1.5-5 ^{151}Eu の中性子捕獲断面積の実験値と評価値の現状

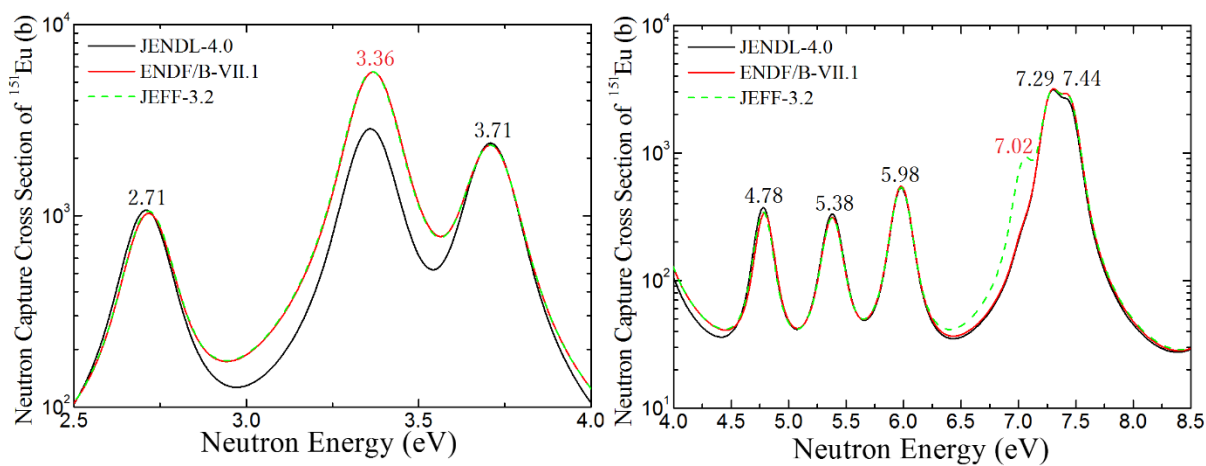


図 1.5-6 2.5～8.5eV 領域における ^{151}Eu の中性子捕獲断面積の評価値の比較

表 1. 5-1 ^{153}Eu の熱中性子捕獲断面積の過去の実験値と評価値の比較

Author	Year	Method	σ_{th} (b)
Pattenden [51]	1958	Transmission	448±16
Tattersall [64]	1960	Pile oscillator	317±5
Sims [47]	1967	Activation	639±7
Widder [52]	1975	chopper, TOF	382±14
Kim [48]	1975	Activation	603±23
Lucas [49]	1977	Activation	325
Basunia [53]	2014	γ -ray spectrometry	335±10
Arbocco [50]	2014	Activation	312±3
JENDL-4.0	2012	Evaluation	312.7
ENDF/B-VII.1	2011	Evaluation	358.0
JEFF-3.2	2014	Evaluation	312.7

表 1. 5-2 ^{151}Eu の熱中性子捕獲断面積の過去の実験値と評価値の比較

Author	Year	Method	σ_{th} (b)
Tattersall [64]	1960	Pile oscillator	8790±90
Sims [47]	1967	Activation	7545±165
Poormans [65]	1967	Activation	9184±140
Widder [52]	1975	chopper, TOF	9238±300
Kim [48]	1975	Activation	8965±142
Basunia [53]	2014	γ -ray spectrometry	9405±460
JENDL-4.0	2012	Evaluation	9169.3
ENDF/B-VII.1	2011	Evaluation	9185.3
JEFF-3.2	2014	Evaluation	9166.7

1.6 本論文の構成とその概要

本論文は第 1 章～第 7 章で構成されている。第 1 章は諸言で、本研究の背景と目的、核データ評価、実験施設及び測定手法の現状、系統誤差要因の抽出、測定対象核種の選定理由について述べた。

第 2 章では、本研究で用いた京大炉ライナックの概要、京大炉ライナック中性子源の概要、これに加え、京大炉ライナックにおける中性子捕獲断面積測定の現状と課題について述べる。さらに 1.4 節で述べた系統誤差要因に対する先行研究での取り組みについて問題点と課題を明確にする。

第 3 章では、中性子捕獲イールド決定法の高度化として、系統誤差低減のために特に取り組むべき課題であるバックグラウンド評価と絶対値導出法について述べる。

第 4 章では、補正法の高度化として、系統誤差低減のために特に取り組むべき課題である試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正方法についての検討結果を述べ、本研究で新たに開発した補正手法の適用例として、 ^{232}Th の中性子捕獲反応に対する共鳴解析の結果を示す。

第 5 章では、第 3 章及び第 4 章で述べた手法の適用例として、全エネルギー型検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 中性子捕獲断面積測定を行い、波高重み法を用いて熱～keV 領域までの中性子捕獲断面積の絶対値を決定し、評価済核データライブラリとの比較を通して考察する。

第 6 章では、第 3 章及び第 4 章で述べた手法の適用例として、全吸収型検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 中性子捕獲断面積測定を行い、分離共鳴エネルギー領域における中性子捕獲断面積を導出し、主要な共鳴パラメータを決定する。なお、導出した中性子捕獲断面積や共鳴パラメータは評価済核データライブラリや過去の共鳴パラメータの実験データとの比較を通して考察する。

第 7 章は研究全体のまとめであり、本研究で系統誤差低減のために試みた中性子捕獲イールド決定法と補正法の高度化について総括するとともに、それぞれの手法を適用して得られた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積について結論を述べる。

参考文献

- [1] K. Shibata et al., “JENDL-4.0: A new library for nuclear science and engineering”, J. Nucl. Sci. Technol. 2011; 48:1-30.
- [2] M.B. Chadwick et al., “ENDF/B-VII.1 Nuclear data for science and technology: cross sections, covariances, fission product yields and decay data”, Nucl. Data Sheets. 2011; 112:2887-2996.
- [3] The JEFF team. JEFF-3.2: Evaluated nuclear data library. Available from: <http://www.oecdnea.org/dbdata/jeff>. 2014.
- [4] N. M. Larson, “UPDATED USERS GUIDE FOR SAMMY: MULTILEVEL R-MATRIX FITS TO NEUTRON DATA USING BAYES EQUATIONS”, USA: Oak Ridge National Laboratory; 2008, Report no. ORNL/TM-9179/R8.
- [5] N. M. Larson, “Innovations in the Analysis Code SAMMY”, J. Nucl. Sci. Technol., 2002; 2: 92-95.
- [6] M.C. Moxon, J.B. Brisland, “GEEL REFIT, A least squares fitting program for resonance analysis of neutron transmission and capture data computer code”, AEAInTec-0630, AEA Technology, 1991; October.
- [7] A.M. Lane, R.G. Thomas, “R-matrix theory of nuclear reactions”, Rev. Mod. Phys. 1958; 30: 257-353.
- [8] F.H. Fröhner, “Evaluation and analysis of nuclear resonance data”, JEFF Report 18, 2000; NEA/OECD.
- [9] M.Herman, “EMPIRE-2: Statistical Model Code for Nuclear Reaction Calculations”, IAEA, 2000; Vienna.
- [10] O. Iwamoto, “Development of a comprehensive code for nuclear data evaluation, CCONE, and validation using neutron-induced cross sections for uranium isotopes”, J. Nucl. Sci. Technol., 2007; 44: 687-697.
- [11] K.H. Guber et al., “New neutron cross-section measurements at ORELA and their application in nuclear criticality calculations”, Nucl. Instr. Meth. 2005; B 241; 218-222.
- [12] M.E. Overberg et al., “Photoneutron target development for the RPI linear accelerator”, Nucl. Instr. Meth. 1999; A 438: 253-264.
- [13] J. Lee et al., “Neutron capture cross section measurements of $^{151,153}\text{Eu}$ using a pair of C_6D_6 detectors”, J. Nucl. Sci. Technol., 2017; 54, 10, 1046-1057.
- [14] C. Paradela et al., “Results of transmission measurements for ^{40}Ca at GELINA”, JRC Technical report, 2015; EUR 27559 EN.
- [15] D. Tronc, J. M. Salome, K. H. Bockoff, “A new pulse compression system for intense relativistic electron beam”, Nucl. Instr. Meth., In Physics Research 1985; 228: 217.
- [16] S. Mizuno, M. Igashira and K. Masuda, “Measurements of keV-neutron capture cross sections and capture gamma-ray spectra of $^{161,162,163}\text{Dy}$ ”, J. Nucl. Sci. Technol. 1999; 36: 493-507.
- [17] T. Ohsaki et al., “An NaI(Tl) spectrometer system for keV neutron radiative-capture reaction”, Nucl. Instr. Meth. 1999; A425: 302-319.
- [18] K. Wisshak, K. Guber, F. Voss, and F. Köppeler, “Neutron capture in $^{148,150}\text{Sm}$: A sensitive probe of the s-process neutron density”, Phys. Rev. 1993; C 48: 1401-1419.
- [19] K. Wisshak et al., “Stellar neutron capture cross section of the unstable s-process branching point ^{151}Sm ”, Phys. Rev. 2006; C 73: 015802.
- [20] C. Borcea et al., “Results from the commissioning of the n TOF spallation neutron source at CERN”, Nucl. Instr. Meth. 2003; A 513: 524-537.
- [21] G. Aerts et al., “Neutron capture cross section of ^{232}Th measured at the n TOF facility at CERN in the unresolved resonance region up to 1 MeV”, Phys. Rev. 2006; C 73: 054610.
- [22] P.W. Lisowski et al., “The Los Alamos National Laboratory spallation neutron sources”, Nucl. Sci. Eng. 1990; 106: 208-218.
- [23] P.W. Lisowski and K.F. Schoenberg, “The Los Alamos neutron science center”, Nucl. Instr. Meth. 2006; A 562: 910-914.
- [24] M. Jandel et al., “Neutron capture cross section of ^{241}Am ”, Phys. Rev. 2008; C 78: 034609.
- [25] K. Kino et al., “Measurement of energy spectra and spatial distributions of neutron beams provided by the ANNRI beam line for capture cross-section measurements at the J-PARC/MLF”, Nucl. Instr. Meth. 2011; A

626-627: 58-66.

- [26] A. Kimura et al., “Neutron-capture cross-sections of ^{244}Cm and ^{246}Cm measured with an array of large germanium detectors in the ANNRI at J-PARC/MLF”, J. Nucl. Sci. Technol. 2012; 49: 708-724.
- [27] T.F. Wang et al., “Measurement of the total neutron cross section and resonance parameters of molybdenum using pulsed neutrons generated by an electron linac”, Nucl. Instr. Meth. 2008; B 266: 561-569.
- [28] J. Klug et al., “Development of a neutron time-of-flight source at the ELBE accelerator”, Nucl. Instr. Meth. 2007; A 577: 641-653.
- [29] R. Beyer et al., “Characterization of the neutron beam at nELBE”, Nucl. Instr. Meth. 2013; A 723: 151-162.
- [30] M.C. Moxon, E.R. Rae. “A GAMMA-RAY DETECTOR FOR NEUTRON CAPTURE CROSS-SECTION MEASUREMENTS”, Nucl. Instr. and Meth., 1963; 24, 445-455.
- [31] R. L. Macklin, J. H. Gibbons, “Capture-Cross-Section Studies for 3-220 keV Neutrons Using a New Technique,” Phys. Rev., 1967; 159: 1007-1012.
- [32] S. Kopecky, A. Plompen, P. Schillebeeckx, P. Siegler, F. Gunsing, C. Sage, O. Bouland, “Transmission and capture measurements for ^{241}Am at GELINA”, J. Korean Phys. Soc., 2011; 59: 1785-1788.
- [33] C. Lampoudis al., “The use of C_6D_6 detectors for neutron induced capture cross-section measurements in the resonance region”, Nucl. Instr. Meth., 2007; A 577: 626-640.
- [34] P. E. Koehler al., “Highresolution neutron capture and transmission measurements, and the stellar neutron-capture cross section of ^{88}Sr ”, Phys. Rev., 2000; C 62, 055803-15.
- [35] C. Lederer et al. (the n TOF collaboration), “ ^{197}Au cross section in the unresolved resonance region”, Phys. Rev., 2011; C 83, 034608-11.
- [36] G. Aerts et al. (The n TOF collaboration), “Neutron capture cross section of ^{232}Th measured at the n_TOF facility at CERN in the unresolved resonance region up to 1 MeV”, Phys. Rev., 2006; C 73, 054610-10.
- [37] D.P. Barry et al., “Neutron Transmission and Capture Measurements and Resonance Parameter Analysis of Neodymium from 1 to 500 eV”, Nucl. Sci. Eng., 2006; 153, 8-25.
- [38] J.L. Ullmann et al., “The detector for advanced neutron capture experiments: a 4π BaF_2 detector for neutron capture measurements at LANSCE”, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Santa Fe, NM, 2004; 918-923.
- [39] P.F. Mastinu et al., “Neutron cross section measurements at n-TOF for ADS related studies”, J. Phys., Conf. Ser. 41, 2006; 352-360.
- [40] S. Yamamoto et al., “Application of BGO Scintillators to Absolute Measurement of Neutron Capture Cross Sections between 0.01 eV and 10 eV”, J. Nucl. Sci. Technol., 1996; 33: 815-820.
- [41] S. Lee et al., “Neutron Capture Cross-Section Measurement of Rhodium in the Energy Region from 0.003 eV to 80 keV by Linac Time-of Flight Method”, Nucl. Sci. Engin., 2003; 144, 1: 94-107.
- [42] H. Harada et al., “Accuracy Improvement of Neutron Nuclear Data on Minor Actinides”, Proc. ND 2017 International Conference on Nuclear Data for Science and Technology; 2016 Sep 11-16; Bruges, Belgium: Les Ulis Cedex: EDP sciences; 2017 Sep. Vol.146, pp.11001.
- [43] A Nuclear Fuel Cycle Facility Safety Research Committee. A guide introducing burn-up credit, preliminary version. Jpan Atomic Energy Research Institute, 2001; JAERI-Tech 2001-055 [in Japanese].
- [44] M. D. DeHart, “Sensitivity and Parametric Evaluations of Significant Aspects of Burnup Credit for PWR Spent Fuel Package,” 1996; ORNL/TM-12973.
- [45] Working Group on Nuclear Criticality Safety Data, “Nuclear Criticality Safety Handbook Version 2,” JAERI 1999; 1340 [in Japanese].
- [46] A. G. Croff, “A User’s Manual for the ORIGEN2 Computer Code,” ORNL/TM-7175 (1980).
- [47] G.H.E. Sims, D.G. Juhnke, “The Thermal Neutron Cross-Sections and Resonance Integrals of the Europium,” Isotopes. J. Inorg. Nucl. Chem. 1967; 29:2671-2677.
- [48] J.I. Kim, E.M. Gryntakis, H.J. Born, “Evaluation of the $g(T_n)$ -function and determination of cross sections for Eu-isotopes,” Radiochimica Acta. 1975; 22:20-26.
- [49] M. Lucas et al., “Determination by irradiation in the triton reactor of neutron capture cross sections for

- isotopes involved in the oklo phenomenon,” Proc. of Meeting on Natural Fission Reactors; 1977 Dec 19-21; Paris (France).
- [50] F. Farina Arbocco et al., “Experimental determination of k_0 , Q_0 factors, effective resonance energies and neutron cross-sections for 37 isotopes of interest in NAA,” J. Radioanal Nucl. Chem. 2014; 302:655-672.
 - [51] N.J. Pattenden, “Some neutron cross section of importance to reactors - ^{99}Tc , ^{143}Nd , ^{145}Nd , ^{149}Sm , ^{152}Sm , ^{151}Eu , ^{153}Eu , ^{155}Gd , ^{157}Gd , ^{240}Pu ,” Proc. Second Internat. At. En. Conf; 1958 Sep; Geneva (Swiss).
 - [52] F. Widder, “Neutron capture cross section measurements in the energy region from 0.01 to 10 electron volts,” Austria: Swiss report to the I.N.D.C; 1975 Reprt no.009.
 - [53] M.S. Basunia et al., “Determination of the $^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152\text{m1}}\text{Eu}$ and $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)^{154}\text{Eu}$ Reaction Cross Sections at Thermal Neutron Energy,” Nuclear Data Sheets. 2014; 119:88-90.
 - [54] Leinweber G, Barry DP, Burke JA, Rapp MJ, Block RC, Danon Y, Geuther JA, Saglime III FJ. Europium resonance parameters from neutron capture and transmission measurements in the energy range 0.01-200 eV. Annals of Nuclear Energy. 2014; 69:74–89.
 - [55] V. A. Konks, Y. P. Popov, Y. I. Fenin, “Radiative Capture of Neutrons by Nuclei with $A = 140\text{-}200$,” Soviet J. Nucl. Phys., 1968; 7: 310.
 - [56] M. C. Moxon, D. A. J. Endacott, J. E. Jolly, “The Neutron Capture Cross-Section of ^{151}Eu and ^{153}Eu in the Energy Range 0.1 to 100 keV,” J. Nucl. Energy, 1976; 3: 399.
 - [57] R. L. Macklin, J. H. Gibbons, “Neutron Capture Cross Sections of ^{151}Eu and ^{153}Eu from 3 to 2200 keV,” Phys. Rev., 1987; 159: 1007.
 - [58] M. Mizumoto et al., “Average Neutron Capture Cross Sections of ^{151}Eu and ^{153}Eu from 3 to 100 keV,” J. Nucl. Sci. Technol., 1979; 16: 711.
 - [59] N. Kononov, B. D. Yurlov, E. D. Poletaev, V. M. Timokhov, “Average Neutron Radiative Capture Cross-Section In the Energy Range 5 - 30 KeV For In, Ta, Au and Nd, Sm, Eu, Gd, Er Isotopes,” Yad. Fiz., 26, 947 (1977); Sov. J. Nucl. Phys., 1977; 26: 500.
 - [60] M. V. Bokhovko, V. N. Kononov, N. S. Rabotnov, A. A. Voevodskiy, G. N. Manturov, V. M. Timokhov, “Neutron radiation cross-section, neutron transmission and average resonance parameters for some fission product nuclei,” Proc. of Nucl. Data for Sci. and Technol., Juelich 1991; 62.
 - [61] Y. Weixiang, L. Hanlin, Z. Wenrong, “Activation Cross Section Measurement for the Eu (n,γ) Reactions,” Chinese J. of Nuclear Physics (Beijing), 1993; 15: 71.
 - [62] X. Yijun, L. Xianguan, L. Xiaobing, Y. Zhihua, L. Mantian, H. Fuqing, W. Chunhuo, P. Xiufeng, Y. Jingfu, L. Hanlin, “Activation cross section measurement for the Eu(n,γ) reaction,” Proc. of Conf. on Nucl. Data for Sci. and Tech., Gatlinburg, 1994; 1: 251.
 - [63] C.D. Dean et al., “Validation of important fission product evaluations through CERES integral benchmarks”, Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology; 2007 April 22-27; Nice (France).
 - [64] R.B. Tattersall, H. Rose, S.K. Pattenden, D. Jowitt. “Pile Oscillator measurements of resonance absorption integrals,” J. Nucl. Energy. 1960; 12:32-46.
 - [65] F. Poortmans, I. Girlea, A. Fabry. “Neutron cross sections for ^{151}Eu below 1 eV,” Nucl. Phys. 1971; 172:489-498.

第2章 京大炉ライナックにおける中性子捕獲断面積測定の現状と課題

2.1 京大炉ライナックの概要

京都大学原子炉実験所¹の電子線型加速器（KURRI-LINAC、以下京大炉ライナックと称す）は、設置1965年に設置された米国 High Voltage Engineering 社製 ARCO L-1512G 型の L バンド電子線型加速器である。3年後の1968年から共同利用に供される装置として、原子炉物理、原子核物理、放射線物理、及び放射化学などの広い研究分野で利用されている[1]。当初は中性子利用が主流であったが、最近では中性子以外にも、電子線、放射光、X線の多様な粒子線源としての利用が進み、年間2,000時間以上の高い稼働時間で利用されている。

京大炉ライナックは、EIMAC 社製 YU-156 の電子銃、インジェクター、2本の進行波型加速管、高周波源2基等から構成されている。京大炉ライナックの概略を図2.1-1に示す。パルス電子ビームは電子銃から発生し、インジェクターから発生した約90kVの電圧によって、パルス電子ビームは加速される。仏国 Thomson CSF 社製 TV2022B 型の2台のクライストロンによって生成したマイクロ波は、導波管を通して長さ2.5m、1.85mの2本の加速管内にそれぞれ供給される。加速管に入ったパルス電子ビームは加速管内のマイクロ波エネルギーで加速され、電子加速エネルギーは最大46MeVまで上昇する。加速管で加速されたパルス電子ビームは、ビーム延長管を経て、ターゲット室へと導かれる。ビーム延長管の途中には、ビームを適切に軌道修正するための幾つかの電磁石が設置されている。現在、京大炉ライナックで発生できるパルス電子ビームのエネルギー範囲は6MeVから46MeVであり、最大ビームパワーは10kW、最大ピーク電流は6Aである。なお、本装置はパルス幅によって二つの運転モードを選択できる。一つはパルス幅：0.1～4.5 μ s（連続可変）、パルス繰り返し：single～100HzのLongモードであり、大電流を必要とする実験に用いられる。もう一つはパルス幅：2、5、10、20、33、47、68、100ns、パルス繰り返し：single～300HzのShortモードであり、詳細なパルス幅構造を必要とする実験に用いられる。このように、京大炉ライナックはパルス幅や中性子スペクトルの形成に自由度が高い施設である。

建屋の配置図を図2.1-2に示す。建屋は加速管室を中心に、マイクロ波発生装置室、ターゲット室、制御室、搬入室、実験室、測定室などがある。ターゲット室には光中性子源が設置される。90度方向と135度方向には2本の中性子飛行管が設置され、90度方向には光中性子源から10m及び22m離れた位置に、135度方向には12m離れた位置に測定室が設けられている。

¹ 「原子炉実験所」は、2018年4月1日より「複合原子力科学研究所」に名称変更したが、本論文では、「原子炉実験所」と称することとする。

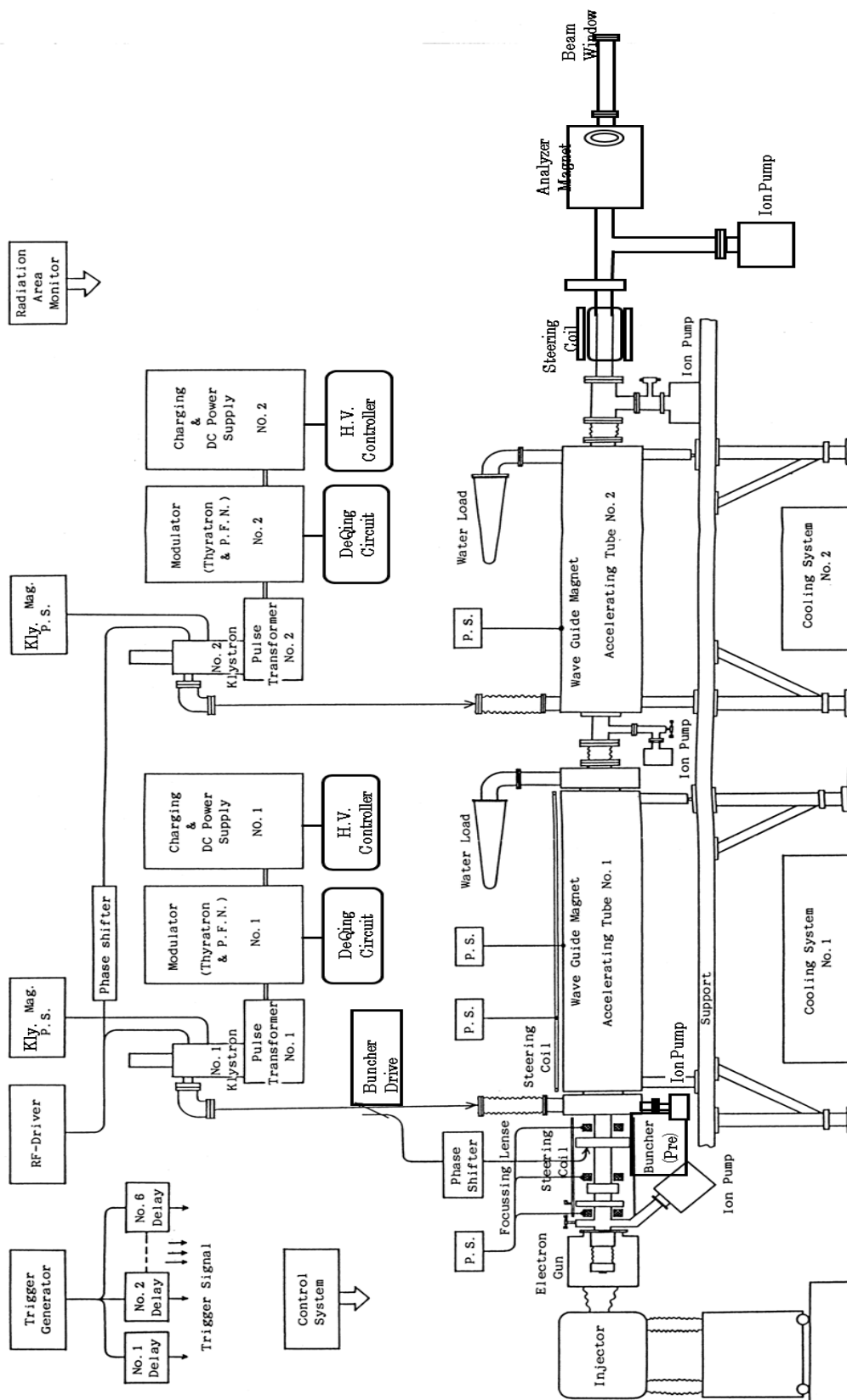


図 2. 1-1 京都大学原子炉実験所の電子線型加速器(京大炉ライナック)の概略

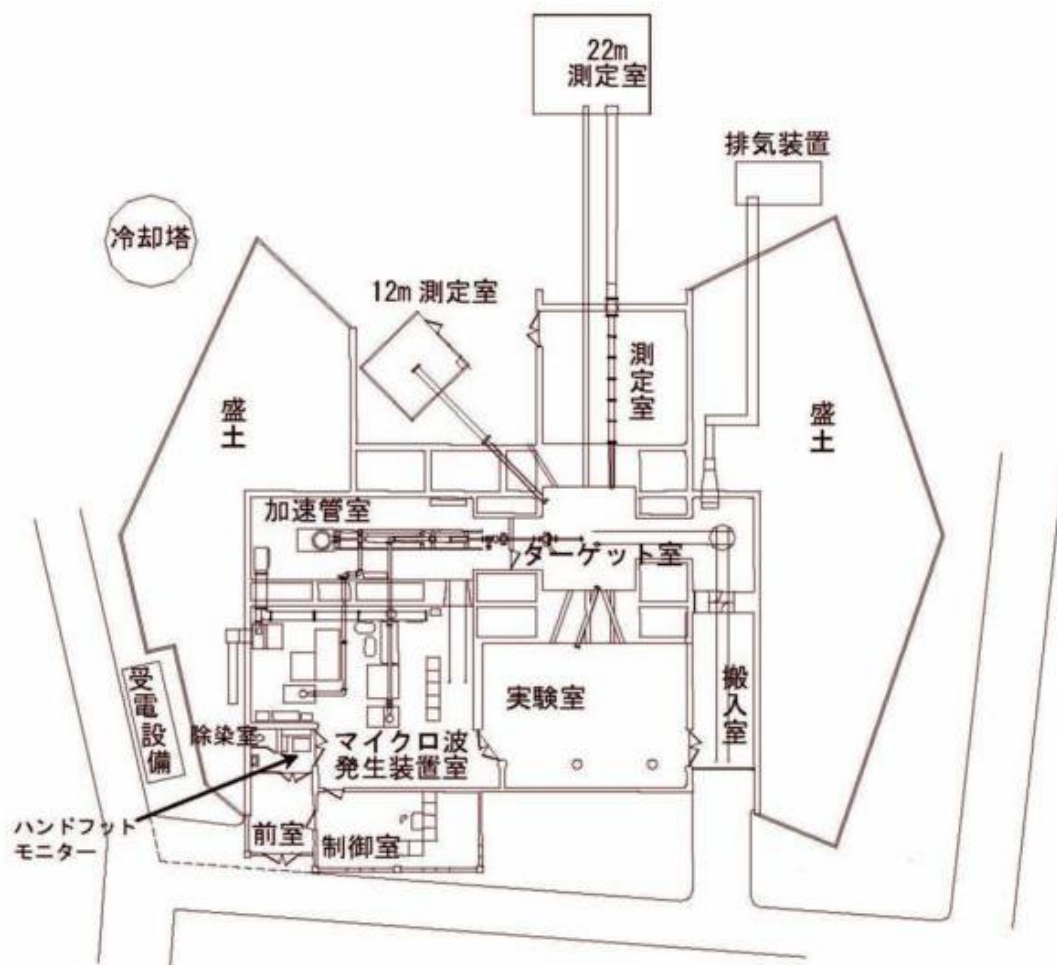


図 2.1-2 京大炉ライナックの配置図

2.2. 京大炉ライナック中性子源の概要

京大炉ライナックでは、約 30MeV まで加速したパルス電子ビームを重金属ターゲットに照射するときには発生する制動 X 線によって、 (γ, n) 反応が起こって光中性子が得られる。京大炉ライナックでは、光中性子を発生させる重金属として、Ta-Target を使用している[2]。Ta-Target の断面図を図 2.2-1 に示す。Ta-Target は、厚さ 1mm、2mm、3mm、5mm の Ta 金属板を 12 枚重ね合わせ、この間には冷却水が流れる構造とした水冷式（流量約 140/min）であり、全体がチタニウム（Ti）金属で覆われている。Ta-Target から発生した光中性子のエネルギー分布は平均エネルギーとして 1MeV から 2MeV のエネルギーにピークを持つ蒸発スペクトルを持つ高速中性子であるため、Ta-Target 周りに水モデレータを配置することにより、熱から熱外のエネルギー領域までに対する中性子束を得ることができる。京大炉ライナックでは、高さ 30cm、厚さ 10cm の八角形のアルミニウム製容器内を水で満たしたモデレータ、又は、高さ 30cm、直径 15cm、20cm、30cm の円筒形のアルミニウム製容器内を水で満たしたモデレータなどが使用されている。

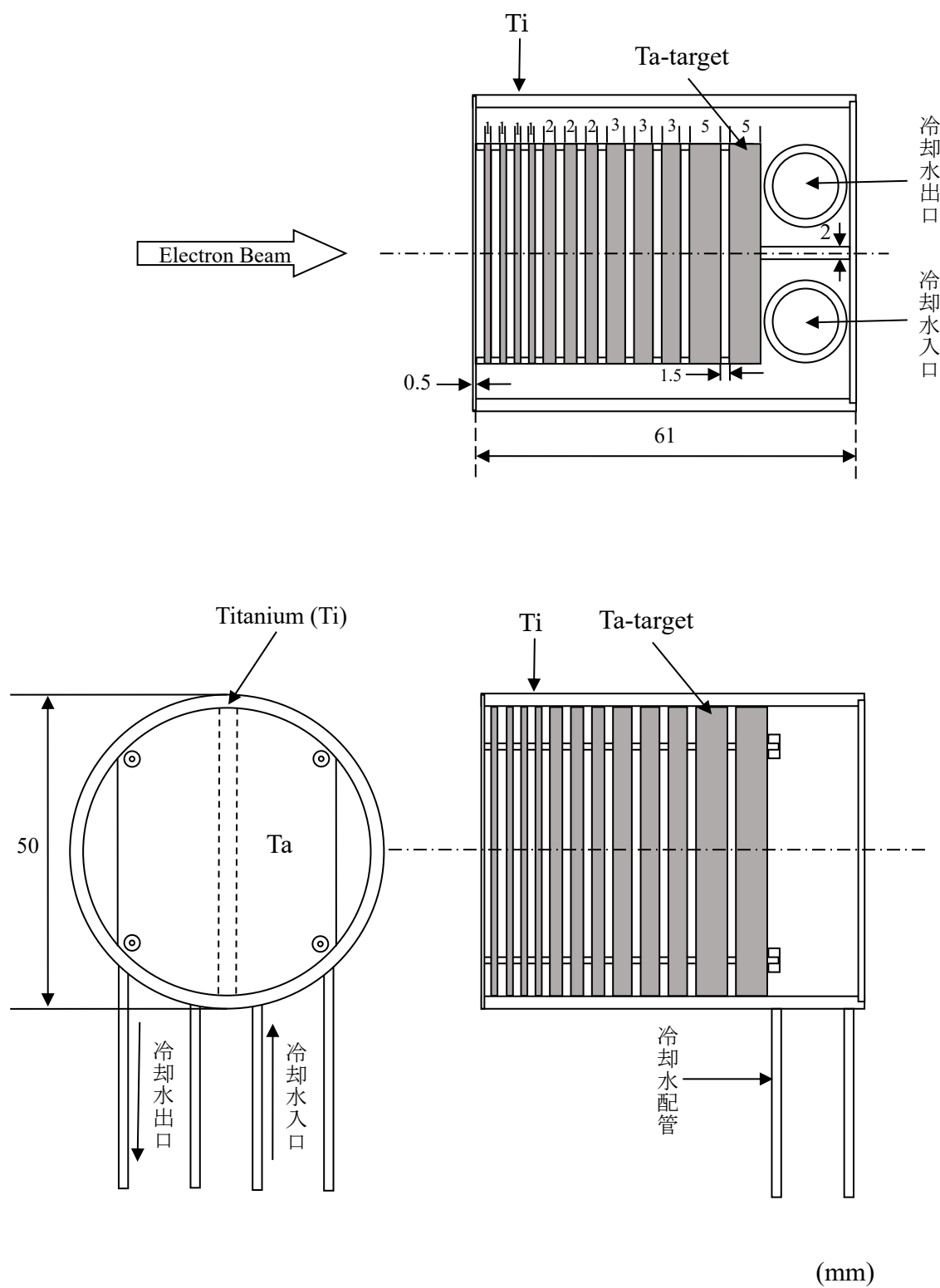


図2.2-1 Ta-Targetの断面図

2.3 中性子捕獲断面積測定の実況と課題

京大炉ライナックでは、全エネルギー検出器として一対の C_6D_6 検出器、全吸収型検出器として 12 台の BGO シンチレータによって構成された検出器が開発され、それらを用いて TOF 法による中性子捕獲断面積測定が系統的に行われてきた。中性子捕獲断面積測定ではガンマフラッシュの影響を受けにくい 135° 方向の中性子飛行管が主に用いられ、ガンマ線検出器は 12m 測定室に設置された。本節では京大炉ライナックに設置されたこれらの検出器の概要について示し、これまで実施された研究成果を整理し、京大炉ライナックにおける中性子捕獲断面積測定について解決すべき課題についてまとめる。

京大炉ライナックでは、全エネルギー検出器として C_6D_6 有機液体シンチレーション検出器を用いている。本検出器はベンゼン環に重水素が結合されている Benzene- D_6 の構造を持つ Nuclear Enterprise 社製 NE230 有機液体シンチレータである。シンチレータは直径 11cm、高さ 5cm の円筒形で片側がパイレックスガラス窓のアルミニウム製容器内に封入されている。シンチレータはライトガイドを介して RCA 社製 4525 型の光電子増倍管と光学的に接続されている。本光電子増倍管は 10 段ダイノードから構成されている。光電子増倍管からの出力信号ケーブルと増幅器のインピーダンス整合をとるために、前置増幅器も組み込まれている。この前置増幅器は C_6D_6 検出器のために特別に設計、製作されたものである。また、出力パルスの立ち下がり速く、Ta-Target からの強烈なガンマフラッシュ発生直後に来る信号を処理できるように設計されているものである[3]。 C_6D_6 検出器の外観を図 2.3-1 に示す。

全吸収型検出器としては、12 台の $Bi_4Ge_3O_{12}$ (BGO) シンチレータを組み合わせた検出器を用いている。BGO 検出器は日立化成工業株式会社製 $7.5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$ BGO シンチレータ (シンチレータの密度 7.13 g/cm^3)、浜松ホトニクス株式会社製 R580 型の直径 3.8cm 光電子増倍管、磁気シールド、光電子増倍管ベース、前置増幅器で構成されている。検出器中央には $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ の貫通孔が設けられている。試料は貫通孔の中心に配置される。試料と検出器の間には散乱中性子を遮蔽するために厚さ 3mm の ^6LiF タイルが置かれている。全吸収型 BGO 検出器では、限られた台数のシンチレータを組み合わせて高検出効率を得るために、試料と検出器間の距離は非常に近く、試料で散乱された中性子やガンマ線による影響を受けやすい配置となっている。検出器の構造を図 2.3-2 に示す。

京大炉ライナックを用いてこれまで実施された中性子捕獲断面積測定の主な研究成果を表 2.3-1 に示す。

C_6D_6 検出器を用いて、これまでにマイナーアクチニドの ^{237}Np や長寿命核分裂生成核種の ^{99}Tc の測定が実施された[3, 4]。いずれの測定も標準試料として ^{10}B を用いた相対測定であり、断面積の規格化は評価済核データライブラリの熱中性子捕獲断面積に対して行っている。 C_6D_6 検出器は検出効率が小さいため、検出効率は中性子捕獲ガンマ線のスペクトルと多重度に依存して中性子エネルギーに依存すると思われるが、これまでの研究では波高重み法を用いた検出効率の評価は行われていない。

中性子捕獲断面積の絶対値の導出を行い、検出効率の中性子エネルギー依存性による系統誤差を低減するためには、京大炉ライナックに設置された C_6D_6 検出器に対する波高重み法の適用が急務であると考ええる。

BGO 検出器を用いて、これまでに長寿命核分裂生成核種の ^{129}I 、 ^{133}Cs 等の核分裂生成核種の安定核種の測定が行われてきた[5]。しかし、上記述べたように BGO 検出器は高検出効率である半面、測定試料による散乱中性子やガンマ線の影響を受けやすい問題があるため、バックグラウンドについて厳密な解析が必要であるが、これまでの研究ではバックグラウンドの評価について十分な検討がなされていない。

また、1.4.1 節で述べたように、 C_6D_6 検出器は散乱中性子の影響を受けにくい、検出効率が小さいことにより統計精度が悪いという短所があり、BGO 検出器は検出効率が大きいことにより統計精度が優れているが、散乱中性子の影響を受けやすいという短所がある。したがって、これらの検出器を相補的に使うことによって系統誤差を低減することが期待できるが、同じ試料に対して異なる測定手法を適用した実験はこれまで行われていない。

なお、1.4.2 節で述べたように、デッドタイム、試料中の不純物効果に関しては、先行研究で補正手法が確立されているが、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正については、従来の研究では十分な検討がなされていなかった。試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数は、京大炉ライナックに限らず多くの実験では評価済核データライブラリを用いたモンテカルロ・シミュレーションによって評価を行っていた。ところが、補正を行うのに測定対象である捕獲断面積の評価値を使用するのは矛盾があり、その補正量が大きい場合は最終結果にも影響を及ぼす可能性がある点に着目し、本論文では補正法の検証と新たな補正法の開発を行った。

以上の状況を踏まえて、本論文では、全エネルギー検出器と全吸収型検出器を相補的に活用することで測定対象核種である ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の測定を試みた。それぞれの検出器の特徴を考慮した系統誤差低減に向けた解析手法を開発した。さらに、検出器に拠らず共通に系統誤差の要因となり得る補正について検証を行い、新たな補正手法を適用することとした。解析手法の開発及び検討については、第 3 章、第 4 章で述べる。 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定への適用例については第 5 章、第 6 章で述べる。

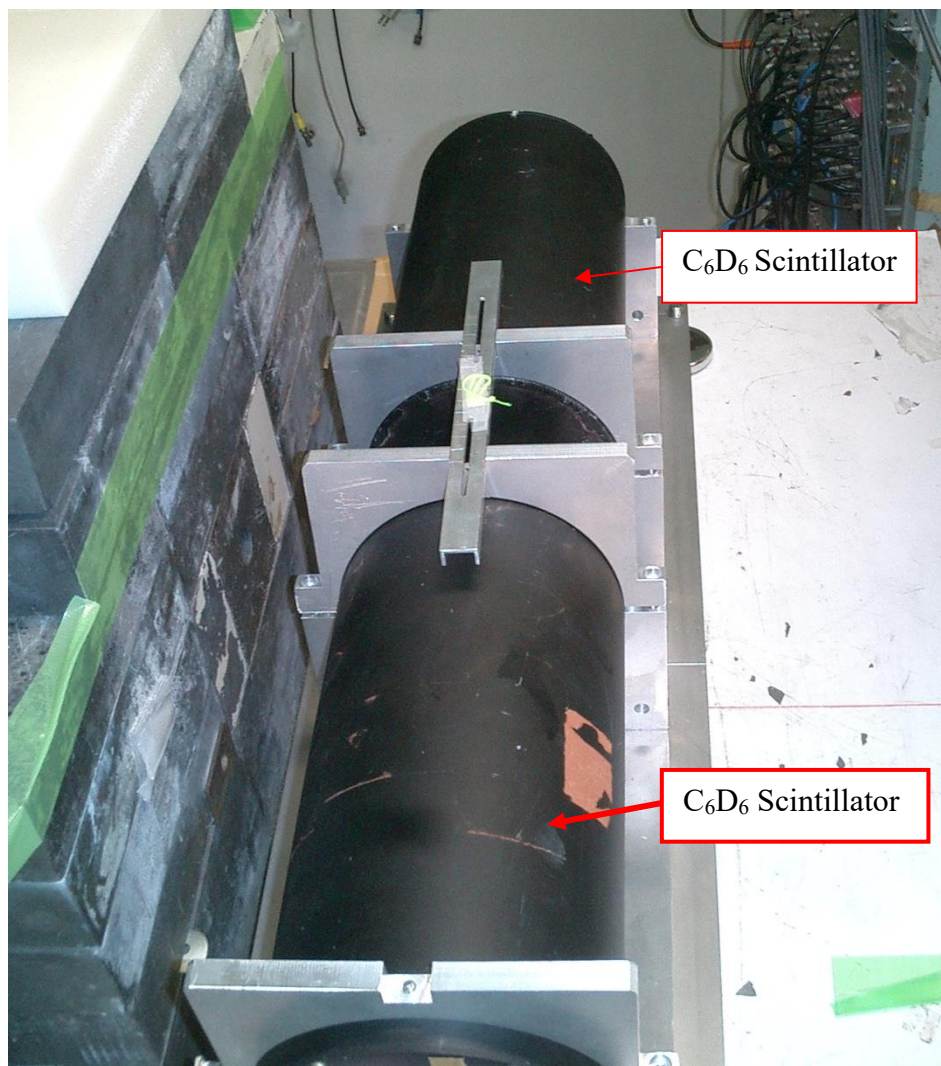


図2. 3-1 C₆D₆検出器の外観

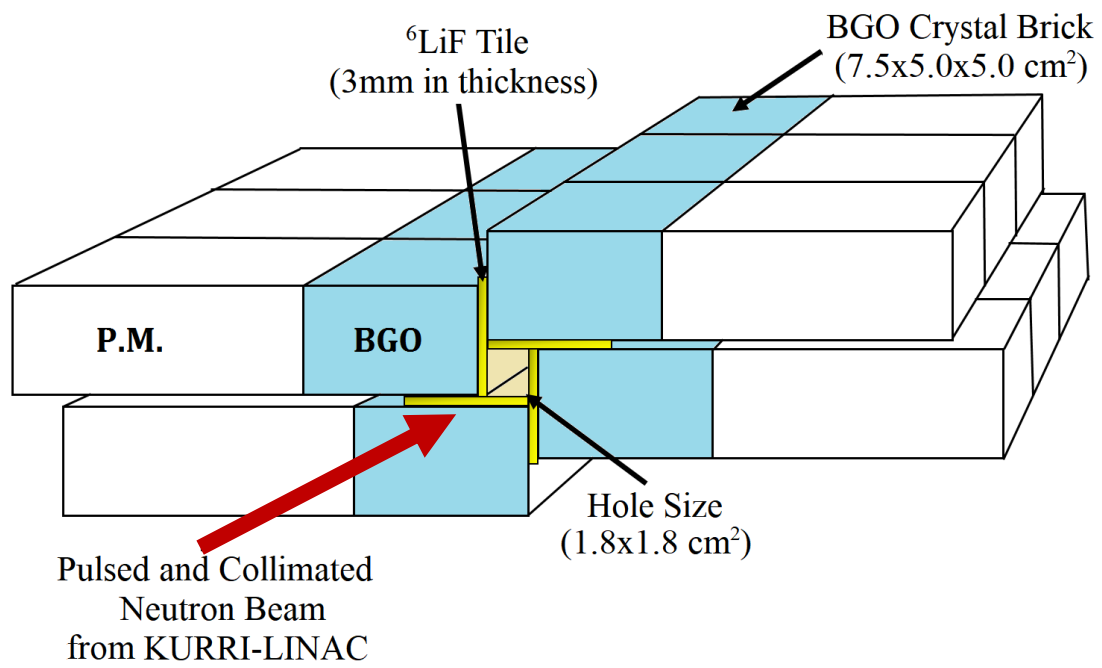


図 2.3-2 BGO 検出器の構造

表 2. 3-1 京大炉ライナックを用いた中性子捕獲断面積測定に対する主な研究成果

論 文 表 題	記載雑誌など	検出器
Application of BGO Scintillators to Absolute Measurement of Neutron Capture Cross Sections between 0.01 eV and 10 eV [10]	Nucl. Sci. Technol., 11: 815-820 (1996)	BGO
Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np by Linac Time-of-Flight Method and with Linac-driven Lead Slowing-down Spectrometer [4]	Nucl. Sci. Technol., 39: 111-119 (2002)	C_6D_6
Neutron Capture Cross Section Measurements of ^{129}I , ^{133}Cs and ^{141}Pr with Linac Time-of-Flight Method [6]	Proc. of the Eleventh Int'l Symp. On Reactor Dosimetry, Brussels, 19-23 (2002)	BGO and C_6D_6
Measurements of Neutron Capture Cross Section of ^{162}Dy between 0.003 eV and 10 keV using Total Energy Absorption Detector [7]	Nucl. Sci. Technol., 39: 287-290 (2002)	BGO
Neutron Capture Cross Section Measurements of Tc-99 and Rh at Energies below 40 keV by Linac Time-of-Flight Method [5]	Nucl. Sci. Technol., 39: 214-217 (2002)	BGO and C_6D_6
Neutron Capture Cross Section Measurements of Praseodymium in the Energy Region from 0.003 eV to 140 keV [8]	Nucl. Sci. Technol., 40: 447-456 (2003)	BGO
Neutron Capture Cross Section Measurements of Podium in the Energy Region from 0.003 eV to 80 keV by Linac Time-of-Flight Method [11]	Nucl. Sci. Eng., 144: 1-14 (2003)	BGO
Neutron Capture Cross Section Measurements of Technetium-99 by Linac Time-of-Flight Method and Resonance Analysis [9]	Nucl. Sci. Eng., 146: 209-220 (2004)	BGO

2.4 まとめ

本章では、本研究で用いた京大炉ライナック及び中性子源の概要、京大炉ライナックにおける中性子捕獲断面積測定の現状と課題について述べた。

現在、京大炉ライナックで発生できる電子ビームのエネルギーは 6MeV～46MeV であり、二つの運転モードを選択し、自由度高いパルス幅や中性子スペクトルを形成することができる。なお、京大炉ライナックでは、これまでに全エネルギー検出器として C_6D_6 検出器、全吸収型検出器として BGO 検出器が開発され、それらの検出器を用いた中性子捕獲断面積測定が行われてきた。

先行研究の状況から、 C_6D_6 検出器を用いた測定では、波高重み法を適用して検出効率の評価を行い、検出効率の中性子エネルギー依存性による系統誤差を低減することの必要性が示された。BGO 検出器を用いた測定では、測定試料による散乱中性子やガンマ線の影響を受けやすい問題があるため、バックグラウンド評価法を確立し、系統誤差を低減する必要があることを確認した。また、これらの検出器を相補的に活用することによって系統誤差の低減が期待されるので、同じ試料に対して異なる測定手法を適用した中性子捕獲断面積測定が必要と考える。

共通の誤差要因としては、試料中での中性子の自己遮蔽・多重散乱効果の補正法の検討と新たな補正法の開発に対する必要性について述べた。

これらの抽出した課題に対して、第 3～4 章では解析手法の開発及び検討結果を示し、第 5～6 章では今回検討した解析手法の適応例として ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の結果を示す。

参考文献

- [1] Hori J, “Nuclear data measurement at KURRI-LINAC,” IAEA-TECDOC-1743, IAEA, 2014; 286.
- [2] K. Kobayashi, G. Jin, S. Yamamoto, K. Takami, Y. Kimura, T. Kozuka, Y. Fujita. Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Japan: Kyoto Univ; 1989; Report no.22.
- [3] T. Emoto. Master thesis of Tokyo Institute of Technology. 1977.
- [4] K. Kobayashi et al., “Measurement of Neutron Capture Cross Section of ^{237}Np by Linac Time-of-Flight Method and with Linac-driven Lead Slowing-down Spectrometer”, Nucl. Sci. Technol., 2002; 39: 111-119.
- [5] K. Kobayashi et al., “Neutron Capture Cross Section Measurements of Tc-99 and Rh at Energies below 40 keV by Linac Time-of-Flight Method”, Nucl. Sci. Technol., 2002; 39: 214-217.
- [6] K. Kobayashi et al., “Neutron Capture Cross Section Measurements of ^{129}I , ^{133}Cs and ^{141}Pr with Linac Time-of-Flight Method”, Proc. of the Eleventh Int’l Symp. On Reactor Dosimetry, Brussels, 2002; 19-23.
- [7] G. Kim et al., “Measurements of Neutron Capture Cross Section of ^{162}Dy between 0.003 eV and 10 keV using Total Energy Absorption Detector”, Nucl. Sci. Technol., 2002; 39: 287-290.
- [8] J. Yoon et al., “Neutron Capture Cross Section Measurements of Praseodymium in the Energy Region from 0.003 eV to 140 keV”, Nucl. Sci. Technol., 2003; 40: 447-456.
- [9] K. Kobayashi et al., “Neutron Capture Cross Section Measurements of Technetium-99 by Linac Time-of-Flight Method and Resonance Analysis”, Nucl. Sci. Eng., 2004; 146: 209-220.
- [10] S. Yamamoto et al., “Application of BGO Scintillators to Absolute Measurement of Neutron Capture Cross Sections between 0.01 eV and 10 eV”, J. Nucl. Sci. Technol. 1996; 33:815–820.
- [11] L. Samyol et al., “Neutron Capture Cross Section Measurements of Potassium in the Energy Region from 0.003 eV to 80 keV by Linac Time-of-Flight Method” Nucl. Sci. Technol., 2003; 144: 94-109.

第3章 中性子捕獲イールドの決定法の高度化

中性子が標的原子核へ入射したとき、原子核に中性子が捕獲され、入射中性子の運動エネルギーと中性子の結合エネルギーの和の分だけ原子核が励起された複合核が形成される。励起状態の複合核は様々な過程を経て基底状態へと遷移する。その中の一つがガンマ線放出によって励起エネルギーを放出する過程であり、この過程で発生したガンマ線を即発ガンマ線と呼ぶ。中性子捕獲イベント測定検出器は、中性子を捕獲した際に発生した即発ガンマ線を検出することにより中性子捕獲反応イベント数（中性子捕獲イールド）を測定するため、この数の測定精度がそのまま捕獲断面積の精度につながる。すなわち、TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定で、精度の高い中性子捕獲断面積 $\sigma_\gamma(E_n)$ を導出するためには精密な中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ を求める必要がある。理論的な試料の中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ は、

$$Y_s(E_n) = \frac{C_s(E_n)}{\varepsilon_s(E_n)} \quad (3.1.1)$$

となる。式(3.1.1)より、実際の測定に対する中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ は次式のよ

うに表わせる。

$$Y_s(E_n) = \frac{C_{exp}(E_n) - B_{exp}(E_n)}{\varepsilon_s(E_n)} \quad (3.1.2)$$

ここで、 $C_{exp}(E_n)$ は測定によって観測された試料のトータル中性子捕獲計数率、 $B_{exp}(E_n)$ は測定に対するトータルバックグラウンドの計数率、 $\varepsilon_s(E_n)$ は検出器の検出効率を示す。さらに、式(3.1.2)に規格化因子を導入すると中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ は次式のように表わせる。

$$Y_s(E_n) = N_\gamma \cdot \{C_{exp}(E_n) - B_{exp}(E_n)\} \quad (3.1.3)$$

ここで、 N_γ は規格化因子を示す。式(3.1.3)からわかるように、TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定 of 系統誤差要因の一つの項である中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ の決定法における系統誤差の低減を行うためには、バックグラウンドの評価法の高度化や規格化因子の決定法の高度化が必要である。

現在、京大炉ライナックを用いた TOF 測定系の主なバックグラウンドの要因としては以下の2つが考えられる。

- 〈1〉 時間に依存しないバックグラウンド
- 〈2〉 時間に依存するバックグラウンド

〈1〉については、自然バックグラウンドとして高エネルギー宇宙線、 ^{40}K の崩壊による 1.461MeV のガンマ線、 ^{208}Tl の崩壊による 2.615MeV のガンマ線などが主成分として考えられる。

〈2〉については、実験室内に到達した中性子やガンマ線が引き起こす試料に依存しないバックグラウンドと、試料に到達した中性子やガンマ線が引き起こす試料に依存するバックグラウンドに分類できる。試料に依存しないバックグラウンドは、中性子飛行管内から散乱された中性子が実験室内に入って、実験室内の構造物と捕獲反応を起こして発生するガンマ線が主成分として考えられる。なお、試料に依存するバックグラウンドは、試料で散乱した中性子とガンマ線が主成分として考えられ、これらのバックグラウンドは試料の中性子とガンマ線の散乱特性、測定システムにおける中性子とガンマ線の感度、測定室内の検出器の設置や設計特性などに依存する。

これまで分類してきたバックグラウンド成分をわかりやすく整理すると、次式のように表すことができる。

$$B_{\text{exp}}(E_n) = B_i(E_n) + B_d(E_n) \quad (3.1.4)$$

ここで、 $B_i(E_n)$ は時間に依存しないバックグラウンド、 $B_d(E_n)$ は時間に依存するバックグラウンドを示す。さらに、時間に依存するバックグラウンド $B_d(E_n)$ は、

$$B_d(E_n) = B_1(E_n) + B_2(E_n) + B_3(E_n) \quad (3.1.5)$$

となる。ここで、 $B_1(E_n)$ は室内からの中性子起因のバックグラウンド、 $B_2(E_n)$ は試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド、 $B_3(E_n)$ は試料で散乱した中性子起因のバックグラウンドを示す。

現在、時間に依存するバックグラウンドの主な評価法には、上流に中性子吸収体を置いた測定から評価する共鳴フィルタを用いたノッチフィルタ法と中性子吸収体 B plug（十分な厚さを持つ B 吸収体）を用いた B plug 測定方法があり、試料を置かない測定から評価する Blank 測定方法がある。前二者は大きな共鳴をもつ試料や B plug などを TOF ビーム中に挿入することによって、その共鳴領域や連続的な領域で中性子ビームを black out することで、特定のエネルギー点や連続的なエネルギーに対して、試料で散乱した中性子起因ではない時間依存バックグラウンドを求める方法である。Blank 測定方法は試料起因ではない時間依存バックグラウンドを連続的なスペクトルとして求める方法である。なお、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンドは、散乱体を置いた追加的測定から評価できる。ところが、2.3 節で述べたように京大炉ライナックでは、中性子捕獲断面積測定に使用している検出器に対して、時間に依存するバックグラウンドの評価が十分な検討がなされていない

のが現状である。

中性子捕獲イールドの規格化には、全エネルギー型検出器に対して、1967 年に Macklin らによって確立された手法である波高重み法[1]と全吸収型検出器に対して、試料が持つ大きな共鳴ピークを利用して試料の検出効率を決定する手法である飽和共鳴法が考えられる。現在、京大炉ライナックにおいては、1996 年から全吸収型検出器として 12 台の BGO 検出器が開発され[2]、BGO 検出器に飽和共鳴法や単純に規格化因子を導入することによって中性子捕獲イールドを規格化してきた。ところが、1967 年に確立された波高重み法についてはまだ京大炉ライナックに設置されている C_6D_6 検出器に反映されていないのが現状である。

以上のことから、本章では中性子捕獲イールド決定法の高度化として、バックグラウンドの評価法については、全エネルギー C_6D_6 検出器と全吸収型 BGO 検出器に対する時間に依存するバックグラウンドの影響評価を行った。特に BGO 検出器に対しては先行研究では考慮されていなかった散乱ガンマ線の影響について、モンテカルロ・シミュレーションによる数値計算によって評価を行い、時間依存のバックグラウンド成分を明らかにした。中性子捕獲イールドの規格化については、規格化因子の決定法として波高重み法について述べ、先行研究で考慮されていなかった京大炉ライナックの C_6D_6 検出器に対する波高重み関数を導出し、中性子捕獲断面積の絶対値を決定することが可能にし、検出効率の中性子エネルギー依存性による系統誤差を低減することを目的とした。

3.1 バックグラウンドの評価法の検討

3.1.1 C_6D_6 検出器に対する散乱中性子の影響評価

時間に依存するバックグラウンド $B_d(E_n)$ の一つの要因である試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の影響は、まず C_6D_6 検出器の散乱中性子に対する感度特性評価から求めた。

試料で散乱した中性子の一部は検出器内で中性子捕獲反応を引き起こし、バックグラウンドとして検出器に検出される。このような散乱中性子に対する感度を表わす指標として、散乱中性子に対する検出感度を次のように定義する。

$$\text{検出感度} = \frac{\text{散乱中性子に起因する事象に対する計数}}{\text{試料で散乱した中性子数}} \quad (3.1.6)$$

検出感度の測定は、京大炉ライナックのパルス中性子源を用いた TOF 実験によって行った。京大炉ライナックの運転条件は、繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 100ns、平均ビーム電流約 15 μ A とした。中性子モデレータには八角形の軽水モデレータ（高さ 30cm、厚さ 10cm）を用いた。測定試料は中性子源から 12.1m の位置に設置した。本測定には、全エネルギー型検出器として一对の C_6D_6 検出器を用いた。なお、測定試料には $2 \times 2 \times 1 \text{ cm}^3$ (75atoms/kb) の直方体の黒鉛 (Carbon) を用いた。Carbon は中性子をほとんど吸収せず、100keV 以下のエネルギー領域では一定の弾性散乱断面積（約 4.9b）を持っているため、中性子散乱の影響を評価するのに適した材料である。 C_6D_6 検出器は中性子ビーム垂直方向に配置され、試料は中性子ビームラインの中心に置いておいた。試料中心から検出器の表面まで距離は 5cm であった。試料で散乱した中性子数は、入射中性子束と Carbon の弾性散乱断面積から算出した。なお、入射中性子束は ^{10}B 試料を用いることによって得た。

C_6D_6 検出器の散乱中性子に対する検出感度特性を図 3.1-1 に示す。全中性子エネルギー領域に対して、 C_6D_6 検出器の散乱中性子感度は約 0.3% 以下の検出感度しか観測されていなかった。

このような結果から、 C_6D_6 検出器が散乱中性子の影響を受けにくい優れたガンマ線検出器であることを確認し、 C_6D_6 検出器を用いた測定の場合、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の影響はほとんど無視できると評価した。

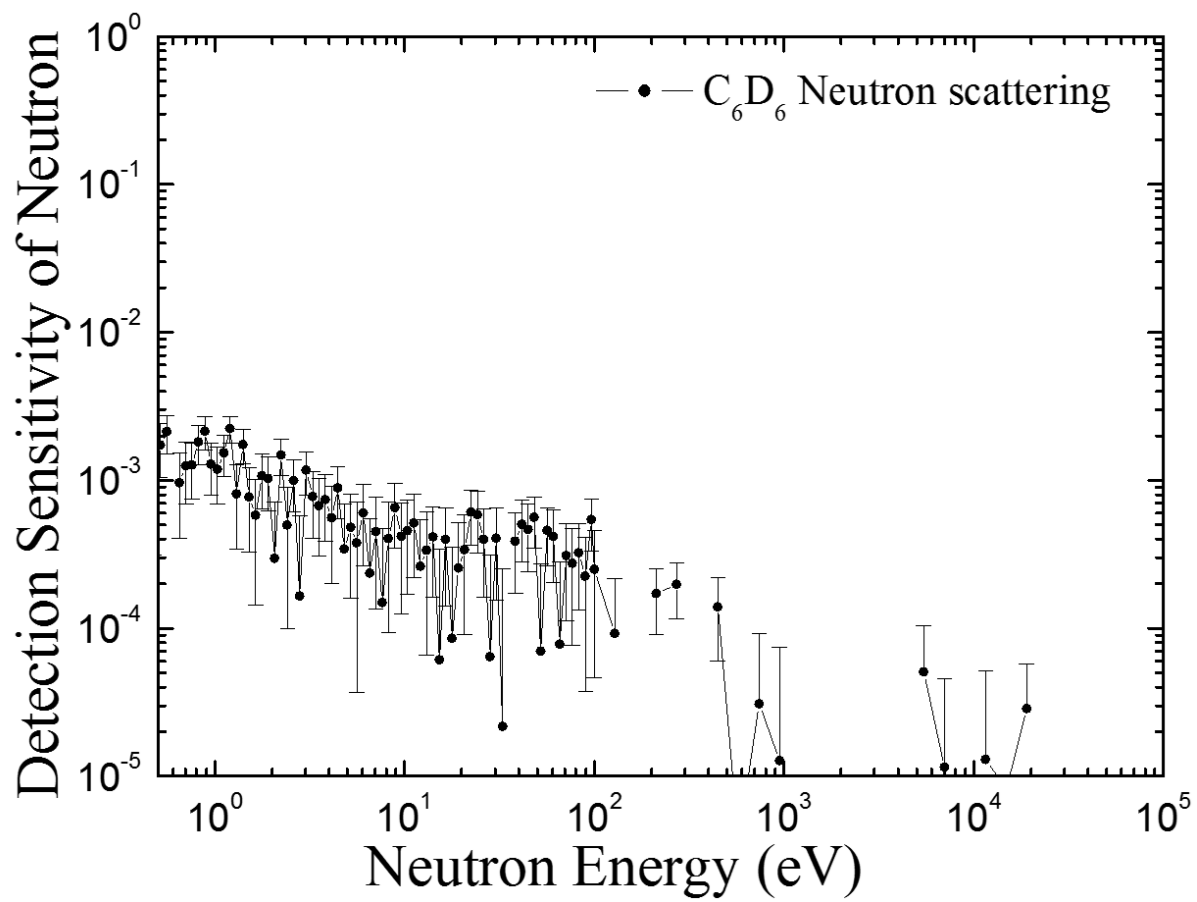


図 3.1-1 C_6D_6 検出器の散乱中性子検出感度

3.1.2 C₆D₆ 検出器に対する散乱ガンマ線の影響評価

試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の影響は、上流に共鳴フィルタを置いた測定（共鳴フィルタ測定）と試料を置かない測定（Blank 測定）を比較することによって評価した。

共鳴フィルタ測定方法は、大きな共鳴ピークの共鳴領域で中性子が完全に吸収されることを利用してバックグラウンドの寄与 $B_i(E_n) + B_l(E_n) + B_2(E_n)$ を求める評価法であり、Blank 測定方法は、試料起因ではないバックグラウンドの寄与 $B_i(E_n) + B_l(E_n)$ を求める評価法である。すなわち、両手法の測定結果を比較することによって試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の寄与を評価することができる。

測定は、京大炉ライナックから発生したパルス中性子を用いて TOF 実験を行った。京大炉ライナックの運転条件は、繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 100ns、平均ビーム電流約 13μA とした。中性子モデレータには高さ 30cm、厚さ 10cm の八角形の軽水モデレータを用いた。測定試料は中性子源から 12.1m の位置に設置し、測定には一対の C₆D₆ 検出器を用いた。In (¹¹⁵In : 1.46eV)、Ag (¹⁰⁷Ag : 5.19eV)、Co (⁵⁹Co : 132eV)、Mn (⁵⁵Mn : 336eV、2.37keV) を重ね合わせた共鳴フィルタは、試料より上流側の TOF ビーム中に挿入した。測定試料として ¹⁰B を用いた場合のバックグラウンド測定として、共鳴フィルタを挿入して試料を置いた場合の共鳴フィルタ測定と試料を置かない Blank 測定を行った。C₆D₆ 検出器は中性子ビーム垂直方向に配置された。中性子ビームラインに置いている試料と検出器表面まで距離は 5cm であった。

Blank 及び共鳴フィルタの測定結果の比較を図 3.1-2 に示す。共鳴の dip の計数率は試料で散乱したガンマ線の影響まで包含するバックグラウンドのレベルを表す。図 3.1-2 からわかるように、五つの大きな共鳴エネルギー領域に対して共鳴の dip は Blank の結果と良く一致している。これは試料中心から 5cm 離れて設置された C₆D₆ 検出器の測定システムでは試料で散乱したガンマ線の影響がほとんどないことを意味する。

3.1.1 と 3.1.2 節による以上の結果から、京大炉ライナックに設置されている C₆D₆ 検出器を用いた中性子捕獲断面積測定の場合、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ と試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の影響がほとんどないことから、バックグラウンドの評価法として Blank 測定方法だけで十分にバックグラウンドを評価することが可能であることを確認した。

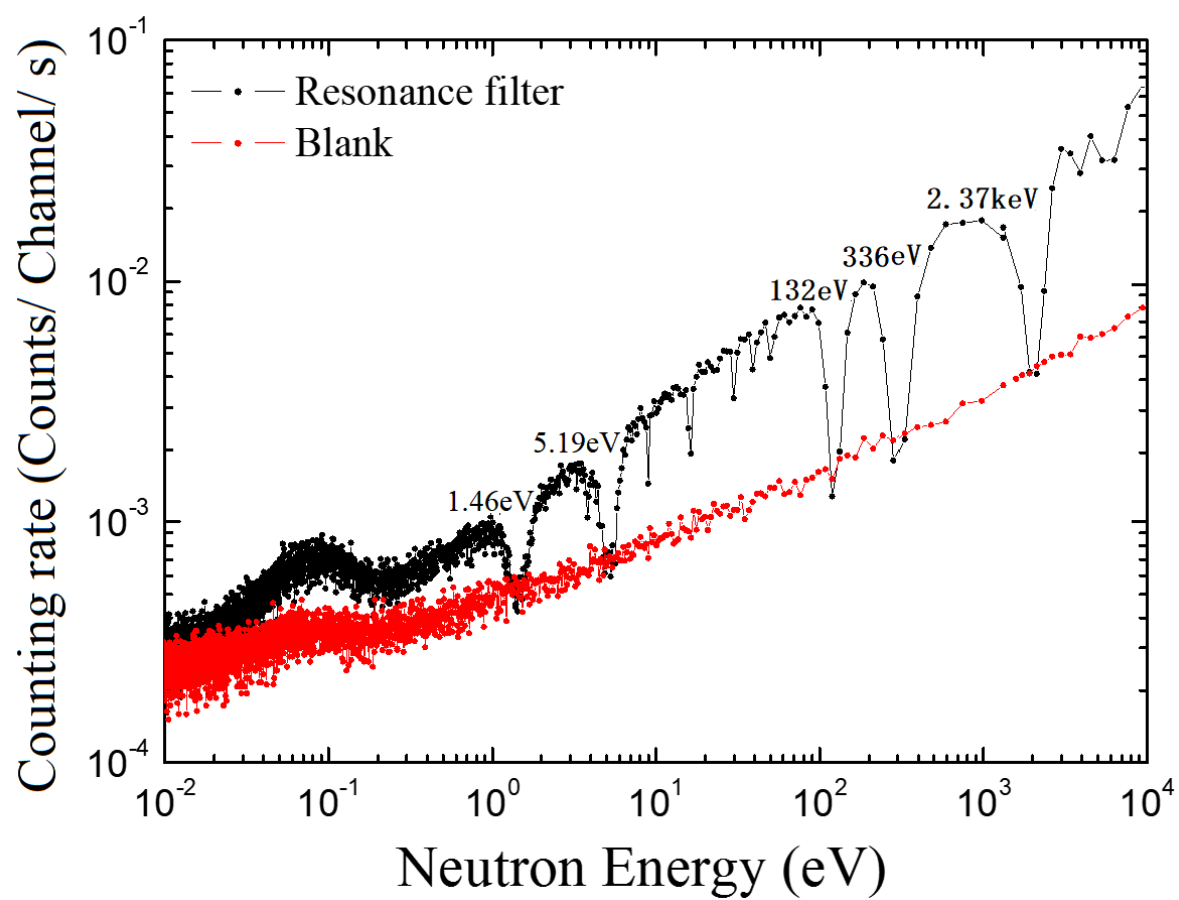


図 3.1-2 Blank 及び共鳴フィルタの測定結果の比較

3.1.3 BGO 検出器に対する散乱中性子の影響評価

まず、BGO 検出器の散乱中性子に対する感度特性評価をすることから、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の影響評価を行った。散乱中性子に対する検出感度は式(3.1.6)から得られた。

$$\text{検出感度} = \frac{\text{散乱中性子に起因する事象に対する計数}}{\text{試料で散乱した中性子数}} \quad (3.1.6)$$

検出感度の測定は、京大炉ライナックのパルス中性子源を用いて行った。京大炉ライナックの運転条件、中性子モデレータ、測定試料は C_6D_6 検出器に対する検出感度の測定の時と同じ条件とした。試料から中性子源までの距離は 12.7m であった。本測定には、全吸収型検出器として 12 台の BGO 検出器を用いた。試料と検出器の間には散乱中性子を遮蔽するために厚さ 3mm の ${}^6\text{LiF}$ タイルが置かれている。分析方法は C_6D_6 検出器に対する検出感度の測定の時と同じ手法で行った。

BGO 検出器の散乱中性子に対する検出感度特性を図 3.1-3 に示す。100eV 以下の中性子エネルギー領域では、 ${}^6\text{LiF}$ タイルの遮蔽効果によって BGO 検出器の散乱中性子感度は約 0.1～1%精度であった。しかし、100eV 以上では、BGO 検出器の ${}^6\text{LiF}$ タイルの遮蔽効果が著しく減少するため、散乱中性子の検出感度は、0.5～6.5%に増加した。

このような結果から、BGO 検出器を用いた実験の場合、中性子エネルギーが 100eV 以上になると ${}^6\text{LiF}$ タイルの遮蔽効果が著しく減少するため、100eV より高い領域については、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の寄与を明確に評価する必要があることをわかった。

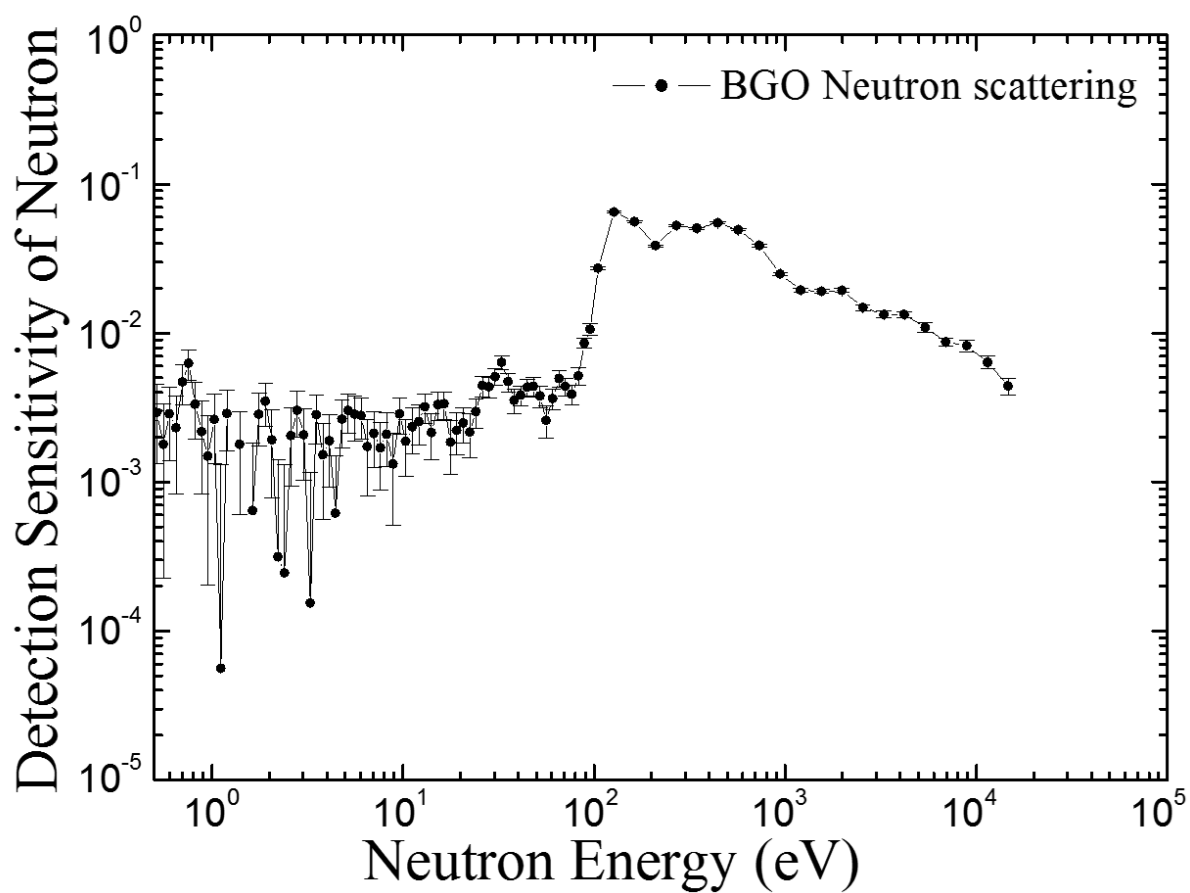


図 3.1-3 BGO 検出器の散乱中性子検出感度

参考 試料で散乱した中性子起因のバックグラウンドの評価法

京大炉ライナックでは、先行研究において試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の評価手法が確立されている。このバックグラウンドの評価は吸収反応がほとんど無視できる散乱体（Carbon など）を用いて追加的な実験をすることによって行っている。試料で散乱した中性子起因のバックグラウンドを引き去った中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ は次式のように定義することができる。

$$Y_s(E_n) = Y'_s(E_n) - Y_{ca}(E_n) \cdot \frac{\sigma_s^{ela}(E_n)}{\sigma_{ca}^{ela}(E_n)} \cdot \frac{n_s}{n_{ca}} \quad (3.1.7)$$

ここで、 $Y'_s(E_n)$ は Blank の捕獲イールドを引き去った測定試料の捕獲イールド、 $Y_{ca}(E_n)$ は Blank の捕獲イールドを引き去った散乱体の捕獲イールド、 $\sigma_s^{ela}(E_n)$ は測定試料の弾性散乱断面積、 $\sigma_{ca}^{ela}(E_n)$ は散乱体の弾性散乱断面積、 n_s は測定試料の原子核数、 n_{ca} は散乱体の原子核数である。

このような手法により、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の寄与がない正味の中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ を導出することが可能である。

3.1.4 BGO 検出器に対する散乱ガンマ線の影響評価

試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の影響は、共鳴フィルタ測定を Blank 測定と比較することによって確認した。

実験は、京大炉ライナックのパルス光中性子源を用いた。京大炉ライナックの運転条件、中性子モデレータ、測定試料は C_6D_6 検出器の測定のとおり同じ条件で行った。測定試料は中性子源から 12.7m の位置に設置した。試料からのガンマ線測定には 12 個のシンチレータから成る全吸収型 BGO 検出器を用いた。In (^{115}In : 1.46eV)、Ag (^{107}Ag : 5.19eV)、Co (^{59}Co : 132eV)、Mn (^{55}Mn : 336eV、2.37keV) を重ね合わせた共鳴フィルタは、試料より上流側の TOF ビーム中に挿入した。測定試料 ^{10}B のバックグラウンド測定には、共鳴フィルタ測定と blank 測定を行った。

共鳴フィルタ測定では、連続的なエネルギーにおけるバックグラウンドの影響を求めるために 1 つの定数項と 2 つの減衰関数によって定義した Fittng 式 $B_s(t)$ を用いた。

$$B_s(t) = a_1 + a_2 \exp(-a_3 t) + a_4 \exp(-a_5 t) \quad (3.1.8)$$

ここで、 $a_1 \sim a_5$ は Fittng パラメータ、 t は TOF を示す。

実験の測定結果の比較を図 3.1-4 に示す。ただし、図 3.1-4 の結果は TOF を中性子エネルギーで換算したものである。1.46eV と 5.19eV では共鳴の dip と blank 測定の結果が良く一致しているが、100eV 以上のエネルギー領域では、blank 測定の結果はバックグラウンドを～10%程度過小に評価する結果となった。

この不一致の原因は試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の影響のためであり、このような結果から、検出効率を高くするために試料の周りに多数の検出器を組み合わせた BGO 検出器の測定システムでは試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の影響が無視できないことを確認した。

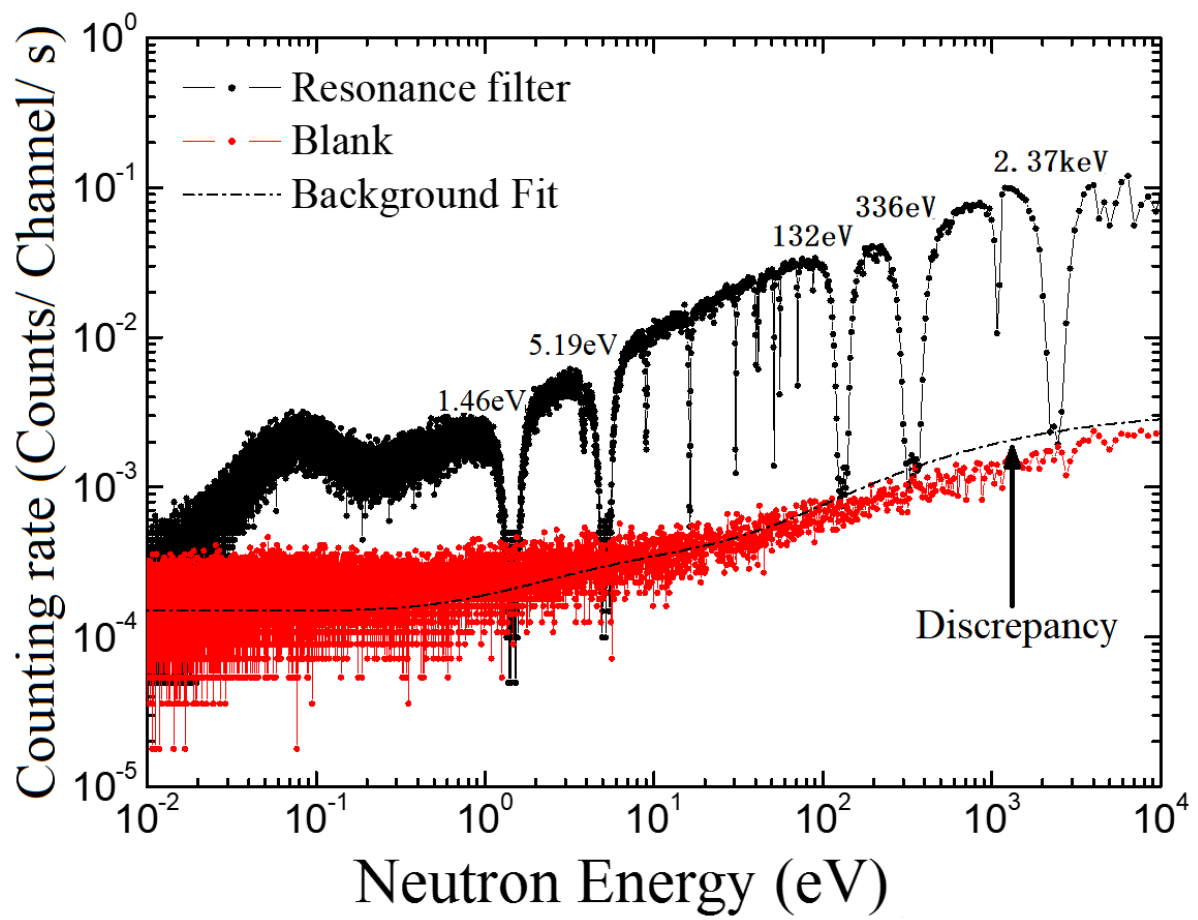


図 3.1-4 ^{10}B 試料に対する各測定で得た TOF スペクトル

3.1.5 試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンドの評価

本節では、先行研究で十分に考慮されていなかった試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ に対して、実験及びモンテカルロ・シミュレーションによる数値計算による評価を行い、このバックグラウンド $B_2(E_n)$ の評価法と主要因を明らかにする。

(1) 実験による評価

京大炉ライナックにおける試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の評価のための実験を行った。

京大炉ライナックの運転条件は、電子加速エネルギー30MeV、繰り返し周波数300Hz、パルス幅 47ns、平均ビーム電流約 55 μ A とした。ライナックの繰り返し周波数を 300Hz としたため、一つ前のパルスで生じた熱中性子が次のパルスとオーバーラップしないように、カドミウムフィルタを中性子飛行管内部に入れた。中性子モデレータには円筒形の軽水モデレータ（高さ 35cm、直径 30cm）を用いた。測定試料として ^{10}B は中性子源から 12.7m の位置に設置し、12 台の全吸収型 BGO 検出器を用いた。In(1.46eV)、Co(132eV)、Mn(336eV、2.37keV) を重ね合わせた共鳴フィルタと B plug は、試料より上流側の TOF ビーム中に挿入した。試料は ^{10}B 、 $^{\text{nat}}\text{Pd}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Zr}$ 、 ^{209}Bi を用いた。試料の情報については表 3.1-1 に示す。測定には共鳴フィルタ、B plug、blank 測定を行い、それぞれの試料に対して、バックグラウンドの差を求めた。この差は共鳴フィルタ、B plug 測定結果と blank 測定結果を比較することから得られたものであり、試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の寄与を示している。

それぞれの試料に対するバックグラウンドの差の比較結果を図 3.1-5 に示す。図 3.1-5 は $^{\text{nat}}\text{Zr}$ 試料で割った相対値であり、試料の厚さで規格化したものである。図 3.1-5(a) から、規格化した試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の相対値を見ると、10eV~1keV の領域で $^{\text{nat}}\text{Pd}$ では 1.0、 ^{209}Bi は 3.0、 ^{10}B は 0.1 で一定となっている。さらに、図 3.1-5(b) から、試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の成分と試料の原子番号には相関性があることを確認した。

コンプトン散乱断面積は原子番号に比例することから試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の主要因を考えて見ると、Ta ターゲット周りの水減速材で発生した水素による 2.2MeV の中性子捕獲ガンマ線が試料によって散乱されてバックグラウンドとなっている可能性が高いと判断した。この場合、試料ごとの感度因子は 2.2MeV に対するコンプトン散乱の確率と比例関係を持つはずである。

そこで、試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の主要因が試料による 2.2MeV の散乱ガンマ線であるということを明確に示すために、本研究ではモンテカルロ・シミュレーションによる数値計算により、水減速材中での中性子の

動きを追跡し、 $^1\text{H}(\text{n},\gamma)$ 反応によって発生する 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布を評価した。

表 3. 1-1 測定試料の仕様

Sample	Weight	Thickness	Isotopic composition	Size (mm ²)
^{10}B	2.92	8.0 (mm) 5.40×10^{-2} (atoms/b)	^{10}B : 96.98%, ^{11}B : 3.02%	18.0×18.0
$^{\text{nat}}\text{Pd}$	3.85	1.0 (mm) 6.72×10^{-3} (atoms/b)	^{102}Pd : 1.02%, ^{104}Pd : 11.14%, ^{105}Pd : 22.33%, ^{106}Pd : 27.33%, ^{108}Pd : 26.46%, ^{110}Pd : 11.72%	18.0×18.0
$^{\text{nat}}\text{Zr}$	1.88	1.0 (mm) 3.83×10^{-3} (atoms/b)	^{90}Zr : 51.45%, ^{91}Zr : 11.22%, ^{92}Zr : 17.15%, ^{94}Zr : 17.38%, ^{96}Zr : 2.80%	18.0×18.0
^{209}Bi	3.16	1.0 (mm) 9.11×10^{-3} (atoms/b)	^{209}Bi : 99.99%	18.0×18.0

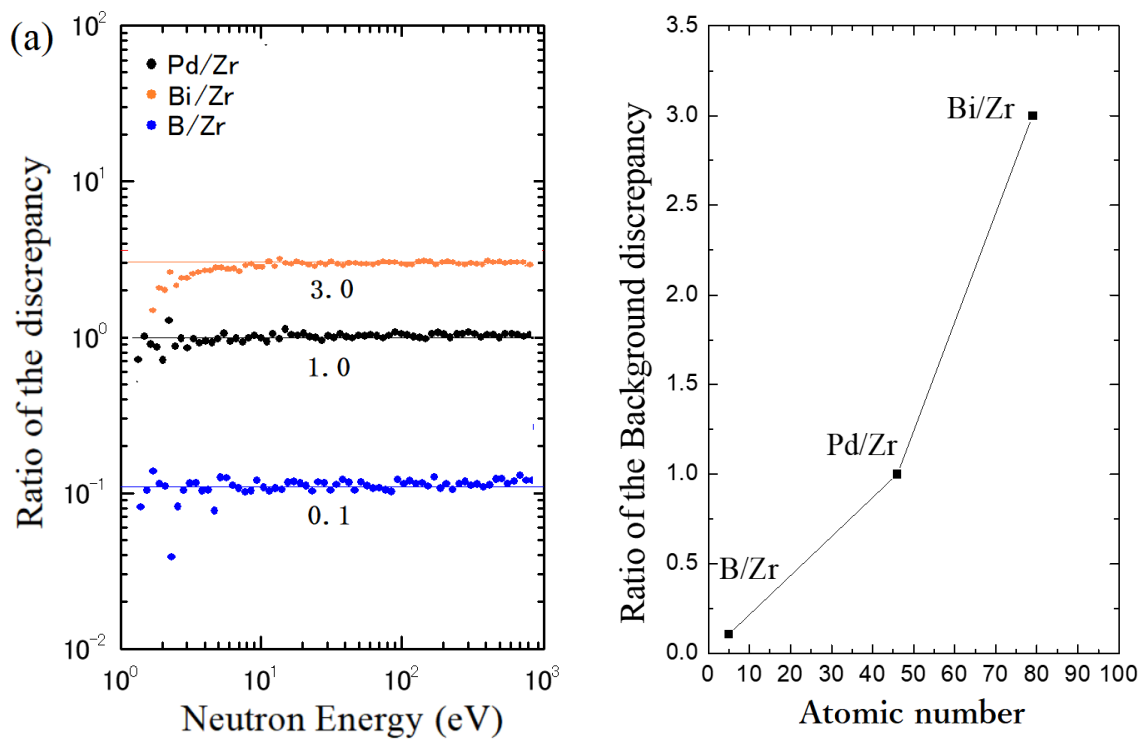


図 3.1-5 各試料の試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンドの ^{nat}Zr に対する割合と原子番号に対する相関関係

(2) 数値計算による評価

京大炉ライナックの TOF 測定における中性子捕獲断面積測定では Ta-target、八角形の水モデレータ、飛行距離 12.7m を用いて測定することが一般的である。この理由で、本研究ではこれらの測定条件と同じ条件で計算を行い、得られた計算結果を同じ測定条件を持つ 3.1.4 節のバックグラウンド測定結果(図 3.1-4 参照)に適用し、考察を行った。

中性子源から発生した中性子が水モデレータ内の水素に捕獲されて発生する 2.2MeV ガンマ線の評価に使用したのは、粒子・重イオン輸送連続エネルギーモンテカルロコード PHITS (Particle and Heavy Ion Transport Code System) [3] である。PHITS の計算には評価済核データライブラリ JENDL-4.0 を使用した。計算体系の概要を図 3.1-6 に示す。計算に使用した水モデレータは京大炉ライナックの中性子捕獲断面積測定に一般的に使用している八角形の水モデレータと同じ体系(直径 30cm、厚さ 10cm) である。計算に使用した八角形の水モデレータを図 3.1-7 に示す。水モデレータの中心部には中性子源として直径 6cm、厚さ 5cm を持つ Ta-target が設置されている。計算では Ta-target に 30MeV の電子を入射させ、制動 x 線による(γ, n)反応で中性子を発生させる。発生した中性子は水モデレータ内の水と捕獲反応し、2.2MeV の捕獲ガンマ線が発生する。本計算には、水モデレータに対して 1m 離れた場所に Tally を設定した。Tally の面は直径 20cm であり、Tally の面を通過する 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布を評価した。検出時間分布は電子が Ta-target に入射する入射時間を $t=0$ 、最大時間 $t=\max$ を 1ms と設定した。計算結果における統計精度が十分になるように試行回数は 100,000,000 とした。本計算では、電子の Ta-target への入射からシミュレーションが始まる。

数値計算で得られた 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布を図 3.1-8 に示す。85 μ s の領域で 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布は最大値となり、100 μ s 以上の領域では急激に減少している。

この数値計算の結果を京大炉ライナックの運転条件(繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 100ns、平均ビーム電流約 13 μ A)、12 台の全吸収型 BGO 検出器、In、Ag、Co、Mn を重ね合わせた共鳴フィルタ、Ta-target、八角形の水モデレータ、飛行距離 12.7m を用いた 3.1.4 節のバックグラウンド測定結果に適用した。検出時間分布は TOF 法を用いて中性子エネルギーに変換した。

この結果得られたバックグラウンド評価結果の比較を図 3.1-9 に示す。100eV 以上の領域では、blank 測定結果はバックグラウンドを $\sim$ 10%程度過小に評価する結果となっているが、得られた数値計算の結果を Blank 測定に加えると、共鳴フィルタ法から決定したバックグラウンドのレベルを再現することができた。

このことから、試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ は水モデレータ内の $^1\text{H}(n, \gamma)$ 反応によって発生した 2.2MeV の散乱ガンマ線が主な要因であることを明らかにした。

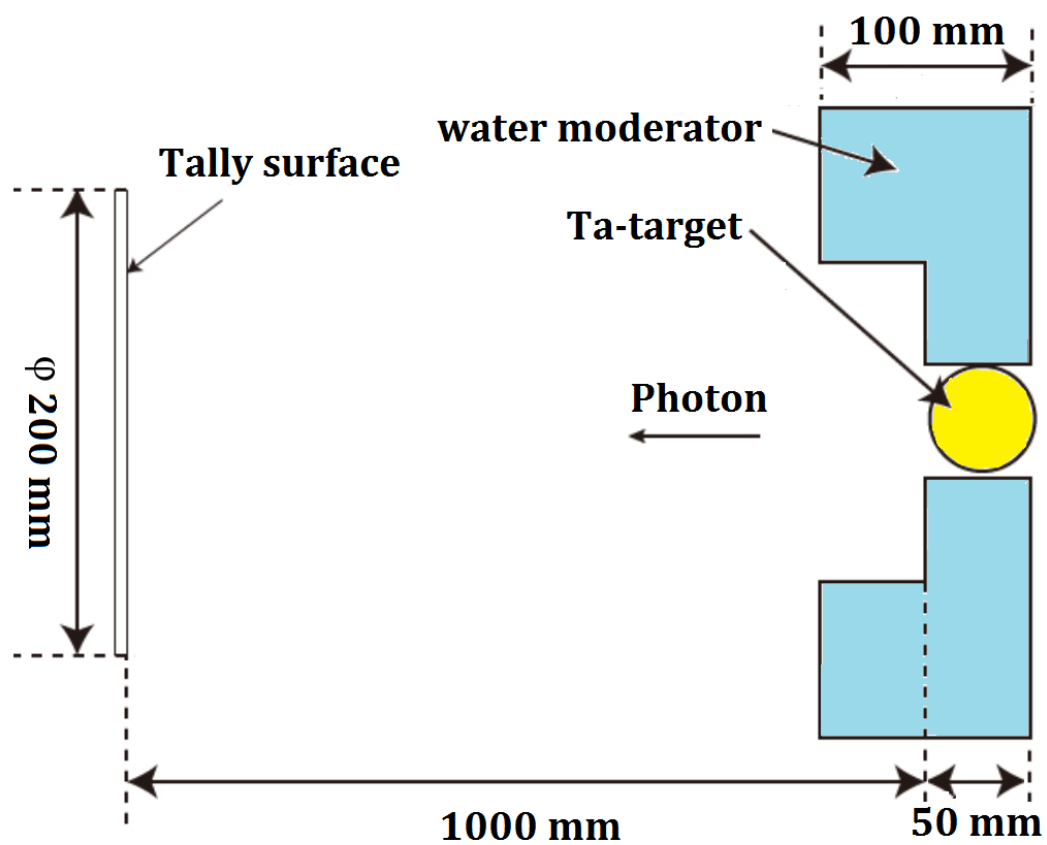


図 3.1-6 計算体系概要図

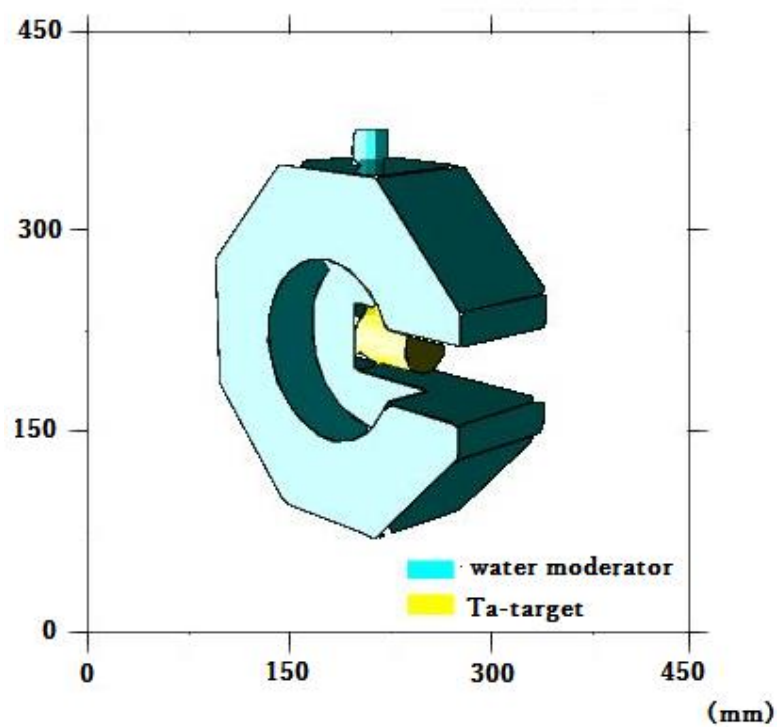


図 3.1-7 八角形の水モデレータ体系

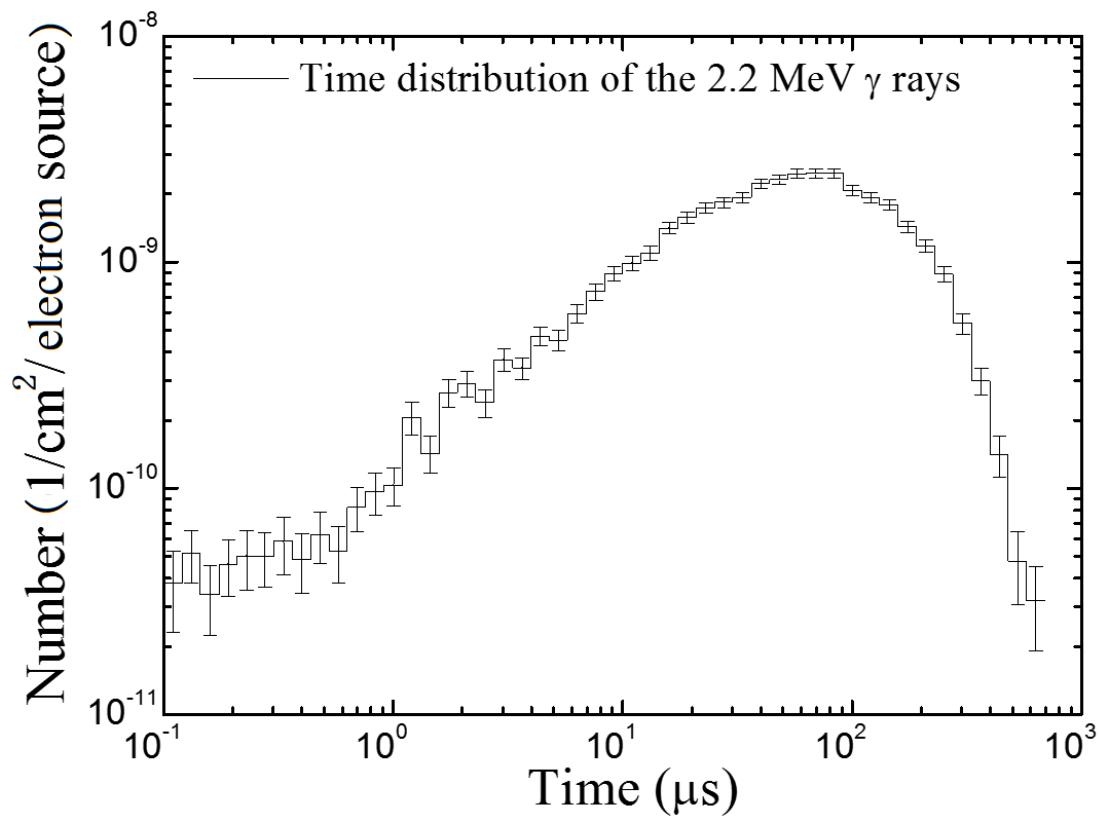


図 3.1-8 八角形の水モデレータから発生する 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布

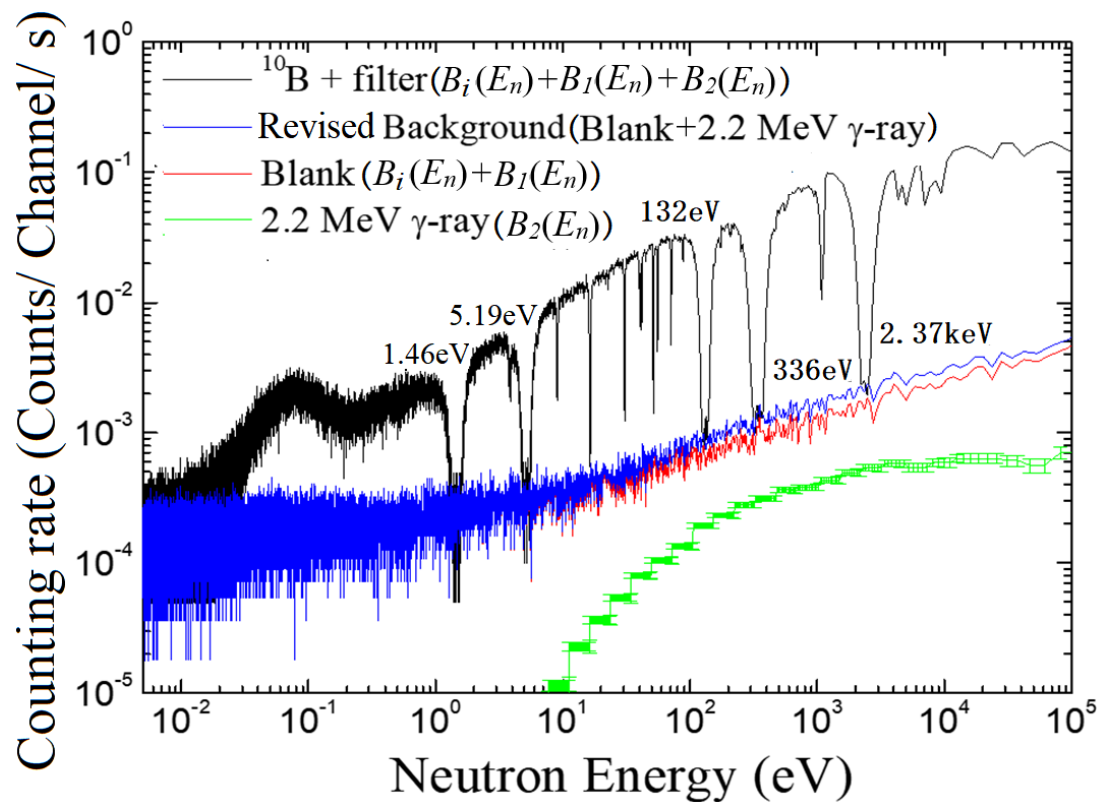


図 3.1-9 バックグラウンド評価結果の比較

(3) 試料で散乱したガンマ線によるバックグラウンドの評価法

数値計算により 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布を用いて試料で散乱したガンマ線のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の寄与を評価した。

試料で散乱したガンマ線のバックグラウンド $B_2(E_n)$ を引き去った(n, γ)捕獲反応イールド $Y_s(E_n)$ は次式のように定義することができる。

$$Y_s(E_n) = Y'_s(E_n) - Y_{2.2\text{MeV}}(E_n) \cdot \frac{\sigma_s^{2.2\text{MeV}}}{\sigma_B^{2.2\text{MeV}}} \cdot \frac{n_s}{n_B} \quad (3.1.9)$$

ここで、 $Y_{2.2\text{MeV}}(E_n)$ は 2.2MeV の捕獲イールド、 $\sigma_s^{2.2\text{MeV}}$ は 2.2MeV ガンマ線に対する測定試料のガンマ線散乱断面積、 $\sigma_B^{2.2\text{MeV}}$ は 2.2MeV ガンマ線に対する ^{10}B 試料のガンマ線散乱断面積である。 $Y_{2.2\text{MeV}}(E_n)$ は ^{59}Co (132eV)、 ^{55}Mn (336eV、2.37keV) の共鳴フィルタの捕獲イールドに 2.2MeV ガンマ線の検出時間分布を規格化して再現したものである。

以上により、試料で散乱したガンマ線によるバックグラウンド $B_2(E_n)$ の評価の汎用的手法を確立することができた。そこで、本研究で確立されたバックグラウンドの評価法は本論文で行う ^{151}Eu 、 ^{153}Eu のデータ解析に反映させた。

3.2 中性子捕獲イールドの規格化

3.2.1 波高重み法を用いた規格化

本節では波高重み法について説明し、京大炉ライナックで設置されている全エネルギー C_6D_6 検出器に対する波高重み関数を導出する。

中性子捕獲断面積の絶対値を取得するためには、中性子捕獲イールド Y_s を規格化する必要があり、このためには捕獲ガンマ線波高スペクトルに対して波高重み法の適用が要求される。図 3.2-1 に示すように中性子捕獲によって形成された複合核は、様々なガンマ線崩壊モードを経てガンマ線のエネルギー E_{ij} を待つガンマ線を放出し、残留核の基底状態へ遷移する。放出されるガンマ線の数及びそのエネルギーは崩壊モードによって異なる。一方、全エネルギー型検出器の場合は検出効率が十分小さいため、中性子捕獲イベント当たり 2 本以上の捕獲ガンマ線を同時に観測されない。したがって、 I チャンネルに観測された捕獲ガンマ線波高スペクトル $S(I)$ は、

$$S(I) = \sum_i Y_{si} \sum_j R(I, E_{ij}) \quad (3.2.1)$$

となる。ここで、 E_{ij} は i 番目の崩壊モードの j 番目に放出されるガンマ線のエネルギー、 Y_{si} は i 番目の崩壊モードの捕獲イベント数である。また、 $R(I, E_{ij})$ は検出器の応答関数であり、定義は1本の単色のガンマ線（エネルギー E_{ij} ）が試料位置から等方的に発生したときに I チャンネルに波高が記録される確率である。

各崩壊モードで放出されるガンマ線のエネルギーの合計は、崩壊モードに拠らず、その複合核の中性子結合エネルギーと重心系における入射中性子エネルギーの和に等しくなる。このことを式で表わせば、

$$\sum_j E_{ij} = B.E. + \frac{A}{A+1} E_n = B.E. + E'_n \quad (3.2.2)$$

となる。ここで、 $B.E.$ は複合核の中性子結合エネルギー、 A は原子核の質量数、 E'_n は重心系における入射中性子エネルギーである。さて、波高重み関数 $W(I)$ を観測された捕獲ガンマ線波高スペクトルに適用すると検出器の検出効率はガンマ線エネルギーに比例することになる。波高重み関数の定義は次式のように表される。

$$\sum_i W(I) R(I, E_{ij}) = E_{ij} \quad (3.2.3)$$

式(3.2.1)に波高重み関数 $W(I)$ を掛けると、

$$\begin{aligned}\sum_I S(I)W(I) &= \sum_i Y_{si} \sum_j \sum_I W(I)R(I, E_{ij}) \\ &= Y_s(B.E. + E'_n)\end{aligned}\quad (3.2.4)$$

を得る。したがって、中性子捕獲イールドは次式で表わせる。

$$Y_s = \frac{\sum_I S(I)W(I)}{B.E. + E'_n} \quad (3.2.5)$$

以上のように捕獲ガンマ線波高スペクトル $S(I)$ に波高重み関数 $W(I)$ を導入することにより、複合核のガンマ線崩壊モード (n, γ) に拠らず、中性子捕獲イールドを得る方法を波高重み法と言う。

本研究で、応答関数 $R(I, E_m)$ は 1 本の単色のガンマ線（エネルギー E_m ）が C_6D_6 検出器の表面から 5 cm の位置で等方的に発生したときに I チャンネルに波高が記録される確率であり、1 チャンネルの幅を 25 keV として扱った。まず、 C_6D_6 検出器へ波高重み法を適用するために、モンテカルロ・シミュレーションコード EGS5[4] を用いて C_6D_6 検出器の応答関数を決定した。EGS5[4] は電子・光子輸送計算のモンテカルロ・シミュレーションコードであり、EGS5[4] では、光子と物質の相互作用として、光電効果、コンプトン散乱、電子対生成、レイリー散乱の 4 つの相互作用が考慮されている。EGS5[4] の計算には、計算の対象物質として、京大炉ライナックで設置されている全エネルギー C_6D_6 検出器のシンチレータ、Al 容器及び空気を考慮し、幾何学条件は、 C_6D_6 検出器のシンチレータ部分を直径 11 cm、高さ 5 cm の円筒形とし、Al 容器の厚さを 1 mm、シンチレータと Al 容器のギャップを 2 mm の空気層とした。2 台の C_6D_6 検出器表面間の距離は 10 cm とした。入射するガンマ線のエネルギーは 0.5、1、2、3、4、5、6、7 MeV の 8 点とした。線源位置は 2 台の C_6D_6 検出器の中心に配置し、等方的にガンマ線を発生させた。EGS5[4] の計算から得られた 0.5、1、2、3、4、5、6、7 MeV の単色のガンマ線（エネルギー E_m ）に対する C_6D_6 検出器の応答関数を図 3.2-2 に示す。波高重み関数は、EGS5[4] で計算した応答関数を用いて、式 (3.2.3) を満足するように最小二乗法によって求めた。

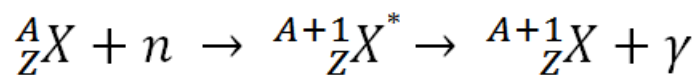
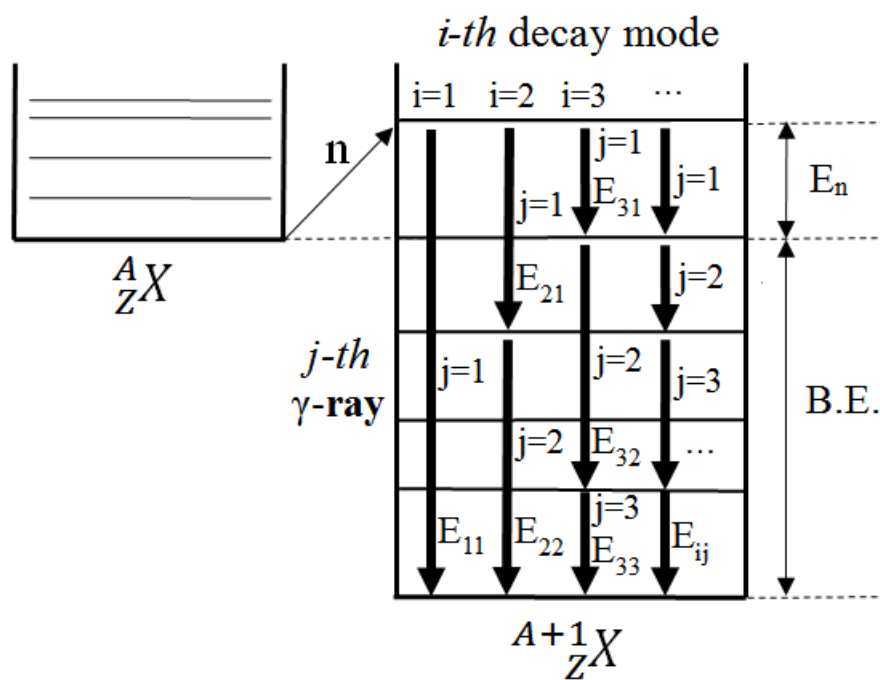
$$\chi^2 = \sum_m \left\{ \sum_I W(I)R(I, E_m) - E_m \right\}^2 / E_m^2 \quad (3.2.6)$$

得られた C_6D_6 検出器の波高重み関数 $W(I)$ は

$$W(I) = 0.034I^2 - 0.241I^{1.5} + 3.686I - 1.212I^{0.5} \quad (3.2.7)$$

となった[5]。得られた C_6D_6 検出器の波高重み関数 $W(I)$ を図 3.2-3 に示す。

C_6D_6 検出器の波高重み関数 $W(I)$ を開発することによって、 C_6D_6 検出器を用いて測定では試料の中性子捕獲イールドを絶対値として規格化することが可能となった。そこで、本研究で得られた C_6D_6 検出器の波高重み関数 $W(I)$ は本論文で行う ^{151}Eu 、 ^{153}Eu のデータ解析に反映させ、誤差評価まで行った。



E_n : Neutron energy

$B.E.$: Neutron binding energy

E_{ij} : γ -ray energy of the j -th γ -ray in the i -th decay mode

図 3.2-1 中性子捕獲によって形成された複合核の崩壊モード

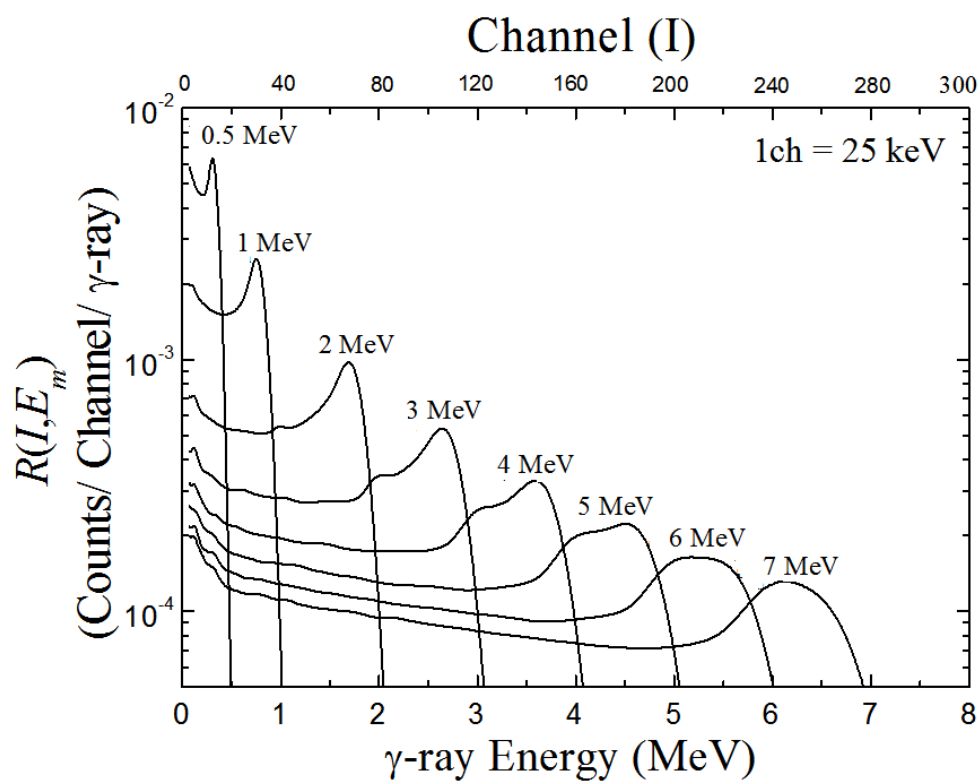


図 3.2-2 C_6D_6 検出器に対する応答関数

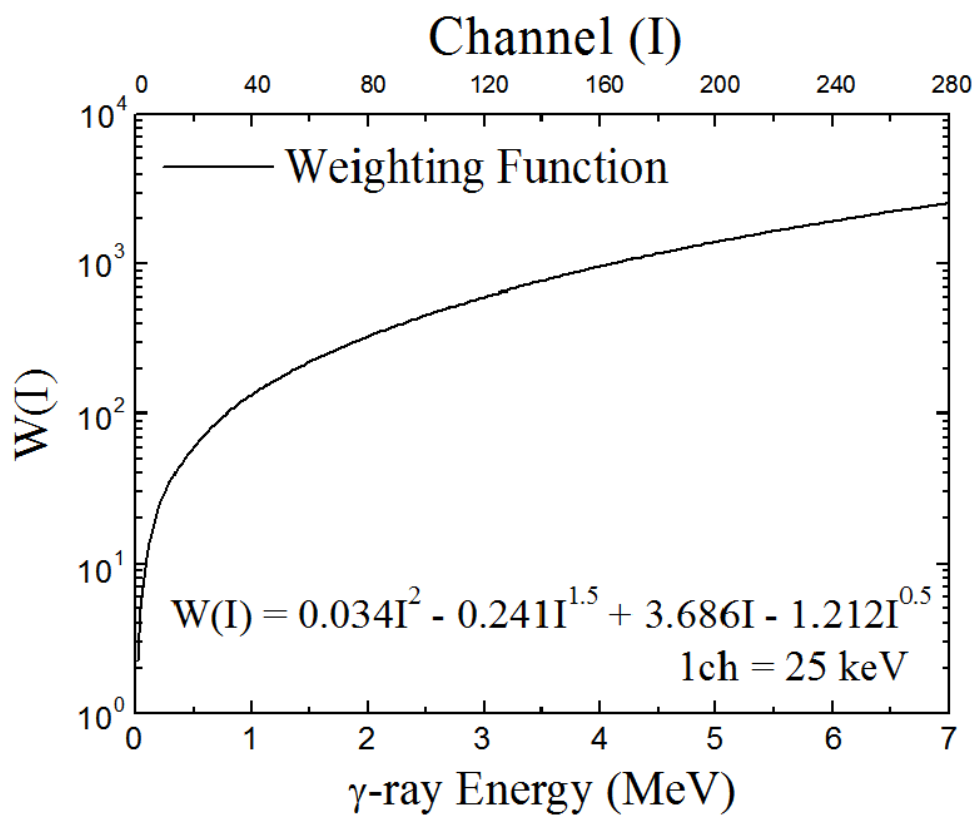


図 3.2-3 C_6D_6 検出器に対する波高重み関数

3.3 まとめ

本章では、中性子捕獲イールドの決定法の高度化として、系統誤差低減のために特に取り組むべき課題であった C_6D_6 検出器と BGO 検出器に対するバックグラウンド評価法及び中性子捕獲イールドの規格化について述べた。バックグラウンド評価法については、それぞれの検出器に対する時間に依存するバックグラウンドの影響評価を行い、特に試料で散乱した中性子、ガンマ線によるバックグラウンドの影響を受けやすい全吸収型 BGO 検出器に対するバックグラウンド評価法の高度化を行った。中性子捕獲イールドの規格化については、まず全エネルギー検出器の中性子捕獲断面積の絶対値を求めるために必要である波高重み法について述べ、特に京大ライナックで用いている C_6D_6 検出器に対して波高重み関数を導出し、中性子捕獲断面積の絶対値を決定することを可能とした。その結果、以下のことが明らかになった。

① 時間に依存するバックグラウンドの影響評価については、 C_6D_6 検出器を用いた測定の場合、試料で散乱した中性子とガンマ線起因のバックグラウンドの影響はほとんどないことを明らかにした。ところが、BGO 検出器を用いた測定の場合、試料で散乱した中性子とガンマ線起因のバックグラウンドの影響を適切に評価する必要があることを確認した。また、先行研究では考慮されていなかった試料で散乱したガンマ線の影響について、実験及びモンテカルロ・シミュレーションによる数値計算によって評価を行い、水モデレータから発生した 2.2MeV のガンマ線が試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンドの主な要因であることを明らかにするとともに、このバックグラウンド評価の汎用的手法を確立した。

② 京大炉ライナックに設置された C_6D_6 検出器に対する波高重み関数の開発に成功し、今後の C_6D_6 検出器を用いた測定では中性子捕獲断面積の絶対値を導出することが可能となった。これにより、今後の実験において検出効率の中性子エネルギー依存性による系統誤差の低減が期待される。

参考文献

- [1] R. L. Macklin, J. H. Gibbons, “Capture-Cross-Section Studies for 3-220 keV Neutrons Using a New Technique,” Phys. Rev., 1967; 159: 1007-1012.
- [2] S. Yamamoto et al., “Application of BGO Scintillators to Absolute Measurement of Neutron Capture Cross Sections between 0.01 eV and 10 eV”, Nucl. Sci. Technol., 1996; 11: 815-820.
- [3] H. Iwase et al., “Development of General-Purpose Particle and Heavy Ion Transport Monte Carlo Code” J.Nucl. Sci. and Technol. 2002; 139: 1142-1151.
- [4] H. Hirayama, Y. Namito, A.F. Bielajew, S.J. Wilderman, W.R. Nelson. The EGS5 code system. USA: Stanford Linear Accelerator Center; 2005, Report no.SLAC-R-730.
- [5] J. Lee et al., “Neutron capture cross section measurements of $^{151,153}\text{Eu}$ using a pair of C_6D_6 detectors”, J. Nucl. Sci. Technol., 2017; 54, 10:1046–1057.

第4章 補正方法の高度化

TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定における補正については、測定のデッドタイムの補正、試料中の不純物効果の補正、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正がある。現在、測定のデッドタイムの補正、試料中の不純物効果の補正については補正方法が確立されており、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正については、既存の評価済核データライブラリを用いたモンテカルロ・シミュレーション計算によって試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正係数を導出するのが一般的である。

ところが、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する従来の補正方法には、測定対象である核種の評価値を用いて補正を行うという矛盾があり、計算に使用した評価値の信頼性が補正係数の信頼性に大きな影響を与えるという問題点がある。このような理由から、本研究では TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定における試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正方法に着目した研究開発を行った。

そこで、本章では、まず中性子反応断面積の信頼性が高い核データを用いた場合のモンテカルロ・シミュレーション計算による補正方法について妥当性の検証を行う。次に、補正に用いる核データの信頼性が高くない場合方法の新たな補正方法について述べる。

4.1 評価済核データライブラリを用いた従来の補正法の検討

4.1.1 断面積の信頼性が高い場合の補正

現在、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正係数は既存の核データを用いたモンテカルロ・シミュレーション計算によって求めるのが一般的である。本実験では、モンテカルロ・シミュレーション計算を用いる補正方法について着目し、補正方法の妥当性検討を行った。補正方法を検討するために、測定対象には中性子反応断面積が良く知られている ^{10}B と金(^{197}Au)を選択した。

本実験では厚さの異なる ^{10}B 試料を用いて入射中性子束を測定し、金試料に対しては厚さの異なる金箔を用いて中性子捕獲断面積測定を行った。試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正は、厚さの異なるいずれの試料に対しても、補正が妥当であれば補正後の測定結果は一致するはずである。図 4.1-1 に示すように、 ^{10}B は中性子反応断面積が良く知られている核種であるため、評価値の不確かさも非常に小さい。また、図 4.1-2 からわかるように軽い原子核であるため、中性子反応断面積も簡単な構造をもっている物質である。以上のことから、厚さの異なる ^{10}B 試料を用いて補正方法を検討すれば、断面積構造が簡単な場合における補正方法の妥当性を検証することができる。さらに、中性子捕獲断面積の信頼性が高い金では共鳴ピーク領域における補正方法の妥当性を検証することが可能である。すなわち、 ^{10}B と金試料を利用すればほぼすべての条件について試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正方法の妥当性の検証ができる。

測定は、京大炉ライナックのパルス光中性子源を用いた。ライナックの運転条件は、電子加速エネルギー30MeV、繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 100ns、平均ビーム電流約 17.6 μA とした。中性子モデレータには八角形の軽水モデレータを用いた。測定試料は中性子源から 12.7m の距離に設置した。試料からの捕獲ガンマ線測定には 12 台の BGO 検出器を使用した。検出器からの信号は TOF と Pulse Height (PH) の 2 次元リストデータとして取り込んだ。また、試料に入射する中性子束を決定するために、 ^{10}B 試料に対する測定を行い、金試料は中性子捕獲断面積の測定を行った。測定には厚さ 0.01、0.1mm の金箔 (1.8 $\times$ 1.8cm²、同位体濃縮度 99.9%) とアルミニウムケースに封入された厚さ 2、4、8mm の ^{10}B (1.8 $\times$ 1.8cm²、同位体濃縮度 97%) 試料を用いた。

試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数は、非常に薄い試料と実寸法の試料中での反応収率の比をモンテカルロ・シミュレーションコード MCNP-4C を用いて求めることで決定した。計算には評価済核データライブラリ JENDL-4.0 を用いた。

厚さ 2、4、8mm の ^{10}B 試料の測定から求めた補正前後の相対入射中性子束を図 4.1-3 に示す。また、2、4、8mm の ^{10}B 試料に対する相対入射中性子束の比較結果を図 4.1-4 に示す。図 4.1-4 は厚さ 2mm の ^{10}B 試料の結果で割った相対値である。図 4.1-4 からわかるように、約 5KeV 以下の中性子エネルギー領域までは 2、4、8mm の ^{10}B 試

料に対する相対入射中性子束は2～3%以内でよく一致している。

金の測定から求めた補正前後の 4.9eV 共鳴近傍での金の中性子捕獲断面積の比較を図 4.1-5 に示す。また、4.9eV 共鳴近傍での積分値の比較を表 4.1-1 に示す。図 4.1-5 と表 4.1-1 からわかるように、補正前には共鳴吸収の違いから共鳴ピークの形状に差が見られていたが、補正を行うことによって補正後の中性子捕獲断面積は JENDL-4.0 の評価値と 1%の誤差範囲内で良い一致を示している。

補正後の相対入射中性子束及び 4.9eV 共鳴近傍の金の中性子捕獲断面積が試料の厚さに拠らず良い一致を示したことから、補正に使用する評価値の断面積の信頼性が高い核種に対して、評価値を用いたモンテカルロ・シミュレーション計算による従来の方法で適切に補正できることを確認した。

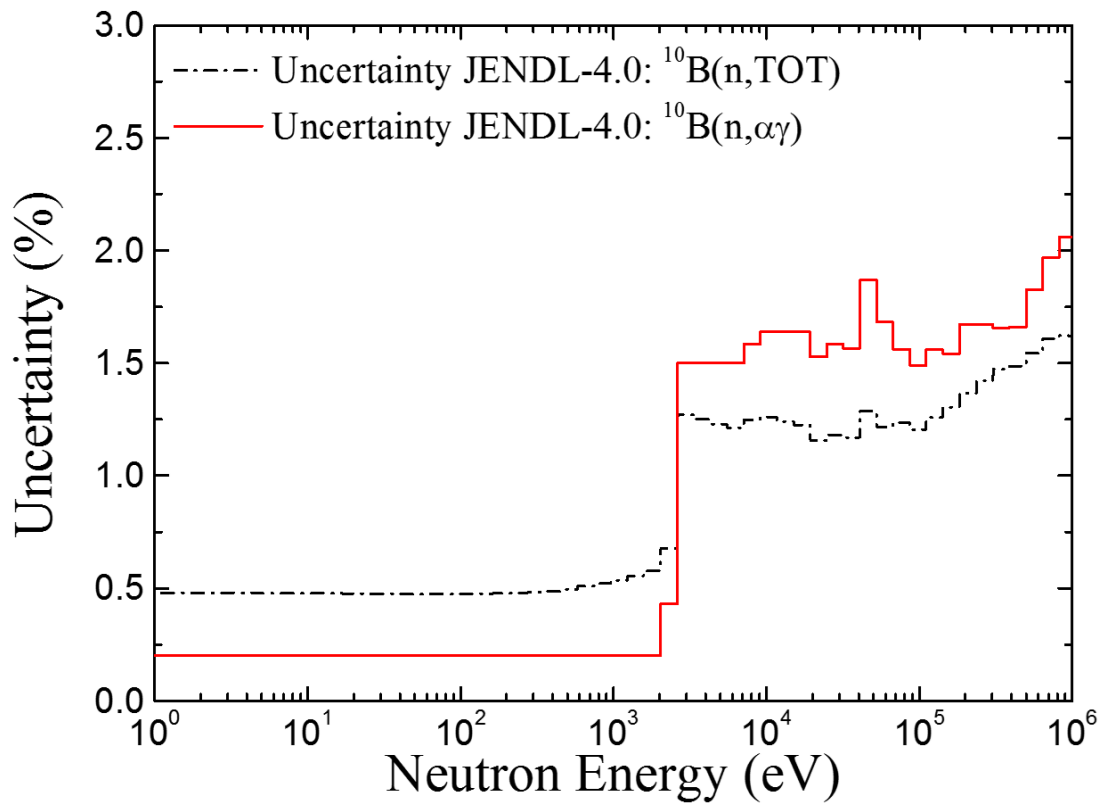


図 4.1-1 評価済核データライブラリにおける ^{10}B 反応断面積の不確かさ

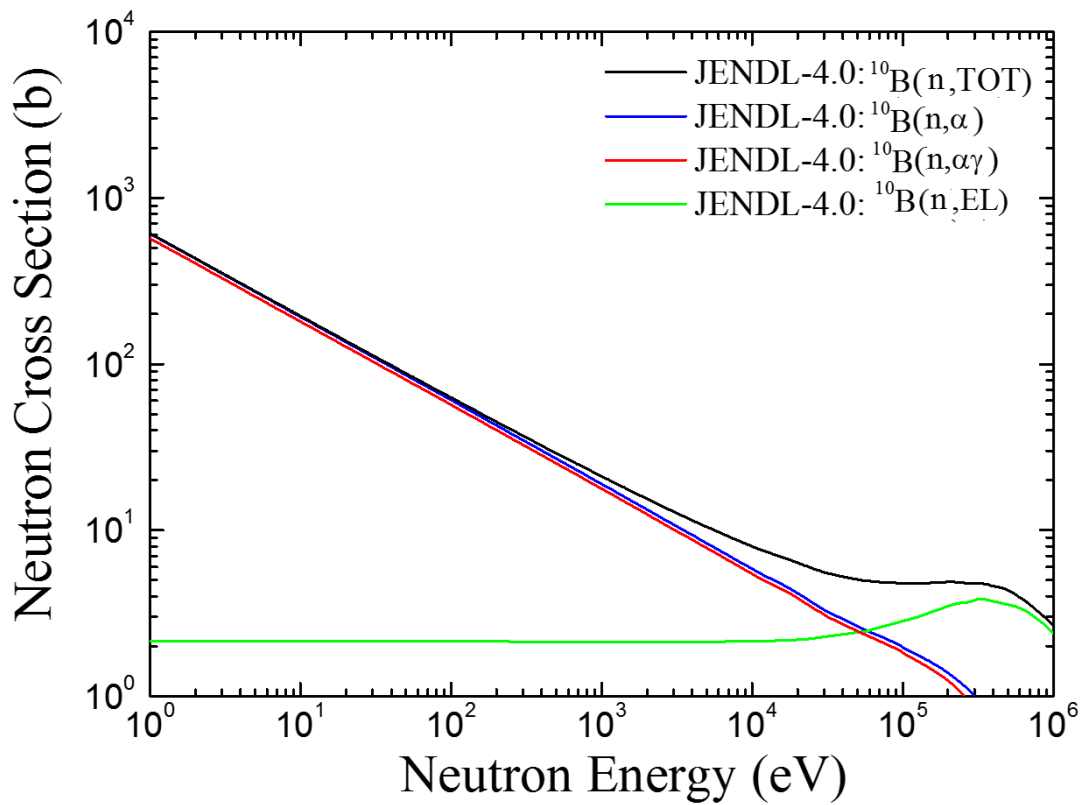


図 4.1-2 評価済核データライブラリにおける ^{10}B 反応断面積

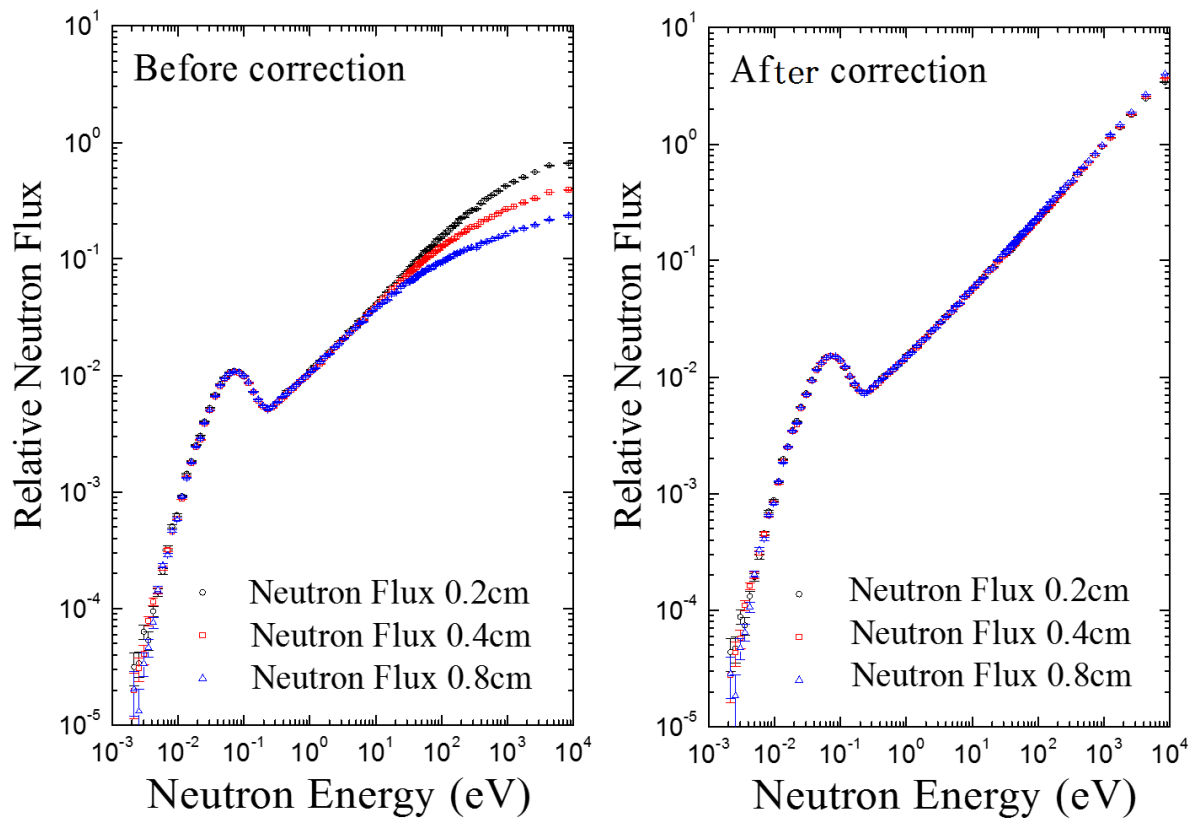


図 4.1-3 補正前後の相対入射中性子束の比較

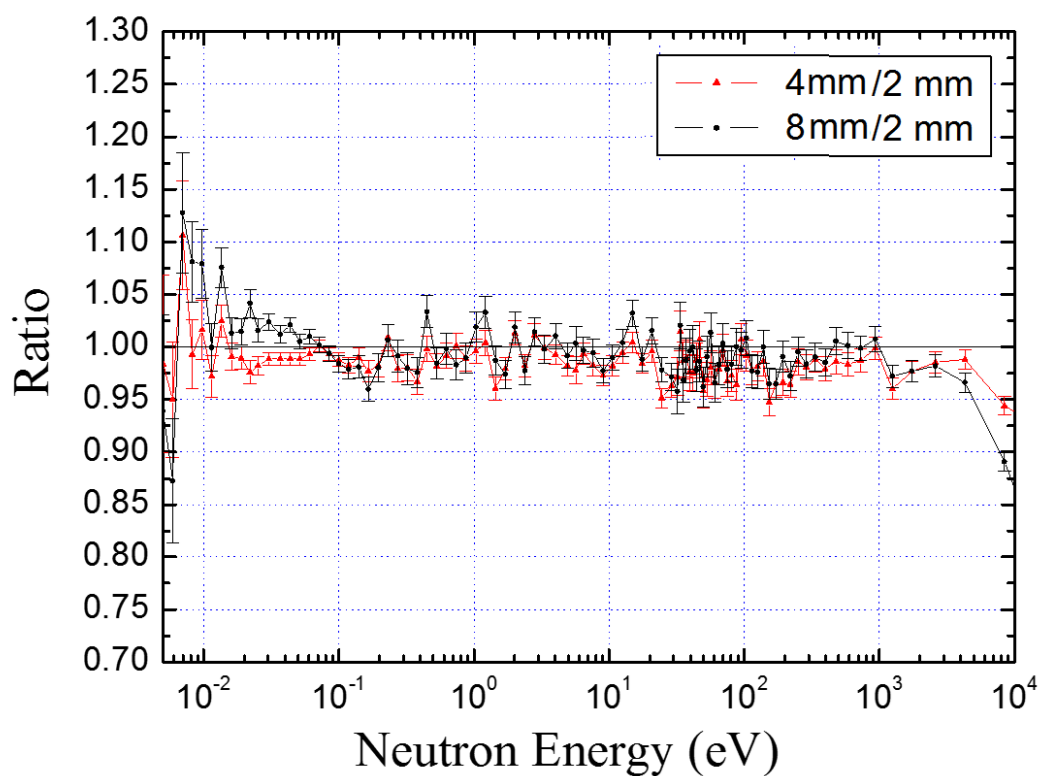


図 4.1-4 厚さ 2、4、8mm の ^{10}B 試料に対する相対入射中性子束の比較

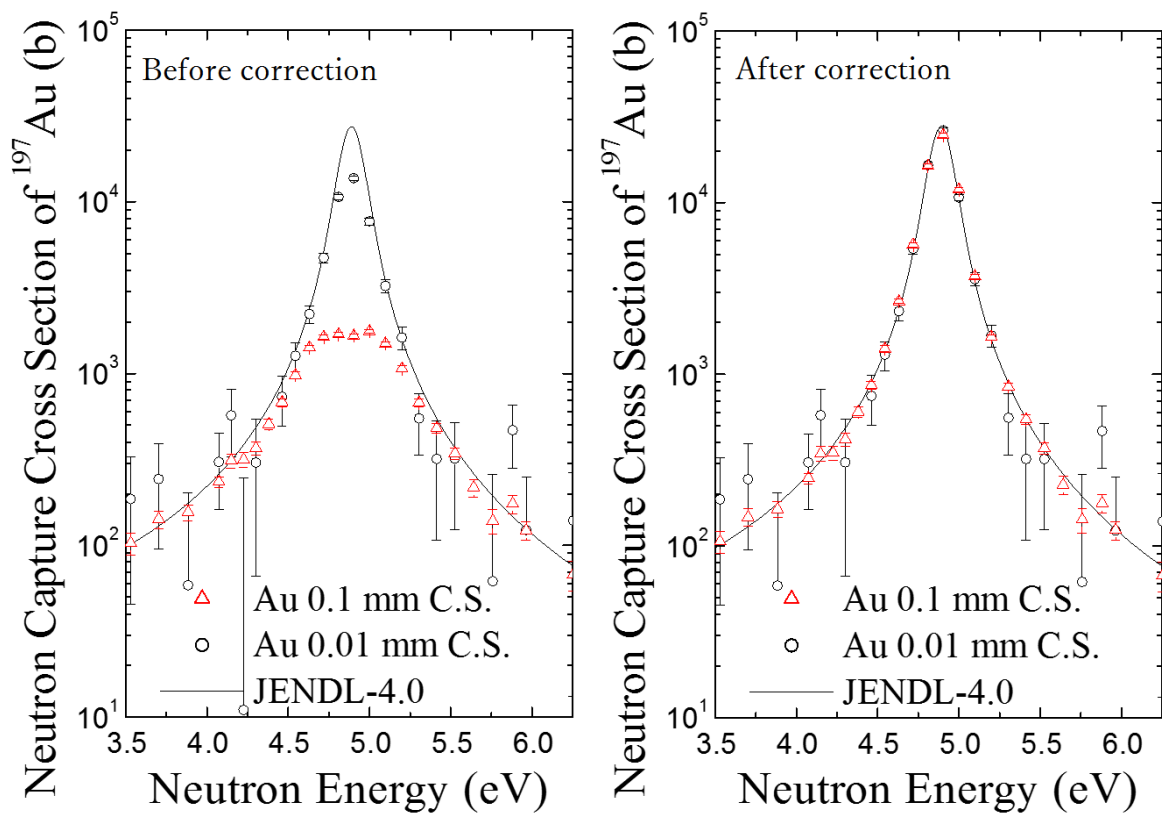


図 4.1-5 金の中性子捕獲断面積の補正前後の比較

表 4.1-1 補正後の金の 4.9eV 共鳴面積の比較

Neutron Energy	Present	Ratio
4.4 ~ 5.6 eV	$\sum_i \sigma_{ic} \cdot \Delta E_i$	(Present / JENDL-4.0)
JENDL-4.0	6584	-
^{197}Au 0.1 mm	6659±90	1.01±0.01
^{197}Au 0.01 mm	6568±134	1.00±0.02

4.1.2 断面積の信頼性が確認されていない場合の補正

モンテカルロ・シミュレーション計算による試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正方法は、使用した評価値が正しければ適切に補正できることがわかった。すなわち、モンテカルロ・シミュレーション計算による従来の補正方法その物だけでは非常に信頼性が高い補正方法であることには間違いない。しかし、問題は断面積の信頼性が確認されていない評価値を使った場合である。そこで、本節では断面積の信頼性が確認されていない核種に従来の補正方法を適用した例として、まだ分離共鳴エネルギー領域に対して信頼性が十分に高いと言えない ^{232}Th を選択した。

^{232}Th は一回の中性子捕獲反応、二回の β^- 崩壊で核分裂性物質である ^{233}U を生成する物質である。 ^{233}U の生成過程を図 4.1-6 に示す。図 4.1-6 からわかるように、 ^{233}U を生成する ^{232}Th の中性子捕獲反応はトリウム燃料サイクルの成立性を評価するために一番重要な役割を担当している。特に IAEA においては、ウラン-プルトニウムサイクルを補完しうるトリウム燃料の潜在的な役割に関する検討も行われているため [1]、 ^{232}Th 対する高い精度の核データが要求されている。ところが、このような重要性にもかかわらず、まだ ^{232}Th の中性子捕獲断面積データの精度が十分ではないのが現状である [2]。そこで、本実験では分離共鳴エネルギー領域に着目し、厚さの異なる ^{232}Th 試料を用いた中性子捕獲断面積測定の実験を行った。

実験は、京大炉ライナックのパルス光中性子源を用いた TOF 法によって行った。測定では (1) 10eV 以下の低エネルギー領域を対象とした測定と (2) 数 eV 以上の共鳴領域を対象とした測定の 2 種類の測定を行った。(1) の加速器の運転条件は、電子加速エネルギー 30MeV、繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 3 μs 、平均ピーク電流約 74.5 μA とし、(2) の加速器の運転条件は、電子加速エネルギー 30MeV、繰り返し周波数 300Hz、パルス幅 100ns、平均ピーク電流約 104.8 μA とした。なお、(2) の測定では繰り返し周波数を 300Hz としたため、一つ前のライナックのパルスで生じた熱中性子が次のパルスで生じた中性子とオーバーラップしないように、カドミウムフィルタを中性子飛行管内部に挿入した。その結果、0.3eV 以下の中性子エネルギー領域の中性子はカットされた。測定試料は中性子源から 12.7m の距離に設置し、測定には全吸収型 BGO 検出器を使用した。全吸収型 BGO 検出器からの信号は、TOF と PH の 2 次データとして保存された。測定には厚さ 0.051mm、直径 12.7mm、同位体濃縮度 99.8% の ^{232}Th 試料を用いた。なお、厚さの異なる試料で測定を行うために、1 枚、3 枚、5 枚ずつ重ね合わせて使った。測定試料に入射する中性子のエネルギースペクトルを導出するために 8mm の ^{10}B (1.8 $\times$ 1.8 cm^2 、同位体濃縮度 97%) 試料を用いた。試料の情報については表 4.1-2 に示す。

試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数は、非常に薄い試料と実寸法の試料中での反応収率の比をモンテカルロ・シミュレーションコード MCNP-4C を用いて求めることで決定した。計算には評価済核データライブラリ JENDL-4.0 を用いた。また、測定された TOF スペクトルに対してデッドタイム補正を行った。測定で得られた ^{232}Th の中性子捕獲断面積データは相対値であるため、実験値の規格化は

試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果が小さいことから規格化に有利であった 59.5eV の第三共鳴面積が JENDL-4.0 に一致するように行った。

^{232}Th の測定から求めた補正前後の中性子捕獲断面積の比較を図 4.1-7～図 4.1-10 に示す。また、厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正後の共鳴面積の比較を図 4.1-11 に示す。図 4.1-11 は 1 枚の ^{232}Th 試料の共鳴面積で割った相対値である。図 4.1-11 からわかるように、69.2eV の共鳴では補正量が過大、120.9、170.4eV の共鳴では補正量が過小に評価されていることを示唆する結果を得た。このような不一致が観測されたことから、JENDL-4.0 に収納された共鳴パラメータだけでは、適切な補正が行えない場合があることを確認した。

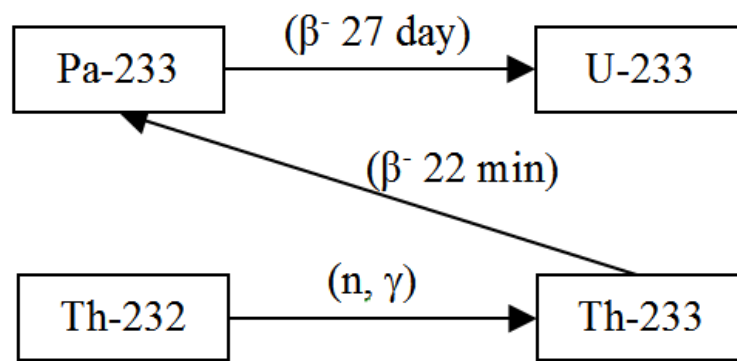


図 4.1-6 ^{232}Th から ^{233}U が生成される過程

表 4.1-2 測定試料の仕様

Sample	^{232}Th	^{10}B	$^{\text{nat}}\text{C}$
Physical form	Metal	Powder	Metal
Isotopic composition	^{232}Th : 99.97%	^{10}B : 96.98%, ^{11}B : 3.02%	^{12}C : 98.93%, ^{13}C : 1.07%
Weight (g)	1 sheet: 0.071, 3 sheet: 0.219, 5 sheet: 0.369	2.92	8.64
Thickness (mm)	1 sheet: 0.05, 3 sheet: 0.15, 5 sheet: 0.25	8.00	10
Size	1.27 in diam.	18.0×18.0 mm ²	18.0×18.0 mm ²

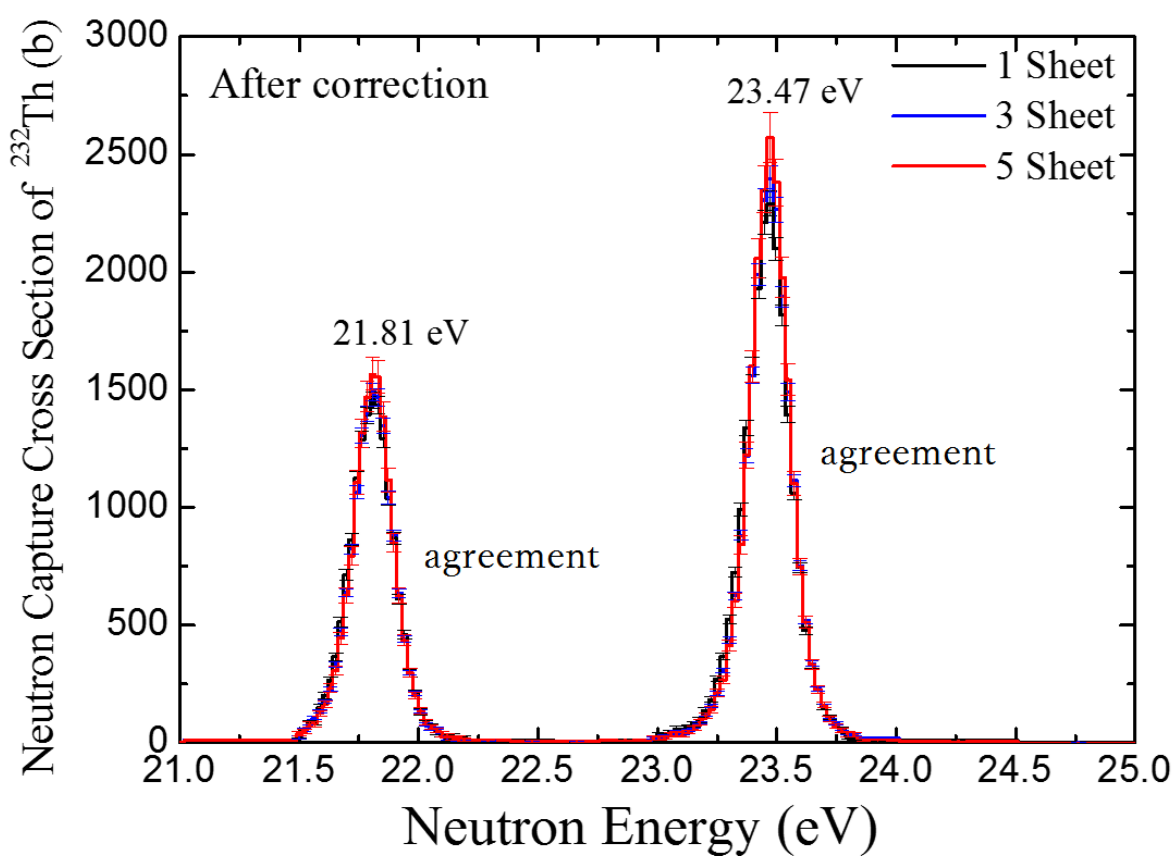
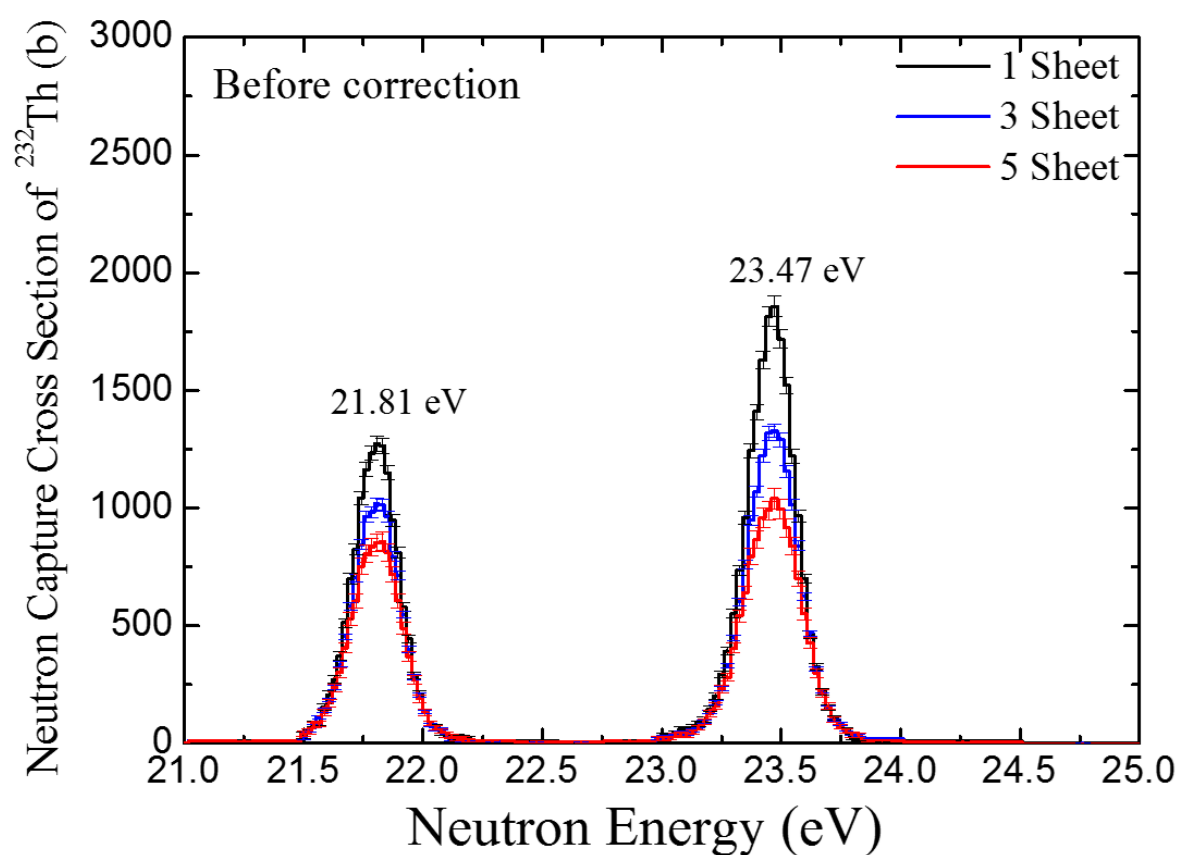


図 4. 1-7 厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (21eV~25eV 領域)

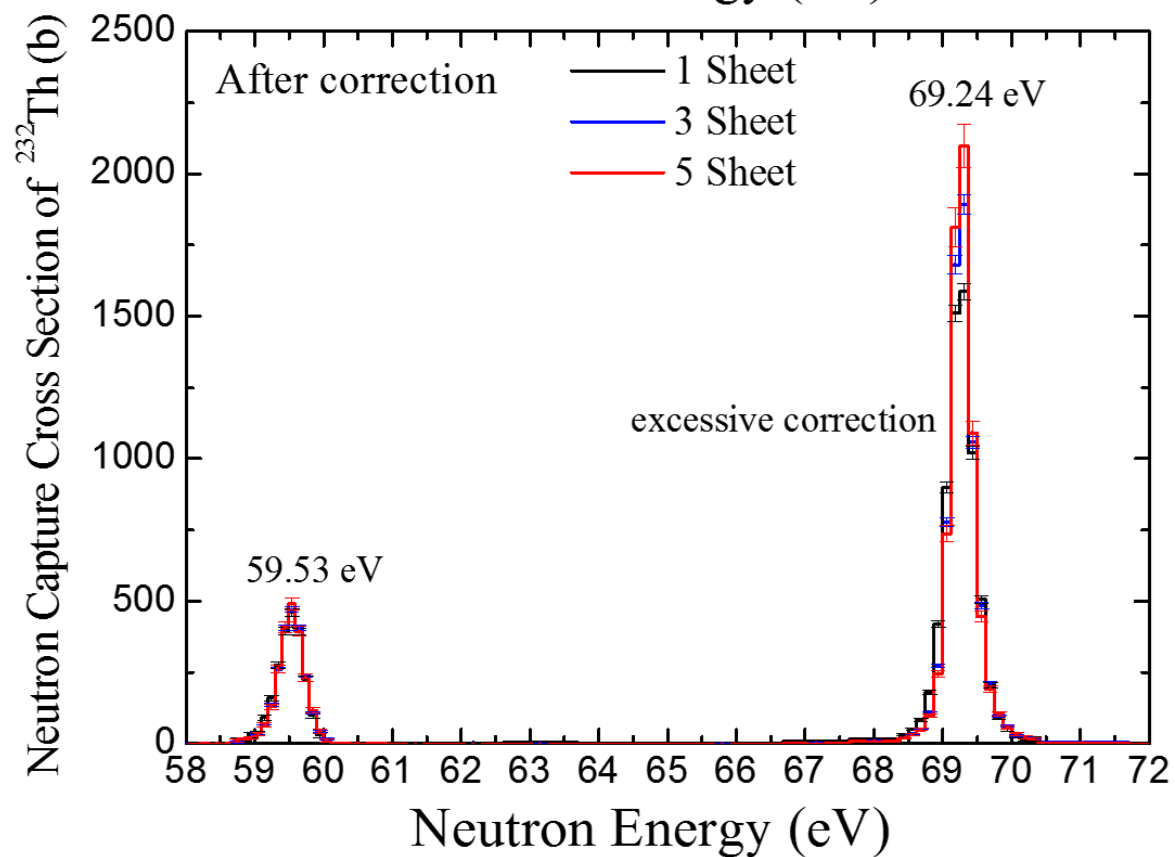
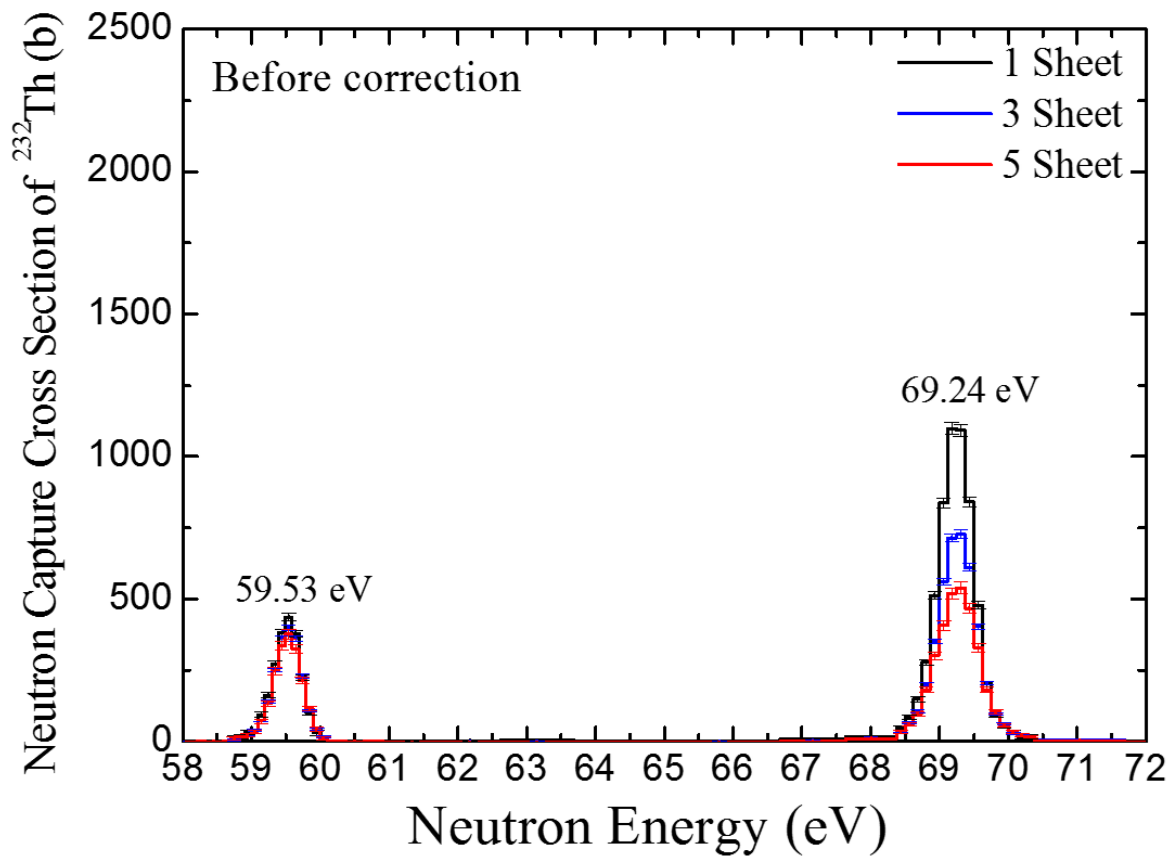


図 4. 1-8 厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (58eV~72eV 領域)

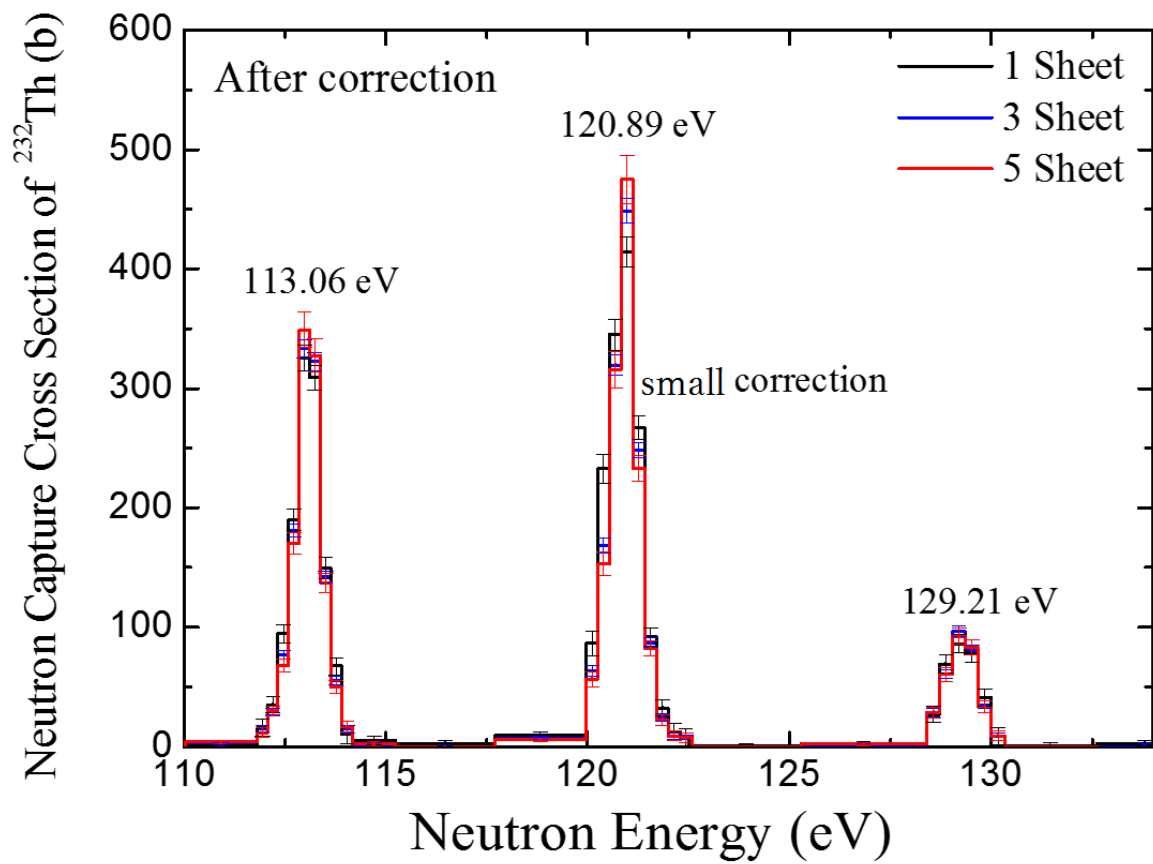
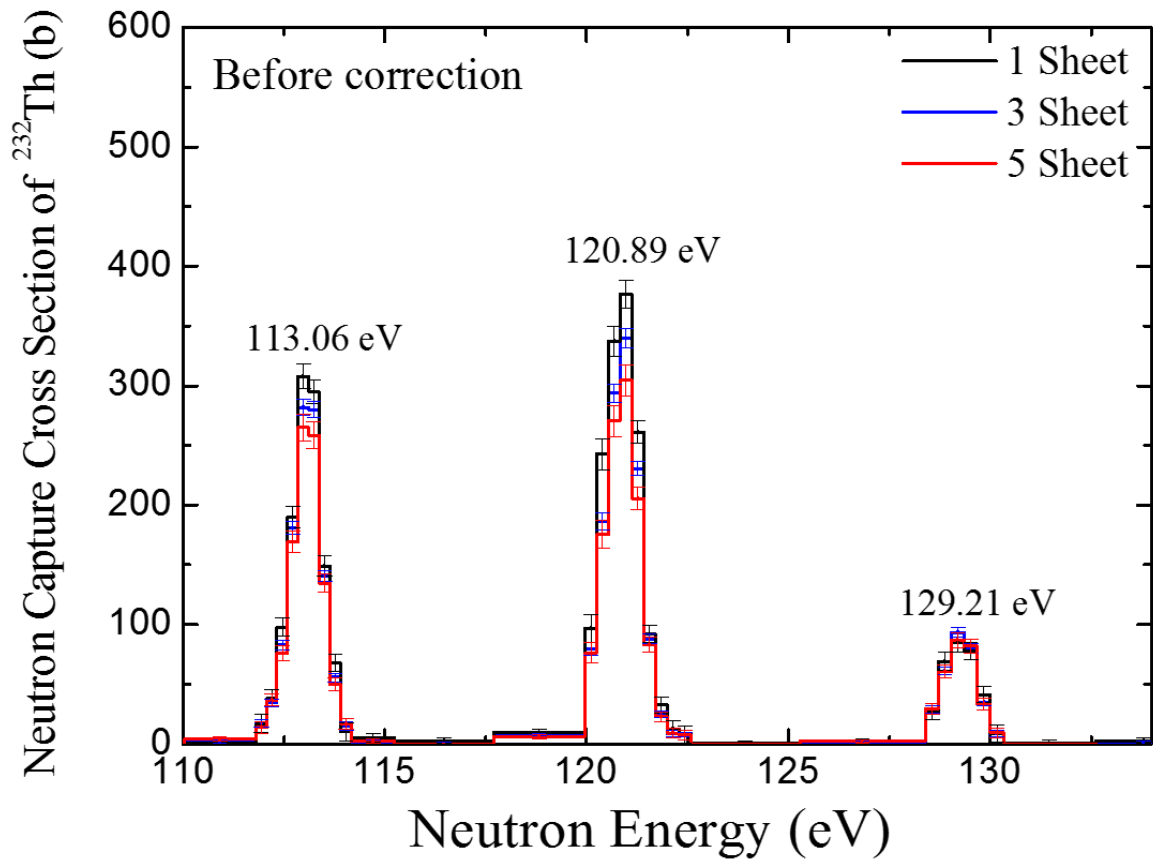


図 4.1-9 厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較 (110eV~134eV 領域)

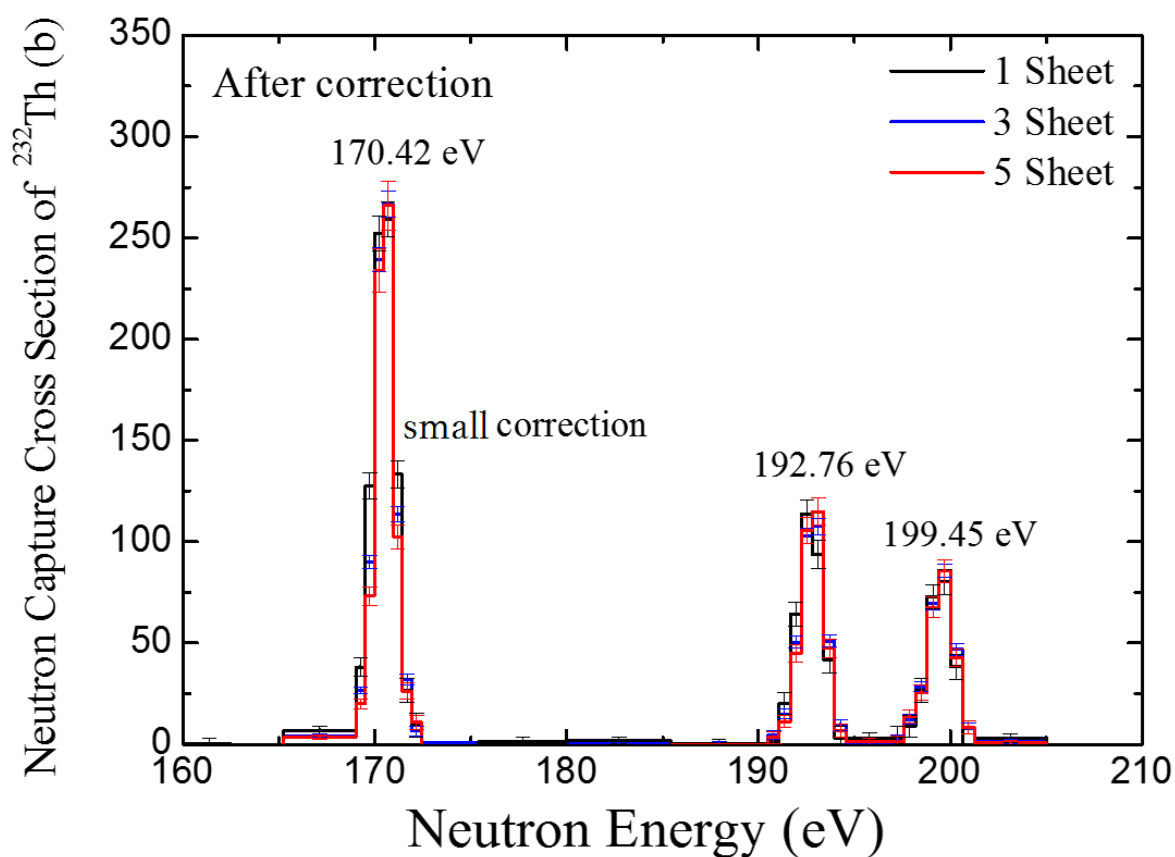
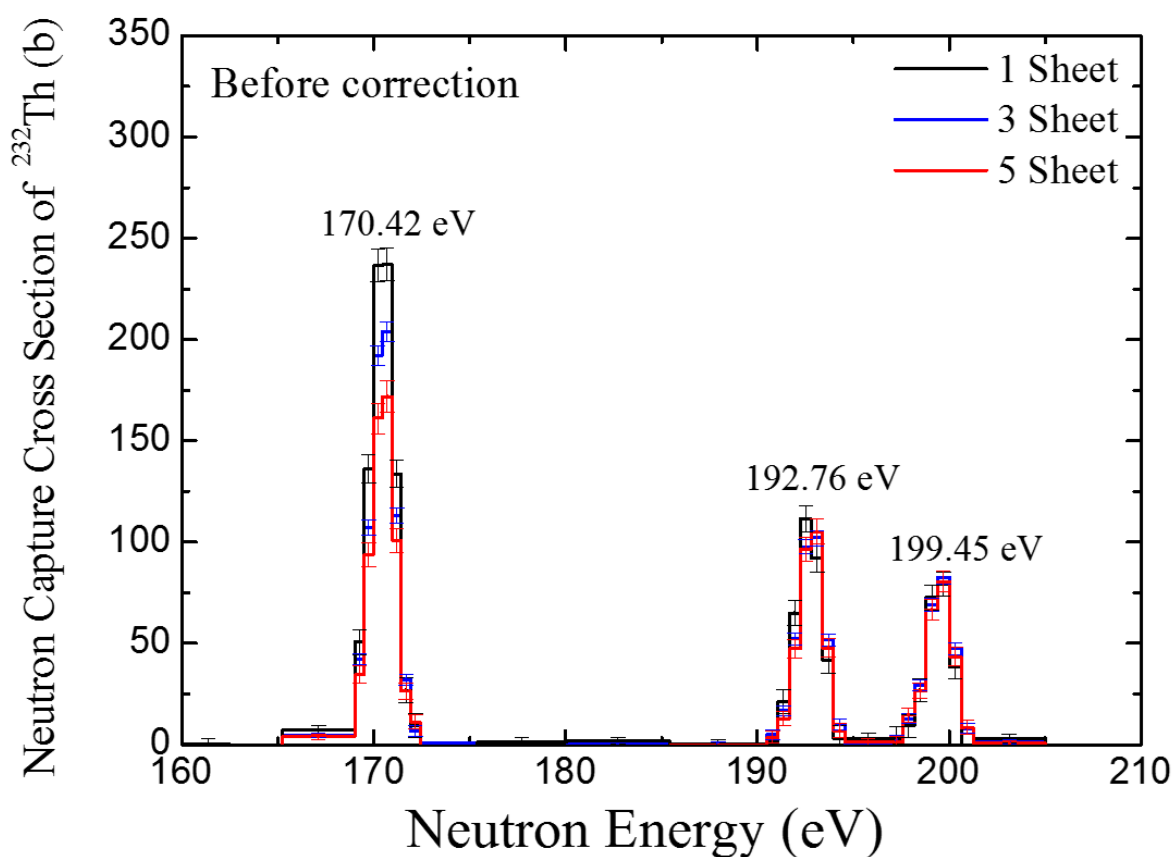


図 4. 1-10 厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正前後の捕獲断面積の比較(160eV~210eV 領域)

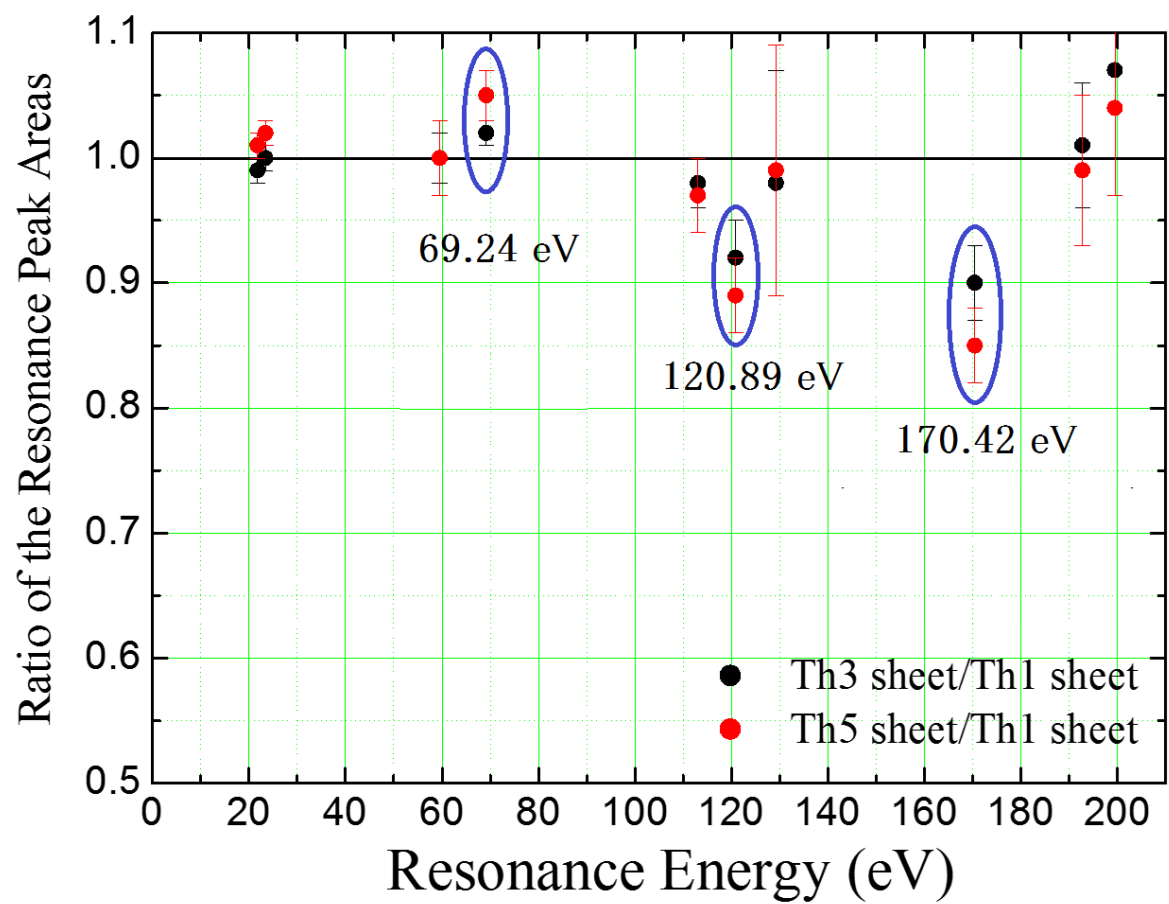


図 4.1-11 厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正後の共鳴面積の比較

4.2 共鳴解析コードを用いた補正方法の開発

前節で述べたように、いくつかの共鳴について厚さの異なる ^{232}Th 試料の補正後の中性子捕獲断面積間には不一致が観測された。このことは、 ^{232}Th の評価済核データライブラリに収納された共鳴パラメータと実際の共鳴パラメータ間には差があるため、測定データが正しく補正されなかったと考えられる。すなわち、評価値に収納された ^{232}Th 核種のいくつかの共鳴パラメータに対してパラメータの信頼性が十分ではないことを意味している。以上のことから、本研究では評価値を用いて補正する従来の補正方法ではなく、測定結果から解析した共鳴パラメータを用いて補正する新たな補正方法を開発することとした。

そこで、本節では分離共鳴エネルギー領域における ^{232}Th の共鳴パラメータを取得することを第一の目的とし、得られた共鳴パラメータを用いてもう一度厚さの異なる ^{232}Th に対して試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果を補正することを第二の目的とした。

4.2.1 共鳴解析

本研究では、1 枚の ^{232}Th 試料のデータに対して、SAMMY-M6_Beta (A Code System for Multilevel R-Matrix Fits to Neutron Data Using Bayes' Equations) コード[3] (以下、SAMMY コードと称す) を用いた共鳴解析を行い、20eV-210eV の中性子エネルギー領域における 10 個の共鳴について共鳴パラメータを導出した。SAMMY コードは Oak Ridge 国立研究所が共鳴現象に基づく散乱、核分裂、吸収反応に対する TOF 測定データを解析するために開発した R-matrix Bayesian コードである。具体的には実験データにおける最小二乗フィッティングから共鳴パラメータの推定することを主目的としているプログラムである。SAMMY コードは R-Matrix 理論を用いて共鳴断面積を計算しているため、まず R-Matrix 理論とその近似法について説明する。なお、この節における式の導出は文献[4, 5, 6, 7]を参考にしている。

R-Matrix 理論は、分離共鳴エネルギー領域における共鳴現象を記述する方法の一つとして、標的原子核に入射する入射粒子 (入射チャンネル) と標的原子核との反応によって放出される放出粒子 (放出チャンネル) を入射波動関数、放出波動関数として記述する量子力学から拡張された理論である。核力は強い核子間相互作用であるため、原子核の表面を基準として内部と外部地域に分けることができる。理想的には、ほとんどの直接反応 (光学ポテンシャル弾性散乱、直接非弾性散乱など) は原子核の表面近くで発生し、複合核メカニズムだけが原子核の内部で発生する。合理的な原子核の半径 a_c は次式のように表される。

$$a_c \cong 1.35 \cdot (A + 1)^{1/3} \quad (4.2.1)$$

ここで、 A は原子核の質量数であり、外部地域における核力は無視される。中性子と標的原子核は $(A + 1)$ の相互作用によって、複合核となり、複合核の内部では核子同士の衝突が繰り返し起こるため、複合核内部の波動関数は非常に複雑となる。また、中性子が入射してから複合核反応が終了するまでには非常に長い時間が掛かるため、複合核反応では放出チャンネルに対して入射チャンネルが依存しないと考えられる。すなわち、複合核反応でどの放出チャンネルを選ぶか (中性子放出、ガンマ線放出、核分裂反応など) は全てが統計的な確率によって決定される。入射チャンネルと放出チャンネルは互いに相関がないことから、原子核内部の波動関数は知らないとしても、中性子と核間の相互作用を記述している衝突行列を導入することで複合核反応を記述することができる。量子力学理論から、中性子と核間の相互作用を記述している衝突行列 $U_{cc'}$ を用いた断面積は簡単に次式のように表すことができる。

$$\sigma_{cc'} = \pi \cdot \lambda^2 \cdot g_J \cdot \left| \delta_{cc'} - U_{cc'} \right|^2 \quad (4.2.2)$$

$$U_{cc'} = U_{\alpha\alpha'} \cdot U_{\ell\ell'} \cdot U_{ss'} \quad \delta_{cc'} = \delta_{\alpha\alpha'} \cdot \delta_{\ell\ell'} \cdot \delta_{ss'} \quad (4.2.3)$$

ここで、 c は入射チャンネル($c \equiv \{\alpha, J, \ell, s\}$)、 c' は放出チャンネル($c' \equiv \{\alpha', J', \ell', s'\}$)、 α は標的原子核に入射する入射粒子、 α' は標的原子核から放出される放出粒子、 J は入射チャンネルのときの全角運動量、 J' は放出チャンネルのときの全角運動量、 ℓ は入射チャンネルのときの軌道角運動量、 ℓ' は放出チャンネルのときの軌道角運動量、 s は入射チャンネルのときのチャンネルスピン、 s' は放出チャンネルのときのチャンネルスピンである。なお、 $|U_{cc'}|^2$ は入射チャンネル c から放出チャンネル c' で遷移する確率、Kronecker delta $\delta_{cc'}$ は入射粒子と放出粒子が同じ場合、区分できないため必要な因子である ($\delta_{cc} = 1$ 、 $\delta_{cc'} = 0$)。

式(4.2.2)より、中性子弾性散乱断面積は、

$$\sigma_{cc} = \pi \cdot \tilde{\lambda}^2 \cdot \sum_J g_J \cdot \sum_{\ell, \ell'} \sum_{s, s'} |1 - U_{cc}|^2 \quad (4.2.4)$$

中性子反応断面積は（中性子捕獲断面積、中性子非弾性散乱断面積、中性子核分裂断面積）、

$$\sigma_{cc'} = \pi \cdot \tilde{\lambda}^2 \cdot \sum_J g_J \cdot \sum_{\ell, \ell'} \sum_{s, s'} |U_{cc}|^2 \quad (4.2.5)$$

中性子全断面積は、

$$\sigma_c = \pi \cdot \tilde{\lambda}^2 \cdot \sum_J g_J \cdot \sum_{\ell} \sum_s |1 - \text{Re} U_{cc}|^2 \quad (4.2.6)$$

となる。ここで、

$$g_J = \frac{2J+1}{(2i+1)(2I+1)} \quad (4.2.7)$$

$$\tilde{\lambda} = \frac{\hbar}{\sqrt{2mE}} \quad (4.2.8)$$

であり、 g_j はスピン統計因子、 λ は換算波長と呼ばれる。

しかし、このような式は非常に一般的な形態であるため、衝突行列 $\mathbf{U}$ に共鳴パラメータを用いる R-matrix $\mathbf{R}$ を適用し、すべての断面積を導出することができるようにする。これが R-matrix 理論である。

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \cdot \left\{ \delta_{cc'} + 2i \cdot P_c^{1/2} \cdot \left[(1 - \mathbf{R} \mathbf{L}^0)^{-1} \cdot \mathbf{R} \right]_{cc'} \cdot P_{c'}^{1/2} \right\} \quad (4.2.9)$$

$$L_{cc'}^0 \equiv L_{cc'} - B_{cc'} = (L_c - B_c) \cdot \delta_{cc'} \equiv (S_c + iP_c - B_c) \cdot \delta_{cc'} \quad (4.2.10)$$

ここで、 φ_c は剛体球散乱の位相変位 (phase shift of hard-sphere scattering)、 S_c は位相因子、 P_c は遠心章壁の透過率、 B_c はチャネル半径における境界条件定数であり、 $L_{cc'}^0$ は S_c 、 P_c 、及び B_c によって定義された式である。中性の入射体 ($c=n$) について、s 波、p 波、d 波における φ_c 、 S_c 、 P_c は次式のように表すことができる。

$$\begin{array}{llll} (\ell = 0) & (\ell = 1) & (\ell = 2) & (\dots) \\ \varphi_c = \alpha ; & \varphi_c = \alpha - \arctan \alpha ; & \varphi_c = \alpha - \arctan \frac{3\alpha}{3 - \alpha^2} ; & \dots \\ S_c = 0 ; & S_c = \frac{-1}{\alpha^2 + 1} ; & S_c = \frac{-3(\alpha^2 + 6)}{\alpha^4 + 3\alpha^2 + 9} ; & \dots \\ P_c = \alpha ; & P_c = \frac{\alpha^3}{\alpha^2 + 1} ; & P_c = \frac{\alpha^5}{\alpha^4 + 3\alpha^2 + 9} ; & \dots \end{array} \quad (4.2.11)$$

ここで、 $\alpha = k_c a_c$ であり、 k_c は、

$$k_c = \frac{1}{\lambda} = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar} = 2.1968 \times 10^{-3} \left(\frac{A}{A+1} \right) \cdot \sqrt{E} \quad (4.2.12)$$

である。なお、衝突行列 $U_{cc'}$ に適用された入射チャネル c 、放出チャネル c' とする R-Matrix は一般的に、

$$R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \cdot \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E} \quad (4.2.13)$$

と表記される。ここで、 E_{λ} は共鳴 λ のときの共鳴エネルギー、 $\gamma_{\lambda c}$ は共鳴 λ のとき

の換算幅 (reduced width amplitude) であり、共鳴パラメータの共鳴幅 Γ と関連がある量である。 $\gamma_{\lambda c}$ と $\gamma_{\lambda c'}$ は、

$$\Gamma_{\lambda c}^{1/2} = \gamma_{\lambda c} \cdot \sqrt{2P_c} \quad , \quad \Gamma_{\lambda c'}^{1/2} = \gamma_{\lambda c'} \cdot \sqrt{2P_{c'}} \quad (4.2.14)$$

と表される。ここで、 $\Gamma_{\lambda c}$ は共鳴 λ のときの入射チャンネル c に対する幅、 $\Gamma_{\lambda c'}$ は共鳴 λ のときの放出チャンネル c' に対する幅であり、この幅は統計的な発生確率である。

R-Matrix は数学的に巨大な次元の行列を扱っているため、計算が複雑な公式である。このような理由から、近似法を導入することで複雑な式を簡単化する必要がある。R-Matrix を近似するために導入したのがレベル行列 $\mathbf{A}$ であり、レベル行列 $\mathbf{A}$ は以下のように定義される。

$$\left(\mathbf{A}^{-1}\right)_{\lambda\mu} = (E_\lambda - E) \cdot \delta_{\lambda\mu} - \sum_c \gamma_{\lambda c} \cdot L_c^0 \cdot \gamma_{\mu c} \quad (4.2.15)$$

最終的に、入射チャンネル c と放出チャンネル c' に対する衝突行列 $U_{cc'}$ は、

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \cdot \left(\delta_{cc'} + i \cdot \sum_{\lambda, \mu} \Gamma_{\lambda c}^{1/2} \cdot A_{\lambda\mu} \cdot \Gamma_{\mu c'}^{1/2} \right) \quad (4.2.16)$$

となる。代表的な近似法としては、Single Level Breit-Wigner (SLBE) 近似、Multilevel Breit-Wigner (MLBW) 近似、Reich-Moore (RM) 近似等がある。それぞれの近似については以下で詳しく述べる。

(1) Single Level Breit-Wigner (SLBE) 近似

R-Matrix の近似法は基本的にレベル行列の要素を減らして式を簡単化することであり、Single Level Breit-Wigner (SLBE) 近似はレベル行列の要素中でただ一つのレベルだけを残して、その以外は全部無視したことで、さらに簡単な近似式で表現する近似方法である。このことから、レベル行列式(4.2.15)は次のように表すことができる。

$$\left(\mathbf{A}^{-1}\right)_{\lambda\mu} = E_\lambda - E - \sum_c L_c^0 \cdot \gamma_c^2 \equiv E_\lambda + \Delta_\lambda - E - \frac{i \cdot \Gamma_\lambda}{2} \quad (4.2.17)$$

ここで、

$$\Delta_\lambda = -\sum_c \frac{S_c - B_c}{2 \cdot P_c} \cdot \Gamma_{\lambda c} \quad (4.2.18)$$

$$\Gamma_\lambda = \sum_c \Gamma_{\lambda c} \quad (4.2.19)$$

である。 $E_\lambda \rightarrow E_\lambda + \Delta_\lambda$ とシフトすると、レベル行列は、

$$\mathbf{A}_{\lambda\mu} = \frac{1}{E_\lambda - E - \frac{i \cdot \Gamma_\lambda}{2}} \quad (4.2.20)$$

と表される。これを式(4.2.16)に代入すると、衝突行列 $U_{cc'}$ は、

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \cdot \left(\delta_{cc'} + \frac{i \cdot \Gamma_{\lambda c}^{1/2} \cdot \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{E_\lambda - E - \frac{i \cdot \Gamma_\lambda}{2}} \right) \quad (4.2.21)$$

となる。得られた衝突行列 $U_{cc'}$ から断面積計算ができる。最終的な中性子全断面積は、

$$\sigma_c = \pi \cdot \tilde{\lambda}_c^2 \cdot g_c \cdot \left\{ 4 \cdot \sin^2 \varphi_c + \frac{\Gamma_\lambda \cdot \Gamma_{\lambda c} \cdot \cos 2\varphi_c + 2(E - E_\lambda) \cdot \Gamma_{\lambda c} \cdot \sin 2\varphi_c}{(E - E_\lambda)^2 + \frac{\Gamma_\lambda^2}{4}} \right\} \quad (4.2.22)$$

となる。なお、最終的な中性子反応断面積は、

$$\sigma_{cc'} = \pi \cdot \tilde{\lambda}_c^2 \cdot g_c \cdot \frac{\Gamma_{\lambda c} \cdot \Gamma_{\lambda c'}}{(E - E_\lambda)^2 + \frac{\Gamma_\lambda^2}{4}} \quad (4.2.23)$$

となる。

(2) Multilevel Breit-Wigner (MLBW) 近似

Multilevel Breit-Wigner (MLBW) 近似とは、レベル行列の非対角成分を全て無視し、対角行列だけで計算する近似法である。このことから、レベル行列式(4.2.15)は次のように表すことができる。

$$(\mathbf{A}^{-1})_{\lambda\mu} = \left(E_\lambda - E - \sum_c L_c^0 \cdot \gamma_{\lambda c}^2 \right) \cdot \delta_{\lambda\mu} \equiv \left(E_\lambda + \Delta_\lambda - E - \frac{i \cdot \Gamma_\lambda}{2} \right) \cdot \delta_{\lambda\mu} \quad (4.2.24)$$

ここで、 $E_\lambda \rightarrow E_\lambda + \Delta_\lambda$ とシフトすると、レベル行列は、

$$\mathbf{A}_{\lambda\mu} = \frac{\delta_{\lambda\mu}}{E_\lambda - E - \frac{i \cdot \Gamma_\lambda}{2}} \quad (4.2.25)$$

と表される。これを式(4.2.16)に代入すると、衝突行列 $U_{cc'}$ は、

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \cdot \left(\delta_{cc'} + i \cdot \sum_\lambda \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \cdot \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{E_\lambda - E - \frac{i \cdot \Gamma_\lambda}{2}} \right) \quad (4.2.26)$$

となり、共鳴 λ に関する総和を含んでいる。得られた衝突行列 $U_{cc'}$ から最終的な中性子全断面積は、

$$\sigma_c = 4 \cdot \pi \cdot \tilde{\lambda}_c^2 \cdot \mathcal{G}_c \cdot \left\{ \sin^2 \varphi_c + \sum_c \frac{\Gamma_{\lambda c}}{\Gamma_\lambda} \cdot (\psi_\lambda \cdot \cos 2\varphi_c + \chi_\lambda \cdot \sin^2 \varphi_c) \right\} \quad (4.2.27)$$

となる。なお、最終的な中性子反応断面積は、

$$\sigma_{cc'} = \sigma_c \cdot \delta_{cc'} - 4 \cdot \pi \cdot \tilde{\lambda}_c^2 \cdot \mathcal{G}_c \cdot \operatorname{Re} \left\{ \sum_\lambda \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \cdot \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{\Gamma_\lambda} \cdot (\psi_\lambda + i \cdot \chi_\lambda) \cdot W_{cc'}(\varepsilon_\lambda^*)^* \right\} \quad (4.2.28)$$

となる。ここで、

$$W_{cc'}(\varepsilon_\lambda^*) = \delta_{cc'} + i \cdot \sum_{\mu} \frac{\Gamma_{\mu c}^{1/2} \cdot \Gamma_{\mu c'}^{1/2}}{E_{\mu} - E_{\lambda} - i \cdot (\Gamma_{\mu} + \Gamma_{\lambda})/2} \quad (4.2.29)$$

$$\psi_{\lambda} = \frac{\Gamma_{\lambda}^2 / 4}{(E_{\lambda} - E)^2 + \Gamma_{\lambda}^2 / 4} \quad (4.2.30)$$

$$\chi_{\lambda} = \frac{(E_{\lambda} - E) \cdot \Gamma_{\lambda} / 2}{(E_{\lambda} - E)^2 + \Gamma_{\lambda}^2 / 4} \quad (4.2.31)$$

である。

(3) Reich-Moore (RM) 近似

Reich-Moore (RM) 近似は、レベル行列の内、ガンマ線チャンネルの非対角成分を無視し、計算する近似法である[8]。その結果、レベル行列の非対角成分を全て無視する MLBW 近似より、Reich-Moore (RM) 近似の場合は多数の非対角成分が残すことができ、MLBW より厳密な近似表現をすることができる。このような近似法から、レベル行列式(4.2.15)は次のように表すことができる。

$$(\mathbf{A}^{-1})_{\lambda\mu} = \left(E_{\lambda} + \Delta_{\lambda\gamma} - E - \frac{i \cdot \Gamma_{\lambda\gamma}}{2} \right) \cdot \delta_{\lambda\mu} - \sum_{c \neq \gamma} \gamma_{\lambda c} \cdot L_c^0 \cdot \gamma_{\mu c} \quad (4.2.32)$$

ここで、

$$\Delta_{\lambda\gamma} = - \sum_{c \neq \gamma} \frac{S_c - B_c}{2 \cdot P_c} \cdot \Gamma_{\lambda c} \quad (4.2.33)$$

$$\Gamma_{\lambda\gamma} = \sum_{c \neq \gamma} \Gamma_{\lambda c} \quad (4.2.34)$$

である。 $E_{\lambda} \rightarrow E_{\lambda} + \Delta_{\lambda\gamma}$ とシフトすると、レベル行列は、

$$\mathbf{A}_{\lambda\mu} = \frac{1}{\left(E_{\lambda} - E - \frac{i \cdot \Gamma_{\lambda\gamma}}{2} \right) \cdot \delta_{\lambda\mu} - \sum_{c \neq \gamma} \gamma_{\lambda c} \cdot L_c^0 \cdot \gamma_{\mu c}} \quad (4.2.35)$$

となる。次に、RM 近似における衝突行列 $U_{cc'}$ は以下の形となる [7, 8]。

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \cdot \left\{ 2 \cdot (I - K)_{cc'}^{-1} - \delta_{cc'} \right\} \quad (4.2.36)$$

ここで、

$$(I - K)_{cc'}^{-1} = \delta_{cc'} - \frac{i}{2} \cdot \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \cdot \Gamma_{\mu c'}^{1/2}}{E_{\lambda} - E - \frac{i \cdot \Gamma_{\lambda \gamma}}{2}} \quad (4.2.37)$$

となる。また、

$$\rho_{cc'} = \delta_{cc'} - (I - K)_{cc'}^{-1} \quad (4.2.38)$$

となる。式 (4.2.38) を式 (4.2.36) に代入すると、最終的な衝突行列 $U_{cc'}$ は、

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \cdot (\delta_{cc'} - 2 \cdot \rho_{cc'}) \quad (4.2.39)$$

と表すことができる。RM 近似における断面積は、

$$\sigma_c = 2 \cdot \pi \cdot \lambda_c^2 \cdot \sum_l (2 \cdot l + 1) \cdot \left\{ (1 - \cos 2\varphi_l) + 2 \operatorname{Re}(\rho_{cc} \cdot e^{-2i\varphi_l}) \right\} \quad (4.2.40)$$

$$\sigma_{cc} = \pi \cdot \lambda_c^2 \cdot \sum_l (2 \cdot l + 1) \cdot \left\{ 2 - 2 \cdot \cos 2\varphi_l + 4 \operatorname{Re}(\rho_{cc} \cdot e^{-2i\varphi_l}) - 4 \operatorname{Re}(\rho_{cc}) + 4 \cdot |\rho_{cc}|^2 \right\} \quad (4.2.41)$$

$$\sigma_{abs} = 4 \cdot \pi \cdot \lambda_c^2 \cdot \sum_l (2 \cdot l + 1) \cdot \left\{ \operatorname{Re}(\rho_{cc}) + |\rho_{cc}|^2 \right\} \quad (4.2.42)$$

$$\sigma_{fission} = 4 \cdot \pi \cdot \lambda_c^2 \cdot \sum_l (2 \cdot l + 1) \cdot \sum_{c' \in fission} \left(|\rho_{cc'}|^2 \right) \quad (4.2.43)$$

$$\sigma_{\gamma} = \sigma_{abs} - \sigma_{fission} \quad (4.2.44)$$

となる。

^{232}Th の中性子捕獲断面積の実験値に対して行った共鳴解析の概要について説明する。共鳴解析は、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果が最も小さい 1 枚の ^{232}Th 試料の実験データに対して行った。SAMMY コードでは、JENDL-4.0 に採用されている共鳴エネルギー E_R 、放射幅 Γ_γ 、中性子幅 Γ_n 、共鳴スピン J 、軌道角運動量 l などの共鳴パラメータを初期値として用いた。解析対象は共鳴エネルギー E_R 、放射幅 Γ_γ 、中性子幅 Γ_n であり、共鳴スピン J と軌道角運動量 l などは固定パラメータとした。共鳴解析の近似式には RM 近似を適用し、最小二乗フィッティングには Bayes の式を用いた。得られた共鳴パラメータでは、パルス光中性子源の時間分解能、ドップラー広がり、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果が考慮された。

20eV～210eV の中性子エネルギー領域において、1 枚の ^{232}Th の中性子捕獲断面積の実験データ（試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果を補正する前のデータ）に対して最小二乗フィッティングを行い、共鳴パラメータを導出した。SAMMY コードによる共鳴解析の結果得られた ^{232}Th の共鳴パラメータと JENDL-4.0 の共鳴パラメータの比較を表 4.2-1[9]に示す。

得られた共鳴パラメータ中で 69.2、113.1、120.9、170.4eV の四つの共鳴ピークについて JENDL-4.0 の共鳴パラメータと差が見られた。69.2eV 共鳴では、中性子幅が約 15%過大評価、放射幅は約 17%過小評価になっていることをわかった。113.1、120.9、170.4eV 共鳴については、中性子幅が約 5%～20%過小評価になっており、放射幅は約 8%～20%過小評価になっている。このような共鳴解析の結果は、4.1.2 節で述べた厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正後の共鳴面積の比較結果と整合するものであった。

表 4. 2-1 共鳴解析で得られた ^{232}Th の共鳴パラメータ [9]

JENDL-4.0			^{232}Th (sample thickness 0.05 mm)			Ratio ($\Gamma_\gamma/\Gamma_{\gamma_present}$)	Ratio ($\Gamma_n/\Gamma_{n_present}$)
E_R (eV)	Γ_γ (meV)	Γ_n (meV)	E (eV)	$\Gamma_{\gamma_present}$ (meV)	$\Gamma_{n_present}$ (meV)		
21.81	25.82	2.03	21.8	23.6±1.6	2.0±0.1	1.09±0.07	1.01±0.05
23.47	26.76	3.77	23.5	28.2±1.4	3.5±0.1	0.95±0.05	1.06±0.04
59.53	23.76	3.78	59.5	22.7±2.3	4.0±0.1	1.05±0.10	0.96±0.02
69.24	23.70	42.96	69.2	28.5±0.8	37.4±2.7	0.83±0.02	1.15±0.08
113.06	24.28	12.78	113.1	26.3±2.2	14.6±0.8	0.92±0.08	0.88±0.05
120.89	23.48	21.85	120.9	29.3±1.9	26.9±1.9	0.80±0.05	0.81±0.06
129.21	30.55	3.15	129.3	30.6±3.1	3.2±0.3	1.00±0.10	1.00±0.10
170.42	24.48	59.71	170.4	29.4±1.1	63.6±5.9	0.83±0.03	0.94±0.09
192.76	22.96	16.00	192.8	24.0±2.0	17.0±1.2	0.96±0.08	0.94±0.07
199.45	23.23	9.54	199.6	23.3±2.3	9.6±1.0	1.00±0.10	1.00±0.10

4.2.2 共鳴解析を適用した補正法

得られた共鳴パラメータ（共鳴エネルギー E_R 、放射幅 Γ_γ 、中性子幅 Γ_n ）を核データライブラリに適用した。適用には、得られた共鳴パラメータに基づいて JENDL-4.0 の核データライブラリを修正した。この後、核データ処理コードである NJOY コード[10]により ACE 形式の断面積ライブラリに変換した。

修正した評価値を用いて、もう一度従来の補正方法による試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正を行った。修正した評価値を用いたときの厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正後の共鳴面積の比較を図 4.2-1 に示す。図 4.2-1 は 1 枚の ^{232}Th 試料の共鳴面積で割った相対値である。69.2、120.9eV の共鳴ピークに対して 1、3、5 枚の共鳴面積が誤差範囲以内で良く一致している。なお、図 4.2-1 と 図 4.1-12 を比較することからわかるように、JENDL-4.0 より、修正した評価値を用いて補正した方が全中性子エネルギー領域に対して良い一致を示した。以上の結果から、共鳴解析と組み合わせたモンテカルロ・シミュレーション計算によって補正係数を求める補正方法の妥当性を確認した。

そこで、本研究で確立された今の補正法は本論文で行う ^{151}Eu 、 ^{153}Eu のデータ解析に反映させた。

170.4eV の共鳴については、補正に修正した評価値を適用したにもかかわらず、厚さの異なる試料の断面積結果の不一致はあまり改善されていなかった。この理由については、補正係数の問題だけではなくバックグラウンドなどの別の要因などが、まだ不一致の要因として残っていると考えられる。

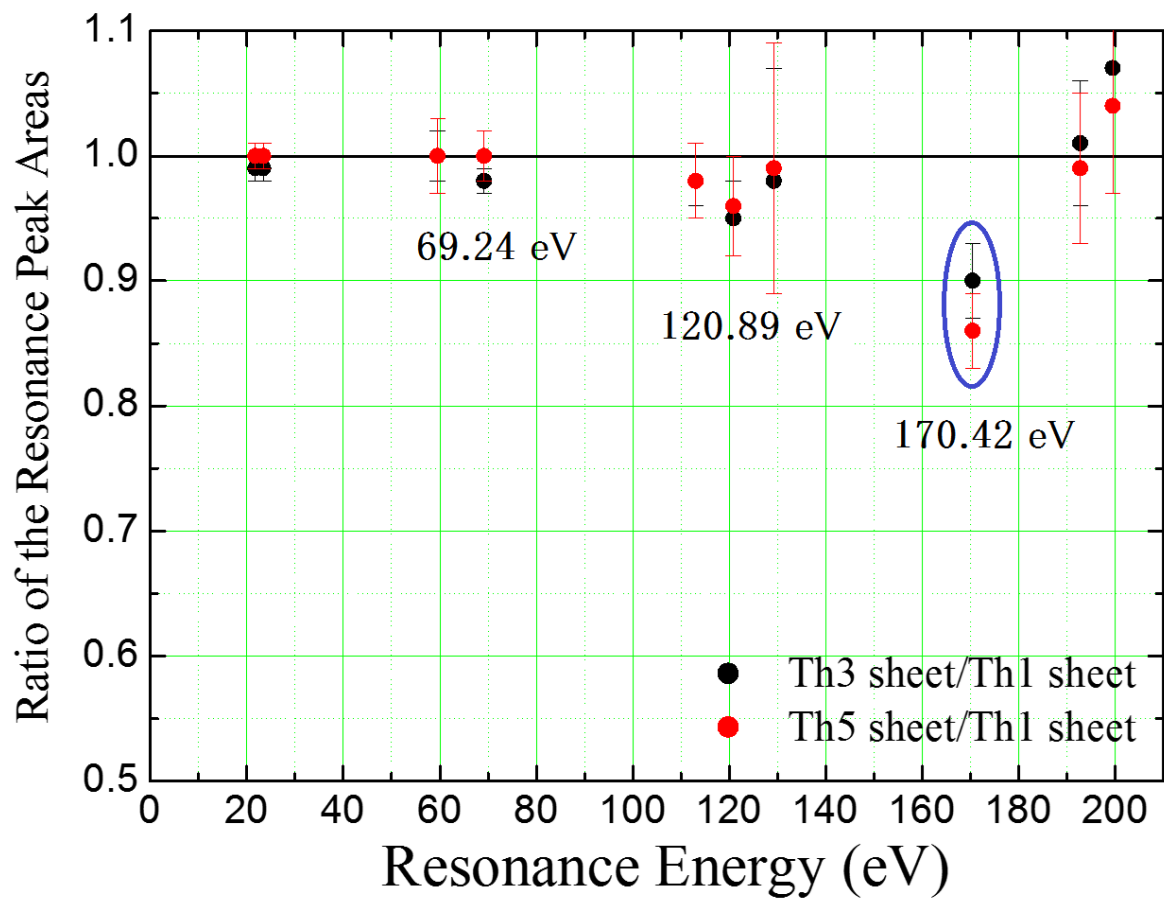


図 4.2-1 共鳴解析を用いた補正法を適用したときの厚さの異なる ^{232}Th 試料に対する補正後の共鳴面積の比較

4.3 まとめ

本章では、補正法の高度化として、系統誤差低減のために特に取り組むべき課題である試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正方法についてを述べた。本研究では断面積データの信頼性がある場合とない場合の核種に対して既存の核データを用いたモンテカルロ・シミュレーション計算による補正係数を導出し、断面積データの信頼性がない場合の補正の問題について検討した。なお、この問題を解析するために共鳴解析を基盤としている新しい補正方法を開発し、厚さの異なる ^{232}Th の中性子捕獲断面積測定に適用した。その結果、以下のことが明らかになった。

① 断面積データの信頼性が高い核種に対しては、厚さの異なる ^{10}B と金試料を用いた測定を行い、補正後の測定データの比較を行ったところ、評価値を用いたモンテカルロ・シミュレーション計算によって補正係数を導出する従来の補正方法が適切な方法であることを確認した。一方、断面積データの信頼性が低い核種に対しては、厚さの異なる ^{232}Th 試料を用いた測定を行い、補正後の共鳴面積の比較を行ったところ、厚さの異なる ^{232}Th 試料の補正後の断面積値間にはいくつかの共鳴で不一致が観測された。このことは、補正に用いた核データライブラリの共鳴パラメータが適切でない場合は従来の補正方法だけでは適切な補正ができないことを示している。

② 1枚の ^{232}Th 試料の実験データに対して、SAMMYコードにより共鳴解析を行い、20eV～210eVのエネルギー領域における10本の共鳴について共鳴パラメータ（共鳴エネルギー E_R 、放射幅 Γ_γ 、中性子幅 Γ_n ）を導出した。次に、得られた共鳴パラメータに基づいてNJOYコードによりACE形式の断面積データに変換した。修正した核データライブラリを用いて従来の補正法によって補正係数を再計算したところ、厚さの異なる ^{232}Th 試料の補正係数が改善されたことを確認した。このことから、共鳴解析と組み合わせたモンテカルロ・シミュレーション計算によって補正係数を求める方法が妥当であることをわかった。

本補正法は測定データの共鳴解析を基盤としているため、評価済核データライブラリの信頼性は関係なく高い精度の補正ができる利点があり、分離共鳴エネルギー領域における高精度な断面積解析が期待される。

参考文献

- [1] “Role of Thorium to Supplement Fuel Cycles of Future Nuclear Energy Systems”, IAEA Nuclear Energy Series No.NF-T-2.4, IAEA, Vienna, 2012.
- [2] “Safety and Regulatory Issues of the Thorium Fuel Cycle”, NUREG/CR-7176. ORNL/TM-2013/543. U. S. NRC. 2014.
- [3] N.M Larson, “Updated Users’ Guide for SAMMY: Multilevel R-matrix Fits to Neutron Data Using Bayes’ Equations”, ORNL/TM-9179/R7, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA 2006.
- [4] L. C. Leal, N. M. Larson, “Breif Review of the R-Matrix Theory”, SAMMY workshop material, 2000.
- [5] F.H. Fröhner, “Evaluation and analysis of nuclear resonance data”, JEFF Report 18, NEA/OECD 2000.
- [6] G. Noguere, “Measurements and analysis of the ^{127}I and ^{129}I neutron capture and total cross sections”, Nuclear physics and radiation physics (S73), 2005, Report no. CEA-R—6071.
- [7] 長谷美 宏幸, 「パルス中性子共鳴吸収分光法を用いた核種定量分析に関する研究」, 博士論文, 北海道大学大学院, 2015.
- [8] C. W. Reich, M. S. Moore, Rhys. Rev., 1958; 111: 929.
- [9] J. Lee et al., “Resonance Analysis for Neutron Capture Cross Sections of Th-232”, Energy Procedia, 2017; 131: 306-311.
- [10] D.W Muir et al., “The NJOY Nuclear Data Processing System”, Version 2012. New Mexico: Los Alamos National Laboratory; Report no. LA-UR-12-27079. 2012.

第5章 全エネルギー検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定

第5章では、第3章及び第4章で述べた手法の適用例として、全エネルギー検出器である C_6D_6 検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定を行った。特に本測定では1.5節で述べた熱中性子エネルギー領域における ^{153}Eu の JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値と ENDF/B-VII.1 の評価値間の不一致(表 1.5-1 参照)を解決することを主要な目的としている。そのため、本測定では第3章で決定した C_6D_6 検出器の波高重み関数を適用して熱から keV 中性子エネルギー領域までの ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の絶対値を求めた。なお、得られた中性子捕獲断面積の絶対値は評価済核データライブラリや過去の実験データとの比較を通して考察した。

5.1 測定試料

本研究では、試料として ^{151}Eu 、 ^{153}Eu を選択した。測定試料の情報については表 5.1-1 及び表 5.1-2 に示す。Europium は Eu_2O_3 の粉末状態であり、アルミニウム箔に封入された試料を使った。なお、Europium 試料中の不純物などのデータは ISOFLEX USA から入手した情報である。なお、試料に入射した中性子束を決定するために ^{10}B 試料を用いた。 ^{10}B 試料はホウ素金属粉末で厚さ 0.2mm の Al ケース内に封入されたものを使った。

表 5.1-1 C_6D_6 検出器を用いた測定で使用した試料の仕様

Sample	^{151}Eu	^{153}Eu	^{10}B
Chemical form	Eu_2O_3	Eu_2O_3	^{10}B
Isotopic composition	^{151}Eu : 97.60 (± 0.2)% ^{153}Eu : 2.4 (± 0.2)%	^{153}Eu : 99.71 (± 0.06)% ^{151}Eu : 0.29 (± 0.06)%	^{10}B : 96.98% ^{11}B : 3.02%
Weight (g)	0.115	0.114	3.60
Thickness (atoms/b)	9.66×10^{-5}	9.68×10^{-5}	5.53×10^{-2}
Size	$2.0 \times 2.0 \text{ cm}^2$	$2.0 \times 2.0 \text{ cm}^2$	2.2 cm in diam.

表 5. 1-2 C₆D₆ 検出器を用いた測定を試料の不純物一覧

Impurity	¹⁵¹ Eu sample (ppm)	¹⁵³ Eu sample (ppm)
K	<500	60
Ca	<100	40
Mg	<40	<30
Fe	50	<30
Al	<50	<50
Si	<100	<60
Cr	<70	<50
Ni	30	70
Cu	<100	<60
Mn	<20	<10
Pb	10	<10
Sn	50	60
Sm	<100	260
Nd	200	660
Gd	200	<100
Ge	<20	—
Ga	50	—

5.2 実験体系

京大炉ライナックを用いて、TOF 法を適用した ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定に対する中性子ビームラインの配置を図 5.2-1 に示す。TOF 実験に使用した中性子ビームラインは 12m 測定室のビームラインであり、この中性子ビームラインは京大炉ライナックから加速された電子ビームの入射方向に対して 135° 度方向で水平になっている。Ta-Target からは光中性子と共に強烈なガンマフラッシュが発生する。ガンマフラッシュ影響の低減のため、本実験では、2 つの鉛シールド（直径 7cm、長さ 10cm）を中性子飛行管の入口前に設置した。Ta-Target から測定試料までの飛行距離は $12.1 \pm 0.02\text{m}$ であり、飛行管内部には、鉛、ホウ素入りポリエチレン、炭酸リチウム (Li_2CO_3) 等の遮蔽材から成るリング形のコリメータが配置されている。なお、飛行管内にある空気による散乱を十分小さくするために、測定中では飛行管内に真空ポンプを用いて真空状態を維持した。捕獲ガンマ線には、一対の C_6D_6 有機液体シンチレーション検出器を用いた。試料は C_6D_6 検出器の中心から垂直方向に配置され、試料中心から検出器表面中心までの距離は 5cm とした。検出器配置を図 5.2-1 に示す。

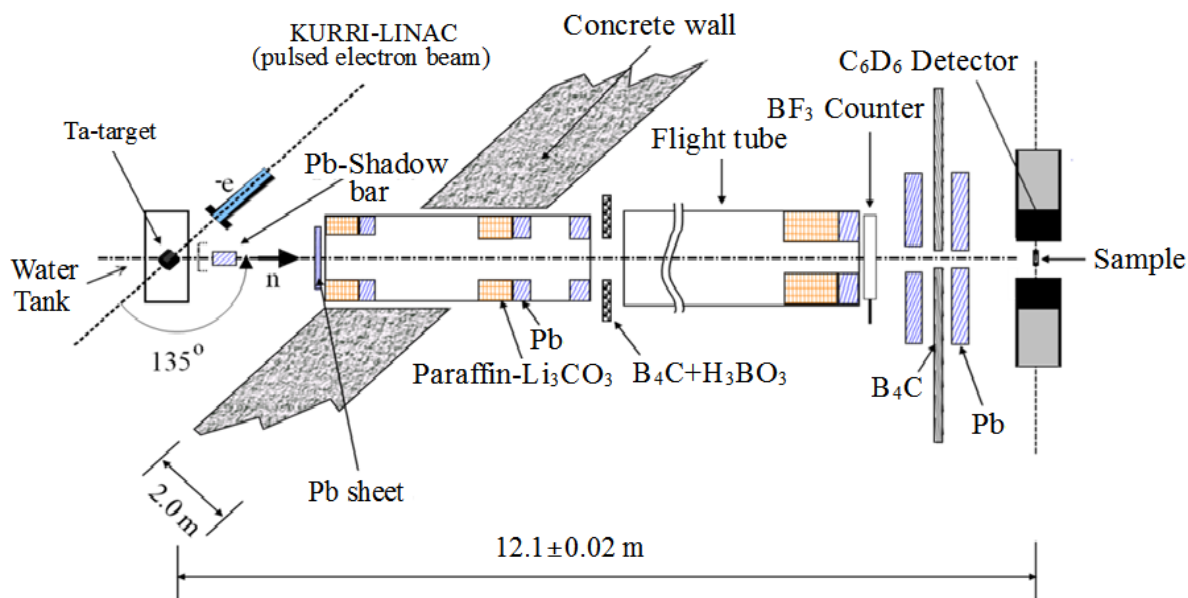


図 5.2-1 C_6D_6 検出器を用いた測定における中性子ビームラインの配置図

5.3 測定

本測定における京大炉ライナックの運転条件を表 5.3-1 に示す。表 5.3-1 からわかるように、本測定では (1) 2eV 以下の低エネルギー領域を対象とした測定 (以降、Low Energy 測定と呼ぶ) と (2) 2eV 以上の高エネルギー領域を対象とした測定 (以降、High Energy 測定と呼ぶ) の 2 種類の測定を行った。Low Energy 測定ではパルス幅 100ns、繰り返し周波数 50Hz で加速器を運転し、High Energy 測定ではパルス幅 100ns、繰り返し周波数 200Hz 及び中性子飛行管中に厚さ 0.5mm のカドミウムフィルタを挿入し、高い繰り返し運転の場合、前の加速器パルスで生じた熱エネルギー領域の中性子が次のパルスで生じた中性子とオーバーラップする現状を防止して運転した。カドミウムフィルタによって High Energy 測定では約 0.3eV 以下のエネルギー領域の中性子はカットされた。

測定は次の 5 つの run について行った。

- ① ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の測定 (測定試料の Foreground)
- ② Dummy ケースの測定 (^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の Background)
- ③ ^{10}B 試料の測定 (中性子束の Foreground)
- ④ ^{10}B +共鳴フィルタの測定 (散乱ガンマ線の影響に対する分析の Foreground)
- ⑤ ブランクの測定 (^{10}B 試料と ^{10}B +共鳴フィルタの Background)

また、本測定中の測定条件の変動による入射中性子スペクトル、発生中性子量など影響を緩和するために各 Run をサイクリックに測定し、測定室の温度も一定にした。各 Run の相対的測定データは BF_3 比例計数管の中性子モニターカウント数を用いて規格化した。各 run の測定時間を表 5.3-2 に示す。

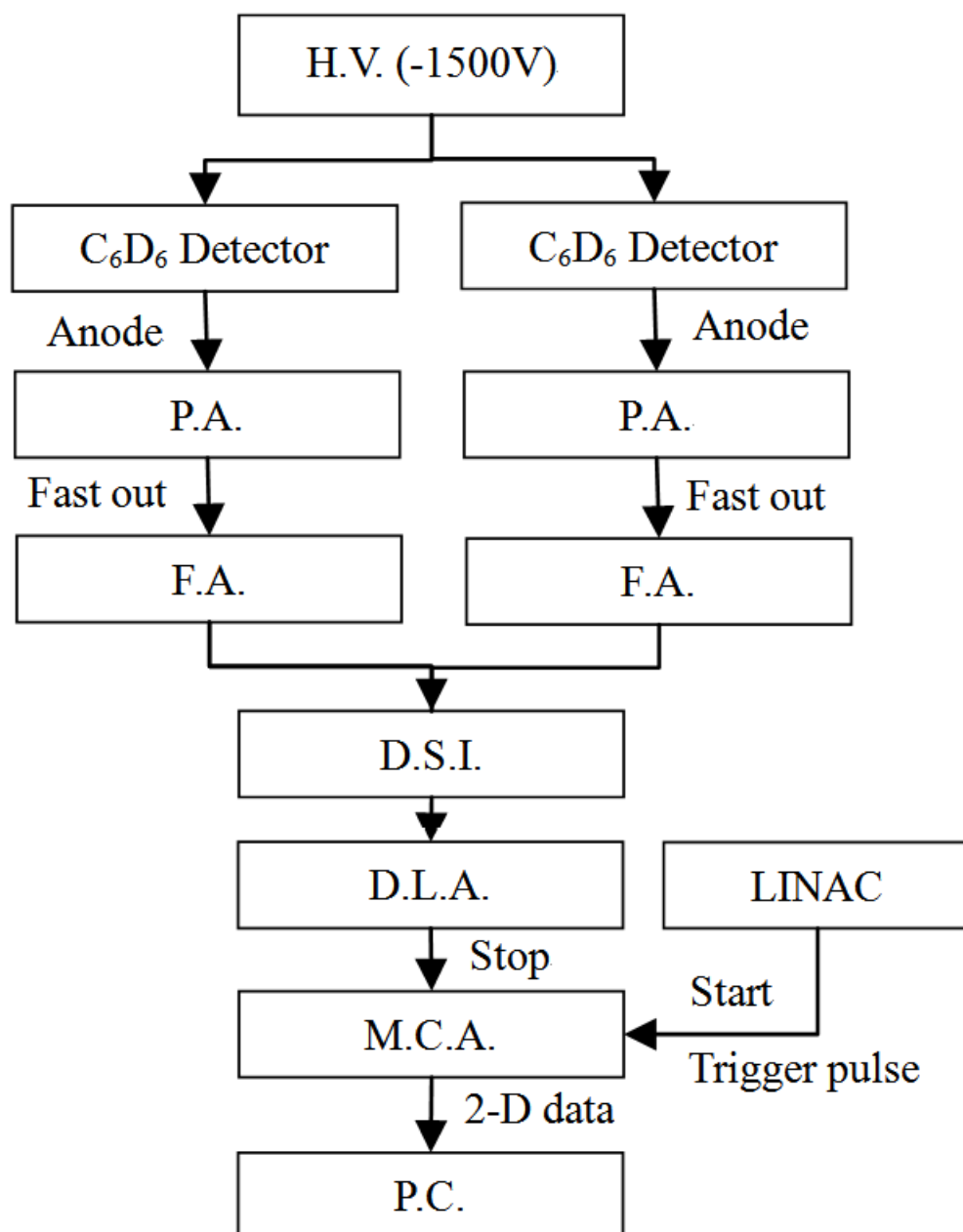
本測定で用いた測定回路を図 5.3-1 に示す。一对の C_6D_6 検出器から発生した信号は -1500V の高電圧が印加された光電子増倍管の Anode から取り出される。それぞれの Anode 信号は Pre Amplifier (P.A.) によって増幅及び整形され、Fast Amplifier (F.A.) に入力される。F.A. において増幅された 2 つの出力信号は、Dual Sum & Inverter (D.S.I.) によって 1 つの信号として合わせる。この信号は Delayed Line Amplifier (D.L.A.) によってもう一度増幅される。データの処理は YOKOGAWA 社製の Multi-Channel Analyzer (M.C.A.) WE7562 を用いた。WE7562 に入力された信号はガンマ線の波高値 (PH) の情報と飛行時間 (TOF) に発生した (n,γ) 反応に対するイベント数を記録する。TOF データを得るために本測定では、加速器のインジェクターからの基準時間信号を Start 信号とし、 C_6D_6 検出器出力信号を Stop 信号として TOF の情報を取った。PH 及び TOF の 2 次元データは最終的に PC に転送され、保存された。

表 5. 3-1 C₆D₆ 検出器を用いた測定における京大炉ライナックの運転条件

		High energy measurement	Low energy measurement
LINAC Condition	Repetition rate	200 Hz	50 Hz
	Pulse width	100 ns	100 ns
	Average current	63.0 μ A	16.5 μ A
	Cd filter	On	off
	Distance	12.1 m	12.1 m

表5. 3-2 C₆D₆検出器を用いた測定における各runの測定時間

		High energy measurement	Low energy measurement
Sample	Run	Measurement time (h)	
¹⁵¹ Eu	Foreground	6.5	3.9
¹⁵³ Eu	Foreground	11.6	6.4
Dummy case	Background	4.9	2.9
¹⁰ B	Foreground	2.4	2.9
¹⁰ B+filter	Foreground	5.1	2.0
Blank	Background	4.4	2.4



H.V : High Voltage

P.A. : Pre Amplifier

F.A. : Fast Amplifier

D.S.I. : Dual Sum & Inverter

D.L.A. : Delay Line Amplifier

M.C.A : Multi Channel Analyzer

図 5.3-1 C₆D₆検出器を用いた TOF 測定の測定回路

5.4 データ処理

中性子 TOF 法を適用した理論的中性子エネルギー E_n における中性子捕獲断面積 $\sigma_\gamma(E_n)$ は式(1.4.2)、式(1.4.4)、式(3.1.1)によって

$$\begin{aligned}\sigma_\gamma(E_n) &= \frac{Y_s(E_n)}{n_s \cdot \phi_n(E_n)} \\ &= \frac{C_s(E_n)}{n_s \cdot \varepsilon_s(E_n) \cdot \phi_n(E_n)}\end{aligned}\quad (5.4.1)$$

と表すことができる。なお、式(1.4.7)により、

$$\sigma_\gamma(E_n) = \frac{n_B}{n_s} \cdot \frac{\varepsilon_B}{\varepsilon_s(E_n)} \cdot \frac{C_s(E_n)}{C_B(E_n)} \cdot \frac{f_s(E_n)}{f_B(E_n)} \cdot \sigma_B(E_n)\quad (5.4.2)$$

となる。 C_6D_6 検出器を用いた測定に対するデータ処理の流れを図5.4-1に示す。それぞれのデータ処理については以下の節で詳しく述べる。

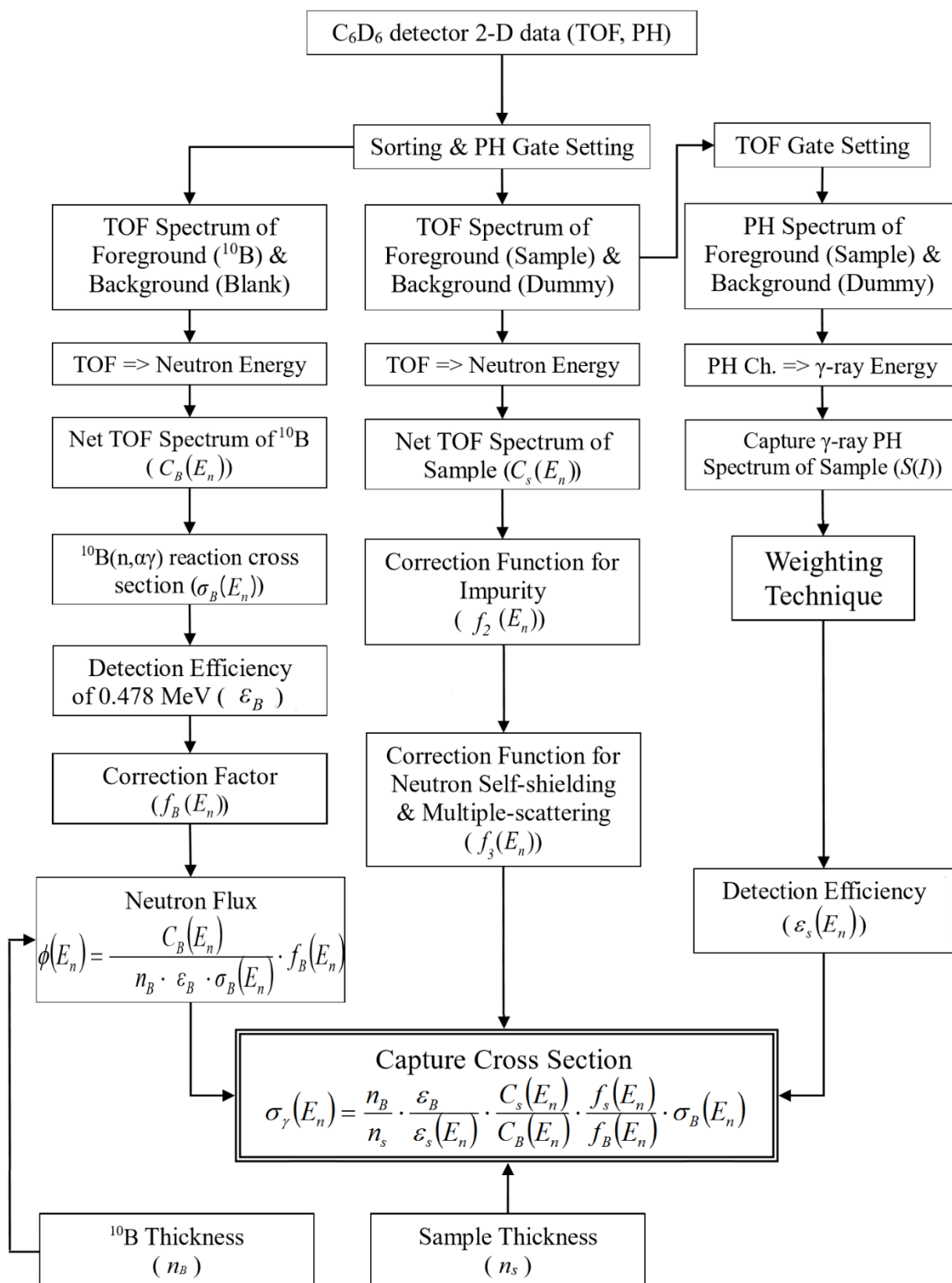


図 5. 4-1 C₆D₆ 検出器を用いた測定に対するデータ処理の流れ

5.4.1 試料の原子核数の決定

試料の原子核数 n_s ($atoms/cm^2$) は式 (5.4.2) に示すように、直接に中性子捕獲断面積の結果に影響を与える。なお、試料の原子核数を用いた補正する試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正や不純物の補正にも影響を与える重要なパラメータである。試料の原子核数 n_s は次のように定義することができる。

$$n_s = N_s \cdot t_s = \frac{\rho_s(g/cm^3)}{M_s(g/mol)} \cdot N_A(atoms/mol) \cdot t_s(cm) \quad (5.4.3)$$

ここで、 N_s は試料の原子密度 ($atoms/cm^3$)、 t_s は試料の厚さ (cm) であり、 ρ_s は試料の密度、 M_s は試料のモル質量、 N_A はアボガドロ数である。さらに、式 (5.4.3) は、

$$n_s = N_s \cdot t_s = \frac{N_A(atoms/mol)}{M_s(g/mol)} \cdot \frac{G_s(g)}{S_s(cm^2)} \quad (5.4.4)$$

と表すことができる。ここで、 G_s は試料の重量、 S_s は試料のサイズである。すなわち、式 (5.4.4) からわかるように試料の原子核数 n_s は試料の重量、サイズによって決定されるパラメータである。

C_6D_6 検出器を用いた測定に対する ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の原子核数 n_s は表 5.1-1 にも示すように $^{151}\text{Eu}: 9.66 \times 10^{-5}(atoms/b)$ 、 $^{153}\text{Eu}: 9.68 \times 10^{-5}(atoms/b)$ である。

5.4.2 中性子捕獲計数率の導出

高い精度の中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ を決定するためには、精密な試料の中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ を求める必要がある。

本測定における中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ は式 (3.1.1)、式 (3.1.2) から次式のよう

$$Y_s(E_n) = \frac{C_s(E_n)}{\varepsilon_s(E_n)} = \frac{C_{s-C6D6}(E_n) - B_{s-C6D6}(E_n)}{\varepsilon_s(E_n)} \quad (5.4.5)$$

ここで、 $C_{s-C6D6}(E_n)$ は C_6D_6 検出器から観測された試料のトータル中性子捕獲計数率、 $B_{s-C6D6}(E_n)$ は C_6D_6 検出器を用いた試料測定の際のトータルバックグラウンドである。

本解析では、高い SN 比で TOF スペクトルを抽出するために、130keV 以上の PH 領域にゲートを設定することによって、各測定に対する正味の TOF スペクトルを抽出した。また、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu に対する TOF スペクトル中のバックグラウンドの決定には、Dummy ケースの測定を用いた。このような手法により、精密な試料の中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ を導出した。

5.4.3 規格化因子の決定

中性子捕獲イールドの絶対値を求めるための規格化因子の決定は、第 3 章で得られた波高重み関数を用いて C_6D_6 検出器の検出効率を導出することによって決定した。検出効率を導出するために、式 (3.2.5) から中性子捕獲イールドを考えると、

$$Y_k = \frac{\sum_I S_k(I) \cdot W(I)}{B.E. + \langle E'_n \rangle_k} \quad (5.4.6)$$

と表わせる。ここで、 Y_k は k 番目の中性子エネルギー領域に対する中性子捕獲イールド、 $\langle E'_n \rangle_k$ は k 番目の中性子エネルギー領域に対する平均中性子エネルギーである。 k 番目の中性子エネルギー領域は、下限を中性子エネルギー $E_{k,min}$ 、上限を中性子エネルギー $E_{k,max}$ としている。なお、 Y_k は

$$Y_k = \int_{E_{k,min}}^{E_{k,max}} Y(E_n) dE, \quad S_k(I) = \int_{E_{k,min}}^{E_{k,max}} S(E_n, I) dE \quad (5.4.7)$$

と表すことができる。ここで、 $Y(E_n)$ は中性子エネルギー E_n のときの中性子捕獲イールド、 $S(E_n, I)$ は中性子エネルギー E_n のときの捕獲ガンマ線波高スペクトルである。中性子捕獲計数率を捕獲ガンマ線波高スペクトルの和とすると、次式ようになる。

$$C_k = \sum_I S_k(I) \quad (5.4.8)$$

ここで、 C_k は k 番目の中性子エネルギー領域に対する中性子捕獲計数率である。式 (5.4.6) と式 (5.4.8) から、 k 番目の中性子エネルギー領域に対する検出効率 ε_k は次式のように表される。

$$\varepsilon_k = \frac{C_k}{Y_k} = \frac{\sum_I S_k(I)}{\sum_I S_k(I) \cdot W(I)} (B.E. + \langle E'_n \rangle_k) \quad (5.4.9)$$

本実験では、測定エネルギー領域 (0.005eV~100keV) を 14 分割し、それぞれの中性子エネルギー領域に対する検出効率 ε_k を導出した。しかし、14 分割した領域に対して検出効率の有意な差はなかったので、 ^{151}Eu 、 ^{151}Eu の検出効率の統計精度をより良くするために全中性子エネルギー領域に対して検出効率を導出した。得られた捕獲検出率は ^{151}Eu : 4.4%±0.2%、 ^{153}Eu : 4.3%±0.2%であった。

5.4.4 デッドタイムの補正

C₆D₆ 検出器を用いた測定の場合、C₆D₆ シンチレータでの発光の減衰定数は 3ns と非常に短いため、検出器自身によるデッドタイムは無視できる。一方、測定回路である時間分析システム WE7562 では、ガンマ線波高によらずデッドタイム τ が一定 (1 μ s) としている。本測定システムにおいて、中性子飛行時間 (TOF) t に対して観測された計数率 $C(t)$ と真の計数率 $C_{true}(t)$ の関係は次式で表わされる。

$$C_{true}(t) = f_1(E_n) \cdot C(t) \quad (5.4.10)$$

ここで、 $f_1(E_n)$ はデッドタイムの補正係数である。また、デッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ は次式のように表すことができる。

$$f_1(t) = \frac{1}{1 - \alpha(t)} \quad \alpha(t) = \frac{1}{T_h} \int_{t-\tau}^t C_\tau(t') dt' \quad (5.4.11)$$

ここで、 τ はデッドタイム、 t は TOF、 T_h は加速器の繰り返し周波数 (Hz) に 1 パルス当たりの測定時間 (s) を掛けたものである。すなわち、デッドタイムの間には測定信号が入っても測定ができない (Non-extended dead-time model[1]) としており、TOF が t のときのデッドタイムは $t - \tau$ 秒から t 秒にかけて観測された計数 $C_\tau(t)$ によって決定される。

本測定中で最も計数率の高かった ¹⁵¹Eu 測定に対して $\alpha(t)$ を導出し、これから得られた $f_1(E_n)$ を図 5.4-2 に示す。図 5.4-2 からわかるように、¹⁵¹Eu の測定で最も計数率の高い共鳴ピークにおいても補正量は高々 1.0004 であり、10keV 付近の補正量も 1.0095 以下である。このようなことから、C₆D₆ 検出器を用いた測定におけるデッドタイムの影響は非常に小さいことがわかった。

そこで、C₆D₆ 検出器を用いた本測定では、デッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ を 1 と近似した。

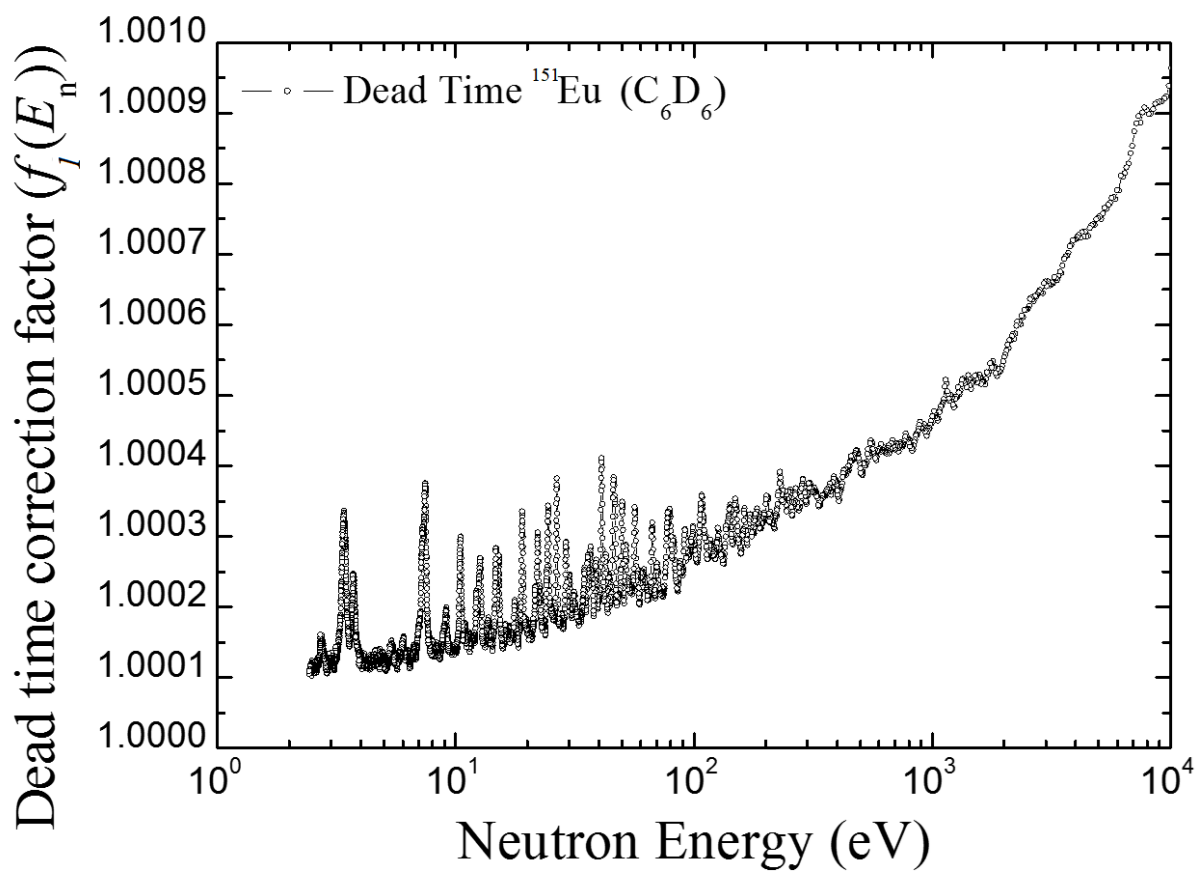


図 5.4-2 ^{151}Eu 試料における C_6D_6 検出器のデッドタイム補正係数

5.4.5 試料中の同位体による不純物効果の補正

^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中には同位体が不純物として存在している。 ^{151}Eu 試料中では ^{153}Eu が $2.4(\pm 0.2)\%$ 含まれており、 ^{153}Eu 試料中では熱中性子捕獲断面積が ^{153}Eu の約 30 倍である ^{151}Eu が $0.29(\pm 0.06)\%$ 含まれている。そのため、測定された試料の捕獲ガンマ線波高スペクトル $S(I)$ にはこれらの不純物の成分が含まれている。したがって、式(3.2.4)において不純物の寄与までを考慮すると次式のように表わされる。

$$\sum_I S(I)W(I) = (B.E. + E'_n) \cdot Y_s(E_n) + (B.E.^\ell + E_n'^\ell) \cdot Y_s^\ell(E_n) \quad (5.4.12)$$

ここで、 ℓ は不純物を意味する。式(5.4.12)を中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ について整理すると次式のように表わせる。

$$\begin{aligned} Y_s(E_n) &= \frac{\sum_I S(I) \cdot W(I)}{B.E. + E'_n} \cdot f_2(E_n) \\ &= \frac{\sum_I S(I) \cdot W(I)}{B.E. + E'_n} \left\{ 1 + \frac{(B.E.^\ell + E_n'^\ell) \cdot Y_s^\ell(E_n)}{(B.E. + E'_n) \cdot Y_s(E_n)} \right\}^{-1} \\ &= \frac{\sum_I S(I)W(I)}{B.E. + E'_n} \left\{ 1 + \frac{(B.E.^\ell + E_n'^\ell) \cdot n^\ell \cdot \sigma^\ell(E_n)}{(B.E. + E'_n) \cdot n \cdot \sigma(E_n)} \right\}^{-1} \end{aligned} \quad (5.4.13)$$

ここで、 n は試料の原子核数、 $\sigma(E_n)$ は試料の中性子捕獲断面積、 $f_2(E_n)$ は試料中の不純物効果の補正係数である。 ^{151}Eu の中性子捕獲断面積は本実験で得られたものを用い、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積は JENDL-4.0 の評価値から求めた平均断面積を用いた。

^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中の不純物効果の補正係数 $f_2(E_n)$ を図 5.4-3 に示す。 ^{153}Eu 試料については、2eV 以下の領域において ^{151}Eu からの大きな寄与が確認され、0.46eV 共鳴近傍での補正係数 $f_2(E_n)$ は約 0.63 であった。一方、 ^{151}Eu 試料の補正係数 $f_2(E_n)$ は、2.5eV 共鳴近傍での領域を除いて、約 5% 以下であった。

なお、不純物としては、同位体の他に、化学的不純物と試料中の水分があるが、それらの影響については、5.5 節において議論する。

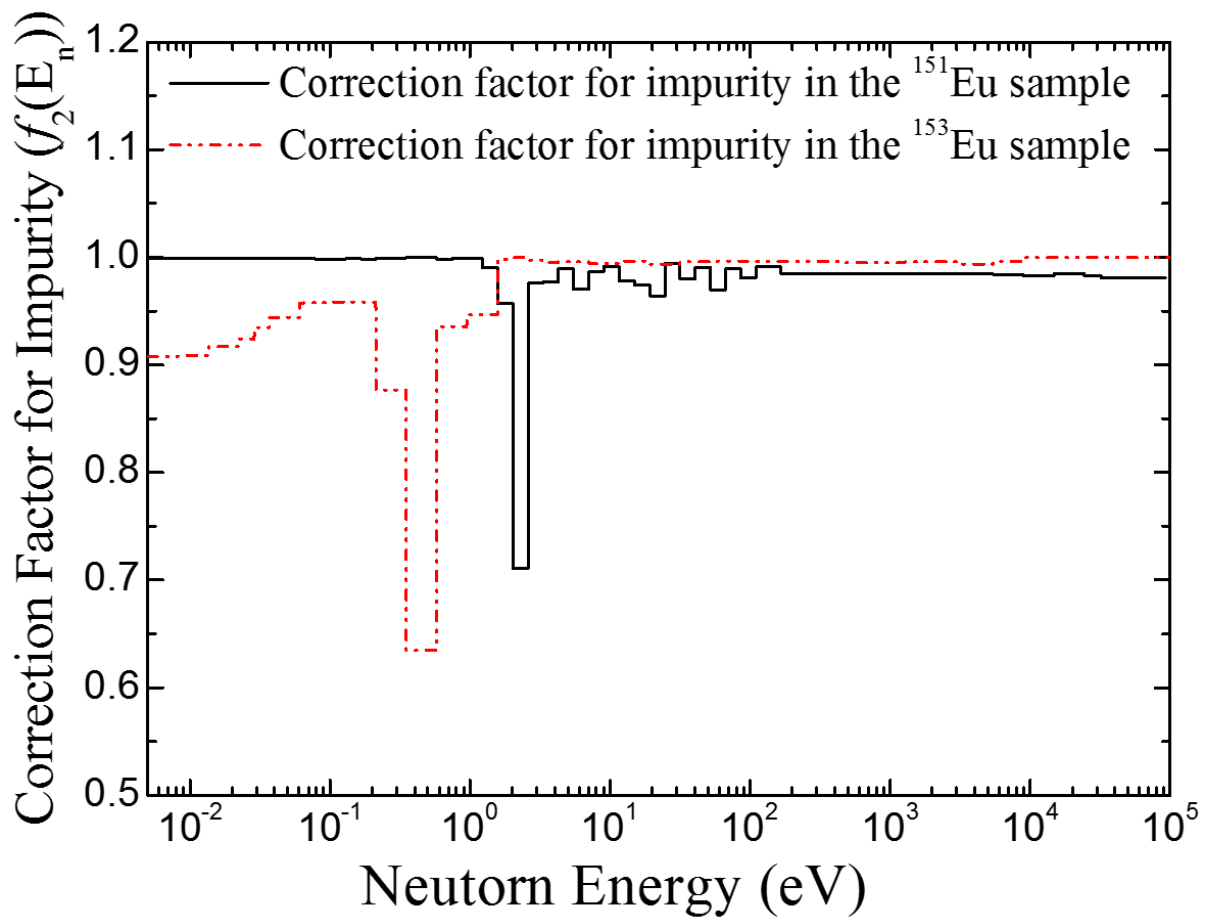


図 5. 4-3 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中の同位体による不純物効果に対する補正係数

5.4.6 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正

有限の厚さを持つ試料に中性子が入射した場合、試料中での散乱、吸収によって中性子束は減衰する。そのため、中性子捕獲断面積の導出には、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱に対する補正係数 $f_3(E_n)$ が必要である。それぞれの測定に対する補正係数 $f_3(E_n)$ は、モンテカルロ・シミュレーションコード MCNP-4C[2] の計算によって求めた。計算には、JENDL-4.0 の評価済核データライブラリを用いた。各測定試料の化学的組成、同位体組成比、幾何学条件などは測定したときと同じ条件とした。中性子は試料中心から 5cm 離れた場所において直径 2cm のペンシルビームとして発生させ、試料表面に垂直に入射させた。中性子は、捕獲反応によって消滅しない限り、カットオフエネルギー (1.0×10^{-4} eV) まで追跡した。中性子エネルギービンは中性子捕獲断面積の導出に用いたエネルギービンより約 8 倍くらい狭く設定し、この計算値を中性子捕獲断面積の導出に用いたエネルギービン同じになるようにバンチングした。各エネルギービンにおける中性子発生確率は等確率となるように設定した。測定試料領域に対しては、セルについて平均化したフラック Tally を計算し、出力データは単位体積 (1cm^3) の試料に対する (n,γ) 反応の数として設定した。補正係数 $f_3(E_n)$ は次式で与えられる。

$$f_3(E_n) = \frac{\text{中性子自己遮蔽・多重散乱効果がない場合、試料中での}(n,\gamma)\text{反応率}}{\text{中性子自己遮蔽・多重散乱効果がある場合、試料中での}(n,\gamma)\text{反応率}} \quad (5.4.14)$$

各エネルギービンにおける統計精度が十分になるように試行回数は 400,000,000 とした。

^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中での自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正係数 $f_3(E_n)$ を図 5.4-4 に示す。 ^{151}Eu 試料の場合、補正係数 $f_3(E_n)$ は 0.1eV 以下の領域や 0.46eV の共鳴近傍で大きかった。最大の補正係数 $f_3(E_n)$ は熱エネルギーにおいて約 2.8 であった。一方、 ^{153}Eu 試料の補正係数 $f_3(E_n)$ は 2.5eV の共鳴近傍で約 1.08 であった。

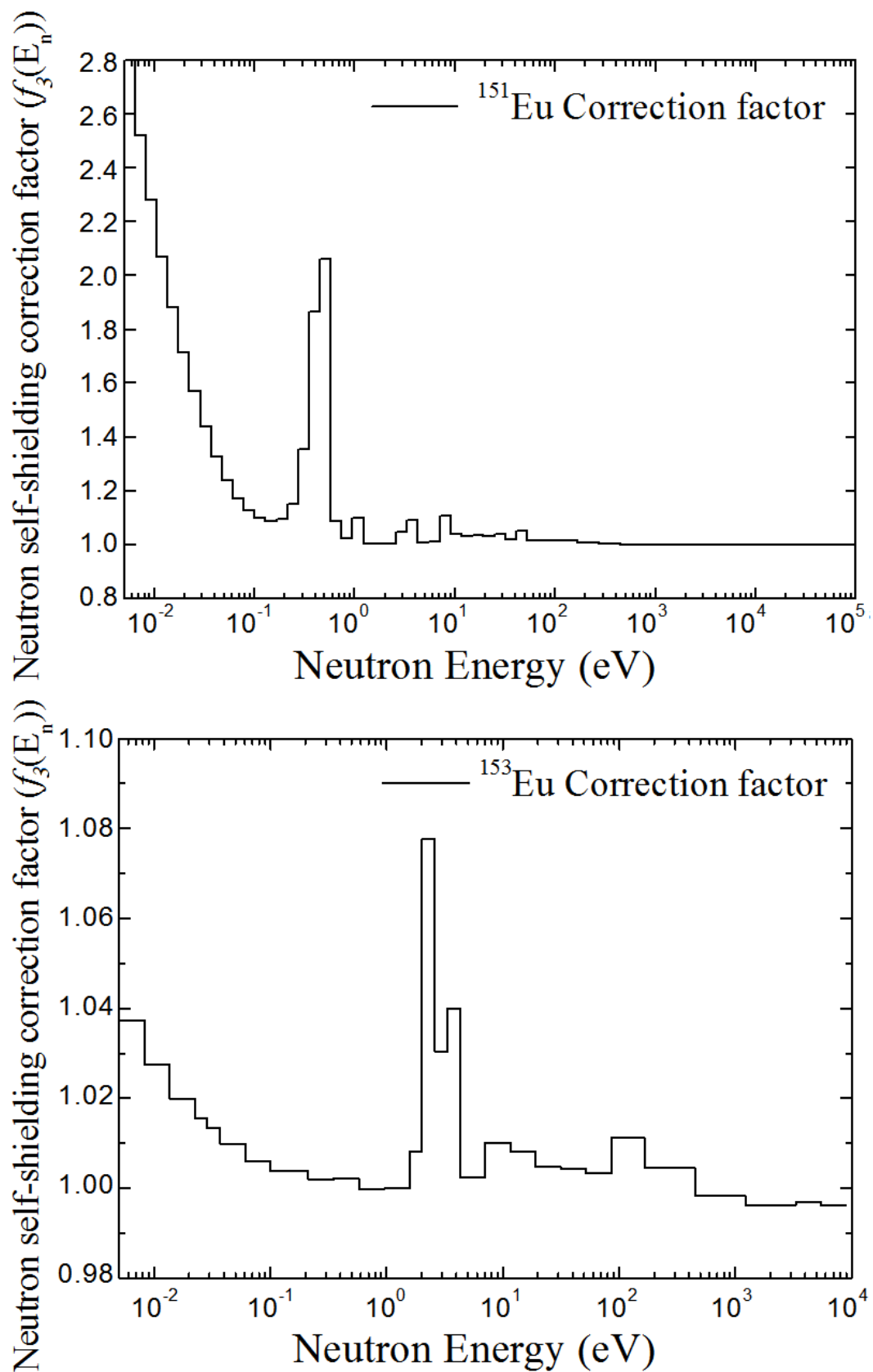


図 5.4-4 C_6D_6 検出器を用いた測定における試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数

5.4.7 入射中性子束の導出

本測定では測定試料に入射する中性子束を求めるために $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応を用いた。この反応は入射中性子のエネルギーに拠らず、0.478MeV の単色ガンマ線を放出するため、中性子の全てのエネルギー領域における捕獲反応に対して一定の検出効率を持っている特徴がある。この特性から、入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ は次式のように表すことができる。

$$\phi_n(E_n) = \frac{C_B(E_n)}{n_B \cdot \varepsilon_B \cdot \sigma_B(E_n)} \cdot f_B(E_n) \quad (5.4.15)$$

ここで、 B は ^{10}B 試料を示しており、 $C_B(E_n)$ は ^{10}B 試料の $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応計数率、 n_B は ^{10}B の原子核数、 ε_B は 0.478MeV のガンマ線に対する C_6D_6 検出器の検出効率、 $\sigma_B(E_n)$ は $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応断面積、 $f_B(E_n)$ は ^{10}B 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に対する補正係数である。

本実験で、 $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応断面積 $\sigma_B(E_n)$ は JENDL-4.0 を参照し、 ^{10}B 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に対する補正係数 $f_B(E_n)$ は MCNP-4C コードを用いて求めた。0.478MeV のガンマ線に対する C_6D_6 検出器の検出効率 ε_B は 3.3.1 節で示した応答関数から検出効率 1.16% を導出した。入射中性子束は、繰り返し周波数 50Hz の実験 (Low Energy 測定) とカドミウムフィルタを挿入した 200Hz の実験 (High Energy 測定) のそれぞれに対して求めた。

得られた入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ を図 5.4-5 に示す。Low Energy 測定では、約 0.08eV の周辺で入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ は thermal 分布を持っている。High Energy 測定では、カドミウムフィルタのため、0.4eV 以下の領域に対して入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ はカットされている。

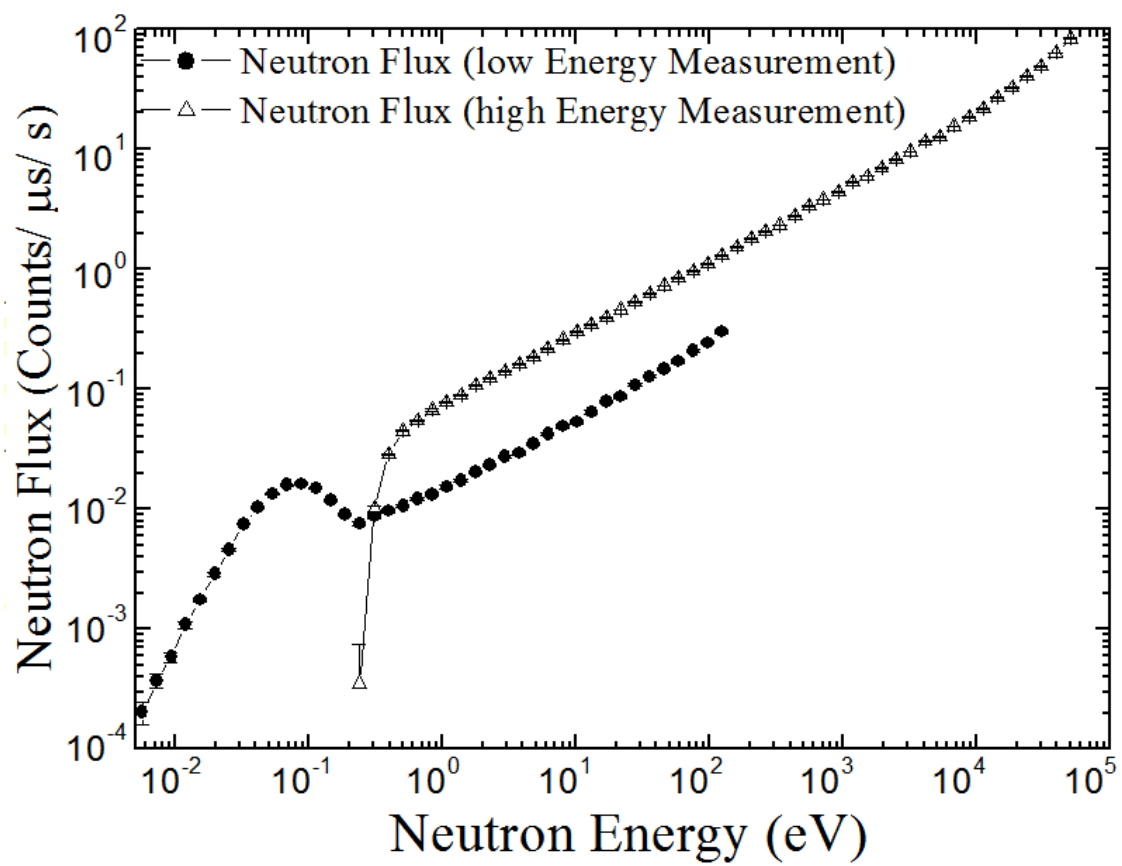


図 5.4-5 C_6D_6 検出器を用いた測定における入射中性子束

5.5 誤差評価

TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定に対する不確かさの要因としては、測定データの統計誤差と測定体系に依存した系統誤差がある。

このうち、統計誤差は一般に現象の発生がランダムな場合はポアソン分に従うことから、その標準偏差を統計誤差として用いている。表 5-5-1 に ^{151}Eu 及び ^{153}Eu の測定データの統計誤差を示す。

系統誤差の要因としては、

- 測定試料の原子核数 n_s の系統誤差
- 中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ の系統誤差
- 規格化因子 N_γ の決定の系統誤差（検出効率 $\varepsilon_s(E_n)$ の系統誤差）
- デッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ の系統誤差
- 不純物補正係数 $f_2(E_n)$ の系統誤差
- 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数 $f_3(E_n)$ の不確かさ
- 入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ の系統誤差

などが考えられる。

以下で、これらの各要因について述べる。

表 5. 5-1 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の測定試料の統計誤差

Type of uncertainties	Uncertainty (%)	
Statistical error	^{151}Eu	^{153}Eu
0.005 – 0.02 eV	5–23	–
0.02 – 1 eV	3–13	6–56
1 – 10 eV	3–13	3–73
10 – 100 eV	5–9	5–7
100 – 2600 eV	6–14	8–23
2600 – 25000 eV	20–48	–

(1) 測定試料の原子核数の系統誤差

測定試料の原子核数 n_s の系統誤差の要因としては測定試料の重量計測の不確かさ、測定試料のサイズ計測の不確かさが考えられる。本測定に対する測定試料の重量の不確かさを $^{151}\text{Eu} : 0.115 \pm 0.001\text{g}$ 、 $^{153}\text{Eu} : 0.114 \pm 0.001\text{g}$ 、測定試料のサイズの不確かさを $4 \pm 0.04\text{cm}^2$ と推定し、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の原子核数 n_s の系統誤差を 2.2%と見積もった。

(2) 中性子捕獲計数率の系統誤差

試料の中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ の系統誤差の要因としては、TOF スペクトル中のバックグラウンドの決定の不確かさが考えられる。本測定では、Dummy ケースの TOF 測定を用いてトータルバックグラウンドを決定した。ところが、Dummy ケースの測定だけでは、試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ や試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の影響が残っている可能性がある。

しかし、3.1.1 節と 3.1.2 節に述べたように C_6D_6 検出器を用いた測定の場合、試料で散乱したガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ や試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の影響がほとんどないことを確認している。このことから、 C_6D_6 検出器を用いた本測定ではバックグラウンドの決定に伴う中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ の系統誤差を無視した。

(3) 規格化因子の決定の系統誤差

波高重み法による規格化因子 N_γ の決定の系統誤差は、波高重み関数 $W(I)$ の不確かさが考えられ、波高重み関数 $W(I)$ の不確かさには、応答関数 $R(I, E_{ij})$ の不確かさ、波高重み関数作成のために使用した最小二乗法に起因する不確かさがある。応答関数の不確かさは、標準線源 (^{137}Cs : 0.662 MeV, ^{60}Co : 1.173 and 1.332 MeV, ^{24}Na : 1.369 and 2.754 MeV) から得られた実験的な応答関数と EGS5[3]の計算から求めた応答関数を比較することによって決定した。なお、 C_6D_6 検出器の波高重み関数の試行関数は式(3.2.6)の χ^2 が最小になるように決定されるため、 χ^2 の値のフィッティング誤差から最小二乗法に起因する不確かさを推定した。このことから、波高重み関数 $W(I)$ の不確かさは全体として 3.2%と決定した。

(4) デッドタイムの補正係数の系統誤差

デッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ の系統誤差の要因としては、測定のデッドタイム τ 、中性子飛行時間 t 、加速器の繰り返し周波数に 1 パルス当たりの測定時間を掛けた T_h の不確かさが考えられる。しかし、本測定ではデッドタイムの補正係数を 1 として近似している（補正不要）ので、本測定ではデッドタイムの系統誤差は無視する。

(5) 不純物補正係数の系統誤差

C₆D₆ 検出器を用いた測定についての不純物効果の補正係数 $f_2(E_n)$ の系統誤差は、表 5.1-1 に示している同位体不純物の不確かさを用いて判断したところ、¹⁵¹Eu 試料では 0.1%~3.0%、¹⁵³Eu 試料では 0.1%~9.0% となった。

また、本研究では、試料中での化学的不純物効果及び水分の影響を系統誤差として考慮した。試料中での化学的不純物効果は表 5.1-2 を参照し、試料中で水分の影響は試料中に水分が約 5%含まれていると仮定して MCNP-4C コードを用いて求めた。断面積は JENDL-4.0 の評価値を用いた。その結果、試料中での化学的不純物効果及び水分の影響による系統誤差は ¹⁵¹Eu 試料で 0.1%~0.8%、¹⁵³Eu 試料で 0.1%~1.5% となった。

(6) 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数の不確かさ

試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に対する補正係数 $f_3(E_n)$ の不確かさは、補正係数 $f_3(E_n)$ を求めるために用いた断面積の信頼性が主要因として考えられる。特に評価値を用いた従来の補正法で補正を行った本測定では、補正に用いた評価済核データライブラリが適切に選択されたかが重要な要因となる。

1.5 節に述べたように現在いくつかのエネルギー領域において ¹⁵¹Eu、¹⁵³Eu の評価値間には差が見られている。この結果、同じ計算条件でシミュレーションを行ってもどの評価値を使うかによって補正係数 $f_3(E_n)$ が変化する。この一例として JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 を用いたときの ¹⁵¹Eu、¹⁵³Eu の補正係数 $f_3(E_n)$ の比較結果を図 5.5-1 及び図 5.5-2 に示す。¹⁵¹Eu について JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 の評価値から求めた補正係数 $f_3(E_n)$ の差は最大約 5% であり、¹⁵³Eu については最大約 0.5% であった。

¹⁵¹Eu の場合、評価値の選定が補正に重要であることがわかった。¹⁵¹Eu に対する本測定の測定結果はいくつかの分離共鳴エネルギー領域を除いて JENDL-4.0 を支持しているため、本測定での JENDL-4.0 の選択は適切であると判断した。一方、¹⁵³Eu の補正量の変化は小さいことから、JENDL-4.0 の選択に大きな問題はないと判断できる。¹⁵¹Eu、¹⁵³Eu の測定結果については 5.6 節で詳しく述べる。

評価値の信頼性を除いてモンテカルロ・シミュレーション計算の統計誤差、測定試料の原子核数の不確かさによる誤差だけで試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数 $f_3(E_n)$ の不確かさを評価したところ、¹⁵¹Eu は 0.8%~1.9% となり、¹⁵³Eu は 1.0%~1.6% となった。

本測定では、C₆D₆ 検出器の低い検出効率（約 4%）を補完するために幅広い中性子エネルギービンを設定し、統計精度を向上させた。その結果、第 4 章で開発した補正法を適用することはできなかったが、図 5.5-3 からわかるように、幅広い中性子エネルギービンを用いたことから、どの評価値を使うかによって補正係数 $f_3(E_n)$ が

変わる問題はある程度解決できた。

しかし、中性子エネルギービンが小さくなればなるほど補正係数間の差は増える。特に分離共鳴エネルギー領域における共鳴ピークの分析では無視できない問題となる。さらに、特定共鳴エネルギー領域についてすべての評価値の信頼性が担保できない場合、補正係数 $f_3(E_n)$ の信頼性に根本的な問題が発生する。このことから、分離共鳴エネルギー領域における中性子捕獲断面積を導出することを主目的とする第 6 章では第 4 章で開発した補正法をデータ処理に適用している。

(7) 入射中性子束の系統誤差

入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ の系統誤差は、入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ を導出するために用いた標準断面積の不確かさが主要因として考えられる。本解析では標準断面積として JENDL-4.0 の $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応断面積を用いた。そこで、評価済核データライブラリ JENDL-4.0 の不確かさを参照し、系統誤差を分析したところ、入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ の系統誤差は約 0.3%~1.7%であった。

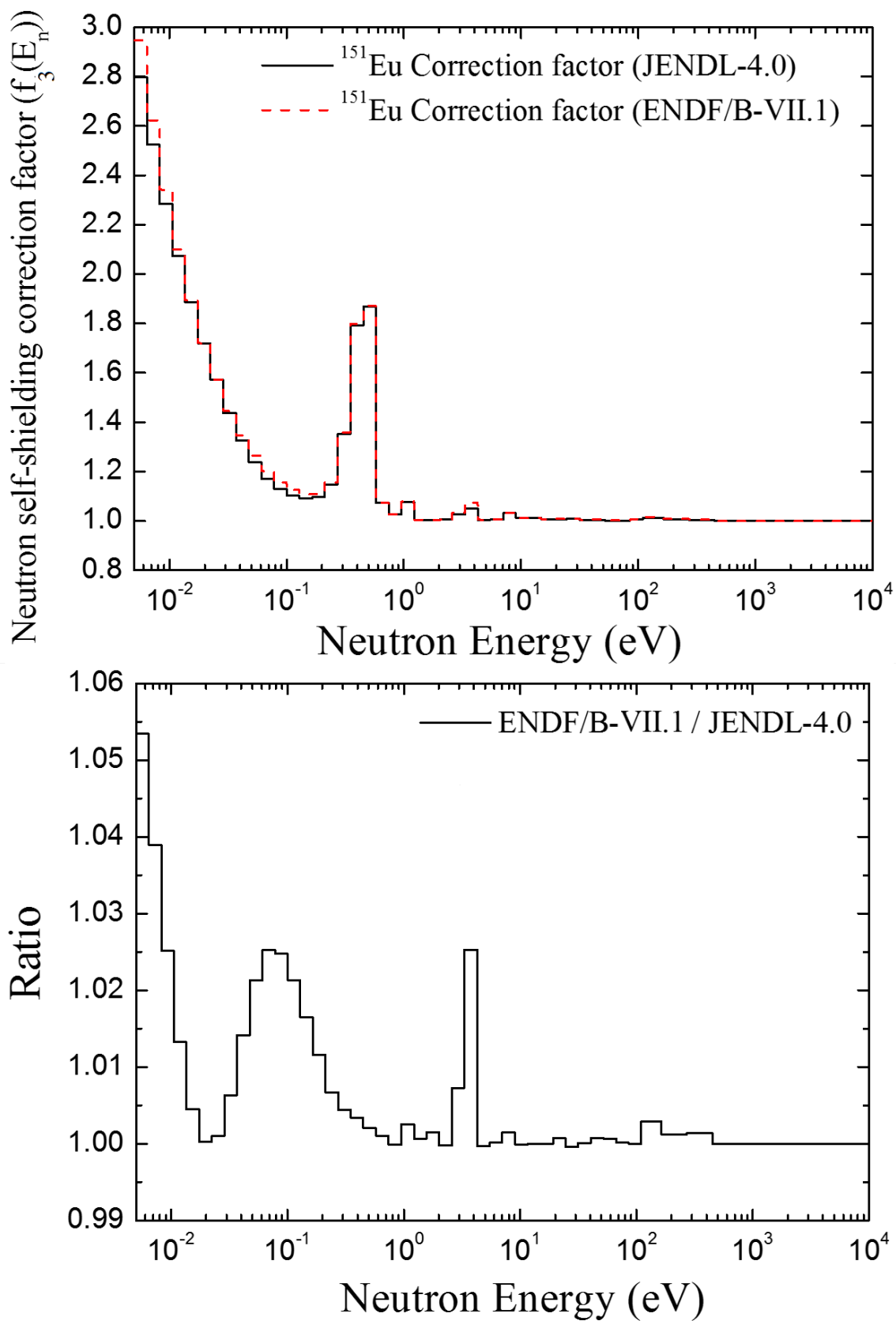


図 5.5-1 JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 を用いた ^{151}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数(上)と評価済核データライブラリ間の補正係数の比較(下)

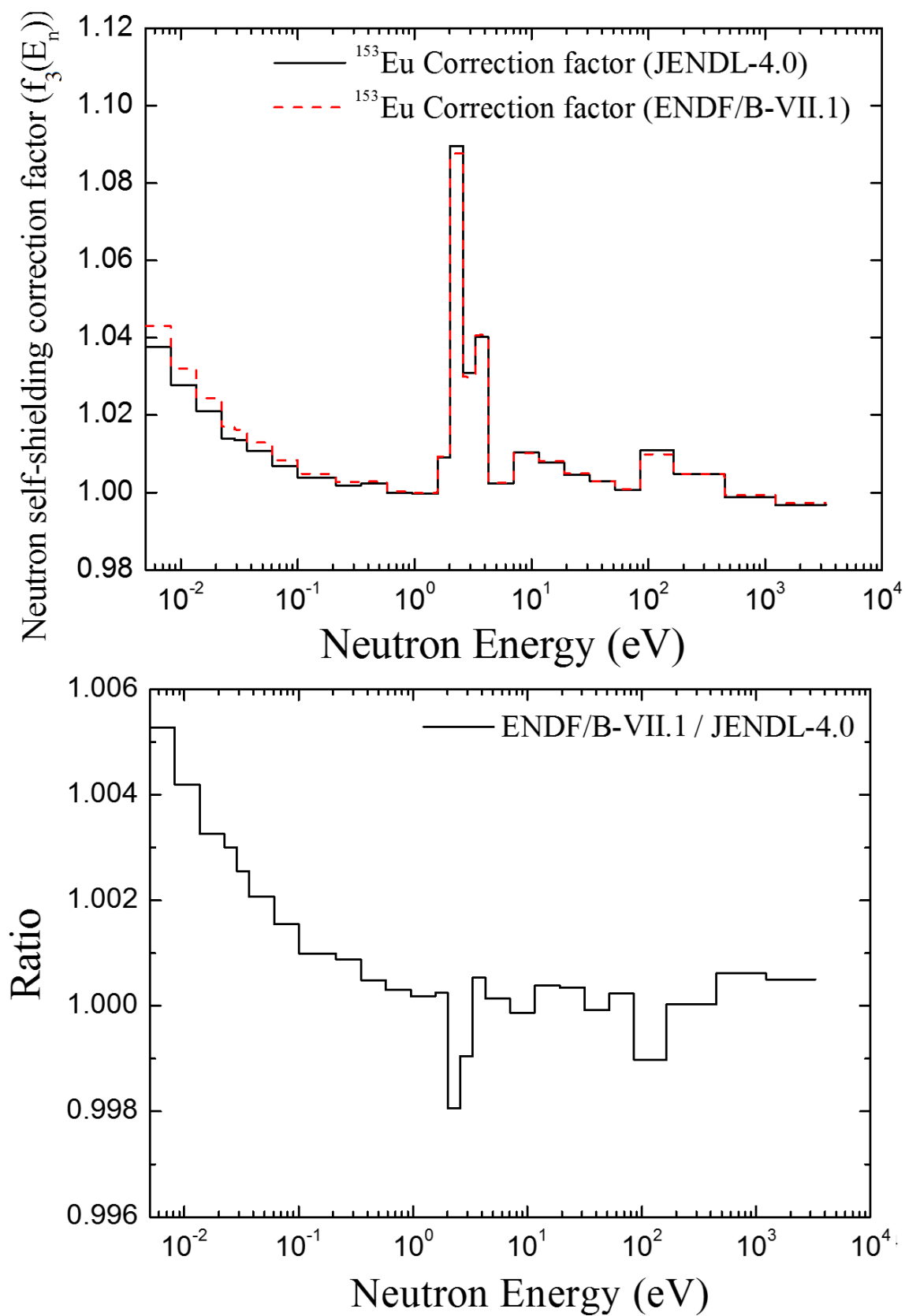


図 5.5-2 JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 を用いた ^{153}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数(上)と評価済核データライブラリ間の補正係数の比較(下)

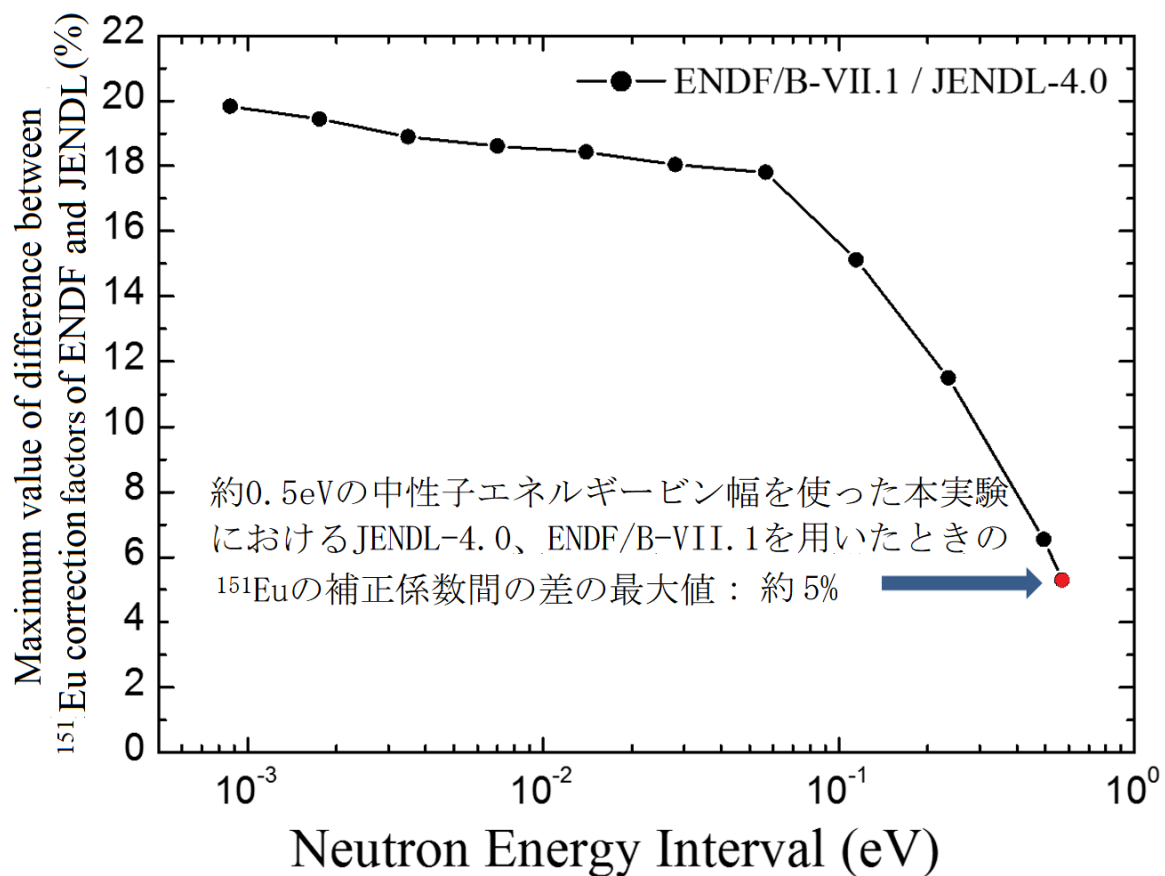


図 5.5-3 JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 を用いたときの ^{151}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱の補正係数間の差の最大値と中性子エネルギービン幅との関係

5.6 結果と考察

京大炉ライナックにおいて、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積を TOF 法により測定した。 ^{151}Eu については、0.005eV～25keV の中性子エネルギー領域における中性子捕獲断面積の絶対値を導出し、 ^{153}Eu については、0.03eV～3.3keV の中性子エネルギー領域における中性子捕獲断面積の絶対値を導出した[4]。今回の測定結果を Widder[5]の測定値、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値と共に図 5.6-1 と図 5.6-2 に示す。ただし、Widder の測定値、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値は今回の測定結果と比較するために今回のエネルギー幅あたりの平均断面積として変換したものである。

なお、得られた中性子捕獲断面積に基づいた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の熱中性子捕獲断面積、共鳴積分 (RI) を Leinweber ら[6]の RI 測定結果、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値と共に表 5.6-1 に示す。 ^{153}Eu の熱中性子捕獲断面積 $364 \pm 48\text{b}$ は 0.03eV ～0.2eV のエネルギー領域の測定結果を線型最小二乗近似 ($\log\sigma\text{-}\log En$ スケール) することによって得た外挿値である。また、共鳴積分のうち、測定が行われていない ^{151}Eu の 25keV～10MeV のエネルギー領域及び ^{153}Eu の 3.3keV～10MeV のエネルギー領域の積分値は、JENDL-4.0 の評価値を用いて算出した。

表 5.6-1 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の熱中性子捕獲断面積と共鳴積分の本測定結果と Leinweber らの結果及び評価値との比較[4]

(a) ^{151}Eu	Year	Method	σ_{th} (b)	Ratio ($\sigma_{th}/\sigma_{present}$)	Resonance Integral RI (b)	Ratio (RI/RI _{present})
JENDL-4.0	2012	Evaluation	9169.3	1.01±0.08	3143	0.90±0.04
ENDF/B-VII.1	2011	Evaluation	9185.3	1.01±0.08	3250	0.93±0.04
JEFF-3.2	2014	Evaluation	9166.7	1.01±0.08	3250	0.93±0.04
Leinweber [6]	2014	TOF	—	—	3510±10	1.01±0.05
Present		TOF	9051±683	1.00	3490±162	1.00
(b) ^{153}Eu	Year	Method	σ_{th} (b)	Ratio ($\sigma_{th}/\sigma_{present}$)	Resonance Integral RI (b)	Ratio (RI/RI _{present})
JENDL-4.0	2012	Evaluation	312.7	0.86±0.11	1413	0.92±0.06
ENDF/B-VII.1	2011	Evaluation	358.1	0.98±0.13	1419	0.92±0.06
JEFF-3.2	2014	Evaluation	312.7	0.86±0.11	1410	0.92±0.06
Leinweber [6]	2014	TOF	—	—	1560±4	1.01±0.07
Present		TOF	364±48 ^{a)}	1.00	1538±106	1.00

a) Extrapolated data

5.6.1 ^{151}Eu の中性子捕獲断面積

^{151}Eu の中性子捕獲断面積について、各エネルギー領域における考察を以下に示す。

熱中性子エネルギー領域（0.005eV～1eV）では、図 5.6-1 に示すように、Widder[5]の測定値、JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値は今回の結果と良く一致している。しかし、ENDF/B-VII.1 の評価値だけは約 0.03eV～0.2eV のエネルギー領域に対して約 11%～23%精度大きい値を示している。このような差異は、ENDF/B-VII.1 の評価値と他の評価値間の negative resonance の違いによって発生したと考えられる。それにもかかわらず、熱中性子捕獲断面積に対しては、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値は今回の結果と良く一致している。

また、分離共鳴エネルギー領域では（1eV～100eV）、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値は今回の結果と一致している。一方、JENDL-4.0 の評価値は 2.6eV～4.3eV のエネルギー領域に対して約 23%～50%精度小さい値を示している。しかし、本測定では検出効率が低い C_6D_6 検出器を用いたため、詳細な共鳴ピークの分析まではできなかった。高精度の共鳴ピークの分析をするためには検出効率が高い検出器を用いた測定が必要であると考えられる。

非分離共鳴エネルギー領域では（100eV 以上）、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値は今回の結果と誤差範囲以内で良い一致を示している。

共鳴積分については、表 5.6-1(a) からわかるように、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の積分値は今回の積分結果より約 7%～10%小さい。しかし、Leinweber ら[6]の積分データは今回の積分結果と良く一致している。

5.6.2 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積

^{153}Eu の中性子捕獲断面積について、各エネルギー領域における考察を以下に示す。

熱中性子エネルギー領域（1eV 以下）では、図 5.6-2 に示すように、Widder[5]の測定値、ENDF/B-VII.1 の評価値は今回の結果と良く一致している。一方、JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値は今回の結果より約 20%精度小さい値を示している。このような差異は、今回の熱中性子捕獲断面積結果 $364 \pm 48\text{b}$ と JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値 312b 間の違いから起こったと考えられる。以上のことから、今回の結果は JENDL-4.0、JEFF-3.2 の熱中性子捕獲断面積の評価値 312b より ENDF/B-VII.1 の熱中性子捕獲断面積の評価値 358b を支持する結果となった。

1eV 以上のエネルギー領域では、今回の結果は JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値と誤差範囲以内で一致している。

共鳴積分については、表 5.6-1(b) からわかるように、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の積分値は今回の積分結果より約 8%小さい。ところが、Leinweber ら[6]の積分データは今回の積分結果と良く一致している。

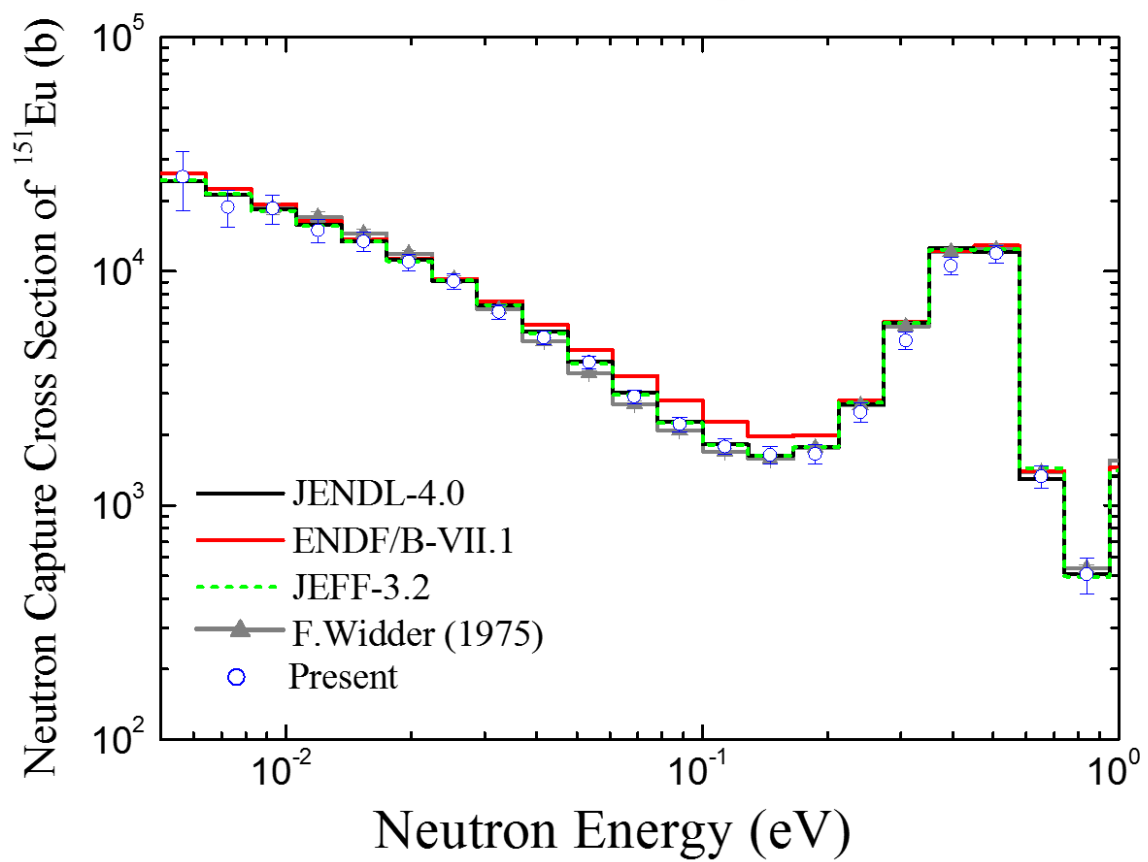
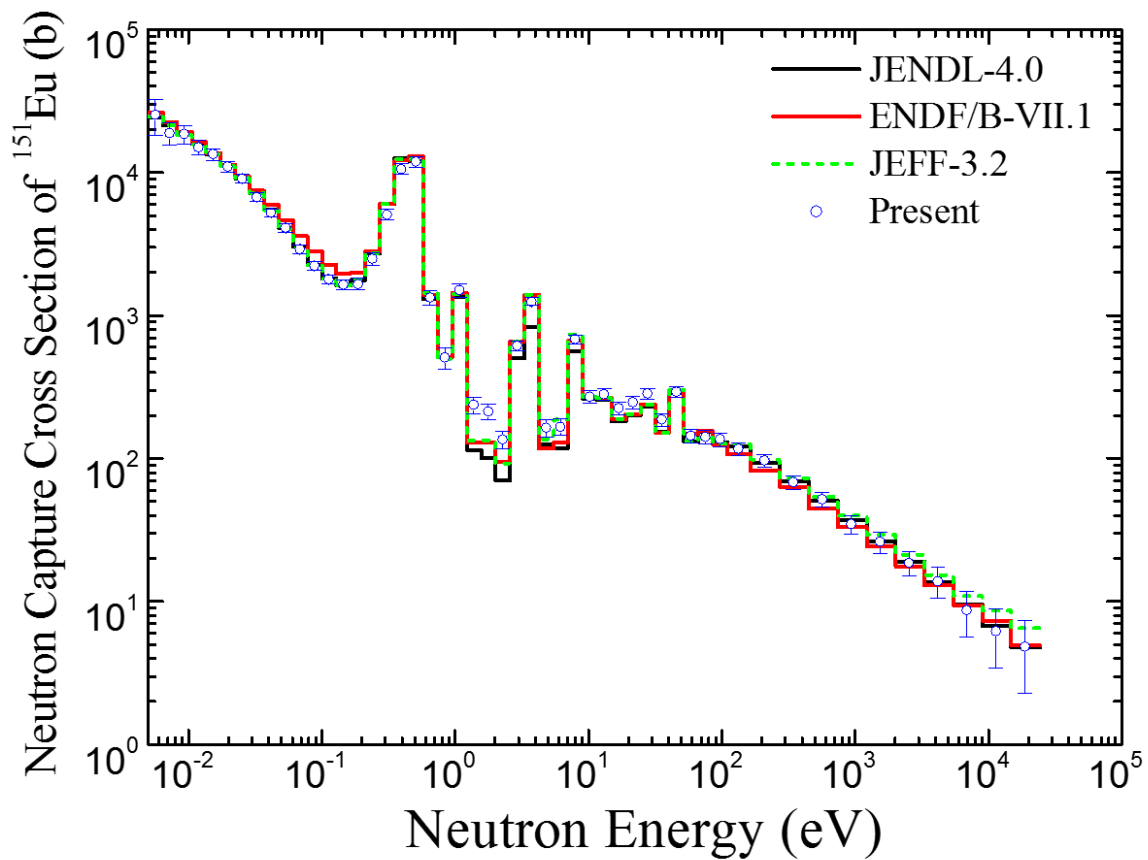


図 5.6-1 C_6D_6 検出器を用いて測定した ^{151}Eu の中性子捕獲断面積と評価値等との比較

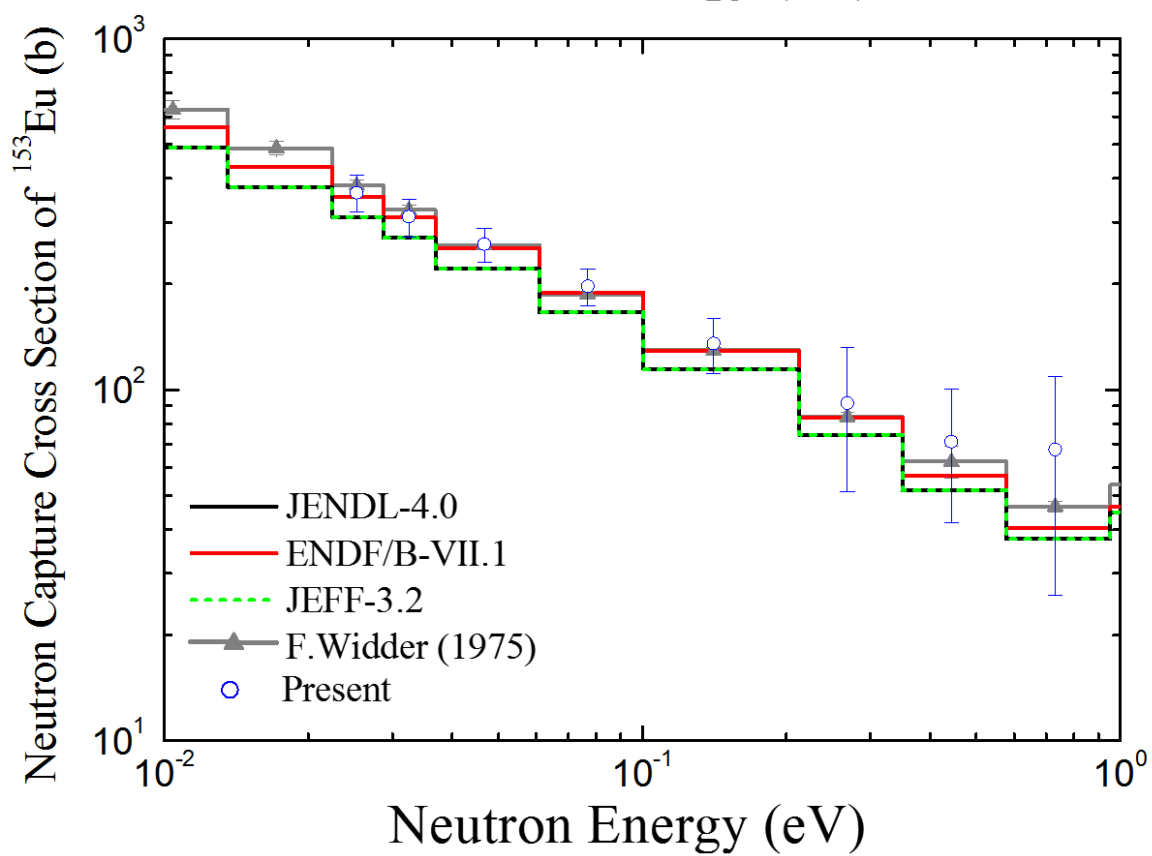
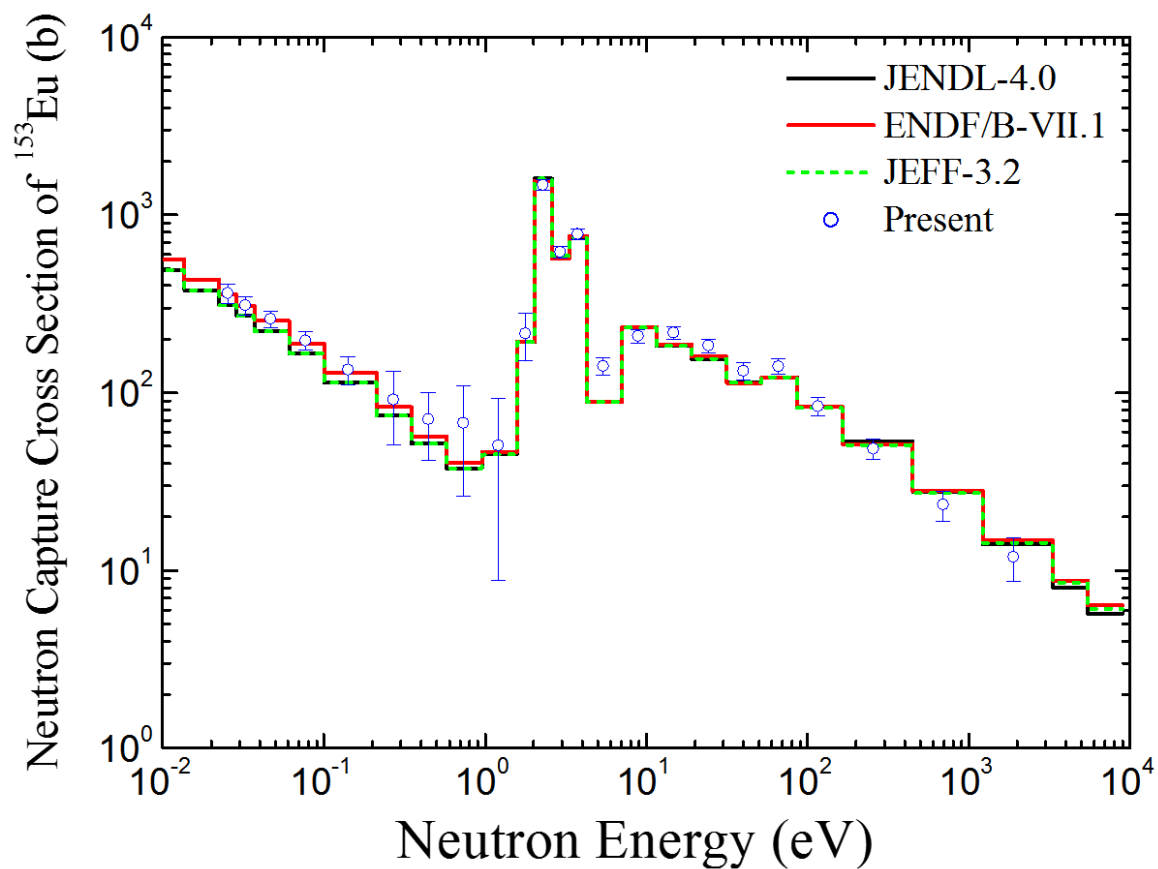


図 5.6-2 C_6D_6 検出器を用いて測定した ^{153}Eu の中性子捕獲断面積と評価値等との比較

5.7 まとめと結論

本章では、京大炉ライナックによるパルス光中性子源を用いて、TOF 法を適用した即発ガンマ線測定による ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定を実施した。中性子捕獲ガンマ線検出器としては全エネルギー C_6D_6 検出器を用いた。実験解析には、中性子捕獲収率の絶対値を導出するために波高重み法を適用した。得られた測定結果は過去の測定データ、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値と比較検証を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

(1) ^{151}Eu の中性子捕獲断面積

^{151}Eu の中性子捕獲断面積を 0.005eV から 25keV までのエネルギー領域で導出した。熱中性子エネルギー領域について、本測定の結果は JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値を支持し、約 0.03eV から 0.2eV までの領域で ENDF/B-VII.1 の評価値は最大約 23%過大評価であるという結果を得た。分離共鳴エネルギー領域について、本測定の結果は ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値を支持し、約 2.6eV から 4.3eV までの領域で JENDL-4.0 の評価値は過小評価であることを示唆する結果を得た。しかし、検出効率が低い C_6D_6 検出器を用いた本測定は分離共鳴エネルギー領域における共鳴ピークの分析には適合しなかった。このことから、後続研究として共鳴ピークのより詳細な分析研究が必要と考える。共鳴積分について、本測定の積分結果は Leinweber ら [6] の積分データと一致し、いずれの評価値も約 7%~10%過小評価であることを示唆する結果を得た。

(2) ^{153}Eu の中性子捕獲断面積

^{153}Eu の中性子捕獲断面積を 0.03eV から 3.3keV までのエネルギー領域で導出した。1eV より低いエネルギー領域について、本測定の結果は Widder [5] の測定値と良く一致し、ENDF-B/VII.1 の評価値を支持している。しかし、JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値は本測定の結果に比べて約 20%過小に評価されているという結果を得た。共鳴積分について、本測定の積分結果は Leinweber ら [6] の積分データと一致し、いずれの評価値も約 8%過小評価であることを示唆する結果を得た。

参考文献

- [1] J.W. Müller, “Dead-time problems”, Nucl. Instr. Methods., 1973; 112: 47-57.
- [2] J.F. Briesmeister (Ed.), “MCNP-A general Monte Carlo N-Particle transport code, Version 4C. New Mexico: Los Alamos National Laboratory”, 2000; Report no. LA-13709-M.
- [3] H. Hirayama et al., “The EGS5 code system. USA: Stanford Linear Accelerator Center”, 2005; Report no. SLAC-R-730.
- [4] J. Lee et al., “Neutron capture cross section measurements of $^{151,153}\text{Eu}$ using a pair of C_6D_6 detectors”, J. Nucl. Sci. Technol., 2017; 54, 10:1046–1057.
- [5] F. Widder, “Neutron capture cross section measurements in the energy region from 0.01 to 10 electron volts”, Austria: Swiss report to the I.N.D.C; 1975, Report no. 009.
- [6] G. Leinweber et al., “Europium resonance parameters from neutron capture and transmission measurements in the energy range 0.01-200 eV”, Annals of Nuclear Energy. 2014; 69:74-89.

第 6 章 全吸収型検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定

第 6 章では、第 3 章及び第 4 章で述べた手法の適用例として、全吸収型検出器である BGO 検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定を行った。全エネルギー C_6D_6 検出器を用いた測定では、熱から keV エネルギー領域までの ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の絶対値を求めることができたが、 C_6D_6 検出器の検出効率が約 4%と低かったため、分離共鳴エネルギー領域の共鳴ピーク分析には適していなかった。

このような理由で、本測定には検出効率が高い全吸収型 BGO 検出器を用いて ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定を行った。本測定の主な目的は次のとおりである。

(1) 分離共鳴エネルギー領域における ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積を導出し、主要パラメータを決定する。

(2) 分離共鳴エネルギー領域における ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の JENDL-4.0、JEFF-3.2、ENDF/B-VII.1 の評価値の妥当性検討を行う。

そのため、本測定では第 3 章及び第 4 章で開発したバックグラウンドの評価法や新たな補正法を適用し、より精密な分析を行った。なお、得られた中性子捕獲断面積や共鳴パラメータは、評価済核データライブラリや過去の実験データとの比較を通して考察した。

6.1 測定試料

本測定における測定試料の情報を表 6.1-1 及び表 6.1-2 に示す。試料は、 C_6D_6 検出器を用いた測定と同じ試料を用いたが、試料のサイズだけを 12 台の BGO 検出器を用いた測定に適合するように、 $2.0 \times 2.0 \text{ cm}^2$ から $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ に変えた。この結果、前の測定より ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の厚さは厚くなった。 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料はアルミニウム箔に封入された。なお、試料に入射した中性子束を決定するために $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ の Al ケース内に封入された ^{10}B 試料を使った。Carbon 試料 (^{12}C) は測定試料によって散乱する散乱中性子のバックグラウンドを評価するために使った。

表 6.1-1 BGO 検出器を用いた測定で使った試料の仕様

Sample	^{151}Eu	^{153}Eu	^{10}B	^{12}C
Chemical form	Eu_2O_3	Eu_2O_3	^{10}B	C
Isotopic composition	^{151}Eu : 97.60 (± 0.2)%	^{153}Eu : 99.71 (± 0.06)%	^{10}B : 96.98%	^{12}C : 98.93%
	^{153}Eu : 2.4 (± 0.2)%	^{151}Eu : 0.29 (± 0.06)%	^{11}B : 3.02%	^{13}C : 1.07%
Weight (g)	0.106	0.111	2.92	8.64
Thickness (atoms/b)	1.11×10^{-4}	1.16×10^{-4}	5.25×10^{-2}	1.32×10^{-1}
Size	$1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$	$1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$	$1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$	$1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$

表 6. 1-2 BGO 検出器を用いた測定を試料の不純物一覧

Impurity	^{151}Eu sample (ppm)	^{153}Eu sample (ppm)
K	<500	60
Ca	<100	40
Mg	<40	<30
Fe	50	<30
Al	<50	<50
Si	<100	<60
Cr	<70	<50
Ni	30	70
Cu	<100	<60
Mn	<20	<10
Pb	10	<10
Sn	50	60
Sm	<100	260
Nd	200	660
Gd	200	<100
Ge	<20	—
Ga	50	—

6.2 実験体系

本測定における中性子ビームラインの配置図を図 6.2-1 に示す。中性子ビームラインは C_6D_6 検出器を用いた測定と同じ 12m 測定室の中性子ビームラインを使った。なお、ガンマフラッシュ影響の低減のために直径 7cm、長さ 10cm の 2 つの鉛シールドを中性子飛行管の入口前に設置した。Ta-Target から測定試料までの飛行距離は $12.7 \pm 0.02\text{m}$ であり、測定中では飛行管内は真空状態を維持した。捕獲ガンマ線には、全吸収型検出器として 12 台の BGO シンチレーション検出器を用いた。BGO 検出器配置を図 6.2-1 に示す。BGO 検出器の周りはバックグラウンドを低減するために、鉛ブロック（散乱ガンマ線や宇宙線などの遮蔽用）、ホウ素入りポリエチレンブロック（散乱中性子の遮蔽用）が設置されている。図 2.3-2 に示したように、検出器中央には $1.8 \times 1.8\text{cm}^2$ の貫通孔を設けており、高い検出効率を得るために、試料は貫通孔の中心に配置された。なお、測定試料によって散乱する散乱中性子を遮蔽するために、BGO 検出器の表面に厚さ 3mm の ^6LiF タイルが設置されている。これにより、約 10eV 以下の中性子に対しては十分な遮蔽効果が得られるが、高いエネルギー領域の中性子に対してはまだ不十分である。このような理由で、中性子散乱体である ^{nat}C 試料を用いて実験的に試料中で散乱した散乱中性子のバックグラウンドを評価した。

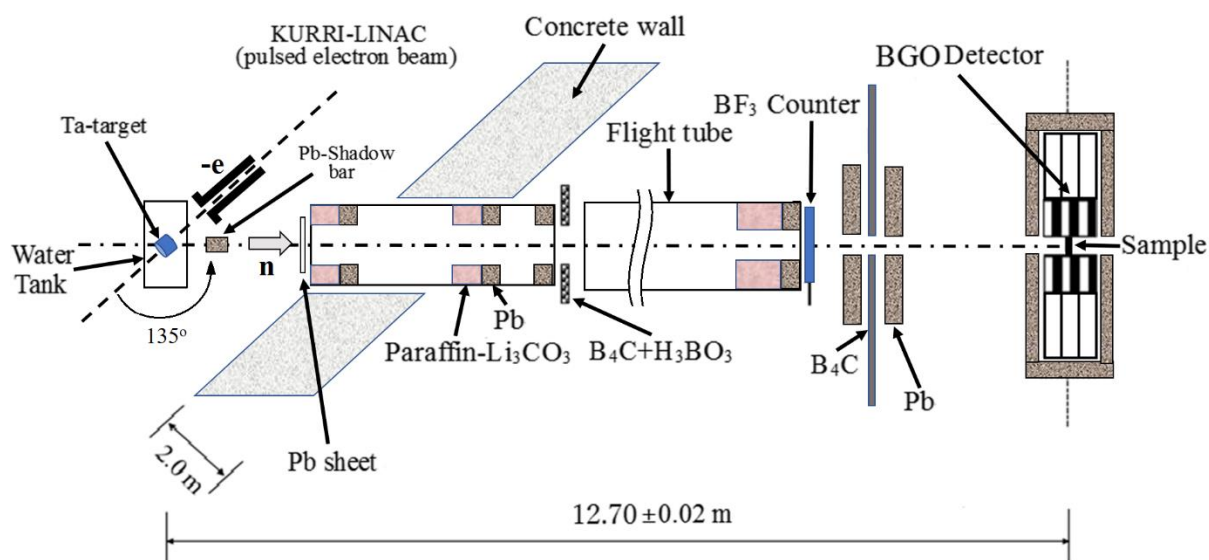


図 6.2-1 BGO 検出器を用いた測定における中性子ビームラインの配置図

6.3 測定

本測定における京大炉ライナックの運転条件を表 6.3-1 に示す。本測定では、熱エネルギー領域から keV エネルギー領域を対象とする測定を行った。測定ではパルス幅 100ns、繰り返し周波数 50Hz で加速器を運転し、ビーム平均電流は 13 μ A であった。

測定は次の 7 つの run について行った。

- ① ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の測定 (測定試料の Foreground)
- ② Dummy ケースの測定 (^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の Background)
- ③ ^{10}B 試料の測定 (中性子束の Foreground)
- ④ ^{10}B +共鳴フィルタの測定 (散乱ガンマ線の寄与の Foreground)
- ⑤ ^{10}B 試料ケースの測定 (^{10}B 試料と ^{10}B +共鳴フィルタの Background)
- ⑥ $^{\text{nat}}\text{C}$ 試料の測定 (散乱中性子の寄与の Foreground)
- ⑦ Blank の測定 ($^{\text{nat}}\text{C}$ 試料の Background)

また、本測定について、入射中性子スペクトルや発生中性子量などの変動性の影響を緩和するために各 Run をサイクリックに測定し、測定室の温度も一定にした。なお、図 6.2-1 に示す BF_3 比例計数管は中性子モニターであり、そのカウント数は測定データ間の規格化のために使用している。各 run の測定時間を表 6.3-2 に示す。

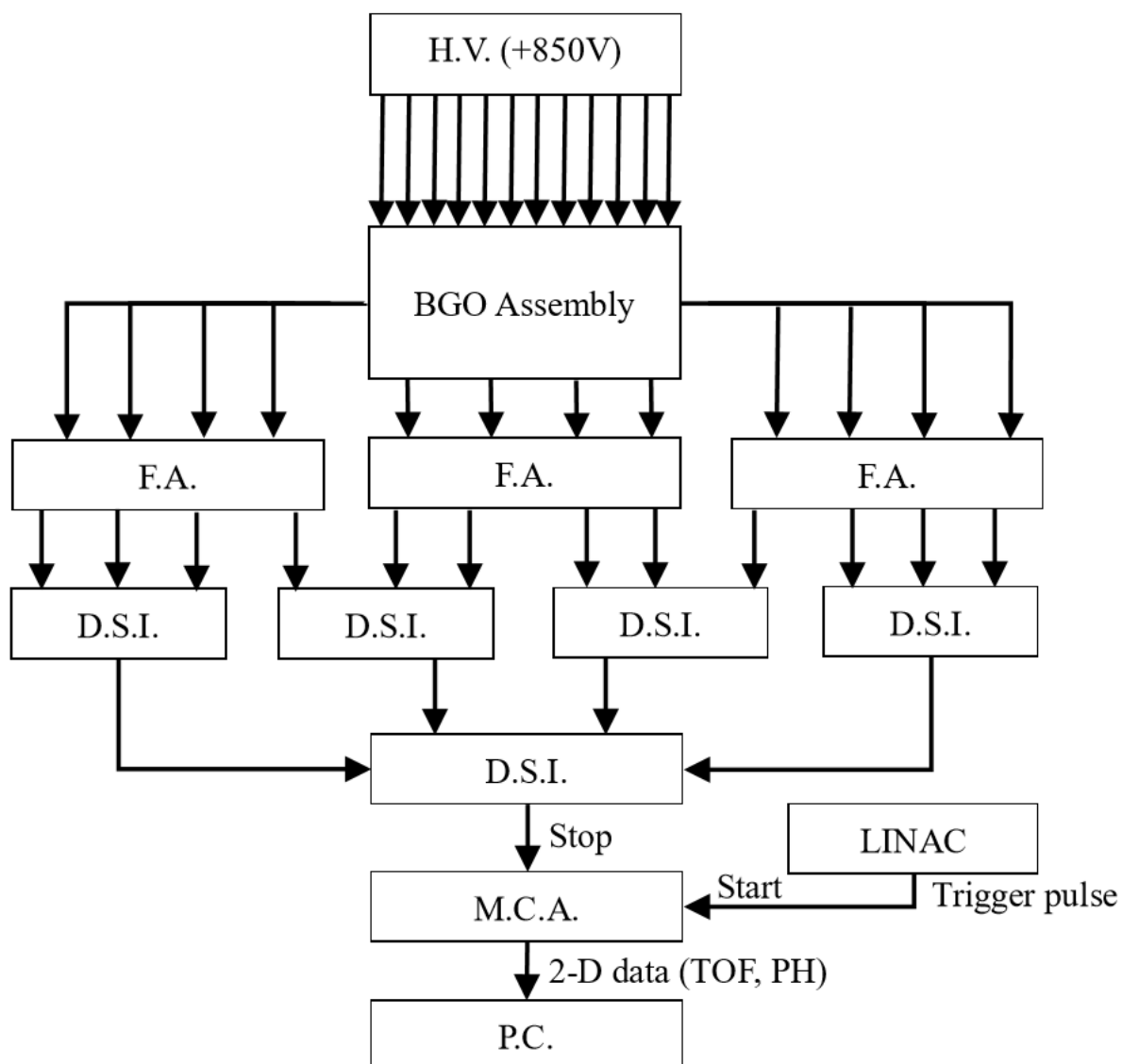
BGO 検出器を用いた本測定の測定回路を図 6.3-1 に示す。12 台の BGO 検出器の光電子増倍管には +800V の高電圧が印加された。BGO 検出器から発生した Anode 信号は、Pre Amplifier (P.A.) によって増幅及び整形された後、Fast Amplifier (F.A.) に入力される。F.A. において増幅された 12 つの出力信号は、5 個の Dual Sum & Inverter (D.S.I.) によって 1 つの信号として合わせる。データの処理は Multi-Channel Analyzer (M.C.A.) WE7562 で行った。WE7562 に入力された信号は PH 信号と TOF 信号として記録される。TOF データを得るために本測定では、加速器のインジェクターからの基準時間信号を Start 信号、BGO 検出器出力信号を Stop 信号として TOF 信号を取った。PH 及び TOF の 2 次元データは最終的に PC に転送され、保存された。

表6.3-1 BGO検出器を用いた測定における京大炉
ライナック器の運転条件

Measurement		
LINAC Condition	Repetition rate	50 Hz
	Pulse width	100 ns
	Average Current	13 μ A
	Cd filter	off
	Distance	12.7 m

表6.3-2 BGO検出器を用いた測定における各runの測定時間

Sample	Run	Measurement Time (h)
^{151}Eu	Foreground	5.9
^{153}Eu	Foreground	17.4
Dummy	Background	3.5
^{10}B	Foreground	1.5
^{10}B +filter	Foreground	0.6
Case of ^{10}B	Background	1.6
$^{\text{nat}}\text{C}$	Foreground	0.5
Blank	Background	0.2



H.V. : High Voltage
 F.A. : Fast Amplifier
 D.S.I. : Dual Sum & Inverter
 M.C.A. : Multi Channel Analyzer

図 6. 3-1 BGO 検出器を用いた TOF 測定の測定回路

6.4 データ処理

相対測定における中性子捕獲断面積 $\sigma_\gamma(E_n)$ は、

$$\sigma_\gamma(E_n) = N_\gamma \cdot \frac{C_s(E_n)}{n_s \cdot \phi'_n(E_n)} \cdot f_s(E_n) \quad (6.4.1)$$

となる。ここで、 $\phi'_n(E_n)$ は入射中性子束の相対値である。また、相対入射中性子束 $\phi'_n(E_n)$ は、

$$\phi'_n(E_n) = \frac{C_s(E_n)}{n_B \cdot \sigma_B(E_n)} \cdot f_B(E_n) \quad (6.4.2)$$

である。なお、式(6.4.1)及び式(6.4.2)により、

$$\sigma_\gamma(E_n) = N_\gamma \cdot \frac{n_B}{n_s} \cdot \frac{C_s(E_n)}{C_B(E_n)} \cdot \frac{f_s(E_n)}{f_B(E_n)} \cdot \sigma_B(E_n) \quad (6.4.3)$$

となる。BGO 検出器を用いた測定におけるデータ処理の流れを図 6.4-1 に示す。それぞれのデータ処理については以下の節で詳しく述べる。

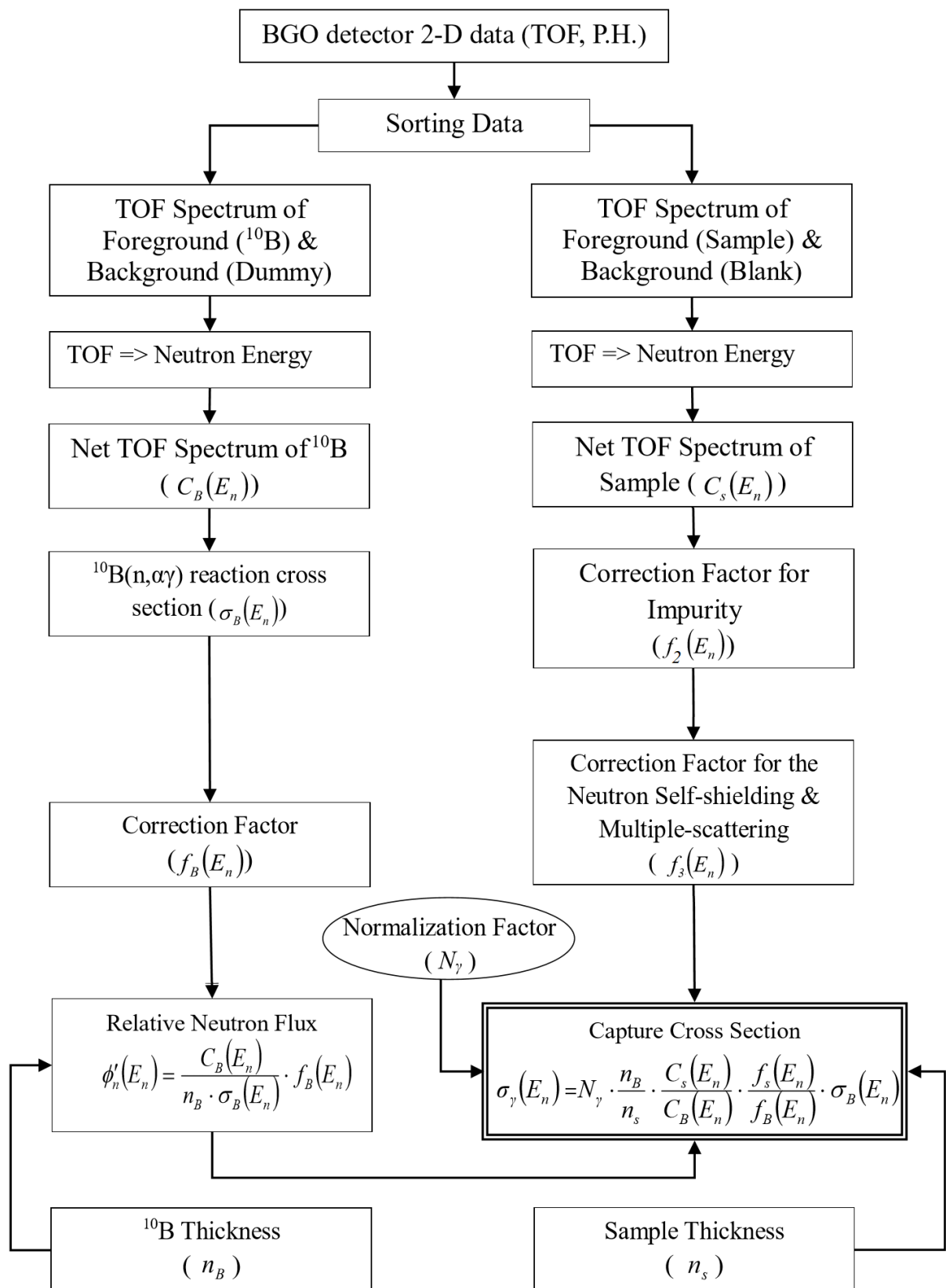


図 6. 4-1 BGO 検出器を用いた測定におけるデータ処理の流れ

6.4.1 試料の原子核数の決定

本測定では、試料の原子核数 n_s を導出するために、式(5.4.4)を用いて試料の原子核数 n_s を決定した。

$$n_s = N_s \cdot t_s = \frac{N_A(\text{atoms/mol})}{M_s(\text{g/mol})} \cdot \frac{G_s(\text{g})}{S_s(\text{cm}^2)} \quad (5.4.4)$$

表 6.1-1 に示すように、BGO 検出器を用いた本測定で使用した ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の原子核数 n_s は ^{151}Eu : $1.11 \times 10^{-4}(\text{atoms/b})$ 、 ^{153}Eu : $1.16 \times 10^{-4}(\text{atoms/b})$ である。

6.4.2 中性子捕獲計数率の導出

試料の中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ を精度良く求めることによって高い精度の中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ を導出することができる。

BGO 検出器を用いた本測定における中性子捕獲イールドは式(3.1.1)、式(3.1.3)から次式で表わせる。

$$Y_s(E_n) = \frac{C_s(E_n)}{\varepsilon_s(E_n)} = N_\gamma \cdot \{C_{s-BGO}(E_n) - B_{s-BGO}(E_n)\} \quad (6.4.4)$$

ここで、 $C_{s-BGO}(E_n)$ は BGO 検出器から観測された試料のトータル中性子捕獲計数率、 $B_{s-BGO}(E_n)$ は BGO 検出器を用いた試料測定時のトータルバックグラウンドである。

本解析では、高い SN 比で TOF スペクトルを得るために、各測定データに対して 130keV～7MeV のパルス波高 (PH) 領域にゲートを設定した。また、BF₃ 比例計数管の計数値の積分値で、各 TOF スペクトルの規格化を行った。

バックグラウンドの決定については、BGO 検出器を用いた本測定システムは C₆D₆ 検出器より、時間に依存するバックグラウンド $B_d(E_n)$ の影響を受けやすいため、Dummy ケースの測定だけでは ¹⁵¹Eu、¹⁵³Eu に対する TOF スペクトル中のバックグラウンドを決定することに限界がある。この理由から、本測定では第 3 章で述べたバックグラウンドの評価法を適用した。式(3.1.7)と式(3.1.9)を用いて(n,γ)捕獲反応イールド $Y_s(E_n)$ を定義すると、

$$Y_s(E_n) = Y'_s(E_n) - Y_{ca}(E_n) \cdot \frac{\sigma_s^{ela}(E_n)}{\sigma_{ca}^{ela}(E_n)} \cdot \frac{n_s}{n_{ca}} - Y_{2.2MeV}(E_n) \cdot \frac{\sigma_s^{2.2MeV}}{\sigma_B^{2.2MeV}} \cdot \frac{n_s}{n_B} \quad (6.4.5)$$

となる。本解析で、弾性散乱断面積 $\sigma^{ela}(E_n)$ は JENDL-4.0 から得た。また、2.2MeV ガンマ線に対するガンマ線散乱断面積 $\sigma^{2.2MeV}$ は TENDL-2015[1] から得た。 $Y_{ca}(E_n)$ は ^{nat}C 試料から実験的に求め、 $Y_{2.2MeV}(E_n)$ は ⁵⁹Co(132eV)、⁵⁵Mn(336eV、2.37keV) の共鳴の dip に数値計算により 2.2MeV のガンマ線の検出時間分布を規格化して再現したものである。このような手法により、試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ 及びガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の寄与を引き去った正味の(n,γ)捕獲反応イールド $Y_s(E_n)$ を導出することができた。

¹⁵¹Eu、¹⁵³Eu の中性子捕獲断面積における試料で散乱した中性子及びガンマ線のバックグラウンドの寄与を図 6.4-2 と図 6.4-3 に示す。図 6.4-2 と図 6.4-3 からわかるように、バックグラウンドの評価法を適用したことによって非分離共鳴エネルギー領域における断面積の結果が大きく改善されたことを確認した。

試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の寄与は、最大値でも中性子捕獲断面積結果の 1/100 より寄与が小さかったので、本研究では無視することにした。

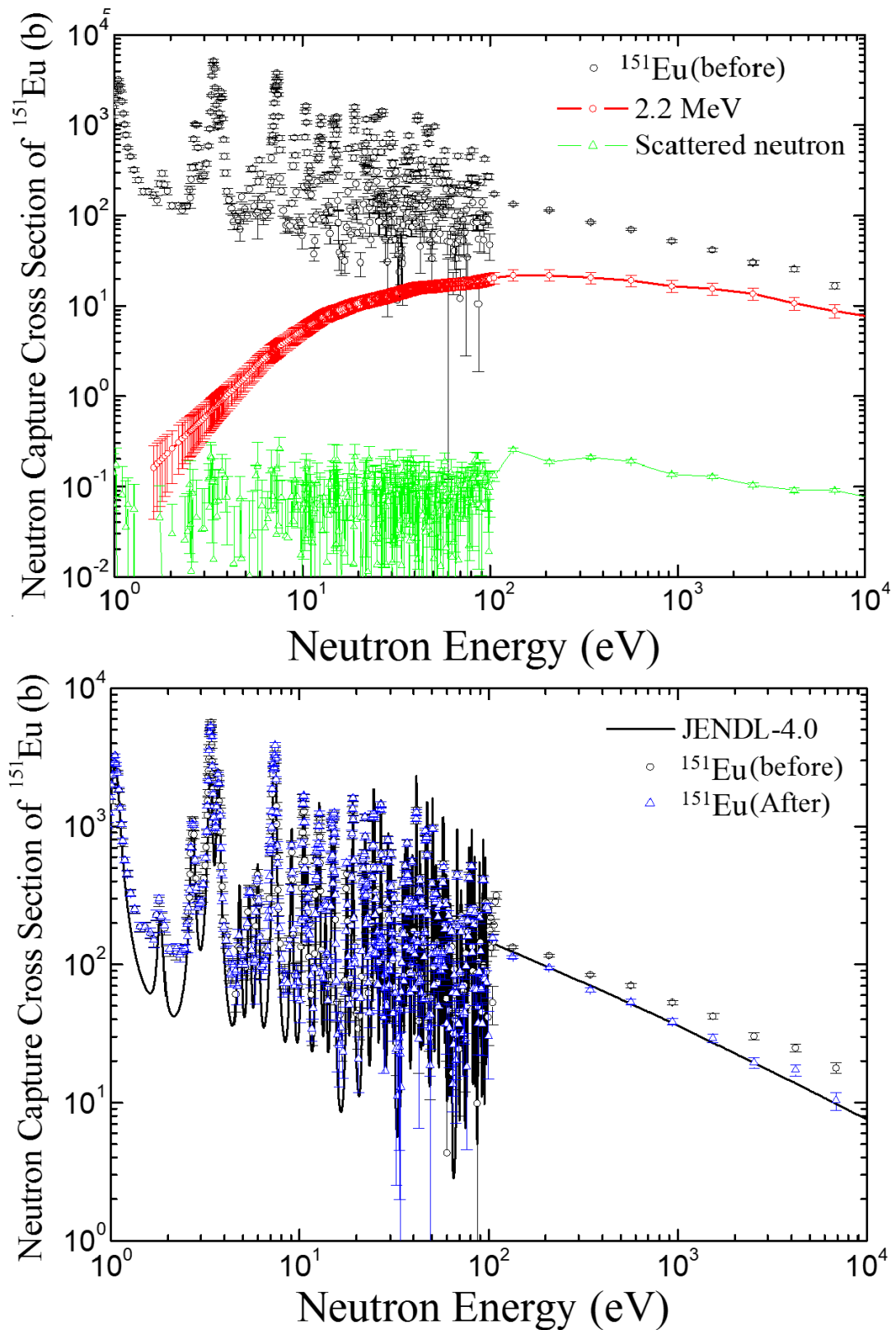


図6. 4-2 ^{151}Eu 試料で散乱した中性子と2.2MeVガンマ線のバックグラウンドの効果
(上) 及びその効果を補正した ^{151}Eu 中性子捕獲断面積の評価値との比較(下)

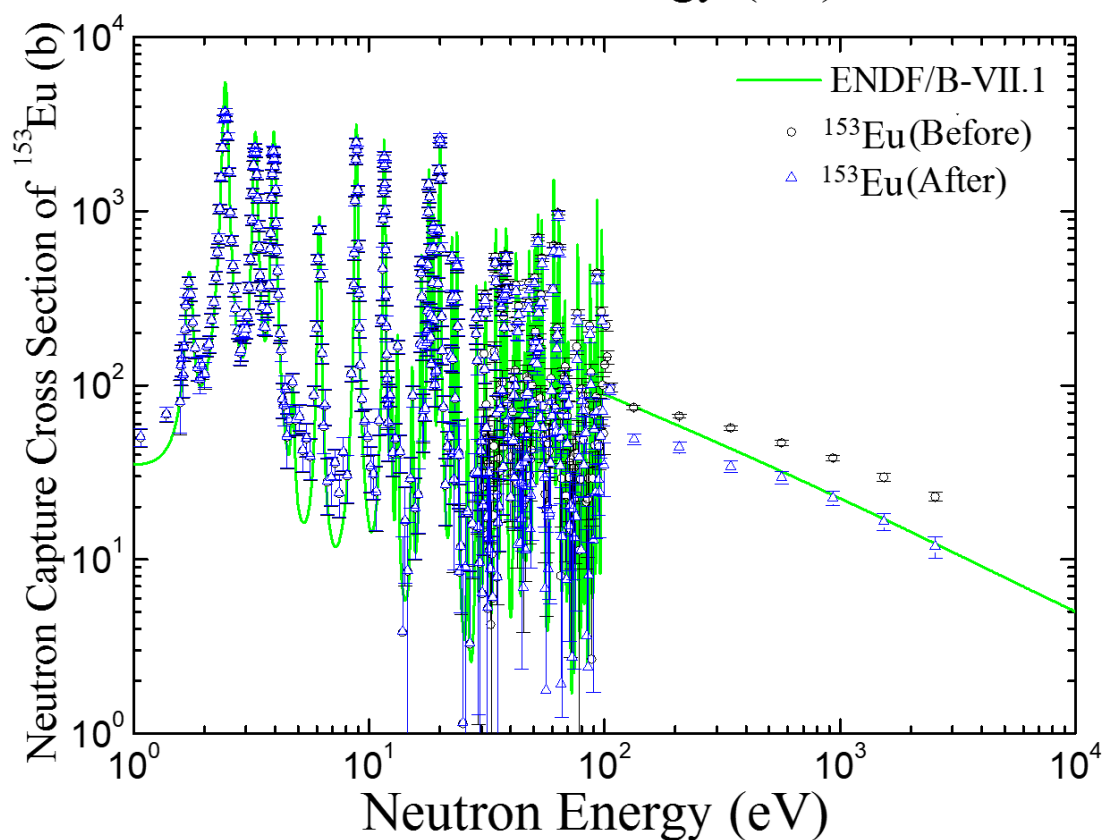
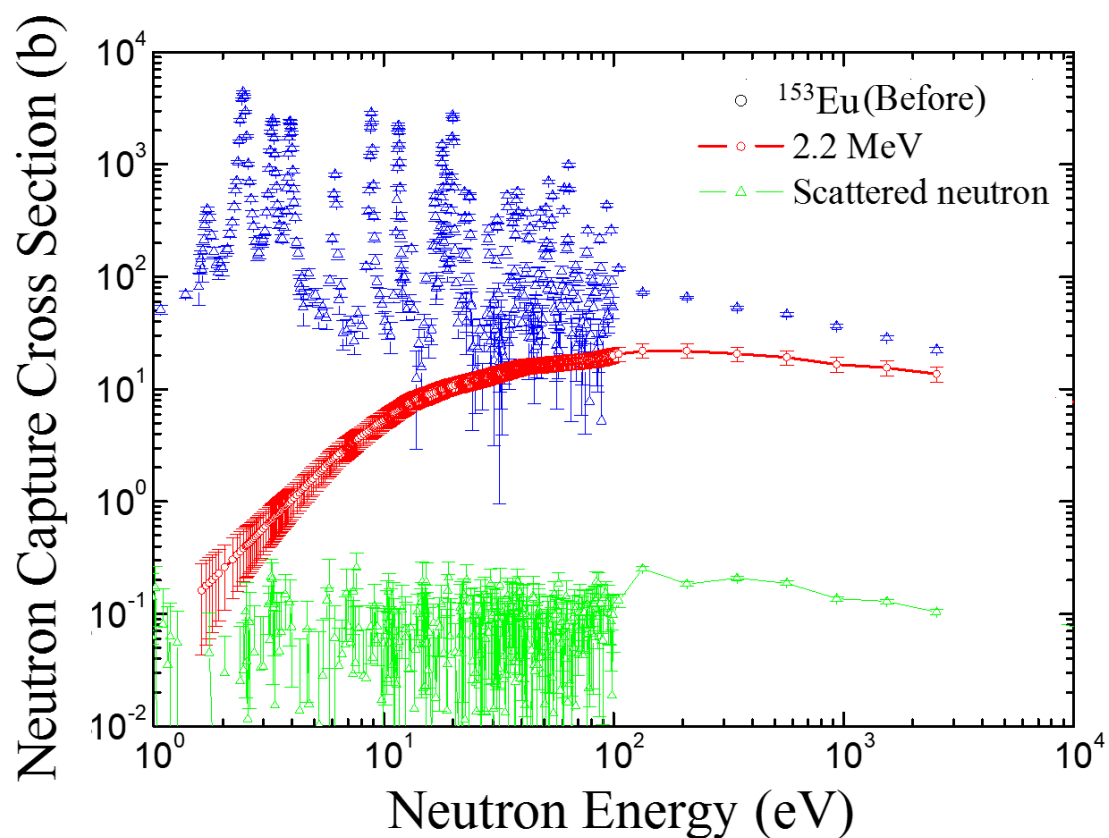


図6.4-3 ^{153}Eu 試料で散乱した中性子と2.2MeVガンマ線のバックグラウンドの効果
(上)及びその効果を補正した ^{153}Eu 中性子捕獲断面積の評価値との比較(下)

6.4.3 規格化因子の決定

全吸収型検出器を用いる測定の場合、中性子捕獲イールドの絶対値を求めるための規格化因子の決定には、飽和共鳴法で検出効率 $\varepsilon_s(E_n)$ を導出することによって規格化するのが一般的である。

この手法を利用するためには試料の大きな中性子共鳴ピークに入射中性子束が全部吸収されなければならない。

しかし、BGO 検出器を用いた本測定では ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の一番大きな中性子共鳴に対しても入射中性子束が完全に吸収されていなかった。そのため、本測定では飽和共鳴法を用いた規格化因子の決定は難しいと判断し、検出効率 $\varepsilon_s(E_n)$ の代わりに規格化因子 N_γ を導入することによって中性子捕獲イールドの絶対値を求めた。

本測定では ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料に対してそれぞれの規格化因子 N_γ を導入した。規格化は第5章の測定結果[2]を参考にして ^{151}Eu は JENDL-4.0 の熱中性子捕獲断面積 9169b に規格化し、 ^{153}Eu は ENDF/B-VII.1 の熱中性子捕獲断面積 358b に規格化した。

6.4.4 デッドタイムの補正

BGO 検出器を用いた本測定の場合、BGO シンチレータの発光の減衰定数は 300ns と短いため、検出器からのデッドタイムはほとんどないと考えられる。しかし、測定回路である時間分析システム WE7562 は、 C_6D_6 検出器を用いた測定と同じくデッドタイム $\tau: 1\mu s$ を有している。そこで、本測定では C_6D_6 検出器を用いた測定のとおり同じ式(5.4.10)と式(5.4.11)を用いてデッドタイムの補正係数を導出した。

$$C_{true}(t) = f_1(E_n) \cdot C(t) \quad (5.4.10)$$

$$f_1(t) = \frac{1}{1 - \alpha(t)} \quad \alpha(t) = \frac{1}{T_h} \int_{t-\tau}^t C_i(t') dt' \quad (5.4.11)$$

本測定中で一番計数率の高かった ^{151}Eu 測定に対するデッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ を図 6.4-4 に示す。図 6.4-4 からわかるように、 ^{151}Eu の BGO 検出器を用いた測定で一番計数率の高い共鳴ピークにおいても補正量は高々 1.0023 であり、10keV 付近の補正量でも 1.004 以下である。このような結果から、BGO 検出器用いた本測定では、デッドタイムの影響は非常に小さいことを確認した。

そこで、本測定ではデッドタイムは無視できると判断し、デッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ を 1 と近似した。

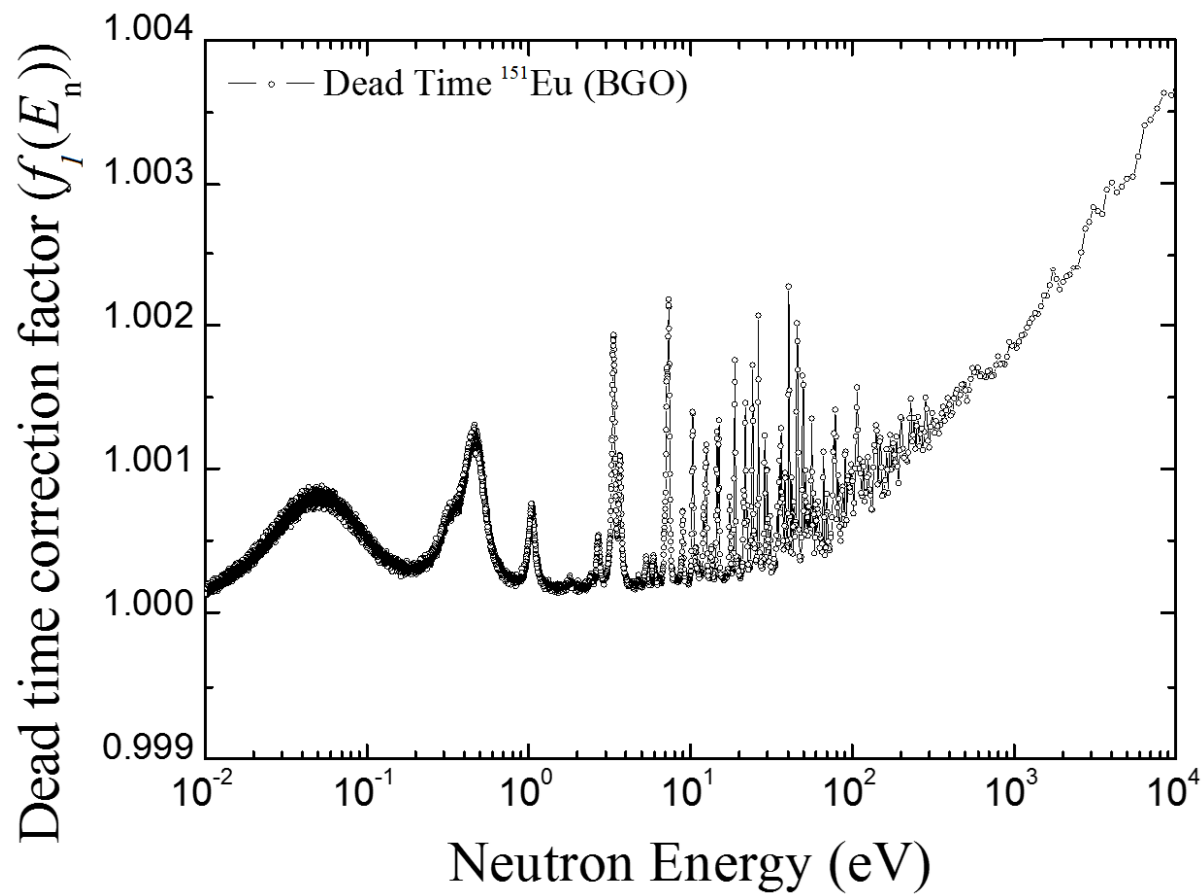


図 6. 4-4 ^{151}Eu 試料における BGO 検出器のデッドタイム補正係数

6.4.5 試料中の同位体による不純物効果の補正

測定試料中の同位体による不純物効果を考慮した中性子捕獲イールドは次式のよう
に表すことができる。

$$Y_{exp}(E_n) = Y_s(E_n) + Y_s^\ell(E_n) \quad (6.4.6)$$

ここで、 $Y_{exp}(E_n)$ は測定によって観測された中性子捕獲イールドである。式(6.4.6)
を中性子捕獲イールド $Y_s(E_n)$ について整理すると次式のように表わせる。

$$\begin{aligned} Y_s(E_n) &= Y_{exp}(E_n) \cdot f_2(E_n) \\ &= Y_{exp}(E_n) \cdot \left\{ 1 + \frac{n^\ell \cdot \sigma^\ell(E_n)}{n \cdot \sigma(E_n)} \right\}^{-1} \end{aligned} \quad (6.4.7)$$

本測定で ^{151}Eu の中性子捕獲断面積は JENDL-4.0 の評価値を用い、 ^{153}Eu の中性子捕
獲断面積は ENDF/B-VII.1 の評価値を用いた。

本測定における ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中の同位体による不純物効果の補正係数 $f_2(E_n)$ を
図 6.4-5 に示す。 ^{151}Eu 試料については、分離共鳴エネルギー領域における不純物
 ^{153}Eu の寄与が大きかった。また、 ^{153}Eu 試料については、2eV 以下の領域や分離共鳴
エネルギー領域に不純物 ^{151}Eu の大きな寄与が確認された。

なお、不純物としては、同位体の他に、化学的不純物と試料中の水分があるが、
それらの影響については、6.5 節において議論する。

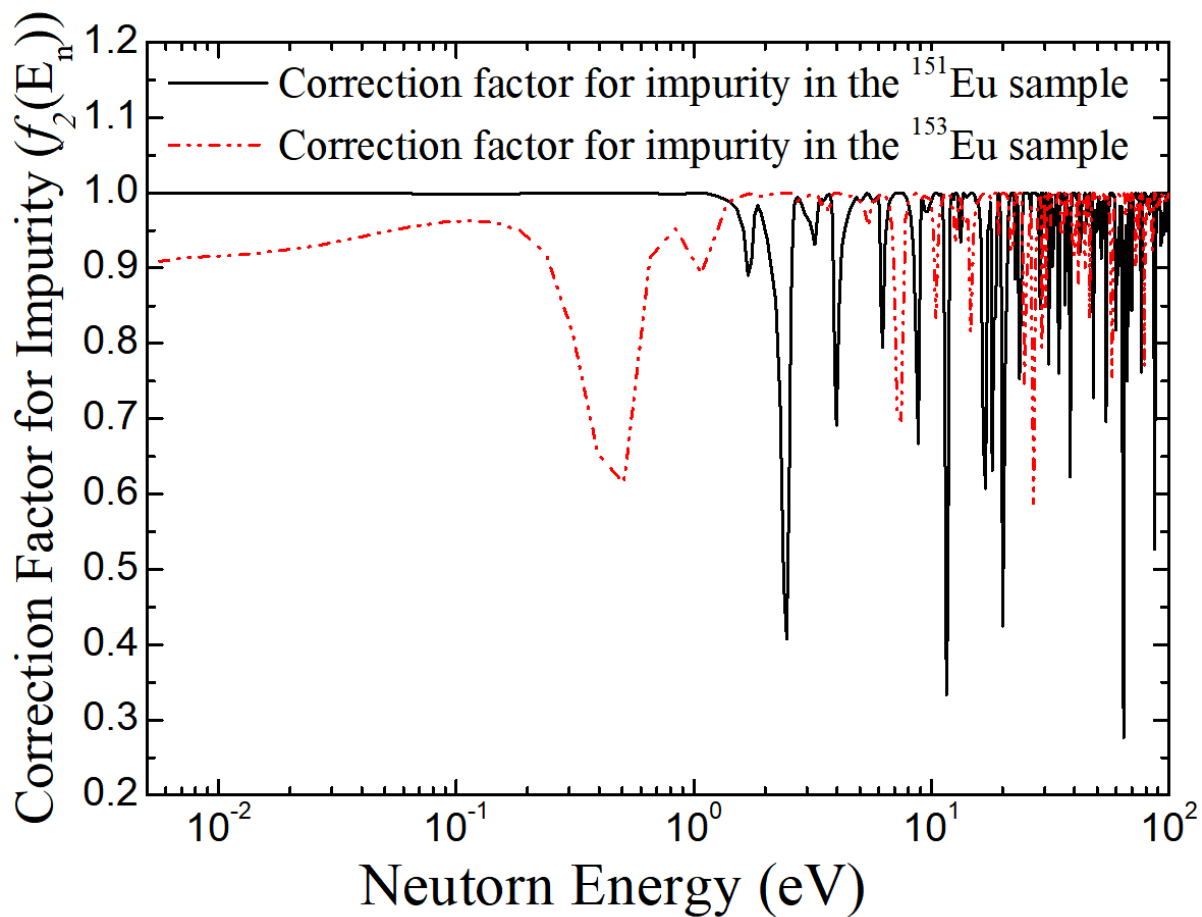


図 6. 4-5 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中の同位体による不純物効果に対する補正係数

6.4.6 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正

試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正は、 C_6D_6 検出器を用いた測定のとおり補正法（評価値を用いたモンテカルロ・シミュレーション計算による補正法）で行った。補正係数 $f_3(E_n)$ は式 (5.4.14) を用いた。

$$f_3(E_n) = \frac{\text{中性子自己遮蔽・多重散乱効果がない場合、試料中での}(n,\gamma)\text{反応率}}{\text{中性子自己遮蔽・多重散乱効果がある場合、試料中での}(n,\gamma)\text{反応率}} \quad (5.4.14)$$

測定試料のシミュレーション条件（化学的組成、同位体比、幾何学条件など）は BGO 検出器を用いた試料の測定条件と同じ条件とした。なお、中性子ビームの発生条件、中性子のカットオフエネルギー発生条件、中性子エネルギービンの設定、Tally の設定、試行回数、及び出力データなどの条件は 5.4.6 節で述べた条件と同じ条件で計算した。計算には第 5 章の断面積測定結果 [2] を参考し、 ^{151}Eu について JENDL-4.0 の評価値、 ^{153}Eu について ENDF/B-VII.1 の評価値を用いた。

^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正係数 $f_3(E_n)$ を図 6.4-6 に示す。 ^{151}Eu 試料については、0.1eV 以下のエネルギー領域や 0.46eV の共鳴近傍で補正係数 $f_3(E_n)$ が大きかった。 ^{153}Eu 試料の補正係数の場合、2.46eV の共鳴近傍で補正係数 $f_3(E_n)$ が約 1.39 であった。

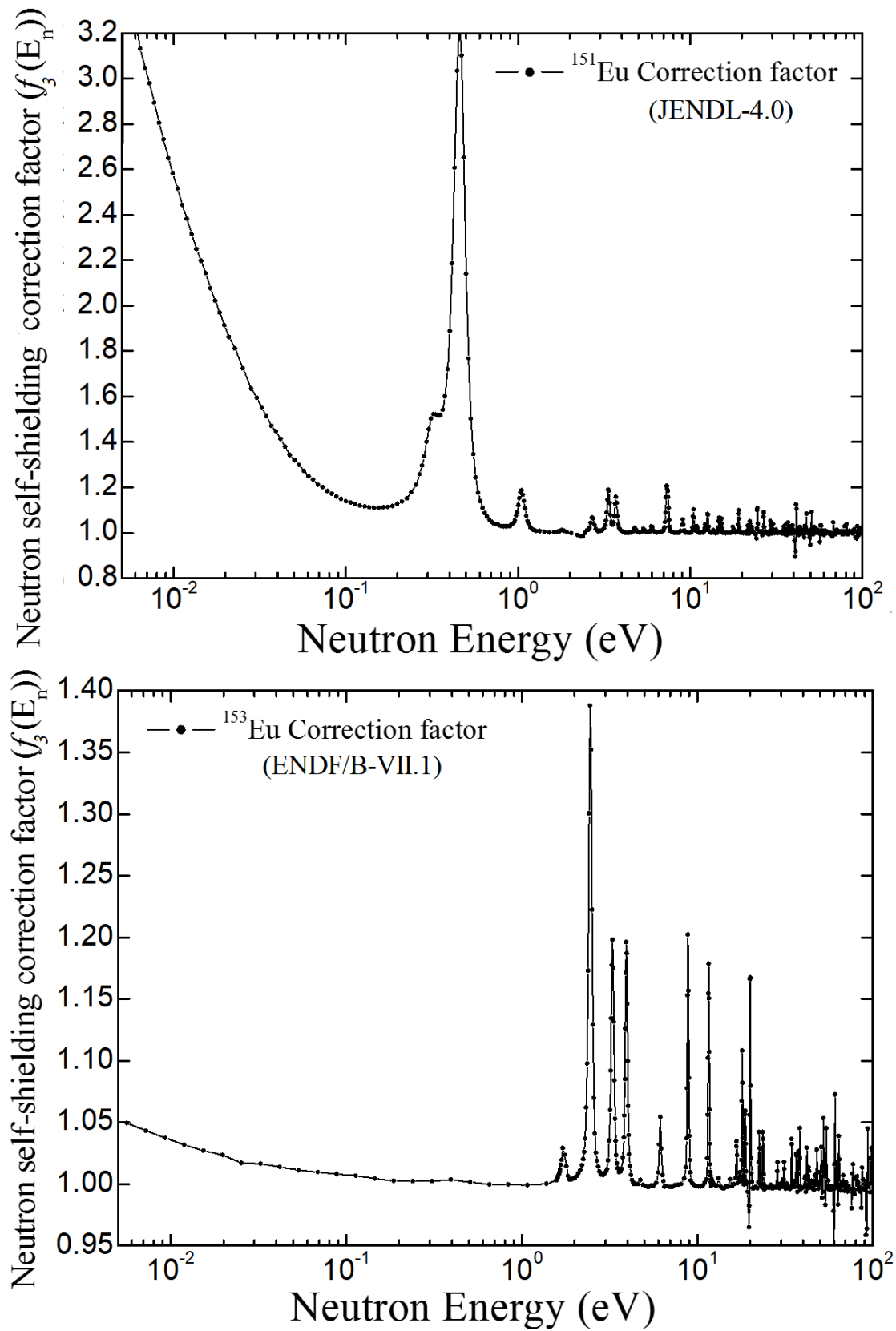


図 6.4-6 BGO 検出器を用いた測定における試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数

6.4.8 入射中性子束の導出

BGO 検出器を用いた本測定では、 ^{10}B 試料を用いて測定試料に入射する相対中性子束を求めた。中性子エネルギー E_n に対する相対入射中性子束 $\phi'_n(E_n)$ は式 (6.4.2) を用いた。

$$\phi'_n(E_n) = \frac{C_B(E_n)}{n_B \cdot \sigma_B(E_n)} \cdot f_B(E_n) \quad (6.4.2)$$

本実験で、 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応断面積 $\sigma_B(E_n)$ は JENDL-4.0 の評価値を用いた。また、 ^{10}B 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正係数 $f_B(E_n)$ はモンテカルロ・シミュレーション MCNP-4C コード [3] を用いて求めた。計算には JENDL-4.0 の評価値を使った。

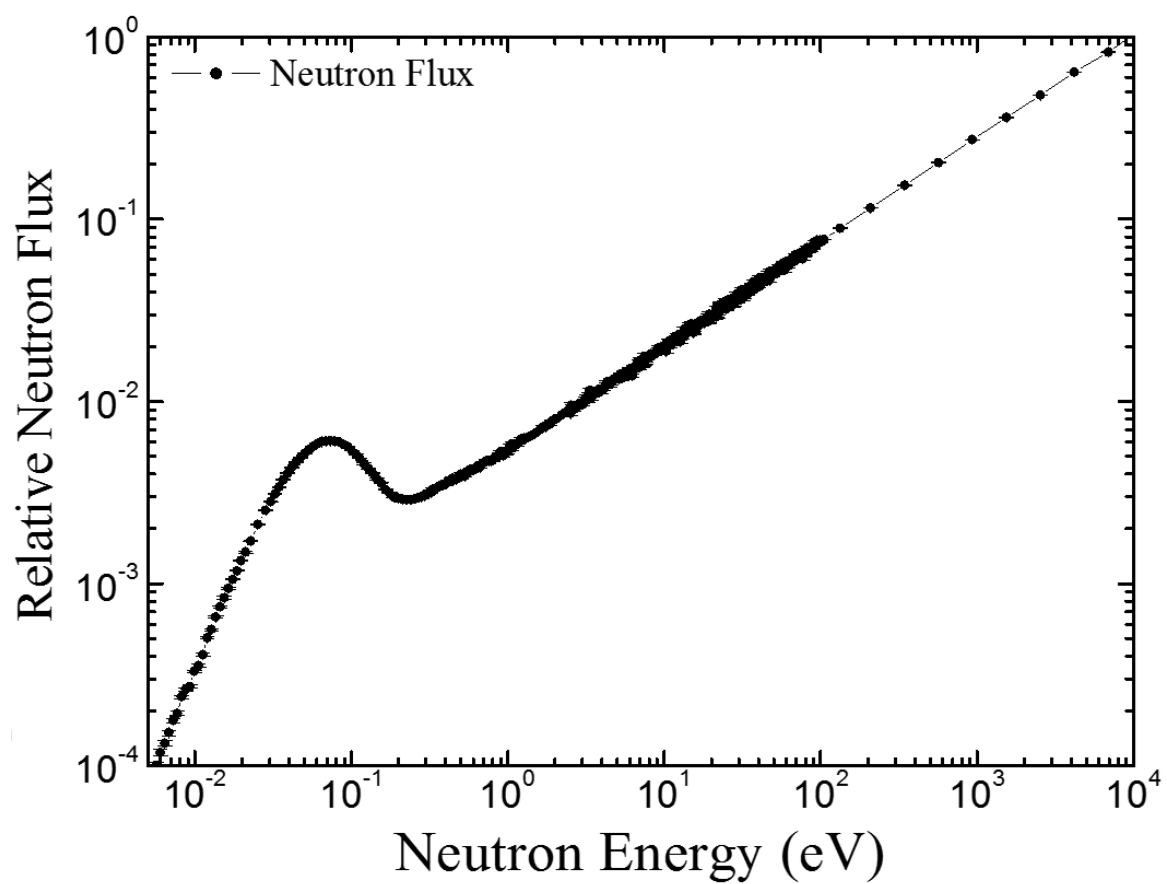


図 6.4-7 BGO 検出器を用いた測定における入射中性子束の相対値

6.5 誤差評価

5.5 節で述べたように、TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定に対する不確かさの要因としては、測定データの統計誤差と測定体系に依存した系統誤差がある。

このうち、統計誤差は一般に現象の発生がランダムな場合はポアソン分に従うことから、その標準偏差を統計誤差として用いている。表 6.5-1 に ^{151}Eu 及び ^{153}Eu の測定データの統計誤差を示す。

系統誤差の要因としては、

- 測定試料の原子核数 n_s の系統誤差
- 中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ の系統誤差
- 規格化因子 N_γ の決定の系統誤差（検出効率 $\varepsilon_s(E_n)$ の系統誤差）
- デッドタイムの補正係数 $f_1(E_n)$ の系統誤差
- 不純物補正係数 $f_2(E_n)$ の系統誤差
- 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数 $f_3(E_n)$ の不確かさ
- 入射中性子束 $\phi_n(E_n)$ の系統誤差

があり、不確かさの要因は基本的に C_6D_6 検出器を用いた測定と同じである。

以下で、これらの各要因について述べる。

表 6.5-1 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の測定試料の統計誤差

Type of uncertainties	Uncertainty (%)	
Statistical error	^{151}Eu	^{153}Eu
0.005 – 0.01 eV	2–5	2–5
0.01 – 1 eV	2–6	2–11
1 – 10 eV	3–32	2–33
10 – 100 eV	4–153	3–337
100 – 10000 eV	2–12	3–9

(1) 測定試料の原子核数の系統誤差

測定試料の原子核数 n_s の系統誤差の要因としては、測定試料の重量計測とサイズ計測の不確かさがある。それぞれの測定に対して測定試料の重量の不確かさを $^{151}\text{Eu} : 0.106 \pm 0.001\text{g}$ 、 $^{153}\text{Eu} : 0.111 \pm 0.001\text{g}$ 、測定試料のサイズの不確かさを $3.24 \pm 0.04\text{cm}^2$ として推定し、BG0 検出器を用いた本測定の ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の原子核数 n_s の不確かさを2.4%と見積もった。

(2) 中性子捕獲計数率の系統誤差

試料の中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ の系統誤差の要因としては、バックグラウンドの決定の不確かさが考えられる。特に、BG0 検出器を用いた本測定では試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ 及びガンマ線起因のバックグラウンド $B_2(E_n)$ の決定の不確かさが主要因として考えられる。

試料で散乱した中性子による不確かさは、式(6.4.5)から、 $^{\text{nat}}\text{C}$ 試料の捕獲イールド $Y_{ca}(E_n)$ 、測定試料の弾性散乱断面積 $\sigma_s^{\text{ela}}(E_n)$ 、 $^{\text{nat}}\text{C}$ 試料の弾性散乱断面積 $\sigma_{ca}^{\text{ela}}(E_n)$ 、測定試料の原子核数 n_s 、 $^{\text{nat}}\text{C}$ 試料の原子核数 n_{ca} がある。しかし、6.4.2 節で述べたバックグラウンドの評価結果からわかるように、本測定における試料で散乱した中性子起因のバックグラウンド $B_3(E_n)$ の寄与は非常に小さかったため、本測定では試料で散乱した中性子による不確かさを無視した。

試料で散乱したガンマ線による不確かさは、式(6.4.5)から、2.2MeV の捕獲イールド $Y_{2.2\text{MeV}}(E_n)$ 、2.2MeV ガンマ線に対する測定試料のガンマ線散乱断面積 $\sigma_s^{2.2\text{MeV}}$ 、2.2MeV ガンマ線に対する ^{10}B 試料のガンマ線散乱断面積 $\sigma_B^{2.2\text{MeV}}$ 、測定試料の原子核数 n_s 、 ^{10}B 試料の原子核数 n_{ca} がある。本測定では、共鳴フィルタと2.2MeV のガンマ線の検出時間分布の差異(5%)、PHITS[4]で計算された2.2MeV のガンマ線の検出時間分布の統計誤差(5%~40%)、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料の原子核数の統計誤差(2.4%)から全体的な系統誤差を見積もった。 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 、 ^{10}B 試料の2.2MeV のガンマ線散乱断面積の不確かさについては TENDL-2015[1]の評価値はまだ ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 、 ^{10}B の断面積の不確かさの情報が整備されていないかったため、2.2MeV のガンマ線散乱断面積の不確かさは本研究では考慮していなかった。

以上のようにして評価したことから、最終的な試料の中性子捕獲計数率 $C_s(E_n)$ の系統誤差を表 6.5-2 に示す。

(3) 規格化因子の決定の系統誤差

BG0 検出器を用いた本測定では ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の絶対値を取得するためにそれぞれの試料に対して規格化因子 N_f を導入した。TOF 法で求められた ^{151}Eu の測定データは JENDL-4.0 の熱中性子捕獲断面積に規格化を行い、 ^{153}Eu の測定

データは ENDF/B-VII.1 の熱中性子捕獲断面積に規格化した。しかし、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu に対する JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 の評価値には不確かさを表す共分散データがまだ整備されていない。そこで、本測定では規格化因子の決定の系統誤差については考慮していない。

(4) デッドタイムの補正係数の系統誤差

デッドタイムの補正係数 $f_2(E_n)$ の系統誤差の要因は、デッドタイム τ 、中性子飛行時間 t 、加速器の繰り返し周波数に測定時間を掛けた T_h の不確かさがある。しかし、本測定のデッドタイムの補正係数を 1 と近似していることから、デッドタイムの系統誤差は無視した。

(5) 不純物補正係数の系統誤差

BGO 検出器を用いた測定について同位体による不純物効果の補正係数 $f_2(E_n)$ の系統誤差を、表 6.1-1 に示している不純物の不確かさを用いて評価したところ、 ^{151}Eu 試料では 0.1%~5.8%、 ^{153}Eu 試料では 0.1%~7.8% となった。

また、試料中での化学的不純物効果及び水分の影響を系統誤差として考慮した。試料中での化学的不純物効果は表 6.1-2 を参照し、試料中で水分の影響は試料中に水分が約 5% 含まれていると仮定して MCNP-4C コード及び JENDL-4.0 を用いて求めた。その結果、試料中での化学的不純物効果及び水分の影響による系統誤差は ^{151}Eu 試料で 0.1%~0.8%、 ^{153}Eu 試料で 0.1%~1.6% であった。

(6) 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数の不確かさ

試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数 $f_3(E_n)$ の不確かさは、補正に用いた評価値の信頼性が主要因として考えられる。特に分離共鳴エネルギー領域における中性子捕獲断面積の導出を第一の目的としている本測定では、共鳴ピークに対する評価値の信頼性が最も重要である。

そこで、本論文の 6.6 節では得られた測定値と評価値を比較することによって評価値の信頼性を検討し、共鳴解析を適用した補正法をデータ処理に反映するかを判断している。このような理由で、評価値の信頼性の検討は本節では省略する。

評価値の信頼性を除いてモンテカルロ・シミュレーション計算の統計誤差、測定試料の原子核数の不確かさによる誤差だけで試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数 $f_3(E_n)$ の不確かさを推定したところ、 ^{151}Eu に対して 2.0%~3.4% であり、 ^{153}Eu に対しては 1.8%~3.4% であった。

(7) 入射中性子束の系統誤差

本測定の不確かさの要因を検討してみると、標準断面積で用いた $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応断面積の不確かさが主要因として考えられる。

本実験では、 $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応断面積は JENDL-4.0 を用いたので、JENDL-4.0 の不確かさを参照したところ、BGO 検出器を用いた測定に対する最終的な相対入射中性子束 $\phi'_n(E_n)$ の系統誤差は約 0.3%~1.7%であった。

表 6.5-2 BGO 検出器を用いた中性子捕獲計数率の系統誤差

E (eV)	^{151}Eu (%)	^{153}Eu (%)
0.005 – 0.01	–	–
0.01 – 0.1	–	–
0.1 – 1	–	–
1 – 10	0.1	0.1–0.2
10 – 100	0.1–2.1	0.1–8.1
100 – 1000	0.5–2.8	1.0–6.9
1000 – 10000	3.5–13.6	9.4–12.2

6.6 測定結果の検討

京大炉ライナックを用いて、0.005eV～keV のエネルギー領域における ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定を行った。 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数に用いた評価済核データライブラリの信頼性を確認するために、得られた ^{151}Eu 及び ^{153}Eu の中性子捕獲断面積を JENDL-4.0 及び ENDF-B/VII.1 の評価値と比較した。

1eV～10eV のエネルギー領域において得られた ^{151}Eu 及び ^{153}Eu の中性子捕獲断面積を JENDL-4.0 及び ENDF-B/VII.1 の評価値と共に図 6.6-1 と図 6.6-2 に示す。図 6.6-1 と図 6.6-2 の残差(Residual)は得られた中性子捕獲断面積データと試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数に用いたそれぞれの評価値との差である。 ^{151}Eu に対しては、3.37、4.78、7.00、7.22、7.42eV の共鳴において得られた測定データと JENDL-4.0 の評価値間には大きな違いが見られる。 ^{153}Eu に対しては、2.46、3.29、3.94eV の共鳴において ENDF-B/VII.1 の評価値は得られた測定データより大きい値を示している。

以上の結果から、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の核種についてはまだ分離共鳴エネルギー領域において評価値の信頼性が十分に高くないということを確認した。

このような理由で、本測定では第 4 章で開発した共鳴解析を適用した補正法を ^{151}Eu 、 ^{153}Eu のデータ処理に反映させた。

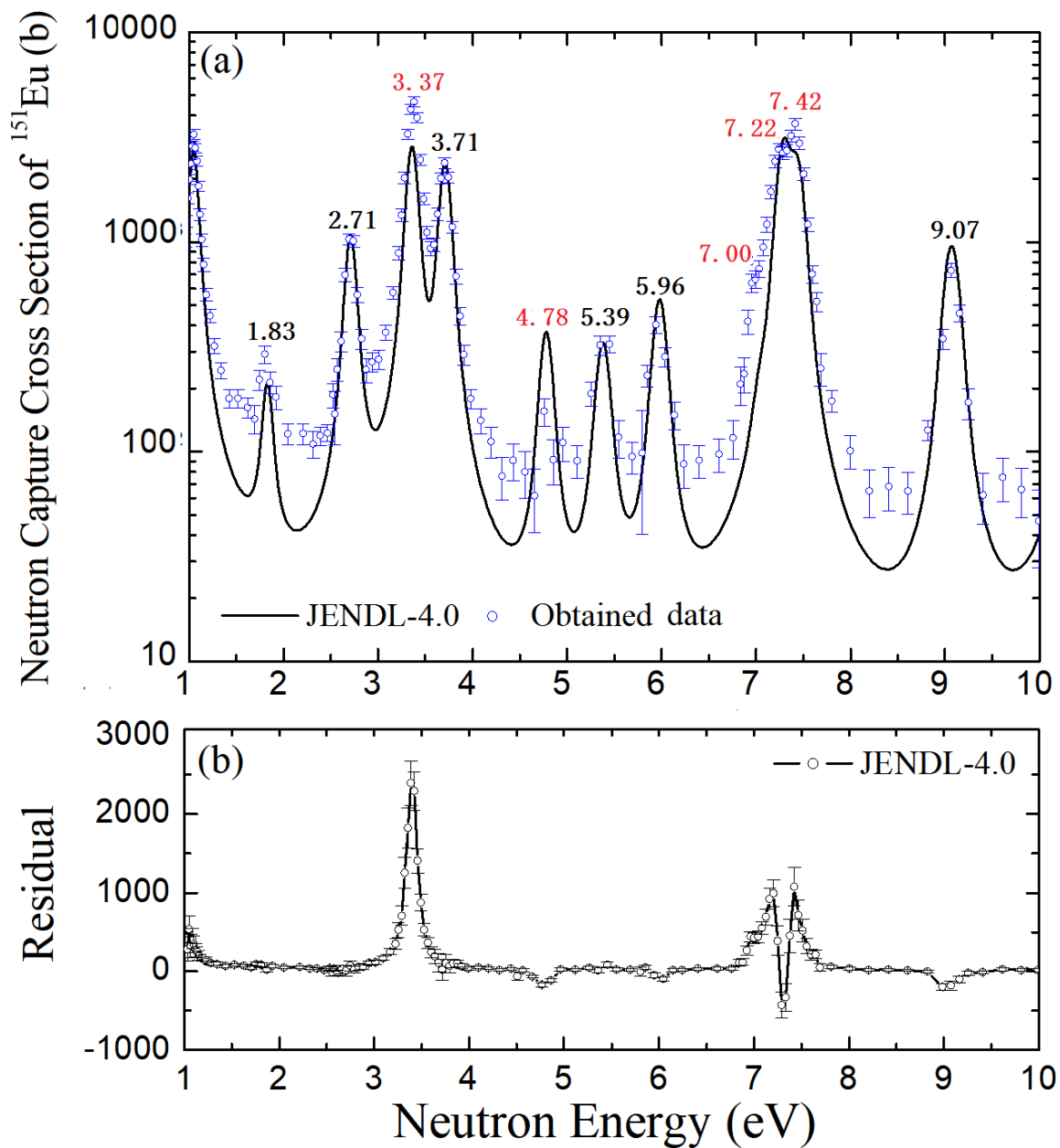


図 6.6-1 本測定で得られた ^{151}Eu の中性子捕獲断面積 (1eV~10eV 領域) と評価値との比較 (上) 及び両者の差異 (下)

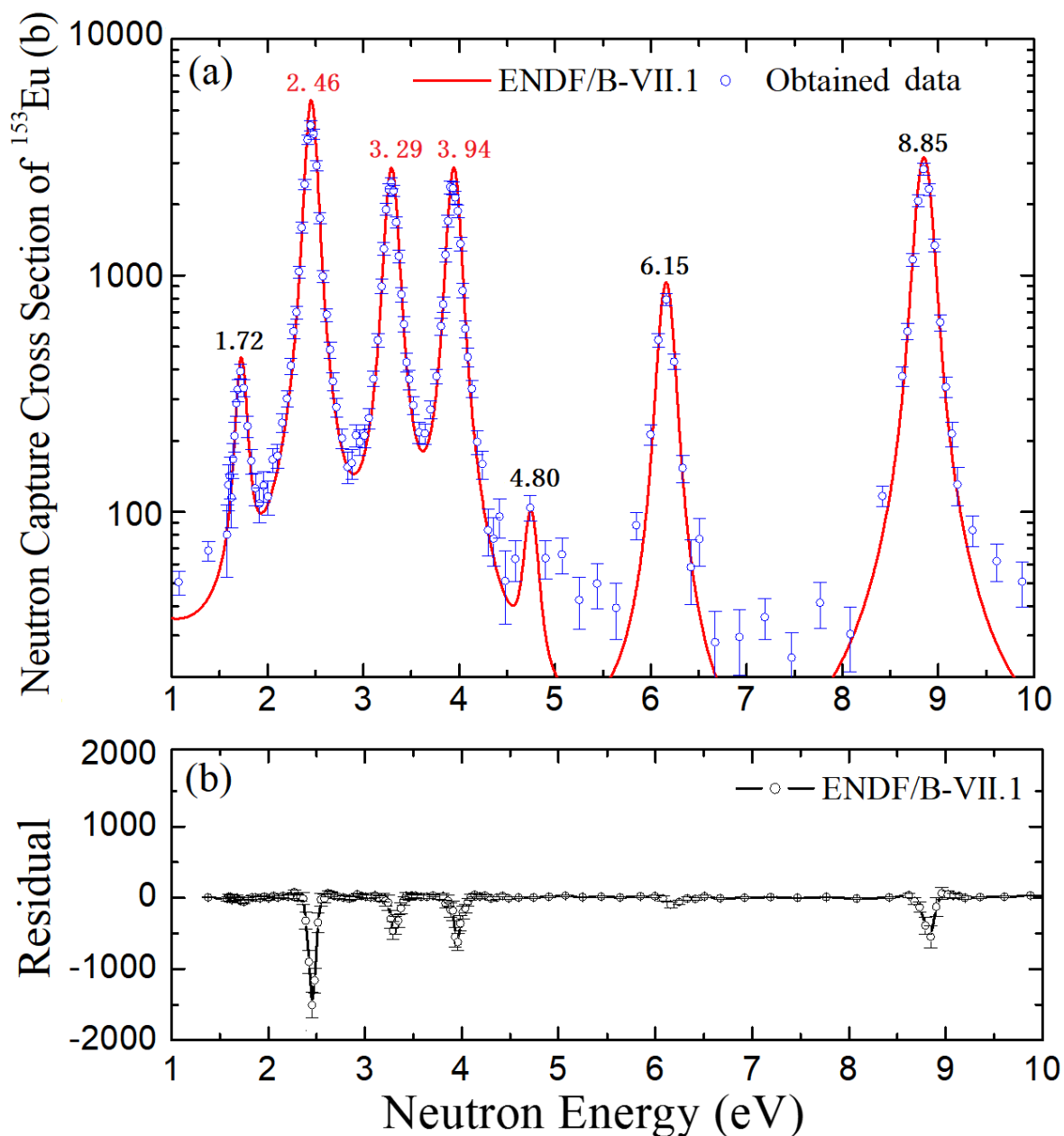


図 6.6-2 本測定で得られた ^{153}Eu の中性子捕獲断面積 (1eV~10eV 領域) と評価値との比較 (上) 及び両者の差異 (下)

6.7 共鳴解析

本研究では、1eV～20eV のエネルギー領域において ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の共鳴解析を行った。共鳴解析には、SAMMY コード[5]を用いて JENDL-4.0 に採用されているパラメータを 初期値として用いた。共鳴解析の近似式には RM 近似を適用し、共鳴エネルギー E_R 、放射幅 Γ_γ 、中性子幅 Γ_n の共鳴パラメータを解析対象とした。共鳴解析には、20eV 以下のエネルギー領域における ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の測定データ（試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果を補正する前のデータ）を用いた。なお、最適のフィッティング値を得るために、 ^{151}Eu に対して 12.48eV の共鳴を初期値に追加し、この共鳴パラメータ情報は Leinweber ら[6]のデータを参照した。得られた共鳴パラメータでは測定の時間分解能、ドップラー広がり、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果を考慮し、フィッティング誤差では中性子の飛行距離、パルス幅、分解能関数を考慮した。

SAMMY コードを用いた共鳴解析によって得られた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の共鳴パラメータとフィッティング誤差を表 6.7-1 と表 6.7-2 に示す。結果と考察については 6.9 節で述べる。

表6. 7-1 共鳴解析で得られた¹⁵¹Euの共鳴パラメータ

JENDL-4.0			G. Leinweber [6]				Present (¹⁵¹ Eu) [8]				<i>I</i> = 2.5
<i>E_n</i> (eV)	<i>Γ_γ</i> (meV)	<i>Γ_n</i> (meV)	<i>E_n</i> (eV)	<i>Γ_γ</i> (meV)	<i>Γ_n</i> (meV)	Ratio ^a	<i>E_n</i> (eV)	<i>Γ_γ</i> (meV)	<i>Γ_n</i> (meV)	Ratio ^b	<i>J</i>
2.71	97.00	0.22	2.72	90±1	0.21±0.01	0.95±0.05	2.71±0.01	123.04±4.75	0.25±0.01	1.14±0.05	3
3.36	97.00	1.10	3.37	87±0.5	2.62±0.01	2.38±0.01	3.37±0.01	119.15±2.96	2.28±0.03	2.07±0.03	2
3.71	89.00	0.69	3.71	91±1	1.04±0.01	1.51±0.01	3.71±0.01	106.80±4.20	0.73±0.02	1.06±0.03	3
4.78	93.00	0.15	4.80	66±5	0.04±0.01	0.27±0.07	4.78±0.01	100.87±9.22	0.06±0.01	0.40±0.07	3
5.38	108.00	0.23	5.38	79±2	0.16±0.01	0.70±0.04	5.39±0.01	132.84±9.93	0.32±0.02	1.39±0.09	2
5.98	100.00	0.41	5.98	110±3	0.21±0.01	0.51±0.02	5.96±0.01	129.89±9.28	0.40±0.02	0.98±0.05	2
7.05	92.00	0.04	7.01	82±4	0.41±0.02	10.25±0.50	7.00±0.01	97.98±8.51	0.32±0.02	8.00±0.50	3
7.29	88.00	1.89	7.23	85±3	1.74±0.03	0.92±0.02	7.22±0.01	99.30±7.33	1.59±0.08	0.84±0.04	3
7.44	85.00	2.03	7.43	83±1	2.75±0.02	1.35±0.01	7.42±0.01	119.11±5.59	4.05±0.14	2.00±0.07	2
9.07	104.00	1.30	9.07	84±3	0.91±0.01	0.70±0.01	9.07±0.01	143.93±8.46	1.18±0.04	0.91±0.03	2
10.47	91.00	2.48	10.46	100	2.88±0.01	1.16±0.01	10.45±0.01	123.50±6.26	3.24±0.08	1.31±0.03	2
10.94	98.00	0.57	10.95	100	0.36±0.01	0.63±0.02	10.97±0.01	114.17±9.74	0.45±0.03	0.79±0.05	3
12.23	88.00	1.09	12.20	100	1.11±0.01	1.02±0.01	12.20±0.01	104.29±8.60	1.27±0.07	1.17±0.06	2
—	—	—	12.52	100	0.87±0.02	—	12.48±0.02	100.87±9.57	0.92±0.07	—	3
12.64	88.00	2.06	12.70	100	2.04±0.03	0.99±0.01	12.69±0.01	108.85±7.82	1.95±0.08	0.95±0.04	3
13.66	115.00	0.53	13.68	100	0.39±0.01	0.74±0.02	13.69±0.01	122.70±11.05	0.78±0.05	1.47±0.09	2
14.76	76.00	2.30	14.76	100	3.13±0.02	1.36±0.01	14.76±0.01	93.43±7.52	3.10±0.11	1.35±0.05	2
15.18	79.00	2.44	15.19	100	3.23±0.02	1.32±0.01	15.19±0.01	104.34±7.86	3.63±0.12	1.49±0.05	2
17.75	104.00	1.16	17.73	100	1.62±0.02	1.40±0.02	17.73±0.01	121.98±9.73	1.50±0.07	1.29±0.06	3
19.10	133.00	4.42	19.11	100	4.68±0.01	1.06±0.01	19.10±0.01	177.05±8.77	5.80±0.15	1.31±0.03	3

^aRatio of the Leinweber's neutron width to the JENDL-4.0 neutron width

^bRatio of the present's neutron width to the JENDL-4.0 neutron width

表6. 7-2 共鳴解析で得られた¹⁵³Euの共鳴パラメータ

JENDL-4.0			G. Leinweber [6]				Present (¹⁵³ Eu) [8]				<i>I</i> = 2.5	
<i>E_n</i> (eV)	<i>Γ_γ</i> (meV)	<i>Γ_n</i> (meV)	<i>E_n</i> (eV)	<i>Γ_γ</i> (meV)	<i>Γ_n</i> (meV)	Ratio ^a	<i>E_n</i> (eV)	<i>Γ_γ</i> (meV)	<i>Γ_n</i> (meV)	Ratio ^b	<i>J</i>	
1.73	90.00	0.05	1.72	94.4±0.6	0.07±0.01	1.40±0.20	1.72±0.01	108.42±6.28	0.05±0.01	1.00±0.20	3	
2.46	91.00	1.03	2.46	96±0.4	1.18±0.01	1.15±0.01	2.46±0.01	137.54±1.86	0.82±0.01	0.80±0.01	3	
3.29	98.00	1.09	3.29	96.8±0.3	1.21±0.01	1.11±0.01	3.29±0.01	126.94±2.65	0.95±0.01	0.87±0.01	2	
3.94	93.00	0.94	3.94	94.8±0.4	1.41±0.01	1.50±0.01	3.94±0.01	126.43±2.91	0.80±0.01	0.85±0.01	3	
4.75	96.00	0.04	4.77	97±4	0.03±0.01	0.75±0.25	4.80±0.01	100.54±9.77	0.05±0.01	1.25±0.01	3	
6.16	109.00	0.54	6.16	100.2±0.6	0.55±0.01	1.02±0.02	6.15±0.01	142.40±6.32	0.56±0.01	1.04±0.02	3	
8.85	114.00	3.00	8.86	91±0.5	5.01±0.02	1.67±0.01	8.85±0.01	144.32±4.00	2.73±0.04	0.91±0.01	3	
11.61	96.00	3.44	11.62	110	3.64±0.02	1.06±0.01	11.61±0.01	146.96±4.97	3.15±0.05	0.92±0.01	3	
12.45	90.00	0.12	12.45	110	0.14±0.01	1.17±0.08	12.40±0.02	91.34±9.05	0.13±0.01	1.08±0.08	3	
13.22	96.00	0.27	13.23	110	0.51±0.01	1.89±0.04	13.20±0.02	102.52±9.84	0.31±0.03	1.15±0.11	3	
15.26	96.00	0.36	15.30	110	0.40±0.01	1.11±0.03	15.27±0.02	99.17±9.72	0.39±0.04	1.08±0.11	2	
16.33	96.00	0.02	16.13	110	0.01±0.01	0.50±0.50	16.33±0.09	96.13±9.61	0.02±0.01	1.00±0.01	3	
16.73	89.00	1.16	16.73	110	1.76±0.01	1.52±0.01	16.70±0.01	106.73±8.17	1.21±0.05	1.04±0.04	3	
17.60	96.00	0.39	17.57	110	0.33±0.01	0.85±0.03	17.50±0.02	99.36±9.63	0.43±0.03	1.10±0.08	3	
18.01	92.00	3.63	18.02	110	4.18±0.02	1.15±0.01	18.01±0.01	114.37±6.87	3.63±0.09	1.00±0.02	3	
18.73	100.00	3.38	18.76	110	3.75±0.01	1.11±0.01	18.75±0.01	114.41±8.17	3.28±0.10	0.97±0.03	2	
20.02	101.00	11.40	20.02	110	18.90±0.09	1.66±0.01	20.01±0.01	162.42±5.83	13.91±0.24	1.22±0.02	2	

^aRatio of the Leinweber's neutron width to the JENDL-4.0 neutron width

^bRatio of the present's neutron width to the JENDL-4.0 neutron width

6.8 共鳴解析を適用した試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正

現在、得られた測定データと評価済データ間にはいくつかの共鳴について違いが見られているので、試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正に評価済核データライブラリを用いることは適切ではないと判断した。そのため、評価済核データライブラリの共鳴パラメータを今回の共鳴パラメータ（表 6.7-1 及び表 6.7-2 参照）に置き換え、断面積修正を行った。修正された評価値を用いて、もう一度試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に関する補正を行った。なお、修正した評価値は、NJOY コード[7]を用いて ACE 形式の核データライブラリとしている。

2.5eV～8.5eV のエネルギー領域において、JENDL-4.0 及び修正された評価値を用いた ^{151}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数 $f_3(E_n)$ の比較を図 6.8-1 に示す。3.37eV の共鳴について、補正係数 $f_3(E_n)$ は最大約 12% が上方修正された。なお、7.00、7.22、7.42eV の共鳴について、補正係数 $f_3(E_n)$ は最大約 7% が上方修正されたことを確認した。

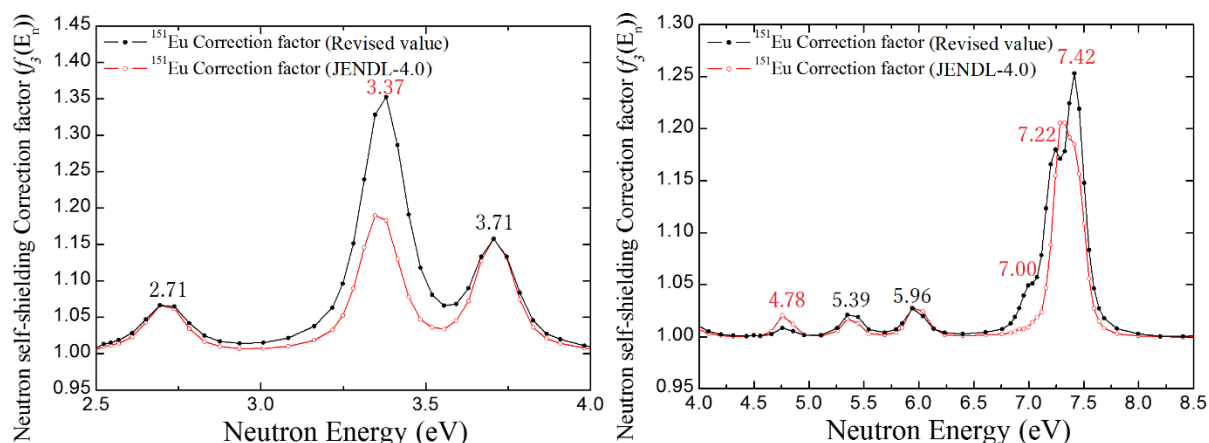


図 6.8-1 JENDL-4.0 及び修正された評価値を用いた ^{151}Eu 試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数 (2.5eV～8.5eV 領域)

6.9 結果と考察

BGO 検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定は、京大炉ライナックのパルス中性子を用いて TOF 測定で行った。特に本研究では分離共鳴エネルギー領域における微細な中性子捕獲断面積及び共鳴パラメータを取得することができた[8]。

測定は、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu に対して 0.005eV から keV までの中性子エネルギー領域における中性子捕獲断面積を導出した。測定結果を JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値と共に図 6.9-1～図 6.9-4 に示す。図 6.9-1（下）と図 6.9-3（下）は、全エネルギー C_6D_6 検出器を用いた測定で得られた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の絶対値と今回の測定結果との比較を示しており、図 6.9-2 と図 6.9-4 は、本測定で最も関心の高い 1eV～20eV のエネルギー領域における今回の測定結果を示している。図 6.6-2 の残差 (Residual) は ^{151}Eu の測定結果と JENDL-4.0 や修正された評価値との差であり、図 6.9-4 の残差 (Residual) は ^{153}Eu の測定結果と ENDF/B-VII.1 や修正された評価値との差である。

共鳴分析では、1eV～20eV のエネルギー領域において ^{151}Eu の 20 個の共鳴、 ^{153}Eu の 17 個の共鳴に対する共鳴パラメータを導出した。試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正については、得られた共鳴パラメータに基づき修正された評価値を用いて、より信頼性が高い補正係数を取得した。得られた共鳴パラメータと Leinweber ら[6]のパラメータ、JENDL-4.0 の評価値の比較結果を表 6.7-1 及び表 6.7-2 に示す。

6.9.1 ^{151}Eu の共鳴パラメータ

最新の Leinweber ら[6]の ^{151}Eu の実験では新たに 12.52eV の共鳴が報告されている。今回の測定でも 12.5eV 近傍で同じ共鳴ピークが観測された。さらに、その共鳴ピークにおける今回のフィッティング結果は Leinweber ら[6]の中性子幅と誤差以内で良く一致している。また、全体的には、今回の分析結果は Leinweber ら[6]の結果と同じ傾向を示している。

3.37、4.78、7.00、7.42eV の共鳴について、JENDL-4.0 における評価値と今回の分析結果間には中性子幅の大きな差があることを確認した。

6.9.2 ^{151}Eu の中性子捕獲断面積

熱中性子エネルギー領域 (0.005eV～1eV) と 100eV 以上のエネルギー領域では、図 6.9-1 に示すように、 C_6D_6 検出器を用いた測定結果、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値は今回の測定結果と誤差範囲以内で良く一致している。

分離共鳴中性子エネルギー領域では (1eV～100eV)、3.37eV の共鳴ピーク面積について ENDF-B/VII.1、JEFF-3.2 の評価値は JENDL-4.0 の評価値より約 2 倍となっている。しかし、本測定結果は ENDF-B/VII.1、JEFF-3.2 の評価値と良く一致している。4.78eV の共鳴ピーク面積について、いずれの評価値は今回の測定結果と比べて約 2 倍精度大きい値を示している。7.00、7.22、7.42eV の共鳴について、いずれの評価

値と今回の測定結果には全体的に不一致が観測されている。

図 6.9-2 (b) に示すように、共鳴解析に基づいて修正された評価値は、実験値と良く一致している。今回の実験値と修正された評価値の残差(Residual)については、JENDL-4.0 との残差に比べて、3.37eV 共鳴に対して約 20%、7.00、7.22、7.42eV の共鳴に対して約 10% まで低減することができた。

6.9.3 ^{153}Eu の共鳴パラメータ

Leinweber ら[6]の中性子幅は、6.15、12.40、15.27eV の共鳴に対して今回の分析結果と良く一致しているが、その他の大きな共鳴に関しては、今回の分析結果より全体的に大きい値となっている。

JENDL-4.0 の中性子幅は、2.46、3.29、3.94、8.85、11.61eV の共鳴については約 10~20%過大評価、4.75、20.02eV の共鳴については約 25%過小評価となっているが、その他の共鳴については今回の分析結果と良く一致している。

6.9.4 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積

^{153}Eu の熱中性子エネルギー領域 (0.005eV~1eV) と 100eV 以上のエネルギー領域では、 C_6D_6 検出器を用いた測定結果、ENDF/B-VII.1 の評価値は今回の測定結果と一致している。

また、共鳴中性子エネルギー領域では (1eV~100eV) 、2.46、3.29、3.94eV の共鳴について、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 のいずれの評価値も約 15%過大評価となっていることを示唆する結果となった。

図 6.9-4 (b) に示すように、共鳴分析に基づいて修正された評価値は実験値と良く一致している。今回の実験値と修正された評価値の残差(Residual)については、2.46、3.29、3.94eV の共鳴に対して最大約 10% まで低減することができた。

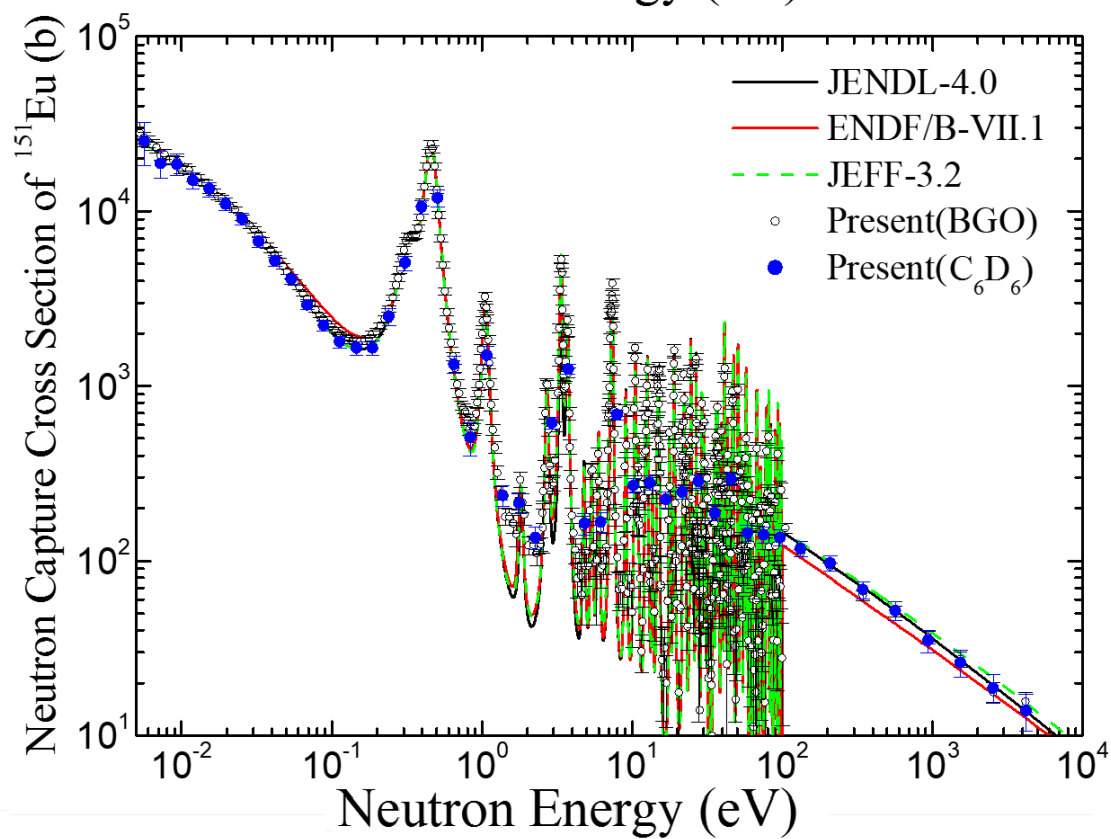
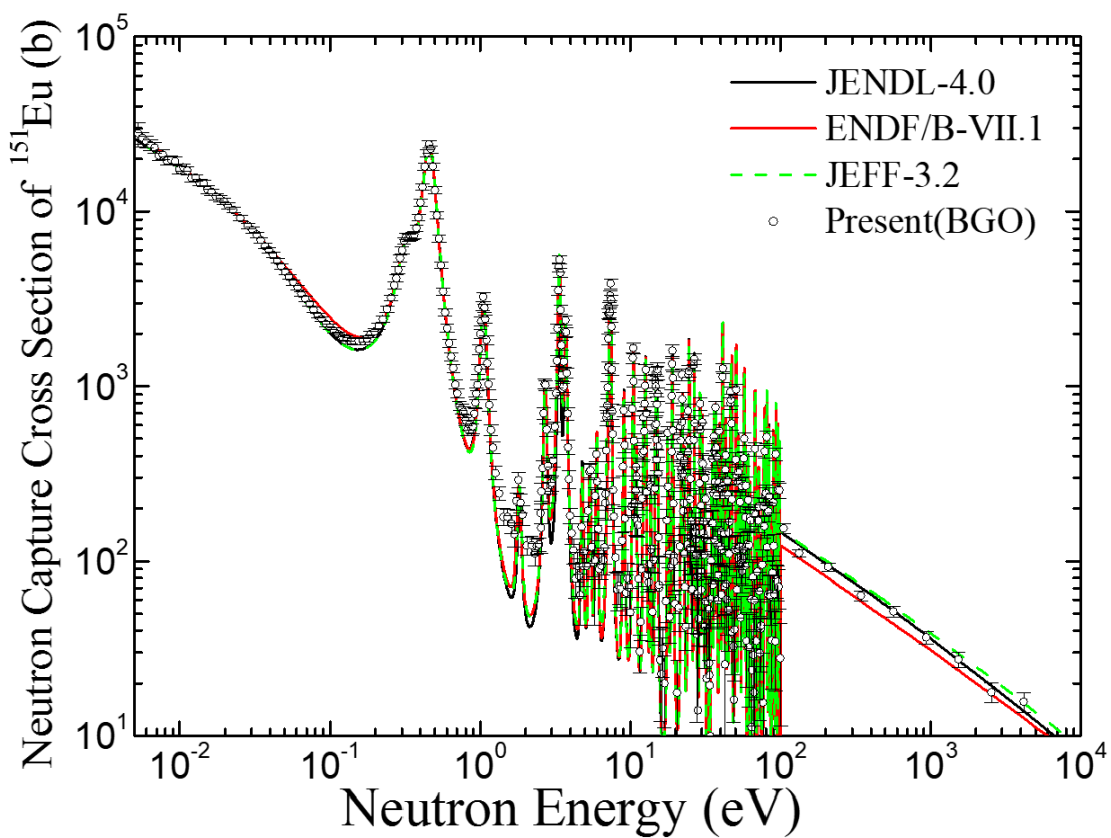


図 6.9-1 BGO 検出器を用いた ^{151}Eu 中性子捕獲断面積 (上)と C_6D_6 検出器と BGO 検出器を用いた ^{151}Eu 中性子捕獲断面積の比較 (下)

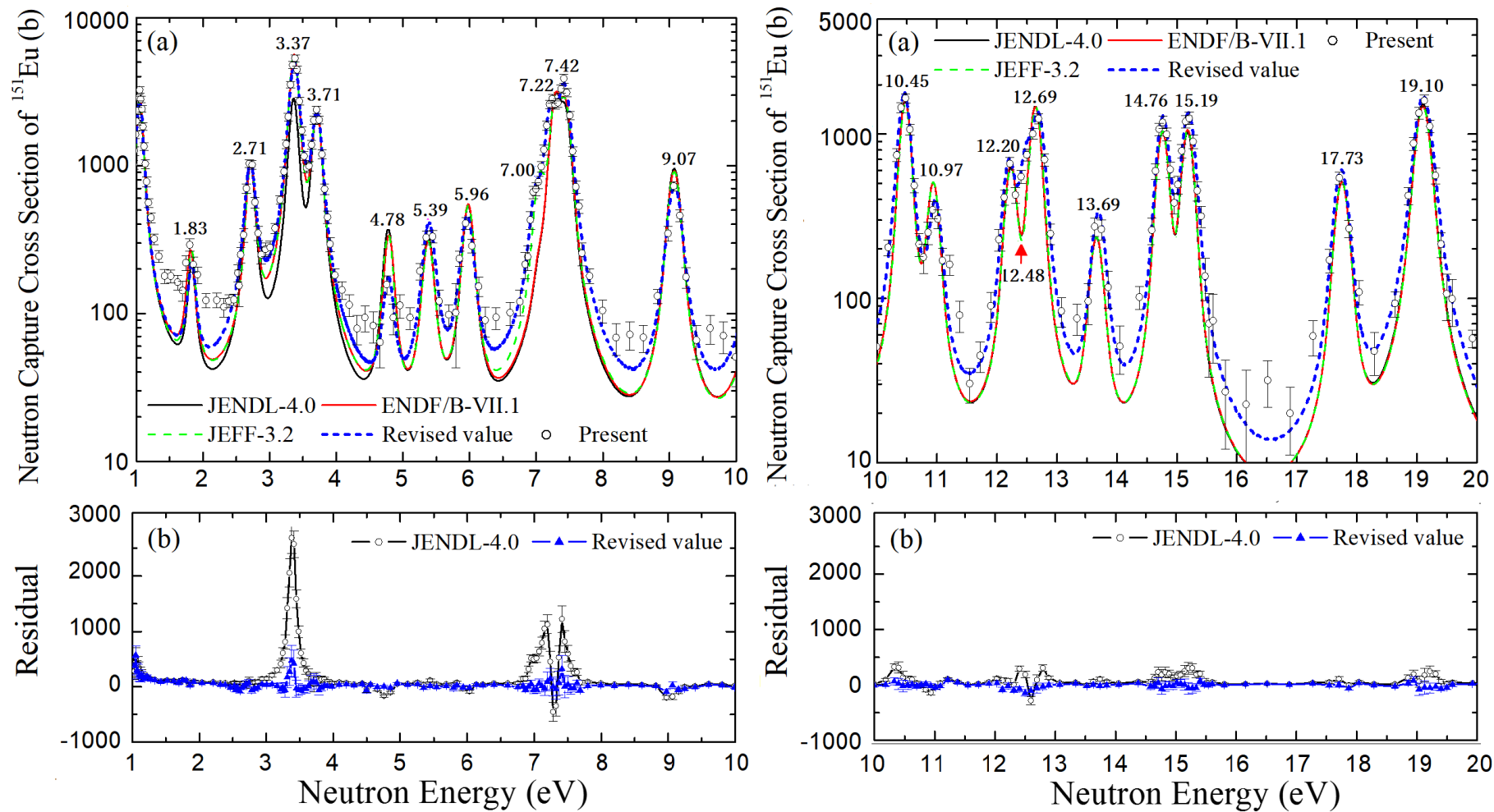


図 6.9-2 BGO 検出器を用いた ^{151}Eu 中性子捕獲断面積 (10~20eV 領域) と評価値との比較 (上) 及び両者の差異 (下)

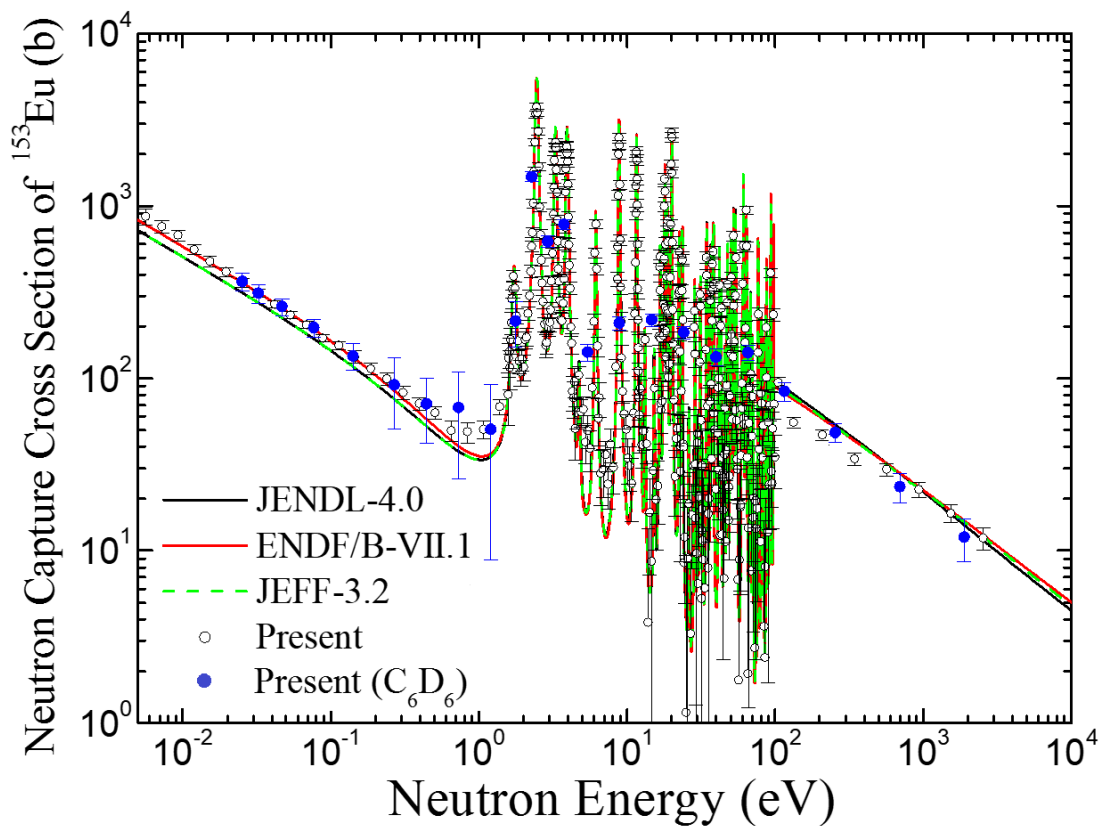
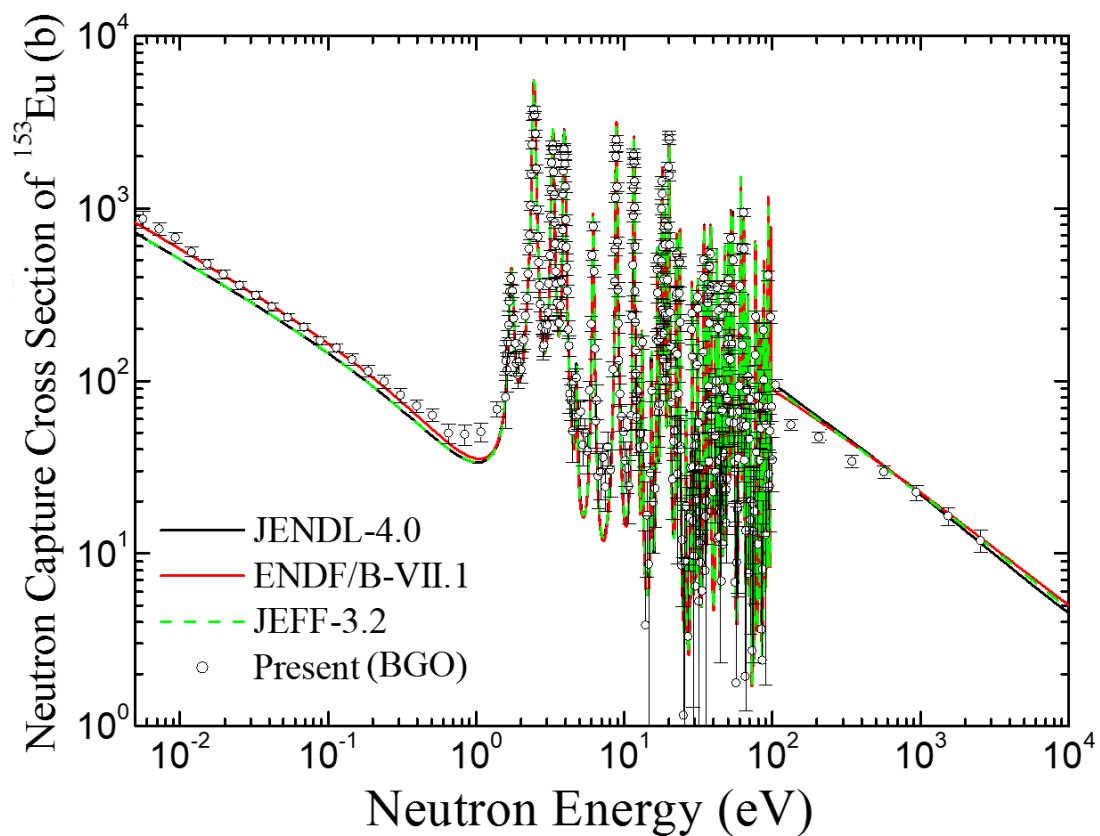


図 6.9-3 BGO 検出器を用いた ^{153}Eu 中性子捕獲断面積（上）と C_6D_6 検出器と BGO 検出器を用いた ^{153}Eu 中性子捕獲断面積の比較（下）

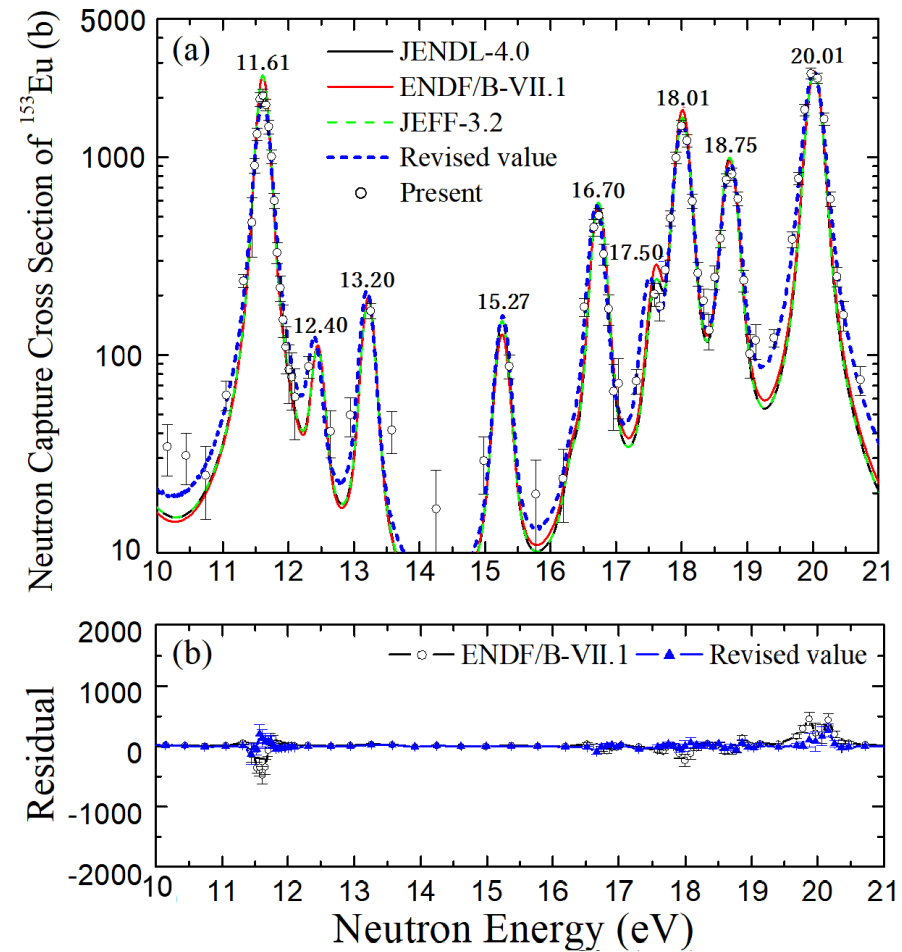
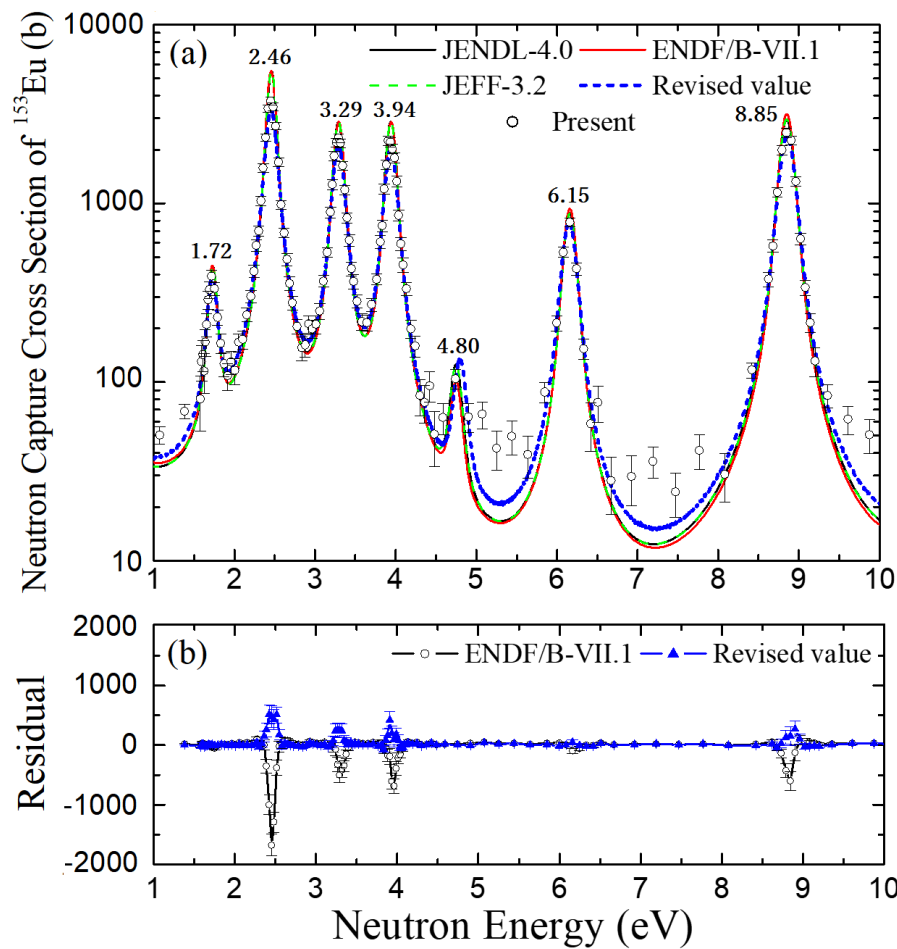


図 6.9-4 BGO 検出器を用いた ^{153}Eu 中性子捕獲断面積 (10~21eV 領域) と評価値との比較 (上) 及び両者の差異 (下)

6.10 まとめと結論

本章では、全吸収型 BGO 検出器を用いた中性子捕獲断面積測定を行い、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積を導出し、共鳴パラメータを決定した。 ^{151}Eu 及び ^{153}Eu の中性子捕獲断面積は JENDL-4.0 及び ENDF/B-VII.1 の熱中性子捕獲断面積で規格化した。SAMMY コードによる共鳴解析では 1eV~20eV のエネルギー領域における ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の共鳴パラメータを得た。また、得られた共鳴パラメータを適用した評価値を試料中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正に用いたところ、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の詳細な共鳴断面積を得ることができた。なお、本測定の結果は Leinweber ら[6]のパラメータ、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 の評価値との比較検証を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

(1) ^{151}Eu

本測定では、1eV から 20eV までのエネルギー領域で 20 個の ^{151}Eu の共鳴パラメータを取得し、0.005eV から 10keV までのエネルギー領域での ^{151}Eu の中性子捕獲断面積を導出した。共鳴パラメータに対して、本分析の結果は全体の傾向として Leinweber ら[6]の中性子幅と同じ傾向性を持つことを確認した。中性子捕獲断面積に対して、本測定の結果は 3.37eV の共鳴について ENDF-B/VII.1、JEFF-3.2 の評価値を支持し、JENDL-4.0 の評価値は約 1/2 倍過小評価されているという結果を得た。4.78eV の共鳴は、いずれの評価値が過大評価であることを示唆する結果を得た。7.00、7.22、7.42eV の共鳴について、本測定の結果はいずれの評価値とは違いがあった。

(2) ^{153}Eu

本測定では、1eV から 20eV までのエネルギー領域で 17 個の ^{153}Eu の共鳴パラメータを取得し、0.005eV から 3.3keV までのエネルギー領域での ^{153}Eu の中性子捕獲断面積を導出した。2.46、3.29、3.94eV の共鳴について、Leinweber ら[6]の中性子幅、JENDL-4.0、ENDF-B/VII.1、JEFF-3.2 の評価値は過大評価であることを示唆する結果を得た。

C_6D_6 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定結果と本測定の結果は全エネルギー領域において一致することから、それぞれの測定に対して整合性が取れていることを確認した。また、バックグラウンド評価法を改善したことにより、非分離共鳴エネルギー領域に対しても信頼性の高い平均断面積を取得することができた。

参考文献

- [1] A.J. Koning and D. Rochman, "Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System", Nuclear Data Sheets, 2012; 113: 2841-2934.
- [2] J. Lee et al., "Neutron capture cross section measurements of $^{151,153}\text{Eu}$ using a pair of C_6D_6 detectors", J. Nucl. Sci. Technol., 2017; 54, 10:1046–1057.
- [3] J.F. Briesmeister (Ed.), "MCNP-A general Monte Carlo N-Particle transport code, Version 4C. New Mexico: Los Alamos National Laboratory", 2000; Report no. LA-13709-M.
- [4] H. Iwase et al., "Development of General-Purpose Particle and Heavy Ion Transport Monte Carlo Code" J.Nucl. Sci. and Technol. 2002; 139: 1142-1151.
- [5] N.M Larson, "Updated Users' Guide for SAMMY: Multilevel R-matrix Fits to Neutron Data Using Bayes' Equations", ORNL/TM-9179/R7, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA 2006.
- [6] G. Leinweber et al., "Europium resonance parameters from neutron capture and transmission measurements in the energy range 0.01-200 eV", Annals of Nuclear Energy. 2014; 69:74-89.
- [7] D.W Muir et al., "The NJOY Nuclear Data Processing System", Version 2012. New Mexico: Los Alamos National Laboratory; Report no. LA-UR-12-27079. 2012.
- [8] Jaehong Lee et al., "Resonance analysis of $^{151,153}\text{Eu}$ from neutron capture cross section measurements in the energy range from 1 to 20 eV", J. Nucl. Sci. Technol., 2018 [Published online, 24 Mar]; [11 p.]. DOI: 10.1080/00223131.2018.1449678.

第 7 章 結論

本論文では中性子捕獲断面積測定データの精度向上に関する研究として、従来の中性子捕獲断面積測定手法において系統誤差要因を明らかにするとともに、それらの系統誤差を低減するための手法を開発することにより、核データの高精度化に資することを目的とした。実験施設としては、パルス幅や中性子スペクトルの成形に自由度が高い京大炉ライナックを対象として、京大炉ライナックを用いた TOF 測定で考えられる系統誤差要因を抽出し、測定データの高精度化を追求した。測定対象核種としては、使用済み核燃料取扱施設に対する臨界安全評価に燃焼度クレジットを導入するために重要となる FP 核種の一つである ^{153}Eu 、試料に含まれる不純物核種として ^{151}Eu を選定し、精度の高い中性子捕獲断面積の導出を行った。

本論文では、研究の背景と目的、核データ評価、実験施設及び測定手法の現状、系統誤差要因の抽出、測定対象核種である ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の選定理由について第 1 章で詳しく述べている。

第 2 章では、京大炉ライナックにおける中性子捕獲断面積測定の現状と課題について述べた。京大炉ライナックでは、これまでに全エネルギー C_6D_6 検出器、全吸収型 BGO 検出器を用いた TOF 測定が行われてきた。先行研究の状況から、 C_6D_6 検出器を用いた測定では波高重み法を適用すべきであり、BGO 検出器を用いた測定ではバックグラウンド評価法の見直しが必要であることを確認した。また、共通の誤差要因として、試料中での中性子の自己遮蔽・多重散乱効果の補正法の検討が必要であることを確認した。これらの抽出した課題に対しては、第 3～4 章で検討結果を示し、第 5～6 章で今回検討した解析手法の適応例として ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積の結果を示している。

第 3 章では、中性子捕獲イールド決定法の決定法の高度化として、バックグラウンド評価法及び中性子捕獲イールドの規格化について述べた。バックグラウンド評価法については、特に時間に依存するバックグラウンドの影響を受けやすい全吸収型 BGO 検出器に対する評価法の高度化を行った。先行研究では考慮されていなかった散乱ガンマ線の影響について、モンテカルロ・シミュレーションによる数値計算によって評価を行い、試料から散乱する散乱ガンマ線の主成分が水モデレータ内の $^1\text{H}(\text{n},\gamma)$ 反応によって発生した 2.2MeV のガンマ線であることを明らかにした。中性子捕獲イールドの規格化については、全エネルギー検出器の C_6D_6 検出器に対して、先行研究では考慮されていなかった波高重み関数を導出し、中性子捕獲断面積の絶対値を決定することを可能にした。

第 4 章では、補正方法の高度化について述べた。従来の研究では既存の核データを用いたモンテカルロ・シミュレーション計算によって補正係数を導出していたが、補正係数が核データの信頼性に依存する問題があった。そこで、本研究では核データではなく測定データの共鳴解析に基づく新しい補正法の研究を行った。

中性子の自己遮蔽・多重散乱効果が最も小さい 1 枚の ^{232}Th 試料のデータに対して、SAMMY コードを用いた共鳴解析を行い、20eV～200eV のエネルギー領域の 10 個の共

鳴についてパラメータを導出した。次に、得られた共鳴パラメータを用いて既存の核データの修正を行い、NJOY コードにより ACE 形式の断面積ライブラリを作成した。修正した核データを用いて従来法によって補正係数を再計算したところ、厚さの異なる試料の補正結果に改善が見られた。このことから、共鳴解析と組み合わせたモンテカルロ・シミュレーション計算によって補正係数を求める方法が妥当であることを確認した。

第 5 章では、第 3 章及び第 4 章で述べた手法の適用例として、全エネルギー検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定の結果を示している。本測定では第 3 章で決定した C_6D_6 検出器の波高重み関数を用いて中性子捕獲断面積の絶対値を求めた。 ^{151}Eu の中性子捕獲断面積については、約 0.03eV~0.2eV の領域で JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値を支持し、ENDF-B/VII.1 は約 23%過大評価であるという結果を得た。 ^{151}Eu の共鳴積分については、本結果は Leinweber らの積分データと一致し、いずれの評価値は約 7%~10%過小評価である結果を得た。一方、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積については、約 1eV より低い領域で、ENDF-B/VII.1 の評価値を支持し、JENDL-4.0、JEFF-3.2 の評価値は約 20%過小に評価されているという結果を得た。 ^{153}Eu の共鳴積分については、本結果は Leinweber らの積分データと一致し、いずれの評価値は約 8%過小評価である結果を得た。

第 6 章では、第 3 章及び第 4 章で述べた手法の適用例として、全吸収型検出器を用いた ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定の結果と共鳴パラメータを示している。断面積の規格化については第 5 章の結果を参考し、 ^{151}Eu 及び ^{153}Eu に対して JENDL-4.0 及び ENDF-B/VII.1 の熱中性子捕獲断面積の値で規格化を行った。 ^{151}Eu の共鳴パラメータに対しては、Leinweber らの中性子幅と同じ傾向性を持つことを確認した。 ^{151}Eu の中性子捕獲断面積に対しては、3.37eV の共鳴ピークについて ENDF-B/VII.1、JEFF-3.2 の評価値を支持し、JENDL-4.0 の評価値が約 1/2 倍過小評価されている結果を得た。4.78eV の共鳴ピークは、いずれの評価値も過大評価である結果を得た。7.00、7.22、7.42eV の共鳴ピークについて、本結果と評価値間には大きな違いがあった。一方、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積や共鳴パラメータに対して、2.46、3.29、3.94 の共鳴ピークについて、Leinweber らの中性子幅、いずれの評価値が過大評価である結果を得た。

バックグラウンド評価法を改善したことにより、非分離共鳴領域に対しても信頼性の高い平均断面積も取得することができた。また、BGO 検出器で得られた結果は C_6D_6 検出器で得られた結果と整合が取れていることを確認した。

本研究により、中性子捕獲イールドの決定法と補正法の最適な手法を開発したことによって、熱中性子捕獲断面積の値を決定し、分離共鳴から非分離共鳴エネルギー領域にかけて、信頼性の高い中性子捕獲断面積を得られるようになった。本手法を ^{151}Eu 、 ^{153}Eu の中性子捕獲断面積測定に適用したことによって、熱中性子断面積、非共鳴領域の平均断面積、共鳴パラメータについて信頼性の高いデータを取得することができた。

謝辞

本研究を行う当たり、多くの方々から多大な御助力を賜りましたので、ここに感謝の意を表します。特に、本研究を行う機会を与えて下さり、暖かい御指導と御援助をして下さった京都大学原子炉実験所の中島健教授に深く感謝いたします。

本研究を行うにあたり、テーマ選択から実験まで研究の全般にわたって御指導と御助言をして下さった京都大学原子炉実験所の堀順一准教授に心から感謝いたします。

実験と計算を行うにあたり、御指導と多大な有益なアドバイスを下さった京都大学原子炉実験所の佐野忠史助教に心より感謝いたします。

実験を行うにあたり、御協力して下さい、実験のディスカッションもして下さい、京都大学原子炉実験所の阿部尚也技術職員に感謝いたします。

本研究を行うにあたり、研究者の立場からの適切な御指導をして下さった韓国の東西大学の LEE Samyol 准教授に感謝いたします。

本研究を行うにあたり、研究発表などに対してアドバイスをして下さい、京都大学原子炉実験所の高橋俊晴准教授、山本俊弘准教授、高橋佳之准教授に感謝いたします。

博士 4 年間にわたり、御指導下さった京都大学大学院工学研究科の教員の皆さまに感謝いたします。また、4 年間にわたり、勉強及び大学生活をともに送ってきた、京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻の先輩、同輩、後輩の皆さんに感謝いたします。

最後に、博士後期課まで進学させてくれて、日本留学のために献身的なサポートをして下さった両親に心より深く感謝いたします。また、愛していると伝えたいです。

李 在洪

감사의 글

본 연구를 실시하는데 있어서 다수의 많은 분들로부터 큰 도움을 받았으므로 이렇게 먼저 감사의 뜻을 전합니다. 특히, 본 연구를 할 기회를 주시고, 따뜻한 지도와 지원을 해 주신 교토대 원자로실험소의 나카지마 켄 교수님께 깊이 감사드립니다.

본 연구를 수행하는데 있어서, 연구테마의 선택에서 실험까지 연구의 전반에 걸쳐서 지도와 조언을 해 주신 교토대 원자로실험소의 호리 준이치 부교수님께 진심으로 감사드립니다.

실험과 계산을 수행하는데 있어서, 지도와 유익한 많은 조언을 주신 교토대 원자로실험소의 사노 타다푸미 조교수님께 진심으로 감사드립니다.

실험을 실시하는데 있어서, 협조 해 주시고 실험의 토론도 해 주신 교토대 원자로실험소의 아베 나오야 기술직원에게 감사드립니다.

본 연구를 수행하는데 있어서, 연구자의 입장에서 적절한 지도편달를 해 주신 동서대학의 이삼열 교수님께 감사드립니다.

본 연구를 수행하는데 있어서, 연구발표 등에 대해서 여러가지 조언을 하고 주신 교토대 원자로실험소의 타카하시 토시하루 부교수, 야마모토 토시히로 부교수, 타카하시 요시유키 부교수님께 감사드립니다.

박사 4년간 지도 주신 교토대학 대학원 공학연구과 교수님들께 감사드립니다. 또한, 4년간 공부와 대학생활을 함께 보내온 교토대학 대학원 공학연구과 원자핵공학전공의 선배, 동기, 후배들에게 감사드립니다.

마지막으로 저를 박사과정까지 진학시켜 주시고, 일본유학을 위해 헌신적인 서포트를 해 주신 부모님에게 진심으로 깊이 감사드립니다. 또한 사랑한다고 전하고 싶습니다.

이재홍

発表論文一覧

副論文

- ・ 学術誌

- 1) **Jaehong Lee**, Jun-ichi Hori, Tadafumi Sano, Yoshiyuki Takahashi, Hironobu Unesaki, Ken Nakajima, “Resonance Analysis for Neutron Capture Cross Sections of Th-232”, *Energy Procedia*, **131**, 306-311 (2017).
- 2) **Jaehong Lee**, Jun-ichi Hori, Ken Nakajima, Tadafumi Sano, Samyol Lee, “Neutron capture cross section measurement of $^{151,153}\text{Eu}$ using a pair of C_6D_6 Detectors”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **54**, 10, 1046-1057 (2017).
- 3) **Jaehong Lee**, Jun-ichi Hori, Tadafumi Sano, Ken Nakajima, “Resonance analysis of $^{151,153}\text{Eu}$ from neutron capture cross section measurements in the energy range from 1 to 20 eV”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2018 [Published online, 24 Mar]; [11 p.]. DOI: 10.1080/00223131.2018.1449678.
- 4) **Jaehong Lee**, Jun-ichi Hori, Tadafumi Sano, Ken Nakajima, “Evaluation of time dependent background due to scattered γ rays in the sample at the KURRI-LINAC using the TOF method”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.*, (投稿準備中).

- ・ 国際会議等（査読有り）

- 5) Tadafumi Sano, Jun-ichi Hori, Yoshiyuki Takahashi, Hiroshi Yashima, **Jaehong Lee**, Hideo Harada, “Analysis of energy resolution in the KURRI-LINAC pulsed neutron facility”, Proc. ND 2016 International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Bruges, Belgium, 11-16 Sep., 2016, Les Ulis Cedex: EDP sciences, Vol. 146, pp.03031, Sep. 2017.
- 6) **Jaehong Lee**, Jun-ichi Hori, Tadafumi Sano, Ken Nakajima, “Evaluation of Sample-dependent Background at the KURRI-LINAC using a Time-of-Flight Method”, Proc. Reactor Physics Asia 2017, Chengdu, China, Aug.24-25, 2017, (CD-ROM).

- ・ 国際会議等（査読なし）

- 7) **J. H. Lee**, J. Hori, K. Nakajima, “Measurement of $^{151,153}\text{Eu}$ Neutron Capture Cross Sections using a pair of C_6D_6 Detectors”, Proc. the 2010 Symposium on Nuclear Data, JAEA-Conf 2011-002, 101-106 (2011).

本論文の第 3 章は副論文 4),5)及び 6)の一部に、第 4 章は副論文 1)の一部に、第 5 章は副論文 2)及び 7)の一部に、第 6 章は副論文 3)の一部に、それぞれ、基づいている。

その他の論文

- ・ 国際会議等（査読有り）

- 8) Jun-ichi Hori, Tadafumi Sano, Yoshiyuki Takahashi, **Jaehong Lee**, Hironobu Unesaki, Ken Nakajima, “Non-destructive assay of nuclear materials using a self-indication method”, Proc. ND 2016 International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Bruges, Belgium, 11-16 Sep., 2016, EPJ web of Conferences, Vol. 146, pp.09042, Sep. 2017.