研究論文

111. 核分裂生成物の γ 線スペクトロメトリ, (Ⅲ)

ウェル型 NaI(Tl) シンチレータによる ^{235}U 核分裂生成物の
 γ 線シンチレーション・スペクトル(実験)

服 部 一 郎*

The Gamma-ray Spectrometry of Fission Products, (Ⅲ)

*Experimental gamma-ray scintillation spectra of ^{235}U fission products
with a well type NaI(Tl) crystal*

By Ichiro HATTORI

The gamma radiation from products of slow neutron fission of ^{235}U was analyzed with a well type NaI crystal γ ray spectrometer. 0.6~500 mg of natural uranium (in the chemical form of U_3O_8) were irradiated for 2 hr by a flux of 10^{11} neutrons $\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$ in the JRR-1 reactor. The γ ray scintillation spectra between 1 and 200 days after irradiation have been recorded and compared with the calculated ones in the previous report (Ⅱ). In general, the agreement of both spectra was good, but there retained some discrepancies in the following respects:

- (1) Relative heights of each peak compared with that of peak Ⅷ proved that the experimental spectra in the lower energy range was less than calculated figure; on the other hand, the result was reverse in the higher energy range.
- (2) Experimental relative height of peak Ⅴ to peak Ⅷ was about half of the calculated one, consequently it disappeared from the spectra at an earlier time after fission than predicted from the calculation.
- (3) The relative abundance of ^{239}Np , a daughter of an activation product of ^{238}U , was three to four times of predicted one.

Further, the decay rates of each peak and total counts of gamma radiation from gross fission products were measured and there were also found good agreements between the experimental results and the calculated predictions.

緒 言

^{235}U の熱中性子による核分裂生成物 (F.P.) の γ -スペクトルをウェル型 NaI シンチレータで実測し, 前報に述べた計算に基づく予想図と比較した。

この種の実験は古く Peirson⁽¹⁾⁽²⁾ が二種結晶法 γ 線スペクトロメータによって核分裂後 1~100 日の間を測定し, 各ピーク毎の時間的減衰の割合を図によって示した他, 最近のものでは Perkins⁽³⁾ が 3 in. $\times$ 3 in. NaI 100 チャンネル・シンチレーション・スペクトロメータを用いて F.P. 中の ^{131}I 他数種のアイソトープの定量を行なった報告中に若干の測定例を示している。

また Rousseau⁽⁴⁾ は原子炉中で短時間照射された ^{235}U から約 1 日以内に生ずる 0~500 keV の間の γ -スペクトルの変化を観察している。この他 U.S. NRDL からの報告^{(5)~(7)} には極く初期 (1.7~1,550 sec) のスペクトルを測ったり⁽⁷⁾, 初期 (1 sec~数時間) の γ -放射能をウェル型 NaI で計数したもの⁽⁶⁾, あるいはフォールアウトの γ -スペクトルを調べたもの⁽⁸⁾ 等があるが, まだわが国には未着である。フォールアウトを対象としたものではこのほかに Horwood⁽⁸⁾ が ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{103}Ru 等の核種を空気中の塵からスペクトル法によって見付

* 石川島播磨重工業(株)技術研究所 (Tech. Res. Lab., Ishikawajima-Harima Heavy Ind. Co., Ltd.)

けているが、これも原報を見る機会を得ていない。少し変わったところでは Olson は F.P. の主な成分を混じった試料から各成分を定量することを試みた。その方法は256 チャンネル・シンチレーション・スペクトロメータの“Complement”を利用して、混合物のスペクトルから単独成分のスペクトルを順次引き去ってゆくものであって、Peirson⁽¹⁾の二種結晶法にやや類似している。

ここに報告する実験の目的は、上記諸実験とは異なり、個々のγ-スペクトルを詳しく解析することではなく、むしろその時期的変化の模様を大勢的に把握して、未知試料のγ-スペクトルから逆にその年齢を推定するための特徴をつかむことにある。

I. 試料と装置

1. 試料

試薬1級の天然ウランの酸化物(U_3O_8)を JRR-1 中で照射した。照射条件は下記のとおりである。

照射条件	A	B
実験孔挿入 (年月日)	No. 16 at 40 kW 1960.1.12. 1027	No. 16 at 40 kW 1960.1.14. 1327
照射時間	2 hr	2 hr
取出 (年月日)	1960.1.12. 1227	1960.1.14. 1527

試料番号 FP-	1	2	3	4	5	6	7
Assayed at	'55. Dec. 22	'56. Dec. 6	'57. Jul. 13	'58. Feb. 6	'58. Jul. 5	'58. Aug. 14	'59. May 28

2. 測定

試料：ポリエチレンシートに包んだままポリエチレン製試験管中に封入

シンチレータ：Harshaw, type 7 F 8 well cristal
外形 $1\frac{3}{4}$ in. ϕ $\times$ 2 in.
ウェル $\frac{3}{4}$ in. ϕ $\times$ $1\frac{1}{2}$ in.

光電増倍管：EMI 9514, 使用電圧 700 V

γ線スペクトロメータ：神戸工業製シングルチャンネル型, RIDL 製 100 チャンネル型

測定はすべて室温で行なわれた。

シングルチャンネル型の場合、チャンネル幅 1 V, レオメータの時定数 5 sec, 1 走査に要する時間 15 min, チャートスピード 300 mm/15 min を常用した。この程度の条件であれば、時定数やチャンネル幅によるピー

試料は0.6~500 mg を小分けしてポリエチレンシートに包んだ。

試料番号	重量 (mg)	照射 条件	試料番号	重量 (mg)	照射 条件
—	—	—	FP-10a-6	0.6	A
FP-10-5	0.13	A	" -5	1.3	A
" -4	1.3	A	" -4	2.5	A
" -3	13	A	" -3	25	A
" -2	25	B	" -2	250	B
" -1	50	B	" -1	500	B

つぎにこの条件で試料 1 g 当りに生じた ^{235}U の核分裂総数を計算しておく。

天然ウラン中の ^{235}U の存在比を 0.715%, 6.0 mg ^{235}U / 1 g U_3O_8 とし、照射中性子数を $2 \times 10^{15} n/cm^2$; ^{235}U の核分裂断面積を 580 barn とすると、 U_3O_8 1 g 当りの核分裂数は、

$$\begin{aligned}
 &6.0 \times 0.580 \times 10^{-21} \times 2 \times 10^{15} \\
 &= 6.96 \times 10^{-6} \text{ mg } ^{235}U / 1 \text{ g } U_3O_8 \\
 &= 6.96 \times 10^{-6} \times 10^{-3} \times \frac{6.02 \times 10^{23}}{235} \\
 &= 1.785 \times 10^{13} \text{ fission} / 1 \text{ g } U_3O_8
 \end{aligned}$$

この他に日本放射性同位元素協会から購入した F.P. を利用した。この試料は assay した日以外は一切の来歴が不明なので正確な資料を得ることは望み難いが、参考としては利用できる。

クの変形はあまり大きくないはずである。

スペクトルのエネルギー範囲は 0.02~0.6, 0.03~1 および 0.06~2 MeV の 3 通りとし、その選択は増幅器利得の切り換えにより行なった。

II. 結果

試料相互間の放射能相対強度比は Table 1 のとおりであって、おおむね重量比から予想される値とほぼ 10% 程度の誤差内で一致する。このことから別々の日に行なった 2 回の照射がほぼ同じ条件で行なわれたことがわかる。FP-10a-5 のみはやや異なり重量比の 70% 程度となった。

Fig. 1(a), (b) に同一時期に同一試料を、シングルチャンネル・スペクトロメータと 100 チャンネルのそれとで

Table 1 Relative activities of samples

Dat.	'60. Apr. 23 (A : 102 nd day B : 100 th day)			Dat.†	'60. Mar. 22 (A : 70 th day B : 68 th day)		
Sample	Relative activity with respect to the sample, FP-10-3			Sample	Relative activity with respect to the sample, FP-10a-3		
	>0.41 MeV	>0.63 MeV	from the weight		>0.4 MeV	>0.63 MeV	from the weight
—	—	—	—	FP-10a-6	—	—	0.024
FP-10-5	$0.0115 \pm 4\%$	$0.0119 \pm 6\%$	0.01	" -5	$0.0372 \pm 10\%$	$0.0369 \pm 11\%$	0.052
" -4	$0.110 \pm 2\%$	$0.113 \pm 2\%$	0.1	" -4	$0.102 \pm 5\%$	$0.108 \pm 5\%$	0.1
" -3	1	1	1	" -3	1	1	1
" -2	$1.94 \pm 1\%$	$1.92 \pm 1\%$	1.923	" -2	$9.88 \pm 1\%$	$9.68 \pm 2\%$	10
" -1	$3.56 \pm 1\%$	$3.76 \pm 1\%$	3.85	" -1	$20.0 \pm 1\%$	$19.5 \pm 2\%$	20

† Aluminium dishes were used for sample containers and activities were measured by a cylindrical NaI(Tl) crystal, 1½ in. $\phi \times$ 1 in. The spectra will be reported on latter papers.

それぞれ測定した結果を比較した。いずれもピークⅧの高さが100となるように基準化してある。図から知られるように、低エネルギー部では前者のピークは後者よりも低い。実験後における検討の結果、これはシングルチャンネル型においてチャンネル幅が波高の位置により必ずしも一定でないことに由来することがわかった。実際にチャンネル幅を実測してそれに基づく補正を行なうと、Fig. 1(a)に見られるように、100チャンネルの結果とほぼ一致した。しかしながらこのチャンネル幅

の変化はパルスハイト・アナライザの window amp. 部分の増幅度の不確さに由来するものであって、それ自体が不安定なものであるから、測定期間中ずっと同じ状態であったかどうかわからぬ上、行なったチャンネル幅の測定法にも多少疑問の点が残ったので、この補正法を全面的に採用することは差し控えた。以後示す他の実測値においても特に断った時以外は補正されないままの値である。

Fig. 1 γ ray scintillation spectrum of F.P., 100 and 200 days after fission; Sample FP-10-3

同じ図で計算値と実測値との比較を行なうことができる。両者は定性的にはほぼ一致しているが、I～Ⅲのピークの位置と高さにはかなりの差異がある。また

一般的にコンプトン領域では計算値よりも実測値の方が高い。その理由として、つぎの3項目をあげることができる。

- (1) 制動輻射の影響
- (2) 0.15~0.3 MeV の範囲内ではバックスキヤッタの影響
- (3) ピークの裾の拡がり

ピークもそれが小さいものである時には、重なったコンプトン領域の影響を大きく受けるので同じ傾向がある。Fig. 1 のピークⅦがその良い例である。

初期のスペクトルの例として Fig. 2 を示す。この時期には 0.4 MeV 以下の範囲では ^{239}Np の影響が圧倒的に強く、F.P. 本来のスペクトルはかくされてしまう。また実測値が計算値を上回っている。先に述べたようにこの測定に用いたシングルチャネル型装置はこの範囲でピークを低目に出す傾向をもつから、実際の差異は図から見られる以上に大きいものと考えなければならない。これは ^{239}Np の量が予想よりも 3~4 倍大きいことを意味するのであるが、その原因はおそらくは原子炉内の中性子中に熱中性子よりもエネルギーの高い成分が混っていたために ^{238}U の放射化断面積が予想よりも大きな値となったためであろう。

Fig. 2 γ ray scintillation spectrum of F.P., 7 days after fission

ⅦとⅧの間にⅦのピークが認められる。Fig. 3 に示すように、この部分は14日目にはすでにかなり後退している。

Fig. 3 γ ray scintillation spectrum of F.P., decrement of peak Ⅶ (Sample FP-10-4)

Fig. 4 は30日目のスペクトルである*。この時期には第Ⅱ報にも述べたようにピークの数が多いのであるが、ピークⅦの高さは予想の約半分程度しかない。第Ⅰ報の Fig. 1 から知られるように、30日目ではこ

Fig. 4 γ ray scintillation spectrum of F.P., 30 days after fission

* Peak Ⅱ のところに点線で示した部分は、 ^{140}Ba 0.162 MeV γ 線の存在量を古い資料⁽¹²⁾に基づいて70%として計算した時の予想値であって、これを10%として計算した実線よりも実験値とむしろよく一致する。

のピークは ^{140}Ba 0.304 MeV(10%)および ^{140}La 0.328 MeV(35%)の γ 線に起因している。この( )内の数字は、壊変1個ごとの γ 線の放出割合で、さきの計算に採用した値であるが、アイソトープテーブル⁽¹¹⁾を調べ直すと ^{140}La のそれはやや大き過ぎて、その70%程度にとる方が正しいようである。またこの γ 線は ^{140}La の他の γ 線(0.490, 1.60 MeV)とコインシデンスするので、シンチレータ内部でいわゆる“pile up”を生じてピークから離脱することも考えられる。ウェル型ではこの傾向が一般に大きい。

ピークⅦは40日目にはまだはっきりと区別できるが、50日目では僅かに痕跡程度の存在となる。これは第Ⅱ報のFig. 6から予想されるよりもやや時期が早い。

Figs. 2, 4でピークⅩの高さはいずれも予想の2倍程度となっている。その理由の一部は前にも述べたスペクトロメータのチャンネル幅の不正確さによるもので

あって、その補正を行なえば測定値は図の0.7倍程度になるが、なお、残る喰い違いは計算では制動輻射を全く無視していることにある。実際 ^{140}La の影響が全く消失した200日目においてすら、1 MeV以上の範囲で全計数値の5~6%が計測された。これには ^{106}Ru (1.04, 1.14, 1.54 MeV)や ^{144}Pr (1.49, 2.18 MeV)の影響があるとしても、それだけでは全計数値の0.5%にも満たないはずであるから、1 MeV以上の計数値の大部分は制動輻射によるものと考えられる。この補正を行なうにはたとえばFig. 4の28日目の実測値は、1.9 MeVのところでチャンネル幅当りの計数値がピークⅦの高さの6%程度の値となっているので、これを制動輻射の値と仮定してピークⅩの高さから引くと、先のチャンネル幅に対する補正と合わせて、計算とほぼ一致することになる。

Fig. 5 (a), (b), (c) は2年以上経過したもの の例で

Fig. 5 γ ray scintillation of F.P., 2, 3 and 5 years after fission

ある。この場合の試料は日本放射性同位元素協会から購入したものであって、上述のように試料が受けた処理が一切不明であるが、いずれにしても比較的長時間の照射を受けたものであろうから、本研究のような瞬時の核分裂に対する計算と比較することは本質的に無理である。しかし、スペクトルに現われるピークはⅠ, Ⅱ, ⅢおよびⅦのみであって、しかも古い試料ほどⅢの高さがⅦに対して相対的に減少している。このことは前報で予想したところと一致する。

ピークの時間的減衰の割合を主なピークについて示せば Fig. 6 (a), (b) のとおりであって、計算から予想したものとはよく一致している。この場合のピークの高さは、フォトピークの高さに、それより大きなエネルギー

ギーの γ 線のコンプトン散乱に起因する部分の高さが加わったものである。ピークⅡ, Ⅲについては最初の期間は、 I_{Np} にⅡとⅢが加わった1つのピークとして観測されるが(Fig. 2参照)、実際問題としては I_{Np} が圧倒的に大きいので減衰も I_{Np} の割合に従っている。核分裂後20日を過ぎると、ⅡとⅢとが分離して現われ始めて、30日前後となるとⅡ自体も I_{Np} の影響を離れて固有の減衰曲線を描き始める*。(Fig. 4参照)

* Fig. 6(a)に点線で示したのは ^{140}La 0.162 MeV の γ 線の存在量を70%として計算した場合であって、これを10%とした実線の場合にくらべ、どちらがよりよく実験値と一致するのかは、この実験の精度内では判断し難い。

Fig. 6 Decay of peaks

試料の計数値を第Ⅱ報の Table 2 から計算して実測値と比較すると, Table 2 のようになる。102日目の測定値はシングルチャネル・スペクトロメータで 0.14MeV 以上の部分を計測したものである。これを 3 倍して全

Table 2 γ ray counting rates ;
Comparison of the calculation
with the measurement

Sample : FP-10-3, 13 mg U_3O_8
Integrated neutron flux : 2×10^{15} n/cm²
Total number of fissions occurred
in the sample per mg : 1.785×10^{10} fiss./mg

Time after irradiation(day)	102	106	199
Measurement			
γ counting rate (>0.41 MeV), c/sec	386.0	-	-
" (>0.02 MeV), c/sec	-	905	416
" (") c/sec·mg	89.2	69.6	32.0
Calculation			
γ counting rate $\frac{\ln 2 \cdot 10^{-6} c}{100 \text{ fiss. hr}}$	1,700	1,600	565
c/sec·mg	58.5	55.0	19.3
meas./calc.	1.52	1.27	1.66

エネルギー範囲の値に換算した。この換算比は第Ⅱ報の計算過程で得られたものである。

他の 2 つの測定は 100 チャネル・スペクトロメータによった。また 106 日目の値には 1 MeV 以上の部分は含まれていないが、そのための誤差はせいぜい 10% 以内のはずである。実測値と計算値との比は 1.2~1.7 の程度であるが、これは主として計算で仮定した照射中性子の数 ; 2×10^{15} n/cm² の不正確さに帰すべきものであろう。この値はもともと日本原子力研究所の利用説明書¹⁰からとった公称能力であるから、この程度の喰い違いは驚くにあたらない。しかし 1.2~1.7 では相互の間に 30% 程度の開きがあるので、これが計算あるいは測定の誤差の程度を示すものと考えられる。

Ⅲ. む す び

第Ⅱ報で予想された F.P. のスペクトルは実験と定性的にはほぼ一致するが、つぎの点で僅かに喰い違いがある。

- (a) ピーク相互の高さの比
- (b) ピークⅦの消滅の時期
- (c) ^{239}Np の存在量

(a) はエネルギーの低いところでは、ピークは実験値の方が低く出がちで高い範囲ではその逆になることである。その原因は

- (1) シングルチャネル・スペクトロメータにおけるチャネル幅の不均一さ
- (2) 制動輻射の存在と主として測定値の側に問題がある
- (3) 計算に用いたシンチレータの検出効率は第Ⅱ報のFig. 2 “A”のカーブであるが、これは損失が全くないと仮定した時の計算値であって、実際にはシンチレータの被覆や試料の容器による吸収あるいは試料自体の自己吸収のためには、エネルギーの低い部分において効率が低下する可能性がある。同図 “B” のカーブはほぼ似た寸法のシンチレータについて発表された実験値であるが、0.5 MeV あたりから “A” と離れて、0.1 MeV 付近では “A” の70%程度となる。この実験の試料容器は 2 ml のガラス管で著者の用いたポリエチレン管よりも吸収がやや大きいらしいので、この結果をそのまま採用することはできないが、1つの傾向を示すものと考えてよい。

以上あげた3つの理由がどの程度結果に影響を及ぼしているのかを検討するのは今後の課題である。

(b)にあげたピークⅦの問題は、予想ではこのピークが消滅するのは核分裂後100日目以降であるが、実際には50日目前後には消えている。その原因は先に述べたように主として ^{140}La 0.328 MeV γ 線の存在量に帰せられる。

(c)は ^{239}Np の存在量が予想の3~4倍もあることであって、原子炉中の中性子のエネルギー分布に問題がある。

各ピークの時間的減衰の割合は予想と実測がよく一致した。

試料の γ 線の全計数値に関しても予想と実測はかなり一致する。

以上を総合して、F.P.のシンチレーション・スペクトルの予想図(第Ⅱ報 Fig. 6)を利用して、F.P.の核分裂後の経過時間すなわち年齢を判定することは、十分に可能であると考えられる。

また、ウェル型シンチレータの寸法が計算に採用したものと少々異なっているが、定性的な判断にはそれほど差支えはないであろう。

最後にあたり、第Ⅰ報にあげた方々に加え、100チャネル・スペクトロメータの使用に便宜を与えて下さった電気試験所の寺西英三技官に深く感謝する。

(1961年 2月21日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) D. H. PEIRSON : *Brit. J. Appl. Phys.*, **6**, 444 (1955).
- (2) D. H. PEIRSON : *Atomics*, Sep., 316 (1956).
- (3) P. W. PERKINS : *HW-54913*, (1959).
- (4) A. ROUSSEAU : *CEA-1202*, (1959).
- (5) C. S. COOK : *U.S. NRDL-Tr-318*, (1959).
- (6) J. L. MACKIN, F. E. ZIGMAN, P. O. STROM, M. J. NUCKOLLS : *ibid*-359, (Aug. 10, 1959).
- (7) C. F. KAANDA, E. LAUMETS : *ibid*-361, (1959).
- (8) J. L. HORWOOD : *NP-7533*, (1959).
- (9) P. G. OLSON : *IDO-14495*, (1959).
- (10) 日本原子力研究所 : JRR-1 共同利用説明書, (1959.3.15).
- (11) D. STROMINGER, J. M. HOLLANDER, G. T. SEABORG : *Revs. Modern. Phys.*, **30**, 2, 720 (1958).
- (12) J. M. HOLLANDER, I. PERMAN, G. T. SEABORG : *ibid.*, **25**, 2, 469 (1953).