

連載講座



中性子イメージング技術の基礎と応用 (基礎編第5回)

中性子イメージングの中性子源[†]

松林政仁

独立行政法人 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門中性子イメージング分析研究グループ
319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Key Words : neutron, neutron imaging, neutron source, radioisotope, spallation neutron source, nuclear reactor, thermal neutron, cold neutron

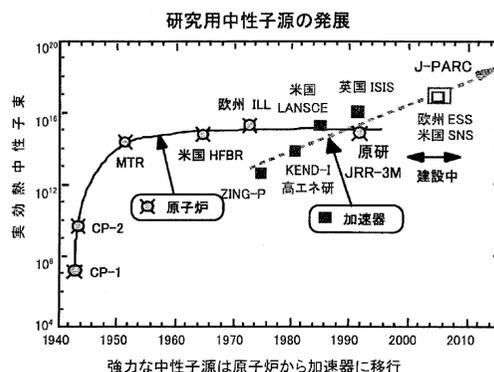
1. はじめに

中性子イメージングに限らず中性子ビームを利用する実験装置では中性子源を必要とするが、中性子の発生法は①放射性同位体 (RI) による方法, ②加速器を用いる方法及び③原子炉を用いる方法に大別される。中性子イメージングでは中性子ビームを単色化することがほとんどない。したがって, 中性子源の強度を落とすことなく利用できるため, 試料を透過してきた中性子ビーム強度を二次元で検出する検出器システムの感度如何によって低強度の中性子源でも実験が可能である。

図1¹⁾は研究用中性子源の発展を実効的な熱中性子束と合わせて時系列的に示したものである。中性子の発見以来, 中性子源はRIを用いたものから初期のサイクロトロン等の加速器で得られる荷電粒子を用いたものを経て, 核分裂反応を利用した原子炉の出現により利用可能な

中性子束が飛躍的に向上してきた¹⁾。現在, 熱中性子束は約 $1 \times 10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ まで達し, 更にこの限界を打ち破ろうと米国オークリッジ国立研究所でANS (Advanced Neutron Source) 計画が提案されたものの実現はしなかった²⁾。一方, これら時間的に強度が変化しない定常中性子源に対して, パルス中性子源は陽子線加速器を用いた核破砕中性子源 (図2参照) で, ピーク中性子束が高中性子束炉の値を凌駕 (10 ~ 100 倍以上高い) し, 平均中性子束でも同等程度 (1 MW の核破砕中性子源の強度は熱出力 15 MW の研究用原子炉と同等と言われている) に達している¹⁾。

なお, 本来であれば個々の引用箇所の原著を示すべきであるが, 対象が「中性子源」という

図1 研究用中性子源の発展¹⁾

[†]Fundamentals and Applications of Neutron Imaging (Fundamentals Part 5).

Neutron Sources for Neutron Imaging.

Masahito MATSUBAYASHI: Research Group for Neutron Imaging and Activation Analysis, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 2-4, Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Nakagun, Ibaraki Pref. 319-1195, Japan.

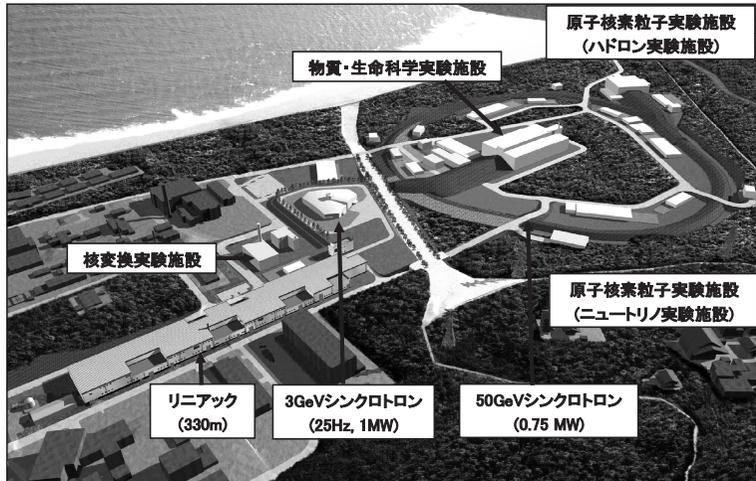


図2 大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の完成予想鳥瞰図

J-PARCは、日本原子力研究開発機構(原子力機構)と高エネルギー加速器研究機構が東海村に建設している多目的加速器施設である。3 GeV シンクロトロンで加速された陽子が、物質・生命科学実験施設内の水銀ターゲットに入射され、核破砕反応により中性子を発生する

基本的な部分であるがゆえに文献数が膨大になることを懸念して、執筆にあたり参考としたものを参考文献として掲載した。原著論文については参考文献で確認願いたい。

2. RI を利用した中性子線源³⁾⁻⁵⁾

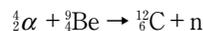
中性子は通常、原子核の中で陽子と結合して安定な状態で存在する。このため、中性子を利用するには、結合エネルギー以上の励起エネルギーを与える核反応を利用して原子核外へと遊離させる必要がある。RIを利用して中性子を発生させる核反応として、 (α, n) 反応、 (γ, n) 反応及び核分裂反応があるが、これらの核反応で中性子収率を高めるためには、高強度の放射能を持つRIが必要となる。RIは壊変により強度が半減していくため、必然的に中性子強度の低下は避けられない。RIを利用した中性子線源は、後述する加速器及び原子炉を利用した中性子線源と比べて、

- (1) 小型で取り扱いが簡単である
- (2) 可搬性
- (3) 照射設備が単純で維持費が安い

(4) 強度及びエネルギーの安定性が高いという特徴を有している。

2.1 (α, n) 反応を利用した中性子線源

α 粒子を放出するRIを適当なターゲットに衝撃することで中性子線源が作られる。ターゲット材料としては、 (α, n) 反応により中性子を放出するBe, B, F, Li等の軽元素が用いられる。表1に示したとおり、ベリリウム(Be)をターゲットに用いる反応：



が最も効率が高い。

更に、 α 線源としては表1に示すRIがあるが、半減期と取り扱い上の点から ${}^{241}\text{Am}$ が広く利用される。この場合、得られる中性子エネルギースペクトルはMeV領域にいくつかのピークを持つ連続スペクトル分布(平均エネルギー4.5 MeV)となる。

2.2 (γ, n) 反応を利用した中性子線源

(γ, n) 反応によって中性子を発生させるた

表1 (α, n) 反応を用いた RI 中性子源³⁾⁻⁵⁾

α 線源	半減期	ターゲット	中性子収率	中性子エネルギー(MeV)
²¹⁰ Po	138 日	Be	1.28×10^{10} (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4.3
		B	1.4×10^{-5} (n s ⁻¹ Bq ⁻¹)	
		F	4.1×10^{-6} (n s ⁻¹ Bq ⁻¹)	
²⁴¹ Am	458 年	Be	1×10^7 (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4
		B	1.4×10^{-5} (n s ⁻¹ Bq ⁻¹)	
		F	4.1×10^{-6} (n s ⁻¹ Bq ⁻¹)	
²²⁶ Ra	1620 年	Be	1.5×10^7 (n s ⁻¹ g ⁻¹)	
²²⁷ Ac	21.8 年	Be	1.7×10^9 (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4
²²⁸ Th	1.91 年	Be	2.3×10^{10} (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4
²⁴⁴ Cm	18.1 年	Be	2.5×10^8 (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4
²³⁸ Pu	89 年	Be	4.5×10^7 (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4
²³⁹ Pu	24360 年	Be	1.2×10^5 (n s ⁻¹ g ⁻¹)	4.5

表2 (γ, n) 反応を用いた RI 中性子源^{3),5)}

γ 線源	半減期	ターゲット	中性子収率(n s ⁻¹ Bq ⁻¹)	中性子エネルギー(MeV)
²⁴ Na	15 時間	Be	3.8×10^{-6}	0.2
		D ₂ O	7.8×10^{-6}	0.8
⁸⁸ Y	108 日	Be	2.7×10^{-6}	0.16
		D ₂ O	8.1×10^{-8}	0.3
¹²⁴ Sb	60.4 日	Be	7.3×10^{-2}	0.024

めには、この反応のしきい値[†]が低い²HあるいはBeをターゲットとする²H(γ, n)p 反応、あるいは⁹Be(γ, n)⁸Be 反応を用いる。それぞれの反応のしきい値は、2.23 MeV 及び 1.67 MeV であり、²H と Be 以外の元素に対しては全て約 6 MeV 以上である。このため、後述する加速器を利用した高エネルギー粒子を利用する場合を除き、RIを利用して(γ, n) 反応で中性子を発生し得るターゲットは²H と Be に限定される(表2 参照)。

使用し得る γ 線源としては、²⁴Na (2.754 MeV)、⁸⁸Y (1.836 MeV)、¹⁴⁰La (1.596 MeV)

[†] 核反応を起こすのに必要最小限の入射粒子の運動エネルギーを「しきい値」と呼ぶ。

^{††} 核反応の初めの状態の質量エネルギーと終わりの状態の質量エネルギーの差を「 Q 値」と呼ぶ。

があるが、半減期、価格の点から実用し得るものは、²²⁶Ra (1.746, 2.118, 2.204, 2.447 MeV) 及び ¹²⁴Sb である。このうち、²²⁶Ra - Be 中性子源は非常に強い γ 線の放射能を伴う一方で、半減期が長く中性子強度が一定であるなどの長所を有している。¹²⁴Sb - Be 中性子源は¹²⁴Sb の 1.691 MeV γ 線による⁹Be (γ, n) 反応 (Q 値^{††} -1.666 MeV) を利用して得られる。中性子エネルギーは 26 ± 1.5 keV (平均 24 keV) と比較的 low、単色に近いスペクトルを得ることができる。しかし、半減期が 60.9 日と短いため、長期間の使用には不向きである。また、使用の際、 γ 線に対する遮へいも考慮する必要がある。

2.3 自発核分裂による中性子源

α 崩壊、自発核分裂を伴って中性子を放出

表3 自発核分裂を利用した RI 中性子源³⁾⁻⁵⁾

放射性同位元素	半減期	中性子収率(n s ⁻¹ g ⁻¹)	中性子エネルギー(MeV)
²⁵² Cf	2.65 年	2.34×10 ¹²	2.3

する多くの超ウラン元素 (²³⁸U, ²⁴²Pu, ²⁴⁴Cm など) があるが、代表的なものは²⁵²Cf線源である。重い核の自発核分裂に伴い放出される中性子である。このタイプの線源は、数 MeV にピークを持つマクスウェル (Maxwell) 型の幅広い中性子エネルギースペクトルを有し、ほぼ理想的な点状核分裂中性子源として利用されている。

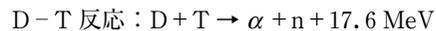
²⁵²Cf は半減期 2.65 年で、主に α 崩壊(96.9%)し、残りの 3.1% が自発核分裂である。表 3 に示すとおり、1 g あたり毎秒 2.3×10^{12} 個の自発核分裂による中性子を発生する。同時に γ 線 (2 MeV 以下が大部分) も放射するが、他の RI を利用した中性子源と比べて強度が小さく、²⁴¹Am-Be の 10 分の 1、²³⁹Pu-Be の 5 分の 1 程度である。²⁵²Cf は、原料の ²⁴²Pu を $10^{14} \sim 10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の高強度中性子束下で、長期間の複雑な中性子捕獲反応を経て生成されるため生産は容易ではなく、高価である。主に線源強度の観点から、²⁵²Cf に代わり得る元素は見当たらない。²⁵²Cf 線源は小型であり可搬性があるため、現場への移動を必要とする中性子ラジオグラフィ検査等用途は広い。 γ 線の放出が他に比べて少なく、物理的形狀が小さい割に中性子の発生が多く、熱の発生も極めて小さく、有害な反応が起きない等の特徴を持つ。

一例として、和田は ²⁵²Cf 中性子線源を利用して可搬型中性子ラジオグラフィ装置を製作している⁶⁾。1 mg の ²⁵²Cf を線源として装置中心に配置し、ダイバージェント (末広がり) 型コリメータで水平方向 2 箇所、垂直下方に 1 箇所中性子ビームを取り出している。線源周りは高密度ポリエチレンで覆われているが、コリメータ先端部はほとんど線源近傍に達しているため減速材というより反射材及び遮蔽材として

利用されている。撮影位置 (線源から 50 cm の位置) での中性子束は $10^3 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度と報告されている。

3. 加速器を利用した中性子源^{4),5)}

RI から放出される質量数の小さい重荷電粒子は α 粒子であるため、陽子、重陽子を入射させる中性子生成の核反応を利用するためには、人工的に加速された粒子を用いるしかない。これらに該当する代表的なものが、D-D 反応及び D-T 反応である。



入射重水素と軽いターゲット原子核との間のクーロン障壁は比較的小さいので、重陽子を極端に高いエネルギーまで加速させる必要はない。このため、これらの核反応は広く加速器を用いる中性子発生装置で使用されている。いずれの核反応の Q 値と比較しても入射粒子のエネルギーは小さいので、生成された全ての中性子はほとんど同じエネルギーを持つ (D-D 反応: 3 MeV 程度, D-T 反応: 14 MeV)。重陽子の 1 mA ビームは十分に厚いデューテリウム (²H) ターゲットから毎秒 10^9 個の中性子を、トリチウム (³H) ターゲットから毎秒 10^{11} 個の中性子を生成する。

負の Q 値や原子番号の大きい元素をターゲットに含む他の荷電粒子入射反応も中性子発生に適用される。⁹Be(d, n), ⁷Li(p, n), ³H(p, n) 等が例として挙げられる。これらの場合、より高い入射粒子エネルギーが要求され、入射粒子ビームを生成するためにサイクロトロンやバンデグラフのような大型の加速器施設が必要とされる。

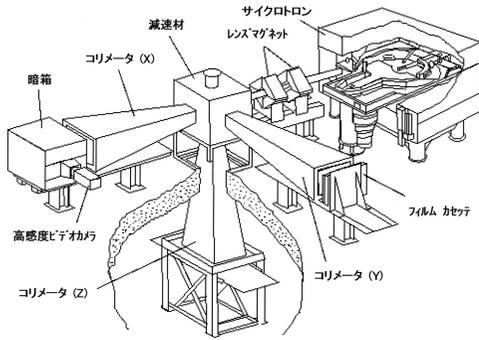


図3 住重試験検査サイクロトロン中性子ラジオグラフィ装置¹⁴⁾

$^3\text{H}(d, n)\text{He}$ 反応を用いる密封管と低電圧加速器、 (X, n) 反応を用いる高エネルギー X 線発生装置、荷電粒子中性子反応を用いるバンデグラフ及びサイクロトロンは、熱中性子ラジオグラフィ用の中性子源として用いられてきた。これらの加速器のターゲットは、中性子を熱エネルギーまで減速させる材料で取り囲まれている。コリメーションする前の加速器線源の熱中性子束は $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度である。

一例として、住重試験検査機製サイクロトロン中性子ラジオグラフィ装置 (図3 参照) を紹介する⁷⁾。サイクロトロンで加速した 18 MeV の陽子を金属ベリリウムに照射して、 $^9\text{Be}(p, n)^9\text{B}$

の核反応によって発生させた高速中性子をポリエチレン製モデレータで熱中性子に変換し、垂直方向のコリメータを通して撮影室に導いている。利用可能な熱中性子束は $10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度と報告されている。

4. 核破碎反応を利用した中性子源^{1), 8), 9)}

核破碎反応とは、約 100 MeV 以上の粒子によって引き起こされる多数の二次粒子放出を伴う非弾性核反応である。図4に核破碎反応の概念図を示す。エネルギーの十分高いハドロン(陽子、中性子等)が物質に入射すると、二つの段階の核反応が起こる。第一段階では、入射粒子が核内の個々の核子(陽子、中性子)と衝突する。入射粒子及び弾き出された核子のエネルギーは高いので、更に衝突を繰り返し、核内カスケードを形成する。入射粒子のエネルギーが約 400 MeV を超えると非弾性パイオン生成衝突が起こり始める。この核外カスケード段階では p, n, π, μ, ν, e の放出があり、励起状態の残留核がつくられる。

核内カスケードが終了すると、系内に留まった核子の持つ運動エネルギーは全ての核子間で平衡に達する。第二段階として残留核からの核子の蒸発が起こる。この段階で放出される $n,$

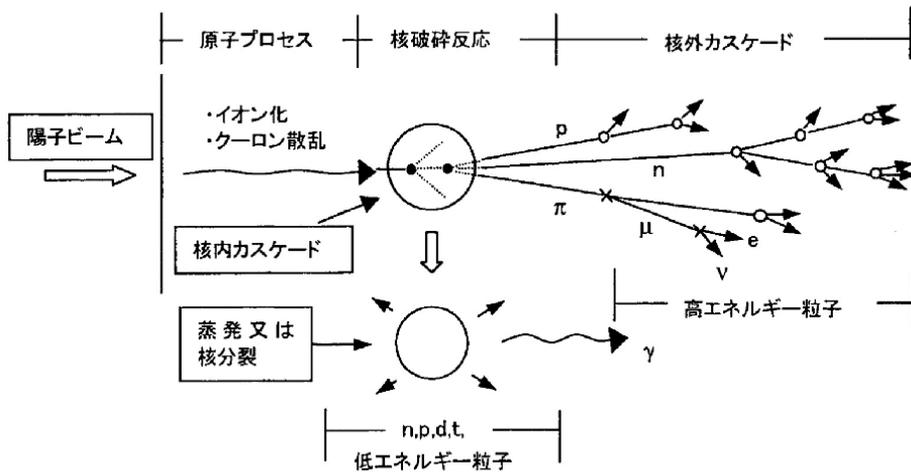


図4 核破碎反応の概念図¹⁾

p, d, tなどの粒子のエネルギーは0.1～10 MeVと低く、等方的角度分布を持つ。核子、特に中性子の放出は、 ^2H , ^3H , ^3He , 更に重い正の電荷を持つ粒子に比べ起こり易い。蒸発荷電粒子はエネルギーが比較的低いので、それ以上核反応を起こすことはほとんどなく、減速し静止する。カスケード過程で出てくる粒子の運動エネルギーは非常に高く、入射エネルギーにまで及ぶ。

一例として、スイスポールシェラー研究所の中性子ラジオグラフィ装置 NEUTRA を紹介する¹⁰⁾。NEUTRA の中性子源は、核破砕中性子源 SINC (Swiss Spallation Neutron Source) である。SINC はサイクロトロンを利用して陽子を 590 MeV まで加速し、直径 2 m の重水タンク中に配置したジルカロイターゲットに当てて中性子を発生させている。NEUTRA 用の中性子ビームは、ターゲット中心から 24 cm 離れた位置に接線方向にコリメータで取り出されている。撮影位置は、ビーム進行方向に距離を変えて取れるが、コリメータ先端部から約 11 m の位置で $4 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度となっている。以上、核破砕中性子源の特徴をまとめると、

- (1) 多数の二次粒子（特に中性子）が放出されるので、陽子 1 個あたりの中性子収量が大きい。したがって、エネルギーコストが他の核反応を利用した場合に比べ最も小さい。
- (2) 15(20) MeV 以上の高エネルギー中性子の発生を伴う。高エネルギー中性子のスペクトルは入射陽子エネルギーに近い値まで及び、原子炉に比べ遮へいが困難である。
- (3) 熱外中性子の強度が原子炉に比べはるかに高い。
- (4) γ 線の発生が、電子線加速器を用いる中性子源や原子炉に比べ非常に少ない。核破砕反応では 0.01 photons $\text{n}^{-1} \text{str}^{-1}$ 程度なので、電子線による (γ, xn) 反応の約 1/1 000, 原子炉と比べても 1/10 以下である。冷中性子源(後述)としての冷減速材の冷却に大きな利点となる。

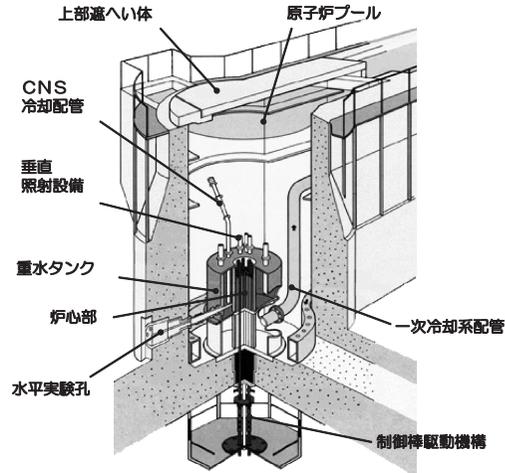


図5 研究用原子炉 JRR-3 炉心プール鳥瞰図

5. 原子炉中性子源^{2), 5), 11)}

原子炉は中性子強度が高いことから、中性子ラジオグラフィ用として最適な中性子源である。中性子強度が高いため、コリメートした場合でも十分な強度を有した中性子ビームが得られる。更に、比較的短い照射時間で高解像ラジオグラフィを生成し得る。一方、不利な点は、設置及び運転にかかる経費が高いこと、可搬性の欠如、核燃料物質を使用することから国による厳格かつ複雑な規制の影響を受ける点である。

^{235}U 1 個の核分裂によって平均 2～3 個の中性子が放出される。発生する中性子のエネルギースペクトルはおおよそ 1 MeV にピークを持っており、1 回の核分裂で発生するエネルギーは約 200 MeV である。したがって、1 MW の出力で毎秒 3.1×10^{16} の核分裂が起きる。原子炉では臨界を維持するために、常にある一定割合の中性子が次の核分裂を引き起こすために使用される。したがって、発生する中性子のうち実際にビーム実験に供されるのは、その一部で、速中性子で $2.5 \times 10^{16} \text{ n s}^{-1} \text{ MW}^{-1}$ 程度となる。

一例として、JRR-3 熱中性子ラジオグラフィ装置を紹介する¹²⁾。JRR-3 は、低濃縮ウラン・シリコン分散型燃料を用いた熱出力 20 MW の

研究用原子炉（図5参照）である。冷却材と減速材を兼ねた軽水及び反射材の重水により炉心中心部の熱中性子束は $10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ を超えている。中性子ラジオグラフィ装置へは、等価直径約 60 cm の炉心を取り巻く厚さ 75 cm の重水タンク中に、炉心に接線方向となるようコリメータを配置して、熱中性子ビームを取り出している。コリメータ先端部から約 7 m 離れた撮影位置での、熱中性子束は $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ を超えている。

核分裂により発生した中性子は、中性子イメージングに最適な熱中性子エネルギー（～ 25 meV）領域より高いエネルギーを有しているため、減速材中で衝突を繰り返させ熱平衡状態に達してから使用する。減速材としては、中性子との弾性衝突により効率的に中性子のエネルギーを奪う一方で、吸収により強度を減少させてはならない。一般的には、水素を多く含む軽水、重水、ポリエチレンやグラファイト等が減速材として用いられる。おおまかな厚さとしては、中性子源の大きさにも依存するが、数十 cm から 1 m 程度である。熱平衡状態の中性子エネルギー分布はほぼマクスウェル分布をとる。速度 v と $v+dv$ の間にある中性子数 (ndv) は、マクスウェル分布則より、

$$ndv = \frac{4N}{v_0^3 \sqrt{\pi}} v^2 e^{-v^2/v_0^2} dv \quad (1)$$

となる。ここで、 N は中性子の総数、 v_0 は最大分布をとる中性子速度であり、減速材の温度を T とすると

$$v_0 = \left(\frac{2 k_B T}{m} \right)^{1/2} \quad (2)$$

で与えられる。 k_B はボルツマン定数である。これから中性子線束の分布 ϕdv は

$$\phi dv = \frac{4N}{v_0^3 \sqrt{\pi}} v^2 e^{-v^2/v_0^2} dv \quad (3)$$

である。

6. 中性子源に付随して使用するもの^{5),13)}

ここまで、中性子の発生源という観点で説明してきたが、中性子イメージングでは、そのままの中性子を使用するのではなく、付随した装置を利用するケースが多い。ここでそれらについて簡単に紹介する。

6.1 中性子増強装置（フィッションコンバータ）

不足する中性子強度を増強させるために、核分裂反応を利用した中性子増強装置が用いられる。例えば、1 mg の ^{252}Cf を、1.4 g の ^{235}U (93.4%) と減速材（ポリエチレン）を組み合わせ 33 mg の ^{252}Cf と同等の中性子を得る。熱中性子束で $4 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、速中性子束で $6 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の中性子源となる。入射中性子による核分裂反応で発生中性子数を増倍させることから、フィッション（核分裂）コンバータと呼ばれる。

6.2 フィルタ（ベリリウム、黒鉛）

中性子ラジオグラフィでは熱中性子を用いる場合がほとんどであるが、ベリリウムや黒鉛等の結晶性フィルタを用いると、熱中性子より約 1 桁低いエネルギーの冷中性子成分を熱中性子成分から分離できる。例えば、10～30 cm 長さの金属ベリリウムは 0.5～5 meV の冷中性子を選択的に良く透過する。低エネルギーの中性子ビームを利用することにより、熱中性子ビームを用いる場合よりもコントラストの高い透過画像が得られる。

6.3 冷中性子源及び高温中性子源

減速材の温度を冷中性子に相当する温度、すなわち 10～50 K にして減速中性子の大部分を冷中性子にしようという装置が冷中性子源である。冷中性子源の利点は、低エネルギー中性子に対し増倍利得が得られるとともに、熱中性子等の相対的に高いエネルギー領域の中性子が減少することにある。フィルタを用いる場合は、

元々の中性子ビームに含まれる低エネルギー成分を抽出するだけで増倍利得はない。用いる冷減速材には、中性子を効果的に減速させ、かつ原子炉内等の強い放射線場でも長時間安定に使用できる特性が必要とされる。主な冷減速材としては、液体水素及び液体重水素があり、その優れた耐放射線性能と中性子減速能力から、多くの冷中性子源で利用されている。一方、冷中性子源とは逆に、減速材の温度を上げて、中性子を熱中性子エネルギー領域まで減速させずに熱外中性子 (eV ~ keV) の強度を上げたグラフアイト減速体を用いた高温中性子源があるが、中性子ラジオグラフィで利用される例はほとんどない。

7. ま と め

中性子イメージングで用いられる中性子源は多様であり、その特徴がイメージング装置の設計に反映されている。これまでの中性子源の変遷は強度重視であり、高出力の研究用原子炉がこれを支えてきた。しかしながら、原子炉中性子源での中性子源強度はほぼ限界に達しており、新たな大強度中性子源として核破砕中性子源が登場してきた。その最大の特徴は、パルス中性子源としての極めて高いピーク強度である。今後、この特徴を活かしたイメージング装置の実

現が期待される。

文 献

- 1) 水本元治, 中性子源概論, 中性子利用実験入門講座講義及び実習テキスト, 1-11, (独)日本原子力研究開発機構原子力研修センター(2006)
- 2) 森井幸夫, 一色正彦, *RADIOISOTOPES*, **45**, 717-721(1996)
- 3) 石川 勇, *RADIOISOTOPES*, **45**, 646-651(1996)
- 4) Knoll, G. F., Radiation Detection and Measurement, 2nd ed., Wiley, New York(1989)
- 5) Domanus, J. C., ed., Practical Neutron Radiography, Kluwer Academic Publishers(1992)
- 6) Wada, N., Neutron Radiography(2), pp.223-230, D. Reidel Publishing Co.(1987)
- 7) 西原善明, 垂水裕司, 尾崎正和, 柿平将次, 田沢修一, 中新威彦, 原子力工業, **41**(2), 60-62(1995)
- 8) 渡辺 昇, JAERI-Review, 2000-031
- 9) 鬼柳善明, *RADIOISOTOPES*, **45**, 722-726(1996)
- 10) Lehmann, E., Pleinert, J. and Wiezel, L., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **A377**, 11-15(1996)
- 11) 星埜禎男, 国富信彦, 渋谷 巖, 浜口由和: 実験物理学講座 22 中性子回折, 共立出版株式会社, 66-74(1976)
- 12) Matsubayashi, M., Kobayashi, H., Hibiki, T. and Mishima, K., *Nucl. Technol.*, **132**, 309-324(2000)
- 13) 宇津呂雄彦, *RADIOISOTOPES*, **45**, 727-732(1996)