



JAEA-Research

2006-016



JP0650300

## ビーム状DT中性子を用いた荷電粒子放出二重微分 断面積測定手法の開発(協力研究)

Development of Measurement Technique for Charged-particle Emission  
Double-differential Cross Section using Pencil-beam Neutron Source  
(Cooperative Research)

近藤 恵太郎\* 落合 謙太郎 久保田 直義 西谷 健夫  
村田 敦\* 宮丸 広幸\* 高橋 亮人\*

Keitaro KONDO\*, Kentaro OCHIAI, Naoyoshi KUBOTA, Takeo NISHITANI  
Isao MURATA\*, Hiroyuki MIYAMARU\* and Akito TAKAHASHI\*

核融合研究開発部門  
核融合中性子工学研究グループ

Fusion Neutronics Group  
Fusion Research and Development Directorate

March 2006

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に刊行している研究開発報告書です。  
本レポートの全部または一部を複写・複製・転載する場合は下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課

Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

This report was issued subject to the copyright of Japan Atomic Energy Agency.  
Inquiries about the copyright and reproduction should be addressed to :

Intellectual Resources Section,

Intellectual Resources Department

2-4, Shirakata-shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, JAPAN

Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

©日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2006

ビーム状 DT 中性子を用いた荷電粒子放出二重微分断面積測定手法の開発  
(協力研究)

日本原子力研究開発機構 核融合研究開発部門  
核融合エネルギー工学研究開発ユニット

近藤 恵太郎<sup>\*1</sup>、落合 謙太郎、久保田 直義<sup>\*</sup>、西谷 健夫  
村田 獑<sup>\*2</sup>、宮丸 広幸<sup>\*2</sup>、高橋 亮人<sup>\*2</sup>

(2006年1月30日受理)

核融合炉における核発熱、照射損傷の評価に必要となる荷電粒子放出二重微分断面積の精密測定のため、従来の測定手法の欠点を克服する測定手法を開発した。日本原子力研究開発機構 核融合中性子工学用中性子源施設 FNS のペンシルビーム状中性子源とシリコン半導体検出器によるカウンターテレスコープ法を用いることで、良好な S/N 比、エネルギー分解能、角度分解能、粒子弁別能、幅広い測定エネルギー範囲を現実的な測定時間の基で達成できる。この手法を用いて、<sup>27</sup>Al からの放出α粒子測定と水素の弾性散乱による反跳陽子測定を行った。これらの測定結果に基づいて、本測定手法の妥当性と優位性を結論した。

---

本研究は大阪大学との協力研究のもと実施された。

那珂核融合研究所（駐在）：〒311-0193 茨城県那珂市向山 801-1

※ 博士研究員

\*1 大阪大学（平成 16、17 年度特別研究生）

\*2 大阪大学

Development of Measurement Technique for Charged-particle Emission Double-differential Cross Section  
using Pencil-beam Neutron Source  
(Cooperative Research)

Keitaro KONDO\*, Kentaro OCHIAI, Naoyoshi KUBOTA\*, Takeo NISHITANI  
Isao MURATA\*, Hiroyuki MIYAMARU\* and Akito TAKAHASHI\*

Division of Fusion Energy Technology  
Fusion Research and Development Directorate  
Japan Atomic Energy Agency  
Naka-shi, Ibaraki-ken

(Received January 30, 2006)

Charged-particle emission double- differential cross section (DDXc) is quite important to estimate nuclear heating, material damages of a fusion reactor. We have developed a new technique for detailed measurement of DDXc. The technique overcomes fundamental difficulties of DDXc measurement with a pencil-beam neutron source and a counter telescope consisting of silicon surface barrier detectors. A superior S/N ratio, fine energy and angular resolutions, a wide detection energy range, and an excellent particle discrimination are realized together with a reasonable measurement time. In order to confirm the validity of the spectrometer, measurements of the emitted  $\alpha$ -particle from  $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{x}\alpha)$  reaction and the recoiled proton from  $^1\text{H}(\text{n},\text{n})$  reaction are carried out. Based on the results, we conclude the validity and the superiority of the present spectrometry technique.

Keywords: Cross Section, DT Neutron, Fusion Reactor, Charged-particle Spectrometer, Surface Barrier Detectors, Counter Telescope

---

This work was performed as a cooperative research with Osaka University.

\* Post-Doctoral Fellow

\* Osaka University

## 目次

1. 序論.....	1
2. 測定装置.....	3
2. 1 ビーム状中性子源 .....	3
2. 2 荷電粒子検出器.....	4
2. 3 低エネルギー $\alpha$ 粒子測定.....	5
2. 4 実験配置.....	6
2. 5 測定回路.....	7
2. 6 角度分解能と立体角.....	7
3. 準正計算とデータ処理.....	9
3. 1 応答関数.....	9
3. 1. 1 放出スペクトルと測定スペクトルの関係.....	9
3. 1. 2 応答関数の評価 .....	11
3. 1. 3 応答関数の特徴 .....	12
3. 2 Spectrum Unfolding .....	13
3. 2. 1 Bayes 統計的手法による Spectrum unfolding .....	13
3. 2. 2 スペクトル型 Bayes 推定法 .....	14
3. 3 断面積の絶対値化 .....	16
3. 4 誤差の評価 .....	17
4. 測定結果と考察 .....	19
4. 1 粒子弁別.....	19
4. 2 エネルギー分解能 .....	20
4. 3 アルミニウムからの放出 $\alpha$ 粒子測定 .....	20
4. 3. 1 測定エネルギースペクトルの導出 .....	20
4. 3. 2 二重微分断面積(DDX).....	21
4. 3. 3 角度微分断面積(ADX)および全反応断面積(TOX).....	22
4. 4 水素からの反跳陽子測定 .....	22
4. 4. 1 エネルギー分布と角度分布 .....	22
4. 4. 2 標準断面積としての利用 .....	23
4. 5 バックグラウンド成分の検討.....	24
5. 結論.....	26
謝辞.....	27
参考文献.....	28

## Contents

<b>1. INTRODUCTION .....</b>	<b>1</b>
<b>2. EXPERIMENTAL.....</b>	<b>3</b>
2. 1 Pencil-beam DT neutron source.....	3
2. 2 Charged-particle detectors .....	4
2. 3 Low energy $\alpha$ -particle measurement .....	5
2. 4 Experimental instruments .....	6
2. 5 Electronic circuits .....	7
2. 6 Angular resolution and solid angle .....	7
<b>3. DATA ANALYSIS .....</b>	<b>9</b>
3. 1 Response function.....	9
3. 1. 1 Relation between emitted spectrum and detected spectrum .....	9
3. 1. 2 Response function calculation .....	11
3. 1. 3 Feature of response function.....	12
3. 2 Spectrum unfolding .....	13
3. 2. 1 Spectrum unfolding based on Bayes Theorem.....	13
3. 2. 2 Spectrum type Bayes estimation method .....	14
3. 3 Derivation of cross sections .....	16
3. 4 Error estimation .....	17
<b>4. RESULTS AND DISCUSSION.....</b>	<b>19</b>
4. 1 Particle discrimination .....	19
4. 2 Energy resolution.....	20
4. 3 Alpha-particle measurement for aluminum .....	20
4. 3. 1 Energy spectrum .....	20
4. 3. 2 Double-differential cross section (DDX) .....	21
4. 3. 3 Angular-differential cross section (ADX) and Total reaction cross section (TOX).....	22
4. 4 Recoiled proton measurement for hydrogen.....	22
4. 4. 1 Energy and angular distribution .....	22
4. 4. 2 Use for standard cross section.....	23
4. 5 Background component and S/N ratio .....	24
<b>5. CONCLUSIONS.....</b>	<b>26</b>
<b>ACKNOWLEDGEMENTS .....</b>	<b>27</b>
<b>REFERENCES .....</b>	<b>28</b>

## 1. 序論

現在研究開発が進められている D(重水素)-T(三重水素)反応(DT反応)を利用した核融合炉では、およそ 14 MeV のエネルギーを持つ中性子が大量に発生する。核融合炉をエネルギー源として用いるには、DT 中性子を減速させ熱を取り出す工夫が必要になる。DT 炉ではエネルギーキャリアである中性子と二次 $\gamma$ 線の飛程が非常に長く、荷電粒子を生じて発熱する反応の種類も多岐にわたるため、発熱分布の計算は核分裂炉に比べてより複雑となる。DT 中性子の相互作用としては、弾性散乱・非弾性散乱の他に反応しきいエネルギーの高い(n,2n)・(n,p)・(n, $\alpha$ )等の核反応が可能となり、放出される反跳原子や二次荷電粒子が発熱を生じる。また核反応による生じる二次 $\gamma$ 線は、光電効果、コンプトン散乱、電子対生成により電子の運動エネルギーに変換されて発熱する。中性子による発熱を計算するには、これらの核反応全てについてミクロ断面積と放出粒子のエネルギー分布が必要となる。これらは二次荷電粒子と二次 $\gamma$ 線に対する二重微分断面積(Double-differential cross section, DDX)から計算することができる。

一方、炉材料の中性子照射損傷の観点では、プラズマに対向する第一壁で  $10^{14}$  [n/cm<sup>2</sup>/s]以上、ブランケット領域で  $10^{12} \sim 10^{14}$  [n/cm<sup>2</sup>/s]の中性子束に材料が晒されると考えられている。この数字は核分裂炉と比較して一桁以上高く、中性子のエネルギーも高いことから人類がかつて経験したことのない過酷な照射環境におかれることになる。核反応に伴って高エネルギーの反跳原子(Primary knock-on atom, PKA)によるはじき出し損傷がおこる。また、(n,p)・(n,d)・(n, $\alpha$ )反応等のガス生成による損傷も問題となる。これら材料損傷の評価のために必要な反跳原子スペクトル(PKA スペクトル)、原子空孔生成率(Displacement per atom, DPA)、ガス生成率(Gas production per atom, GPA)を計算するためには、同様に二重微分断面積が必要となる。

このように二重微分断面積は中性子によって引き起こされる物理挙動を正確に把握するために重要な役割を担うデータである。二次中性子放出二重微分断面積(Neutron emission DDX, DDXn)は 1970 年代後半に高エネルギー中性子の輸送計算に不可欠であることが指摘され<sup>1)</sup>、以降核融合炉の核特性評価のために精力的な測定が行われた。特に 80 年代に大阪大学オクタビアン、東北大学ダイナミトロンで測定されたデータは世界的な標準データとして核データの評価や実験解析に用いられている<sup>2,3)</sup>。また核反応理論の観点では、14 MeV 中性子の引き起こす核反応では直接過程や前平衡過程の寄与が大きくなる。実験データはこれらの理論の進展にも寄与した。

一方で、二次荷電粒子放出二重微分断面積(Charged-particle emission DDX, DDXc)のデータ整備は進んでいない。荷電粒子放出反応の断面積は比較的小さく、等方中性子源を用いた実験では周囲の構造材の高いバックグラウンドに晒されるため、測定はかなり長時間にわたる困難なものとなる。1960～80 年代に、核物理学の分野において先駆的な実験例があるが、主に直接過程非弾性散乱による離散ピークに注目した実験であり、全エネルギーの放出スペクトルを得ることを目的とした測定は行われていない<sup>4-6)</sup>。中重核については、Grimes らによる四重極レンズ付きスペクトロメータを用いた測定<sup>7)</sup>、伊藤らによるグリッド付き電離箱を用いた測定<sup>8)</sup>、大阪大学 OKTAVIAN における E-TOF 法による測定<sup>9,10)</sup>などが行われており、Z>20 の核融合炉候補材の荷電粒子放出 DDX は充足してきた。

しかし、ベリリウムやリチウムなど、核融合炉で大量に使用することが予定されている軽元素に対しての系統的な測定はこれまで行われていない。大きな理由の一つは軽元素の核反応の複雑さにある。中重核の荷電粒子放出反応は平衡過程が支配的となり、放出荷電粒子のエネルギースペクトルはマクスウェル分布に従う蒸発スペクトルに近いものとなる。このため、エネルギー分解能がそれほど問題となることなく測定を行うことができた。また角度分布も 90 度対称に近いものとなる。しかし、軽元素の核反応は直接過程の寄与が支配的となり、放出エネルギースペクトルと角度分布は複雑な構造を持つ。さらに逐次・同時ブレークアップ反応が起こると、様々な荷電粒子がほぼゼロエネルギーまでの連続スペクトルで放出される。従来の測定手法はこのような条件下での詳細測定を行うのに十分な性能を有しておらず、軽元素に対し広いエネルギー範囲で満足のできる測定データは得られなかった。もう一つの理由は、工学的に薄い単体サンプルの入手が困難な核種についての測定手法が確立されていなかったためである。厚いサンプルを利用した測定ではサンプル内での荷電粒子のエネルギー損失の厳密な補正を必要とし、またやむを得ず化合物を利用する際はその影響も考慮する必要がある。

本研究では、軽元素を中心とした核融合炉候補材料の精密 DDXc 測定を可能にするため、これまでの手法の欠点を克服した新しい測定手法の構築に取り組んだ。本測定手法の最も重要な特徴は、後述のペンシルビーム状中性子源を用いることで従来の測定における S/N の悪化を本質的に解決している点である。本測定手法によって高い S/N 比、良好なエネルギー分解能、広い測定エネルギー範囲、良好な粒子弁別能と現実的な測定時間が両立される。ここでは実験手法と解析手法の双方の詳細について述べる。測定手法の妥当性を評価するため、標準断面積として信頼性の高いアルミニウムの  $\alpha$  粒子放出断面積と水素の弾性散乱による反跳陽子の測定を行った。測定結果に基づいて、本測定手法の妥当性と優位性について議論する。

## 2. 測定装置

### 2. 1 ビーム状中性子源

実験は日本原子力研究所核融合中性子工学用中性子源施設（FNS）において行った。FNS は核融合プランケット実験、遮蔽実験を行うための強力 DT 中性子源であり、重水素イオンを 400 keV に加速し、トリチウムと衝突させ DT 反応を起こすことで 14 MeV 中性子を発生させている。トリチウムターゲットは厚さ 1 mm の銅板に金属チタンを厚さ 7  $\mu\text{m}$  で蒸着し、そこにトリチウムガスを吸収させている。FNS 施設の鳥瞰図を Figure 1 に示す。FNS は大型の回転型トリチウムターゲットを使用する 0 度ビームラインと、小型の固定トリチウムターゲットを使用する 80 度ビームラインの 2 本のビームラインを備えている。0 度ビームラインではターゲット表面を水冷し、半径 310 mm の大口径ターゲットを約 1500 rpm で高速回転させ、温度上昇を抑えてトリチウムの放出を防いでいる。さらにターゲット表面のビームスポット位置を変化させるための首振り機構を備えている。本研究では 0 度ビームラインで発生した中性子をビーム状にコリメートしたもの用いた。中性子は FNS の第 2 ターゲット室で発生するが、これを隣接した第 1 ターゲット室との間のコンクリート壁に埋め込まれた、直径 2 cm の貫通孔がある厚さ 2 m の遮蔽体で遮蔽することにより、4 $\pi$ 方向に発生した中性子をペンシルビーム状にする。遮蔽体の構造および中性子源の配置を Fig.2 に示す。遮蔽体は鉄、ポリエチレン、カドミウム、鉛が層状に重ねられて構成されており、14 MeV 中性子を適切に遮蔽できる設計となっている。14 MeV 中性子はまず鉄との非弾性散乱によりエネルギーを失う。中性子の減速能が一番大きいのは水素化合物であるが、14 MeV という高エネルギーの中性子はむしろ水素より原子番号の大きい物質との(n,ny)、(n,n'γ)反応により減速させる。減速された中性子はその後方に設置されているポリエチレン中の水素との弾性散乱によりさらに減速され熱中性子化される。ホウ素添加ポリエチレンと通常のポリエチレンが交互に配置され、中性子遮蔽効果を高めている。さらに熱中性子吸収断面積の大きいカドミウムがポリエチレン後方に配置され、熱中性子は吸収される。(n,γ)反応からのγ線は鉛によって遮蔽される。鉛はステンレス鋼 SUS304 によって封入される構造となっている。

ビーム状中性子の特性は過去に坂根らによって詳細に研究されている<sup>11)</sup>。ビーム孔出口付近の中性子ビーム特性が箔放射化法によって測定され、ビーム中心から 10 mm までは一様な中性子束を示し、その外側では高速中性子束は極めて小さいことが示された。またビーム出口からの距離によるビーム拡がり特性がイメージングプレートにより測定されている。拡がりはコリメータの幾何学的な配置による拡がりにほとんど一致するとの結果が得られている。中性子のエネルギーはコリメータが設置されて以降実験的には測定されていないが、運動力学に基づき、ターゲット表面のチタン層での入射重陽子の減速を考慮してビーム方向の中性子エネルギーを計算すると、 $14.20^{+0.09}_{-0.05}$  MeV (FWHM) となる。なお d(t,n)α 反応の断面積は ENDF-B/VI<sup>12)</sup>の評価値を用いて計算した。本稿では入射中性子のエネルギーとして 14.2 MeV を用い、評価済み核データも全てこの中性子エネルギーでの評価値を用いている。

筆者らはビーム孔の中性子スペクトル計算を MCNP-4C2<sup>13)</sup>を用いて行った。第 1、2 ターゲット室全体とトリチウムターゲットの銅板、冷却水、冷却水カバーとトリチウムターゲットを支える

コーン部分、プリコリメータ、遮蔽体の内部を正確にモデル化し、計算を行った。得られた中性子スペクトルをFig.3に示す。ここではビーム中心部分におけるスペクトルとビーム中心から5 cm離れた点でのスペクトルを示している。坂根らの得た結果と比較すると1 MeVより上のエネルギー領域の構造が異なっているが、この構造は水冷トリチウムターゲットでの散乱の影響によるものである。この散乱成分の強度はピークより4桁程度低く、実験において問題となるものではない。熱中性子領域の成分は深層透過成分であるが、ターゲットでの中性子の発生量が $10^{12} [\text{n}/\text{s}/\text{cm}^2]$ オーダーであるから、計算結果は深層透過成分がほとんど存在しないことを示している。ビーム出口での中性子束は通常 $1 \times 10^6 [\text{n}/\text{cm}^2/\text{s}]$ 程度であるが、この時ビーム外側の散乱中性子の高速成分は最大で $5 \times 10^2 [\text{n}/\text{s}/\text{cm}^2]$ 程度であり、等方中性子源を利用した場合に比べて非常に小さい。これにより、照射試料の非常に近くに検出器を遮蔽することなく配置することができる。また、バックグラウンドとなる荷電粒子はほぼ完全に抑制され、結果として著しいS/Nの向上が実現された。

## 2. 2 荷電粒子検出器

核反応によって放出される荷電粒子の測定では、競合する核反応によって放出される複数の種類の荷電粒子(proton, deuteron, triton,  $\alpha$ -particleなど)を弁別する必要がある。粒子弁別を行うにはいくつかの方法があり、粒子の質量の違いから生じる飛行時間の違いを利用する方法、シンチレーターなどの応答の立ち上がり時間の違いを利用する方法などが考えられるが、本研究ではE- $\Delta E$  カウンターテレスコープと呼ばれる手法を用いた<sup>14)</sup>。これは、荷電粒子の質量と電荷の違いによって物質中の阻止能が異なることを利用し、厚さの異なる二つの検出器に付与するエネルギーの割合の違いによって荷電粒子を弁別する手法である。この場合、前方の検出器は粒子が透過できる阻止能の小さいものにしておき(エネルギーの一部を付与するため $\Delta E$  検出器と呼ばれる)、後方の検出器に残りのエネルギーが付与される(E 検出器と呼ばれる)。粒子のエネルギーや検出器の阻止能によって複数の $\Delta E$  検出器を組み合わせる場合も多い。よく用いられるのは透過型の表面障壁型シリコン半導体検出器(Surface barrier type silicon solid state detector)を複数組み合わせたものである。

E- $\Delta E$  カウンターテレスコープは複数の検出器で同時計数をとるので、測定下限エネルギーは $\Delta E$  検出器を透過できるかどうかで決まる。このエネルギーは半導体検出器の場合結晶の厚さに依存するが、極端に薄い検出器は製造が困難なために高価である。このため特に低エネルギーの $\alpha$ 粒子のような飛程の短い荷電粒子の測定には、ガス比例計数管を $\Delta E$  検出器として用いる場合も多い。シリコン半導体検出器はエネルギー分解能に優れているが、中性子場においては検出器内で生ずる Si(n,xp)、Si(n,x $\alpha$ )反応によるバックグラウンドが問題となる。またこれらの反応によって生じる照射欠陥は検出器の特性を悪化させ、線量によっては致命的なダメージを与えてしまう。高中性子場での使用では短期間の照射での交換が必要になり、また異なる種類の検出器と同時計数を行うなどバックグラウンドを低減する工夫が不可欠である。しかし、本研究ではビーム状中性子源の利用により検出器付近の散乱中性子線量を極めて低く抑えることができ、シリコン半導体検出器による E- $\Delta E$  カウンターテレスコープを特別な工夫なく用いることが可能になった。本研究に用いたシリコン半導体検出器の特性をTable 1に示す。また今回用いている $9.6 \mu\text{m}$ 及び $20$

$\mu\text{m}$  の $\Delta E$  検出器を用いた場合のそれぞれの荷電粒子に対する測定下限エネルギーを Table 2 に示す。エネルギーキャリブレーションは $^{241}\text{Am}$  線源からの 5486 keV  $\alpha$ 線を用いて行った。 $\alpha$ 粒子についてはできる限り低いエネルギーまで測定を行うため、ORTEC 社製の結晶厚さ 9.6  $\mu\text{m}$  の極めて薄い $\Delta E$  検出器を用いた。検出器の写真を Fig. 4 に示す。測定においては検出器が試料を見る立体角を定めるために、直径 9.0 mm 径のタンタル製アーチャを $\Delta E$  検出器の前方に設置している。

## 2. 3 低エネルギー $\alpha$ 粒子測定

従来の荷電粒子放出微分断面積の測定では、測定下限エネルギーは 3~4 MeV 程度が限界であった。前述した 9.6  $\mu\text{m}$  の $\Delta E$  検出器を用いた場合、コインシデンス測定による $\alpha$ 粒子に対しての測定下限エネルギーは 2.5 MeV 程度であり、従来手法より広い測定エネルギー範囲を実現している。しかし軽核の核反応からの放出荷電粒子測定を考えたとき、これは依然不満足な数値である。なぜならブレークアップ反応では放出される荷電粒子は低エネルギーまで広がる連続スペクトルとなるからである。正確な DDXc 評価のためには測定下限エネルギーをさらに引き下げたい。そこで、ここではこの問題を解決する試みについて述べる。

前述した通り、コインシデンス測定を行った場合測定下限エネルギーは $\Delta E$  検出器を透過できる下限エネルギーとなる。今回、 $\Delta E$  検出器を透過できない低エネルギー $\alpha$ 粒子のスペクトルとして、 $\Delta E$  検出器のアンチコインシデンススペクトルを利用する考えた(Fig. 5)。

アンチコインシデンス計数される粒子は 2 つの検出器に同時に検出されない粒子であるから、そのイベントの起因ごとに次のように分類できる。

1. 熱雑音などに起因するノイズ信号。
2.  $\Delta E$  検出器から E 検出器に幾何学的に到達できなかつたもの。 $\Delta E$  検出器中でのストラグリングによって大きく方向が曲げられた場合。またはラザフォード後方散乱された場合。
3. 検出器内での  $\text{Si}(n,xp)$ 、 $(n,x\alpha)$  反応によって生じる荷電粒子によるカウント。ただし検出器内で生じた荷電粒子が検出器外へ飛び出して E 検出器に入射し、コインシデンス測定される場合は除く。
4.  $\Delta E$  検出器で止まってしまう低エネルギー荷電粒子。透過下限エネルギー以下のあらゆる種類の荷電粒子が含まれる。

$\Delta E$  検出器を透過できない低エネルギー $\alpha$ 粒子のカウントは上記の 4 に含まれている。 $\alpha$ 粒子以外の寄与を取り除くことができればこのスペクトルを低エネルギー側のスペクトルとして使用できることになる。この可能性について考察する。まず上記の 1 は低波高の信号に限られるので識別できる。2 については計算によって定量的に予測でき、その確率は非常に小さい。3 については、 $\alpha$ 粒子測定用に用いる $\Delta E$  検出器の厚さは 9.6  $\mu\text{m}$  と非常に薄く結晶体積が小さい。また散乱中性子の強度も 2.1 節で示したように小さいため、 $\text{Si}(n,xp)$ 、 $(n,x\alpha)$  反応によるバックグラウンドはかなり少なくなると予想される。しかし、その量によってはバックグラウンドスペクトルの測定を行

い、それを差し引く必要があるだろう。残るのは  $\alpha$  粒子以外の寄与である。今回用いる  $9.6 \mu\text{m}$  厚さの  $\Delta E$  検出器の場合、Table 2 に示したように proton のエネルギー付与は最大  $750 \text{ keV}$  程度、triton のエネルギー付与は最大  $1000 \text{ keV}$  程度となり、このエネルギーより上のアンチコインシデンススペクトルは  $\alpha$  粒子より重い荷電粒子のみとなる。厳密には  $^3\text{He}$  粒子はこの間のエネルギー領域に現れるが、 $14 \text{ MeV}$  中性子による核反応で  $^3\text{He}$  粒子を放出する断面積は非常に小さく、ここでは無視して良い。従って、 $\alpha$  粒子より重い荷電粒子が全く放出されないか、これらの寄与を計算などで補正できれば  $\Delta E$  検出器のアンチコインシデンススペクトルを低エネルギー  $\alpha$  粒子のスペクトルとして利用できると結論できる（軽核の核反応では  $^6\text{He}$  や  $^7\text{Li}$  などの重荷電粒子、測定試料自体が反跳される可能性があり、これらの寄与は厳密に補正を行う必要がある）。

## 2. 4 実験配置

Fig. 6 に実験体系の模式図を示す。荷電粒子は大気圧中では直ちにエネルギーを失い停止してしまうので、測定は真空容器中で行う必要がある。本研究ではビーム状中性子の出口に真空チャンバーを配置し測定を行った。実験に用いた真空チャンバーの写真を Fig. 7 に示す。チャンバーは内径  $400 \text{ mm}$ 、高さ  $300 \text{ mm}$  の SUS304 製である。中性子導入用のフランジが備え付けられており、荷電粒子放出断面積の評価値が最も小さい元素の 1 つであるタンタル板がアラルダイトで接着され、中性子の散乱を最小限に防ぎながら真空を保つように設計されている。proton の測定においては真空チャンバー外から弾性散乱で飛来する高エネルギーの proton がバックグラウンドとして問題となる。これを封じるために中性子入射側のタンタル厚さは  $14 \text{ MeV}$  の proton を完全に止めることができる  $500 \mu\text{m}$  のものを用いている。出口側の厚さは  $100 \mu\text{m}$  である。この真空チャンバーの中央に測定サンプルを設置し、中性子を照射して放出される荷電粒子をチャンバー内に設置した検出器で測定する。サンプルホルダーは回転導入端子が装備され、真空を破ることなく複数サンプルを照射することができ、また中性子入射方向に対する角度を変えることができる。ビーム出口から真空チャンバー中心までの距離は  $90 \text{ cm}$  とした。この時中性子源からサンプル位置までの距離は  $440 \text{ cm}$  となる。この距離は検出器位置での散乱中性子束を  $50 [\text{n/s/cm}^2]$  程度に抑えるための条件であり、詳細は 4.5 節で述べる。荷電粒子検出器はチャンバー内の回転架台に固定され、こちらも真空を破ることなく検出角度を変えることができる。

今回測定対象とする  $14 \text{ MeV}$  程度の荷電粒子に対しては、 $1 \text{ Pa}$  程度まで減圧すれば荷電粒子のエネルギー損失は十分無視することができる。この程度の真空度を達成するにはオイルロータリーポンプで十分であるが、オイルポンプは限界真空度で長時間排気を続けるとオイルが真空チャンバー内に拡散し、検出器や試料表面に付着する。この不純物オイルが proton のバックグラウンドをもたらすため、本研究ではターボ分子ポンプとオイルフリースクロールポンプを利用した。

真空チャンバーの後方には、サンプルに入射した中性子フラックスをモニタするため、 $^{238}\text{U}$  Fission Chamber を設置した。

## 2. 5 測定回路

本手法ではコインシデンス測定が必要で、なおかつ粒子弁別のためにエネルギー相関を記録しておく必要がある。このため測定には2次元マルチチャンネルアナライザ（以下、2D-MCA）を用いた。実験に用いたのはFast Comtec社製MPA-3である。この製品は最大16chのADC(Analog to Digital Converter)を接続し、8系統のコインシデンス測定を行うことが可能である。

半導体検出器を用いた荷電粒子計測には通常複雑な測定回路は必要なく、プリアンプとリニアアンプがあればエネルギースペクトル測定が可能である。しかし、今回の測定ではΔE検出器のアンチコインシデンススペクトルを測定する。このため、同時計数のためのゲート信号を作り、この信号をリニアゲートに入れてコインシデンス波高信号とアンチコインシデンス波高信号を作った。2D-MCAに直接信号を入れることでコインシデンス測定を行うこともできるが、あえて外部でゲートをかけるのは異なるゲート回路を用いることで生じる計数漏れ・重複を防ぐためである。すなわち、同一のゲート信号を用いてコインシデンス測定とアンチコインシデンス測定を行えば、計数はかならずどちらかの測定系で計測されることになる。ゲート信号をADCに直接入れずリニアゲートを使うのは、ADCの不感時間を減らすためである。ΔE検出器が極めて薄く熱雑音に起因するノイズが多いためこのような方法を用いた。

これ以外に、中性子フラックスモニタのための<sup>238</sup>U Fission Chamberの出力をMCS(Multi channel Scalar)を用いて記録した。用いた測定回路をFig. 8に示す。

## 2. 6 角度分解能と立体角

立体角はある幾何学条件において試料の一点を中心とした単位球面に検出器が射影される面積を試料全体について積分したものと定義される。本研究のように試料や検出器の大きさに比べてサンプルと検出器の距離が十分に大きくなない場合、これらを点状として計算した近似解は誤差が大きく用いることはできない。しかし立体角の解析解を厳密に求めるためには、梢円積分を用いた複雑な計算を行う必要があり非常に煩雑である。本研究では立体角を計算するためにモンテカルロ法を用いた。また検出器とサンプルが有限の大きさを持つ場合、測定される粒子の放出角は幾何学配置に対応した拡がりをもつ。これをここでは角度分解能と呼ぶ。非弾性散乱では粒子の散乱角度に応じて決まったエネルギーを持つ粒子が放出されるから、角度分解能の拡がりは測定エネルギースペクトルにおけるピークの拡がりとなって表れる。この角度分解能は検出器の張る立体角と密接な関係にある。角度分解能は立体角の計算と同様にモンテカルロ法により見積もりを行った。

立体角と角度分解能はサンプルと検出器の距離、サンプルの大きさ、検出器の有感面積によって決まり、これらの変数の精度は最終的に導出される断面積の精度に大きな影響を与える。サンプルと検出器の距離と検出器の有感面積については、<sup>241</sup>Am標準線源を用いた相対測定を行って実験的にその確度を検証した。サンプル形状については、長方形のサンプルを用いると放出角の拡がりを抑えることができ、角度分解能の向上に有効である。実際に計算した角度分解能の一例をFig. 9に示す。本スペクトロメータはかなり良好な角度分解能を持っていることが分かる。また、本測定手法は放出角90度やさらに後方においても自由に検出器を配置できるという利点を持

っている。

なお、本研究では第3章において詳細を述べるアンフォールディングを行っており、立体角はモンテカルロ法により応答関数を計算する際に検出体系の幾何学配置を考慮することによって、応答関数に含まれる形で計算される。

### 3. 補正計算とデータ処理

第2章で放出荷電粒子のエネルギースペクトル測定の原理を述べた。しかし、この測定スペクトルはまだ二重微分断面積の単位である[barn/sr/MeV]にはなっておらず、断面積の絶対値化を行う必要がある。

さらに、測定サンプルの奥で生成した荷電粒子はサンプルの表面まで飛行する際にその飛行距離に応じてエネルギーを失う(Fig. 10)。すなわち、有限の厚さをもつサンプルを用いた測定エネルギースペクトルは、サンプル内エネルギー損失によるエネルギーの広がりを伴っている。真の放出荷電粒子スペクトルを得るために、この効果の補正を行う必要がある。

従来、荷電粒子放出微分断面積の測定ではこの補正量ができる限り少なくするため、厚さが 10  $\mu\text{m}$  以下の非常に薄いサンプルを用いて測定を行うのが普通であった。蒸着サンプルを用いた測定も多い。しかし、薄いサンプルを用いることは直ちに収量の悪化を意味し、測定時間の増加や統計精度の悪化につながる。また軽元素では単体のサンプルが利用できないものも多い。このような元素に対しては化合物サンプルを用いるしかないが、工学的に薄いサンプルの製造が困難な場合もある。このような元素において化合物サンプルを用いた測定を可能にし、また厚いサンプルを使用して測定を行うためには、サンプル内でのエネルギー損失を厳密に補正する必要がある。本章ではその詳細について述べる。

#### 3. 1 応答関数

##### 3. 1. 1 放出スペクトルと測定スペクトルの関係

荷電粒子の物質中でのエネルギー損失を表す古典的な式はベーテの式(Bethe formula)として知られ、次式のように表される。

$$\left( -\frac{dE}{dx} \right) = \frac{4\pi e^4 z^2}{m_0 v^2} N Z \left[ \ln \frac{2m_0 v^2}{I} - \ln \left( 1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right] \quad (1)$$

上式で  $v$  および  $ze$  は入射粒子の速度および電荷、 $N$  は単位体積中の吸収物質原子の個数、 $Z$  は吸収物質原子の原子番号、 $m_0$  および  $e$  は電子の静止質量と電荷である。パラメータ  $I$  は吸収物質原子の平均励起およびイオン化ポテンシャルであり、それぞれの物質について実験的に決定される。ここで  $dE/dx \propto z^2/v^2 \propto z^2 m_0/E$  であることから、阻止能は粒子エネルギー  $E$  の関数で示されることが分かる。荷電粒子が物質中で距離  $t$  進む間のエネルギー損失は、その阻止能を距離  $t$  について積分することにより得られる。エネルギー  $E_p$  で発生した粒子がサンプル内を  $t$  進んで観測されるエネルギー  $E_d$  は、

$$E_d = E_p + \int \left( -\frac{dE}{dx}(E) \right) dx \quad (2)$$

で与えられる。放出されるエネルギー  $E_p$  と観測されるエネルギースペクトル  $dY(E_d)/dE_d$  が一一に対応するとき、エネルギースペクトル  $dY(E_d)/dE_d$  は、エネルギー  $E$  の粒子がエネルギー  $E_d$  で観測される確率を意味する  $R(E \rightarrow E_d)$  という関数を用いた畳み込み積分によって、

$$\frac{dY(E_d)}{dE_d} = \int_{E_p=E_{\min}}^{E_p=E_{\max}} R(E_p \rightarrow E_d) \frac{dY(E_p)}{dE_p} dE_p \quad (3)$$

と表現される。この式は放出粒子エネルギースペクトル  $dY(E_p)/dE_p$  に関する第1種 Fredholm型積分方程式と呼ばれるもので、この積分方程式を逆に解いて  $dY(E_p)/dE_p$  を求めることを一般に unfolding と呼ぶ。

さて、上述の Fredholm 積分では、放出粒子エネルギースペクトル  $dY(E_p)/dE_p$  は  $E_p$  に関して連続であるが、測定エネルギースペクトルのようなヒストグラム型の離散スペクトルにこの方程式を適用するため、(3)式の離散化を行う。まず二次荷電粒子のもつ最大エネルギー  $E_{\max}$  が入射中性子エネルギーと核反応の Q 値によって決まる。このエネルギー区間  $[E_{\min}, E_{\max}]$  ( $E_{\min} \cong 0$ ) を  $n$  個のエネルギー bins  $E_1 < E_2 < \dots < E_j < \dots < E_n$  に分割する。この bin 区間で  $dY(E_p)/dE_p$  を積分し、エネルギー  $E_j$  に対するスペクトル  $p_j$  ( $j = 1, \dots, n$ ) を作成する。

$$p_j = \int_{E_j} \frac{dY(E_p)}{dE_p} dE \quad (4)$$

観測されるエネルギースペクトル  $dY(E_d)/dE_d$  も同様に配列数  $m$  個の bin に離散化し、測定エネルギースペクトル  $d_j$  ( $j = 1, \dots, m$ ) を用意する。

$$d_j = \int_{E_j} \frac{dY(E_d)}{dE_d} dE \quad (5)$$

得られたエネルギースペクトル  $p_j$  ( $j = 1, \dots, n$ ) と測定エネルギースペクトル  $d_j$  ( $j = 1, \dots, m$ ) の関係は行列方程式を用いて次のように表される。

$$\begin{bmatrix} d_1 \\ d_2 \\ \vdots \\ d_{m-2} \\ d_{m-1} \\ d_m \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{11} & r_{12} & r_{13} & \cdots & r_{1n-1} & r_{1n} \\ 0 & r_{22} & r_{23} & \cdots & r_{2n-1} & r_{2n} \\ \vdots & \vdots & r_{33} & \ddots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & \vdots & r_{m-2n-2} & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & r_{m-1n-1} & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & r_{mn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} p_1 \\ p_2 \\ \vdots \\ p_{n-2} \\ p_{n-1} \\ p_n \end{bmatrix} \quad (6)$$

$$\vec{d} = \mathbf{R} \cdot \vec{p}$$

ここで、(3)式の関数  $R(E \rightarrow E_d)$  も離散化され、その要素を  $r_{ij}$  として示した。この行列  $\mathbf{R}$  を本研究では応答関数(Response Function)と呼ぶ。なお、一般的に中性子工学分野では応答関数とは検出器自体のレスポンス自体を指す用語であるが、本研究の場合応答関数  $R(E \rightarrow h_d)$  は測定系の幾何学配置、サンプル内でのエネルギー損失を表すものである。この詳細について次節で述べる。

### 3. 1. 2 応答関数の評価

本研究における応答関数を次のように定義する。

「測定系の幾何体系内において、サンプル内部から  $4\pi$  方向に放出されたエネルギー群  $E_j$  に属する粒子がエネルギー群  $E_i$  として観測される確率を  $r_{ij}$  とする。」

ここで定義された応答関数は、

- サンプル内でのエネルギー損失によるスペクトルの変形、
- サンプル内でのエネルギー損失によって停止する粒子の欠損
- 幾何学的に検出器に入射できない粒子の欠損
- 測定器固有の検出効率

の 4 つの効果を含んでいる。特に 3 つ目は通常立体角として評価されているものであることに注目してほしい。つまり、ここで定義した応答関数とはエネルギー依存の立体角のようなものであると言い換えることもできる。

応答関数の評価はモンテカルロ・シミュレーション計算によって行った。計算体系は実際の実験体系を実寸でモデル化した 3 次元体系である。ただし、計算にあたって以下の仮定を導入している。

- サンプル内で中性子束の減衰はなく、二次荷電粒子はサンプル内で一様(uniform)に発生する。
- 放出粒子の角度分布は検出器の立体角内で等方(isotropic)とする。
- サンプル以外でのエネルギー損失はなく、検出器で全てのエネルギーを失う。

また本研究ではシリコン半導体検出器を用いているため、粒子のエネルギーに関わらず検出効率は 1 とし全ての粒子が検出されるとした。

荷電粒子のサンプル内エネルギー損失の計算には SRIM-2003 コード<sup>15)</sup>を用いた(Fig. 11)。ただし SRIM-2003 コードは平板体系内の輸送計算しか行えないため、3 次元体系内の輸送計算を行うために自作のコードを組み合わせて用いた。SRIM-2003 の計算モードは”Various Ion Energy / Angle / Positions”を用いた。以下に応答関数計算の流れを示す。

① 以下の 1~3 を各放出エネルギー bin  $p_j (j = 1, \dots, n)$  に対して繰り返す。

1. “SRIMDDXc”(Fig. 12)を用いて SRIM 計算に必要な”TRIM.DAT”ファイルを作成する。

“SRIMDDXc”はサンプル内で粒子の生成位置と放出方向ベクトルをランダムサンプリングする計算コードである。その際、実際の検出器、サンプルの幾何学配置を入力することで検出器方向のベクトルのみを生成するようソースバイアスをかけ、分散低減を計っている。任意回の History 数の繰り返し計算を行うためのファイルを出力する。

2. “TRIM.DAT”を用いて SRIM 計算を行う。サンプル内を輸送しエネルギー損失計算の後、透過する粒子のエネルギー、位置、方向ベクトルが”TRANSMIT.TXT”として出力される。
3. “SRIMSPECT”(Fig. 13)を用いて”TRANSMIT.TXT”を処理する。“SRIMSPECT”は検出器、サンプルの幾何学配置を入力すると透過した粒子が検出器に入射するか判別し、検出器に入射する粒子のエネルギースペクトルを出力する計算コードである。1で適用したソースバイアスの効果はここで補正される。出力されるエネルギースペクトル  $E_{d_i} (i = 1, \dots, m)$  は 1 に規格化され [MeV] の単位で記録され、同時に応答関数の定義で示した確率  $r_{d_i}$  が記録される。

② 得られた各放出エネルギー bin  $p_j (j = 1, \dots, n)$  に対する測定エネルギー分布  $d_i (i = 1, \dots, m)$  を 1 列として  $n$  列並べることにより規格化された  $m \times n$  の応答関数行列  $\mathbf{R}$  が完成する。また同時に検出確率のみの  $n$  項列ベクトル  $\mathbf{F1}[\varepsilon_j (j = 1, \dots, n)]$  も作成される。

実際の計算は、”runtrim”コードにより制御され自動的に実行される。計算される応答関数はモンテカルロ法に基づいているため統計的な変動を伴う。統計誤差低減のため、一つのエネルギー binあたり 50000 particle の寄与を目安に繰り返し計算をおこなった。計算時間はサンプルの種類や厚さ、ビン幅によって変わってくるが、Intel Pentium 4 プロセッサ搭載の Windows PC を用いて数日から一週間程度を要する。

### 3. 1. 3 応答関数の特徴

計算された応答関数はサンプルの厚さによって大きく異なるものになる。実際に計算した厚さの異なる 2 つのサンプルに対応する応答関数行列  $\mathbf{R}$  を視覚化したグラフを Fig. 14 に示す。計算は厚さ 20 μm、100 μm の  $^{9}\text{Be}$  サンプルに対して行った。試料と検出器の距離は 12.78 cm、サンプルと検出器面のなす角は 0 度である。グラフは色の濃淡で行列成分  $r_{ij}$  の大小を示してあり、(6)

式で示した行列成分とは列方向の序列を上下逆転させて表示した。ここでは測定エネルギーの配列数  $m$  と放出エネルギーの配列数  $n$  は等しくし、0~14 MeV のエネルギー領域を 400 keV ごとのビン幅で区切り、 $m = n = 40$  とし、 $40 \times 40$  の正方行列で応答関数を作成した。

Fig. 14 を見ると、100  $\mu\text{m}$  厚のサンプルに対する応答関数は 20  $\mu\text{m}$  厚のサンプルに比べて応答関数の対角性が悪いことが分かる。100  $\mu\text{m}$  厚のサンプルでは約 13 MeV 以下の放出エネルギーでは検出エネルギーが 0 MeV まで連続に広がっている。これは、生成してもサンプルの中で停止してしまう粒子があることを意味する。

断面積測定においては、サンプルの量は測定における計数率を支配する要因となる。計数率を大きくすることのみを考えればサンプルは厚ければ厚いほど良い。しかし、サンプルが厚くなるとサンプル内で入射中性子や二次中性子の多重散乱が生じ、実験結果に影響を与える。さらに、放出荷電粒子測定の場合はある厚さ以上に試料を厚くしても放出された荷電粒子は試料表面に出てくることができず、収量の向上にもつながらない。分厚いサンプルは応答関数の対称性を悪化させアンフォールディングの収束に悪影響を及ぼす。従って、実際の測定においてはあらかじめ応答関数を計算し、応答関数の対称性と現実的な収量を両立する、最適な厚さの試料を選択する必要がある。

### 3. 2 Spectrum Unfolding

#### 3. 2. 1 Bayes 統計的手法による Spectrum unfolding

Spectrum unfolding とは 3.1.1 節(3)式で示した第 1 種 Fredholm 積分方程式を解き、 $dY(E_p)/dE_p$  を求めることである。これまで様々な unfolding 手法が提案され、また実際に用いられてきている。第 1 種 Fredholm 積分方程式の解法は微分法、逆行列法などが考えられるが、放射線計測の unfolding においては測定エネルギースペクトルが統計誤差を伴うため、これに起因する解の振動が問題となる。実際の unfolding 法においては解空間に何らかの制限を導入し、正則化あるいは単純化して解くという方針に従っている。

一方、確率統計学的立場からのスペクトル推定法として、確率統計学の Bayes の定理に基づくスペクトル推定法が考案され、いくつかの unfolding 問題において局所的に利用されてきた。近年東北大学の岩崎らによって Bayes の定理を拡張した新しい unfolding 手法の開発が進められた<sup>16-18)</sup>。また、東北大学の名内、大阪大学の高木らによってこの手法を二次荷電粒子スペクトル測定に適用する研究が行われた<sup>19,20)</sup>。この新しい unfolding 手法の特徴としては以下のような事項が挙げられている<sup>18)</sup>。

1. 原理が非常に容易であり、適用が簡単である。(容易性)
2. 事前情報がある場合にはそれを簡単に取り込める。
3. 測定値が正値の場合には必ず推定結果の正値が保証される。(非負性)
4. 極端な悪条件の場合には制約条件を加えることによって緩和できる。

5. 柔軟な解法構造を持っていて、対象に応じていろいろな解法が工夫できる。
6. 安定化パラメータを必要とせず、安定性が高い。
7. 逆行列を求める必要がなく数値的不安定さは生じない。(非特異性)
8. 保守的な推定である。(エントロピー最大原理)

### 3. 2. 2 スペクトル型 Bayes 推定法

Bayes の定理そのものは、確率統計学における条件付き確率に関する基本的な定理であり、 Bayes の定理に基づいて確率分布を推定するのが Bayes 推定法である。今、応答関数の成分  $r_{ij}$  を エネルギー  $E_j$  で発生した荷電粒子がエネルギー  $E_i$  で測定される確率であるとし、放出エネルギー スペクトル  $p_j (j=1, \dots, n)$  と測定エネルギースペクトル  $d_i (i=1, \dots, m)$  が(6)式で関係づけられるとする。スペクトル  $d_i$  が観測された場合の最尤推定（確率的に最も確からしい）スペクトル 成分は、Bayes の定理を拡大解釈することによって、

$$est_j^{(l+1)}(i) = d_i \times \frac{est_j^{(l)} \times r_{ij}}{\sum_{j=1}^n est_j^{(l)} \times r_{ij}} \quad (7)$$

と表される。ここで左辺の添え字  $(i)$  は「ビン番号  $i$  の計数率  $d_i$  によって変更された最尤推定スペクトル」という意味を表す。スペクトル全体に対しては加算演算を行って、

$$est_j^{(l+1)} = \sum_{i=1}^m \left( d_i \times \frac{est_j^{(l)} \times r_{ij}}{\sum_{j=1}^n est_j^{(l)} \times r_{ij}} \right), (j=1, \dots, n) \quad (8)$$

とする。この演算により得られた  $est_j^{(l+1)}$  を次の推定計算での先行知識として用い、推定計算を繰り返すのが「スペクトル型 Bayes 推定法(Spectrum type Bayes estimation method)」である<sup>19)</sup>。

(8)式においては、(7)式の定義から

$$\sum_{j=1}^n est_j^{(l+1)} = \sum_{j=1}^n \sum_{i=1}^m est_j^{(l+1)}(i) = \sum_{i=1}^m d_i \quad (9)$$

となり、スペクトルの積分値は保存される。

本研究では、このスペクトル型 Bayes 推定法を unfolding 手法として採用し、生成二次荷電粒子のサンプル内エネルギー損失の補正に用いた。3.1.2 節の手順に従って計算された応答関数は、列成分の和が全て 1 になるような規格化を行う。すなわち、

$$\sum_{i=1}^m r_{ij} = 1 \quad (10)$$

とする。立体角とサンプル内での荷電粒子損失による効率が減少する効果は検出効率ベクトル列

**F1**を用いることで表現する。測定エネルギースペクトルの統計量が無限大であれば放出粒子エネルギースペクトル  $p_j (j=1, \dots, n)$  と測定粒子二重微分エネルギースペクトル  $(d/d\theta)d_j (j=1, \dots, m) [/\text{sr}/\text{MeV}]$  は次式で関連づけられる。

$$\frac{d}{d\theta} \vec{d} = \mathbf{R} \cdot \mathbf{F1} \vec{p} \quad (11)$$

ここで角度微分を用いて表したのは、測定微少立体角におけるエネルギースペクトルとするためである。この場合、検出効率行列**F1**は  $n$  項行ベクトルで、その行列成分  $f_j$  は、

$$f_j = \delta_j \times \varepsilon_j \quad (12)$$

となる。 $\varepsilon_j$  は立体角と粒子損失効率の積で、単位は [sr] である。スペクトル型 Bayes 推定法では測定エネルギースペクトル  $d_j$  の積分値は保存されるので、放出エネルギースペクトルおよび測定エネルギースペクトルの規格化は行わない。実際の unfolding では検出効率ベクトル **F1** の効果を除いて(8)式による修正計算を繰り返し行い、評価スペクトル  $est_j^{(l+1)}$  の収束を期待し、最終的な推定スペクトル  $ddx_j$  を

$$ddx_j = \frac{est_j^{(l+1)}}{\varepsilon_j} \quad (13)$$

として導出する。 $\varepsilon_j \approx 0$  の場合は  $ddx_j$  が無限大に近づき、評価スペクトルが発散するので、上式の演算を行う際  $\varepsilon_j < 1 \times 10^{-5} [\text{sr}]$  となる場合には  $ddx_j = 0$  とした。

有限統計量を持つスペクトルに対して(8)式による繰り返し計算を適用する場合、ある修正回数以上で解に振動を生じてしまうことが知られている。高木は「スペクトル型 Bayes 推定法では、ある実験条件での応答関数、および統計量によって再現できる元スペクトルの精度の上限が存在する」と結論している<sup>20)</sup>。従って、実際の unfolding においては何らかの方法で評価スペクトル  $est_j^{(l+1)}$  の収束を判定し繰り返し計算をうち切る必要がある。

この問題に対し、決定的な判定方法は今のところ見つかっていない。岩崎と高木は何らかの事前知識に基づく理想スペクトルを元に情報エントロピー量を求め、その収束によって繰り返し回数を判断する方法を採用した。情報エントロピー量  $B$  は、総和が 1 に規格化された配列数  $n$  の理想スペクトル  $p_j (j=1, \dots, n; 0 < p_j < 1)$  に対する評価スペクトル  $est_j (j=1, \dots, n; 0 < est_j < 1)$  がある場合、次式で定義される。

$$B = \sum_{j=1}^n p_j \log \left( \frac{est_j}{p_j} \right) \quad (14)$$

この情報エントロピー量  $B$  は負値をとり、理想スペクトル  $p_j$  と評価スペクトル  $est_j$  の「近さ」の指標となる値である。この  $B$  が大きいほど 2 つのスペクトルは「近い」と判断される。

上記の繰り返し回数の決定法では、理想スペクトルとして評価済み核データや理論計算から導出したスペクトルを利用し、繰り返し計算ごとに情報エントロピー量  $B$  を評価する。繰り返し計算によって評価スペクトルが振動をおこすと情報エントロピー量  $B$  は増大し、解が不適切である指標となる。実際には、情報エントロピー量  $B$  はある繰り返し回数で極大値をとり、その回数が繰り返しをうち切る回数の目安となる。しかし、この方法は理想スペクトルとして用いるスペクトルに大きく依存した評価手法であり、このスペクトルに大きな誤りがあった場合は不適切な解を与える可能性が大きい。本研究においても暫定的にこの評価方法を採用しているが、さらに客観的な解の収束を判定する方法の確立が必要であり、今後の課題である。

### 3. 3 断面積の絶対値化

本研究における二重微分断面積  $\sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta)$  [barn/sr/MeV]を次式で定義する。

$$\sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta) = \frac{1}{\phi_n \cdot N} \cdot \frac{d^2Y(E_p, \theta)}{dE_p d\theta} \quad (15)$$

ここで  $E_n$  は中性子の入射エネルギー[MeV]、 $d^2Y(E_p, \theta)/dE_p d\theta$  は unfolding より得られた放出角  $\theta$  および放出エネルギー  $E_p$  についての二重微分エネルギースペクトル[/sr/MeV]、 $\phi_n$  は入射中性子フルエンス [/cm<sup>2</sup>]、 $N$  はサンプルの原子数である。 $\phi_n$  は中性子フラックスモニタ用の Fission chamber の積算カウント値で相対的に測定し、絶対値は中性子ビーム出口において Al 箔を用いた箔放射化法によって決定した。Fission chamber の積算カウント値を  $FC$  [count]、箔放射化法より求めた換算係数を  $f$  [/fc count/cm<sup>2</sup>] とすると、

$$\phi_n = FC \cdot f \quad (16)$$

と表され、最終的に(15)式は

$$\sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta) = \frac{1}{FC \cdot f \cdot N} \cdot \frac{d^2Y(E_p, \theta)}{dE_p d\theta} \quad (17)$$

となる。

箔放射化法から換算係数  $f$  を決定する際に用いた断面積は JENDL-3.3<sup>21)</sup> の  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$  反応に

に対する評価値 122.2 mb である。また、Nb 箔を用いた測定も行っており、この際は FENDL/A-2.0<sup>22)</sup> の  $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92m}\text{Nb}$  反応に対する評価値 0.4729 barn を用いた。両者の測定から導出した換算係数  $f$  は 99% 以上の精度で一致した。

本研究ではこのように放射化箔測定から換算計数を決定する際に用いる断面積が、測定における標準断面積となる。DT 反応による発生中性子量の直接測定は随伴 $\alpha$ 粒子を測定することで可能である。しかし、本測定においては高い中性子発生量と加速器の幾何学的制限により随伴 $\alpha$ 粒子測定が困難であり、さらに中性子をコリメートしているために発生量とサンプルへの入射量が大幅に異なっている。従って、入射中性子量は相対的に測定して何らかの標準断面積で規格化する方法を取らざるを得ない。放射化箔を用いる方法以外に、ポリエチレンなどのサンプルを用いた測定を行い、水素の弾性散乱断面積で規格化する方法も考えられる。これについては、4.4.2 節で述べる。

### 3. 4 誤差の評価

(17)式より誤差伝搬式に基づいた誤差の評価が可能となる。二重微分断面積を  $\sigma$ 、unfolding より得られたエネルギースペクトルを  $Y$  と表すことになると、二重微分断面積の相対誤差  $\Delta\sigma/\sigma$  について誤差伝搬則より、

$$\left(\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta FC}{FC}\right)^2 + \left(\frac{\Delta f}{f}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta Y}{Y}\right)^2 \quad (18)$$

と表される。 $\Delta$  はそれぞれの変数の標準偏差を表す。

Table. 3 に誤差の要因と見積もった値を示す。それぞれの変数の誤差要因を考える。

- $FC$  の誤差

Fission Chamber は有限のカウント数を持っており、それに伴う統計誤差が生じる。本研究ではビーム孔後方で測定した場合 30 万～100 万カウント程度のカウント数となり、 $FC$  の誤差は 0.2% 未満である。

- $f$  の誤差

箔放射化法での測定に伴う誤差が生じる。この主要な原因となるのは、試料として用いた箔の重量の測定誤差、測定に用いた高純度ゲルマニウム半導体検出器の効率の誤差、検出器の測定値が有限のカウント数を持つことに伴う統計誤差である。測定における誤差は全体で 3% 程度となる。

またフルエンス換算係数を導出する際に用いる標準断面積に誤りがあれば、測定結果に誤りを生じる原因となる。今回示す結果ではこの誤差を考慮していない。今回用いている標準断面積はドジメトリーの標準断面積として広く用いられておりその精度は高いと考えられるが、3% 程度の誤差を生む可能性は否定できない。

- $N$  の誤差

測定試料の重量を測定することでサンプルの原子数を決定しているが、その測定に伴う誤差が生じる。

- *Y* の誤差

これには複数の要因が含まれる。それぞれを定量的に考察する。

- ◆ 波高スペクトルの測定において有限のカウント数を持つことに伴う統計誤差  
測定におけるカウントの集積量に応じた誤差が生じる。
- ◆ 測定 2 次元スペクトルに ROI を設定する際の誤差  
ROI を定める作業は人為的に行っているが、その形状は SRIM を用いた計算よりかなり正確に予測され、ほぼ機械的に抽出することが可能である。
- ◆ 応答関数をモンテカルロ法で評価することに起因する統計誤差  
計算結果に寄与する粒子の集積量に応じた統計誤差が生じる。計算においては 3.1.2 節で述べたように、計算あたり 50000 particle の寄与を目安に計算を行っており、その誤差は 3%以下と考えられる。しかし定量的な誤差評価は現在のところ行えていない。また、幾何学配置の値に起因する誤差が応答関数に含まれる。この値は  $^{241}\text{Am}$  測定の結果から、1%程度と見積もっている。

本稿の第 4 章で示す測定結果において、波高スペクトル測定の統計誤差以外の要因による系統誤差は 3.5%程度である。

以上に示した要因に加え、正確な評価には unfolding に伴う誤差伝搬を評価する必要がある。本稿においては最終的に得られたエネルギースペクトルのカウント数に対して統計誤差を評価しているが、厳密には不十分な評価であり、unfolding に伴う誤差伝搬の評価法を確立する必要がある。

## 4. 測定結果と考察

本手法の測定性能を評価するために、テフロン( $[CF_2]_n$ )、アルミニウム、ポリエチレンを用いた測定を行った。測定に用いた試料の詳細を Table 4 に示した。これらの結果を基に、本手法の優劣を議論する。また、バックグラウンド測定の結果についても議論する。

### 4. 1 粒子弁別

テフロン( $[CF_2]_n$ )はカーボンとフッ素の化合物である。14 MeV 中性子との相互作用で起こりうる主要な荷電粒子放出反応の種類としきいエネルギー、Q 値を Table 5 に示した。このように、proton、deuteron、triton、 $\alpha$ -particle の 4 種類の荷電粒子が広いエネルギー範囲で放出されるので、この測定から粒子弁別能を検証することができる。

テレスコープの $\Delta E$  検出器で測定されたエネルギーを横軸に、E 検出器で測定されたエネルギーを縦軸にとり 2 次元グラフにプロットすると、荷電粒子の種類ごとに阻止能に対応した特定の領域にプロットが現れる。9.6  $\mu m$  の $\Delta E$  検出器と 760  $\mu m$  の E 検出器からなるテレスコープを用いて測定したテフロンからの放出荷電粒子の 2 次元エネルギースペクトルを Fig. 15 に示す。このスペクトルを見ると $\alpha$ 粒子による計数を明瞭に弁別できることがわかる。一方、proton、deuteron、triton はこの図の左側の領域に重なっており分離が困難である。これらの粒子を分離して測定するには少し厚い $\Delta E$  検出器を用いる必要がある。20  $\mu m$  の $\Delta E$  検出器と 1500  $\mu m$  の E 検出器からなるテレスコープを用いて同様に測定した 2 次元スペクトルを Fig. 16 に示す。図には併せて、SRIM-2003 を用いてエネルギー付与を計算し、この結果から求めた関心領域を網掛けで示している。このスペクトルを見ると、上記 3 種類の粒子を分離できていることが分かる。適切な厚さの $\Delta E$  検出器を用いることによって複数種の粒子の弁別測定が可能となる。また、計算で予測される関心領域と測定値の現れる領域の一致が極めて良いことも分かる。このように本手法では理論計算を併用したオフライン処理で粒子弁別をほぼ機械的に行うことができ、不確定性が大きく排除される。

厚い $\Delta E$  検出器を用いるとそれにつれて測定下限エネルギーは高くなってしまうため、実際の測定では放出される粒子の最大エネルギーを予想し、これらの粒子を分離可能な範囲で出来る限り薄い厚さの検出器を用いることが必要である。また、幅広いエネルギー領域に渡る測定を行うためには、異なる厚さの $\Delta E$  検出器によるテレスコープを複数組み合わせて用いることが有効であろう。

なお、これらのスペクトルはバックグラウンドを差し引いていない。バックグラウンド成分の定量的な議論は 4.5 節で行う。

## 4. 2 エネルギー分解能

Fig. 16 に示した理論計算スペクトルは線状ではなく、ある幅を持っていることが確認できる。この計算では検出器のエネルギー分解能を考慮していない。つまり検出器のエネルギー分解能が無限に小さい場合でもこのような幅を持ったスペクトルが得られるということになる。この拡がりは入射粒子の $\Delta E$  検出器中でのエネルギーストラグリングに対応したものである。実際の測定では2つの検出器の波高をエネルギーに換算し、これを足しあわせて入射粒子のエネルギーを得る。よってこの拡がりはE検出器との間で相殺されることになる。測定されるエネルギー分解能は入射エネルギーに対する共分散として与えられるが、二つの検出器のエネルギー分解能にエネルギー依存性が無い場合は、これらの分解能の二乗和の平方根に等しい。

テレスコープのエネルギー分解能を実験的に確認するため、 $^{241}\text{Am}$  線源を用いた測定を行った。Fig. 17 に  $9.6 \mu\text{m}$  の $\Delta E$  検出器を用いて  $^{241}\text{Am}$  からの 5486 keV の $\alpha$ 粒子を測定したエネルギースペクトルを示す。この測定より、 $9.6 \mu\text{m}$  の $\Delta E$  検出器を用いたテレスコープのエネルギー分解能はおよそ 83 keV であることを確認した。同様に  $20 \mu\text{m}$  の $\Delta E$  検出器を用いた測定では 78 keV の分解能が得られた。エネルギー分解能は荷電粒子の種類によっても大きく異なり、proton に対しては 50 keV 以下の分解能を持つと予想される。これは Fig. 16 において理論計算値と測定値の広がりに大きな差が見られないことからも類推できる。さらに、この図の領域に確認できる濃淡は放出粒子のエネルギー構造が現れたものである。これは核反応による残留核の励起レベルとそれぞれのレベルへの遷移確率を反映している。このような微細なエネルギー構造が測定されていることからも、本測定手法がこれまでの測定手法に比べて極めて良好なエネルギー分解能を持つことが結論できる。

## 4. 3 アルミニウムからの放出 $\alpha$ 粒子測定

$^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$  反応は高速中性子によるドジメトリーに用いられる重要な反応で、放射化法による全断面積の測定例が非常に多く<sup>23)</sup>、信頼性の高い標準断面積として広く用いられている。また放出粒子の角度分布も 90 度対称に近い緩やかな分布を持つと考えられている。本測定手法で放出 $\alpha$ 粒子を測定した場合、 $^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$  反応と  $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{n}'\alpha)^{23}\text{Na}$  反応の両方の寄与が含まれるが、得られた測定値について、 $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{n}'\alpha)^{23}\text{Na}$  反応の寄与の割合も含めて議論することにより、測定手法の妥当性を評価することができる。

### 4. 3. 1 測定エネルギースペクトルの導出

コインシデンス測定において得られた2次元スペクトルの例として放出角 45 度における測定データを Fig. 18 に示す。参考までに、ENDF/B-VI<sup>12)</sup>に評価されている  $^{27}\text{Al}$  の荷電粒子放出反応の断面積のグラフを Fig. 19 に示す。Fig. 18 にははっきりと分離した $\alpha$ 粒子によるカウントを確認できる。左側のカウントは主に(n,p)、(n,n'p)反応からの proton によるものであるが、いくらか(n,d)反応からの deuteron によるカウントも確認できる。これらの粒子のカウントは弁別が困難であり、また高エネルギーの proton はノイズとの分離も困難である。4.1 節で述べたように、これらの粒子を弁別して測定するにはさらに厚い $\Delta E$  検出器を用いる必要がある。なお、このスペクトルにお

いてもバックグラウンドを差し引く処理をおこなっていない。

今回は目的とする $\alpha$ 粒子のコントラスト ROI(Region of Interest)を設定してカウントを抽出することでエネルギースペクトルを得た。アンチコインシデンススペクトルは deuteron による計数を取り除くため、900 keV 以上のエネルギー領域を用いた。また、放出角 45 度の測定条件でサンプルアウト測定を行い、同様にアンチコインシデンススペクトルを得た。Fig. 20 にこれらのスペクトルを示す。エネルギー bins 幅は統計精度を考え 500 keV とした。図においてバックグラウンドスペクトルは中性子フラックスモニタのカウント数でフォアグラウンドと同じ中性子入射時の値に規格化している。Fig. 20 を見る限り、コインシデンススペクトルとアンチコインシデンススペクトルは特に不整合なく測定できていると思われる。また、サンプルアウト測定におけるバックグラウンドは低エネルギー領域で若干の増加が見られるものの、その割合は非常に少ないことが分かる。このバックグラウンドは 2.3 節で考察した生起要因から、検出器の測定位置依存性は小さいと考えられる。本研究では 1 点で測定したバックグラウンドを入射中性子数で規格化し、全ての測定点のバックグラウンドとして差し引くことにした。計数率から判断すればこのバックグラウンドが断面積に及ぼす影響は非常に小さい。この他、 $\alpha$ 粒子より重い低エネルギー荷電粒子が放出されればバックグラウンドとなる。本測定においては反跳アルミニウム原子核が考えられるが、アルミニウムの飛程は非常に短く寄与はほとんどないと考えられるので、補正は行わなかった。

以上の手順により、放出角 45、70、110、135 度における測定波高スペクトルからそれぞれエネルギースペクトルを導出した。

#### 4. 3. 2 二重微分断面積(DDX)

導出した測定エネルギースペクトルと 3.1.2 節の手順に従って計算した応答関数を用いてアンフォールディングを行い、DDX を得た。アンフォールディングにおける下限エネルギー bins は 0.75 MeV とした。実効的な測定下限エネルギーは 0.9 MeV 程度であるが、このエネルギーは $\alpha$ 粒子が核のポテンシャル障壁を乗り越えるのに必要な下限エネルギーより十分に低いと考えられ、放出 $\alpha$ 粒子について全エネルギー測定を行っていると見なすことができる。

各放出角における測定値と評価済み核データ(ENDF-B/VI、JENDL-3.3)を Fig. 21 に示す。放出角 45 度については、Grimes ら<sup>7)</sup>と高木ら<sup>24)</sup>の測定値を併せて示した。測定結果は過去の測定値と非常に良く一致しており、本測定手法の妥当性を示していると言える。高木の測定値には反応のしきいエネルギーを越えるピークが見られるが、これは何らかのバックグラウンドに起因するものであろう。低エネルギー領域においては、従来の測定手法の測定下限エネルギーに起因する違いがみられる。評価済み核データとの比較では、ENDF-B/VI については細かい構造に違いは見られるが、おおむねよく一致している。JENDL-3.3 との差違はやや大きく、JENDL-3.3 は<sup>24</sup>Na の基底状態への遷移を過大評価していると思われる。また、両データは<sup>24</sup>Na の 1.34 MeV 付近の励起状態に起因するピークをかなり大きく評価しているが、本測定値、過去の実験値とともにこのピークは明瞭には観測されていない。本測定値の 2 MeV 付近に現れているピークは<sup>27</sup>Al(n,n' $\alpha$ )<sup>23</sup>Na 反応によるものと思われるが、両評価済みデータでは過小評価されているようである。

#### 4. 3. 3 角度微分断面積(ADX)および全反応断面積(TOX)

DDX をエネルギーについて積分し、角度微分断面積(Angular differential cross section, ADX)を得た。得られた ADX を Fig. 22 に示す。グラフには実線で JENDL-3.3 及び ENDF/B-VI の評価済みデータを示した。また Grimes ら、高木らによる測定値を併せて示した。評価済み核データの角度分布は Kalbach-Mann のシステムティクス<sup>25,26)</sup>で与えられているものであるが、実験値との一致は非常に良い。

ADX を 2 次のルジャンドル多項式でフィッティングし、得られた関数を放出角余弦について積分することにより全反応断面積(Total cross section, TOX)を得た。得られた TOX は  $134.5 \pm 5.5$  mb である。JENDL-3.3 の評価値は 126.2 mb、ENDF/B-VI の評価値は 130.7 mb であり、測定値より少し小さい値となっている。これらの断面積は  $^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$  反応と  $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{n}'\alpha)^{23}\text{Na}$  反応の断面積の和であるが、後者の反応の残留核  $^{23}\text{Na}$  は安定同位元素であり、放射化法による断面積測定ができないため直接測定例は皆無である。従って後者の反応断面積の評価は理論計算に大きく依存しており、いくらか不確実性が含まれているものと思われる。

一方、Kneff ら<sup>27)</sup>と深堀ら<sup>28)</sup>はガス質量分析法によりヘリウム生成量を直接定量的に測定した。この測定手法では微分断面積は得られないが、得られた全反応断面積は従来の微分測定手法のような測定下限エネルギーによる影響を受けない。これまでに様々な手法で測定された全断面積を Table 6 にまとめた。入射中性子エネルギーの違いはあるが、我々の測定値は Kneff らや深堀らの測定値により近いものとなっている。Grimes らや高木らの測定値は測定下限エネルギーの影響により、我々の測定値に比べ過小な値となっていると思われる。Fig. 23 に  $^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$  反応断面積の Filatenkov ら<sup>29)</sup>と池田ら<sup>30)</sup>による測定値と評価値、 $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{n}'\alpha)^{23}\text{Na}$  反応断面積の評価値をまとめて示した。この図から判断する限り、我々の測定値はこれまでの測定値と十分な一貫性を示している。この結果より本測定手法の妥当性を結論した。また中重核に対してはアンチコインシデンススペクトルの利用により、放出 $\alpha$ 粒子の全エネルギー測定の可能性が示された。このように本測定手法によって、微分断面積の詳細構造を議論するための精密データを取得することが可能となった。

#### 4. 4 水素からの反跳陽子測定

水素による中性子の弾性散乱はシンプルな 2 体反応であり最も基本的な核反応であるため、その断面積は標準断面積として様々な用途に用いられている。ここでは、水素の弾性散乱によって反跳される陽子をポリエチレン試料を用いて測定し、陽子放出断面積測定の妥当性を検証した。

##### 4. 4. 1 エネルギー分布と角度分布

Fig. 24 に陽子の実験室系での散乱角 20、30、40、50 度において測定したエネルギースペクトルと SRIM を用いた計算値を示した。縦軸の単位は [MeV/sr] であり、エネルギーで積分した値が 1 になるように規格化してある。この測定においては、チェンバーの回転テーブルについている分度器目盛を用いて測定角を調整したが、実際の測定スペクトルにおいて若干のエネルギーのず

れが見られた。このためグラフには、測定スペクトルのエネルギーに良く一致する放出角における計算値を示した。中性子の入射エネルギーは 14.2MeV としている。測定値と計算値は非常によく一致しており（特にピークの非対称性と、測定角の違いによる微妙なピーク幅の広がりが正確に再現されている）、計算手法の妥当性も示されていると言える。この計算には入射中性子のエネルギーの拡がりと検出器のエネルギー分解能を考慮していない。これらを考慮せずにこれだけ一致するということは、逆にこれらの効果がほとんどないということを推察できる。

Fig. 25 に陽子の実験室系での散乱角 20、30、40、50 度におけるADX 測定値を示した。図には評価済み断面積と過去の測定値を併せて示した。我々の測定値と ENDF-B/VI の評価値との一致は良好であった。一方、JENDL-3.3 の評価値との間にはやや差があった。Seagrave<sup>31)</sup>と田中ら<sup>32)</sup>の測定値との一致は極めて良好であった。この結果より、本手法を陽子放出断面積測定へ適用できることを結論した。

#### 4. 4. 2 標準断面積としての利用

4.4.1 節では、3.3 節で述べた手順により、 $^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$  反応の断面積を標準断面積として用いている。本節では上記の断面積の代わりに、水素の弾性散乱断面積を標準断面積として用いる方法について議論する。

水素の弾性散乱の反跳陽子放出二重微分断面積を  $\sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta)$  とする。ある散乱角  $\theta$  まわりの微少立体角  $d\theta$  において検出される反跳陽子のエネルギー微分スペクトル  $d^2Y(E_p, \theta) / dE_p d\theta$  は、検出器の効率  $k$ 、入射中性子数  $\phi$ 、試料の原子数  $N$  を用いて

$$\sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta) = \frac{1}{k \cdot \phi \cdot N} \cdot \frac{d^2Y(E_p, \theta)}{dE_p d\theta} \quad (19)$$

と表せる。今、 $k=1$  とする。また中性子フラックスモニタの積算カウント数を  $FC$  とし、換算係数  $f$  を用いて  $\phi = FC \cdot f$  と表すと、

$$\sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta) = \frac{1}{f \cdot FC \cdot N} \cdot \frac{d^2Y(E_p, \theta)}{dE_p d\theta} \quad (20)$$

角度微分断面積を用いるためにエネルギー積分を取ると、

$$\int \sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta) dE_p = \frac{1}{f \cdot FC \cdot N} \cdot \int \frac{d^2Y(E_p, \theta)}{dE_p d\theta} dE_p \quad (21)$$

すなわち、各散乱角においてピークのカウント数を  $FC$  のカウント数と立体角で割り、これにある定数をかけたものが角度微分断面積に等しくなる。この定数を決定するには、たとえば各散乱角における標準断面積の評価値と、ピークのカウント数を  $FC$  のカウント数と立体角で割ったものに定数  $\xi$  をかけた値との差の二乗和

$$\sum_{\theta} (\Delta\sigma)^2 = \sum_{\theta} \left( \int \sigma(E_n \rightarrow E_p, \theta) dE_p - \xi \cdot \frac{1}{FC} \cdot \int \frac{d^2Y(E_p, \theta)}{dE_p d\theta} dE_p \right)^2 \quad (22)$$

が最小になるような  $\xi$  を数値的に求めてやればよい。この方法で入射フルエンス換算係数  $f$  を決定すると、 $f$  に含まれる系統誤差をかなり小さくすることができ、結果として断面積の測定精度

をさらに向上させることができる。

#### 4. 5 バックグラウンド成分の検討

本測定手法では、最終的にコインシデンス測定におけるバックグラウンドを 1 時間あたり数カウントまで押さえ、通常はバックグラウンド測定を行う必要がない。この測定条件を達成するためにあらかじめ様々な測定と解析を行った。測定条件については 2.4 節でも述べているが、本節ではその検討の詳細について述べる。

コインシデンス測定におけるバックグラウンドの生起要因は、以下の 3 つに分類することができる。

- A) チェンバー外の水蒸気などに含まれる水素が反跳されることによって飛来する proton
- B) チェンバー内や検出器表面に存在する、オイルなどの不純物中の水素が反跳されることによって飛来する proton
- C) 検出器の  $\text{Si}(n,xp)$  反応で生じる proton がコインシデンス測定されることによるバックグラウンド

このうち、最も寄与が大きいのは A)であることが予備実験で明らかになった。A)については、中性子入射ポートのタンタルを  $500 \mu\text{m}$  厚さのものにすることにより除外することができた。A)を除外した後再度バックグラウンド測定を行い、B), C)の存在を検証した。測定は  $20 \mu\text{m}$  厚さの  $\Delta E$  検出器を用い、放出角 45, 70, 90, 135 度において行った。測定中は  $\Delta E$  検出器前面をタンタル板で覆い、散乱中性子によって誘起されるバックグラウンドのみを測定した。測定 2 次元エネルギースペクトルを Fig. 26-29 に示す。この測定は一点あたり 8~10 時間の長時間の測定を行った。これらを見ると、バックグラウンドは本来の proton の ROI の内側に現れるエネルギー依存性を持つ成分と、エネルギー依存性を持たない成分の 2 つに分かれるように思われる。エネルギー依存性を持つ成分については、かなり高いエネルギーの粒子が観測されていることから C)由来であることは考えにくく、B)由来の成分、特に検出器に付着した不純物の影響である可能性が高い。これを減らすためには真空排気系をオイルフリーにし、不純物が検出器や試料に付着しないように注意する必要がある。

上記 C)については、さらに 2 つの生起要因に分けることができる。

- i.  $\Delta E$  検出器の  $\text{Si}(n,xp)$  が  $E$  検出器に入射するイベント (以下、 $\Delta E \rightarrow E$ )
- ii.  $E$  検出器の  $\text{Si}(n,xp)$  が  $\Delta E$  検出器に入射するイベント (以下、 $E \rightarrow \Delta E$ )

この 2 つの成分が  $\Delta E - E$  の 2 次元プロットに現れる場合のスペクトルを、SRIM を用いて計算したものを Fig. 30 に示す。計算は  $\text{Si}(n,xp)$  反応の放出粒子については簡単化を行い、放出粒子のエネルギー分布は最大エネルギーからの  $1/E$  分布として与えた。角度分布は等方とした。これに Fig. 29 (135 deg. における測定値) を重ねたものを Fig. 31 に示す。これを見ると、計算は測定結果をか

なり良く再現することが分かり、C)に起因するバックグラウンドが存在することの裏付けとなつてている。実際の測定では  $Si(n, np)$  の放出角度分布と結晶体積などで(i)と(ii)の比は変化する。E 検出器が厚くなると飛程とエネルギーの関係により結晶内で停止してしまう粒子の割合が増加するため、この比は単純に結晶体積には比例しないが、通常(ii)の割合は(i)の数倍程度であると見積もられる。

本測定手法では 4.1 節で述べたようにかなり厳密な粒子弁別が可能である。従って、例えば Fig. 29 に見られるバックグラウンド計数の大部分は除外され、最終的なバックグラウンドを低減することにつながる。

上記 B)、C)は検出器付近に存在する 14 MeV 近傍のエネルギーを持つ散乱中性子によって引き起こされる。この散乱成分は 2.1 節で述べたように定性的には非常に少ないように思われるが、その起源を定量的に説明できるように MCNP を用いてさらに詳細な計算を行った。計算は、

- ① 遮蔽体やビーム孔付近の構造材によって散乱される成分
- ② 入射ポートのタンタルによって散乱される成分
- ③ サンプルによって散乱される成分

の 3 つの成分について、それぞれ独立の計算を行った。

①については、回転ターゲットや遮蔽体全体を考慮した計算を行う必要がある。計算の結果、散乱中性子の大部分はビーム出口近傍での一回散乱により検出器へ到達していることが分かった。ビーム出口は SUS や鉛などの重元素で構成されており、検出器に到達するような小角散乱では中性子のエネルギーがほとんど変化しない。この成分の flux はビーム出口からの距離と強い相関性があることが計算から明らかになった。計算によって求めたビーム出口近傍の線量分布図を Fig. 32 に示す。図の縦軸は 14MeV 中性子の flux であり、トリチウムターゲットでの中性子発生量で規格化した相対値となっている。実験時、ターゲットでの典型的な中性子発生量は  $1.6 \times 10^{12}$  [n/s/cm<sup>2</sup>] 程度である。この値を用いて計算すると、出口から 30 cm 位置での flux は~200 [n/s/cm<sup>2</sup>]、100 cm 位置では~40 [n/s/cm<sup>2</sup>] と距離によって大きく変化する。ビーム出口から検出器までの距離をある程度大きくとることによって B)、C)由来のバックグラウンド成分をかなり低減することができると予想される。

②、③については、タンタル板やサンプルに平行ビームを入射させた計算を行った。計算には Forced Collision と Tally flagging の手法を用いた。これらの計算から、検出器位置でのおおよその flux は②~60 [n/s/cm<sup>2</sup>]、③50  $\mu m$ -t polyethylene に対して~2 [n/s/cm<sup>2</sup>] と見積もられた。この程度の散乱中性子 flux はそれほど大きなバックグラウンドを生じないと予想される。しかし、さらに厚い試料を用いる場合はその影響を慎重に考察する必要があるだろう。

最終的にこれらの解析結果をふまえて測定条件の最適化を行った。チャンバー外部からの proton を遮断し、チャンバー内のオイルミストを除外し、さらにビーム出口から検出器までの距離を 100 cm 程度にすることによって、効果的にバックグラウンドを除去することができた。この条件下で測定したバックグラウンドの計数率は関心領域内で 1 時間あたり 2~3 カウントであった。例として、4.4 節のポリエチレン試料を用いた反跳陽子の測定では、散乱角 30 度における計数率

は 6900 [counts/hour]である。この場合 3 [counts]のバックグラウンドはフォアグラウンドの 0.04% に過ぎず、十分無視できる程度に小さい。達成された S/N 比は非常に大きいと言える。この数カウントのバックグラウンドが問題となるのは、全断面積が 10 mb 以下の反応（特に、(n,xp)反応）を対象として測定する場合である。このような測定を行う場合は厳密にバックグラウンド測定を行って計数を差し引く必要があるだろう。

## 5. 結論

核融合炉開発のための基礎データとして必要な荷電粒子放出二重微分断面積の測定のため、日本原子力研究開発機構 核融合中性子工学用中性子源施設(FNS)のビーム状中性子源を利用した新しい測定手法を開発した。等方中性子源ではなくビーム状にコリメートされた中性子ビームの利用により、散乱中性子の影響を低く抑えることができ、シリコン半導体検出器を組み合わせた E-ΔE カウンターテレスコープを用いた測定が可能となった。検出器を測定試料のごく近くに配置でき、バックグラウンド成分が非常に少ない良好な S/N 比の基で測定を行えることを確認した。また高いエネルギー分解能、角度分解能、良好な粒子弁別能を実現した。ΔE 検出器のアンチコインシデンススペクトルを用いる工夫によって、 $\alpha$ 粒子に対する測定下限エネルギーを 1 MeV 程度まで引き下げる事ができた。

開発した測定手法の妥当性を評価するため、標準試料としてアルミニウムの $\alpha$ 粒子放出二重微分断面積と水素の弾性散乱による反跳陽子の測定を行った。アルミニウムの $\alpha$ 粒子放出二重微分断面積については、得られた二重微分断面積と過去の測定値は良い一致を示した。また評価済み核データとの一致も細かい構造を除いて良好であった。二重微分断面積を積分して得られた角度微分断面積は評価済み核データと良く一致した。角度微分断面積をルジャンドル多項式でフィッティングして積分することで全断面積を得た。得られた全断面積は  $134.5 \pm 5.5$  mb であり、JENDL-3.3 の評価値 126.2 mb 及び ENDF/B-VI の評価値 130.7 mb よりやや大きい値となった。過去の測定値との比較から、この差異は  $^{27}\text{Al}(n,n'+\alpha)$  反応断面積の不定性に起因する可能性があり、本測定で得られた断面積は過去の測定値や評価値と一貫性を持ってその妥当性を結論できることを示した。また中重核に対しては ΔE 検出器のアンチコインシデンススペクトルを利用した放出 $\alpha$ 粒子の全エネルギー測定の可能性が示された。水素の弾性散乱による反跳陽子の測定については、得られた角度微分断面積は過去の測定値と極めて良い一致を示し、評価済み核データとの一致も良好であった。この結果より陽子放出微分断面積測定に本測定手法が適用できることを結論した。

本手法によって放出 proton、 $\alpha$ 粒子のエネルギー分布、角度分布を高精度で測定できる見通しが得られ、特に核融合炉開発において重要なベリリウム、リチウム等の軽元素の DDXc 測定に大きな進展が期待できる。また、これまであまり着目されなかった(n,d)、(n,t)反応断面積の高精度測定は今後の核融合炉研究において大きな成果をもたらすものと期待される。

## 謝辞

実験において加速器の運転をしていただいた日本原子力研究開発機構 核融合中性子工学用中性子源施設の沓掛忠三氏、田中滋氏、阿部雄一氏、関正和氏、荻沼義和氏、川邊勝氏に感謝申し上げます。本稿を纏めるにあたり、貴重なご助言と激励を賜りました日本原子力研究開発機構 核融合研究開発部門 核融合エネルギー工学研究開発ユニット 核融合炉材料開発グループの杉本昌義次長に感謝申し上げます。

## 参考文献

- 1) 高橋亮人: 日本原子力学会誌 21, 903(1979).
- 2) A. Takahashi et al. : "Double and Single Differential Neutron Emission Cross Sections at 14.1MeV", OKTAVIAN Report, A-92-01(1992), 他.
- 3) M. Baba et al. : "Double-Differential Neutron Emission Spectra for Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu and Zr", Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Sci. and Technol., Mito, 1988, p.291(1988), 他.
- 4) G. Paić, I. Šlaus, P. Tomaš : "Counter telescopes for the study of (n, charged particle) reactions", Nucl. Instrum. Method, 34, 40 (1965).
- 5) M. Brendle, M. Mörike, G. Staudt, G. Steidle : "A counter telescopes to investigate (n,α) reactions", Nucl. Instrum. Method, 81, 141(1970).
- 6) J. P. Perroud, C. Sellem, J. F. Loude : "Identification and spectrometry of charged particles produced in reactions induced by 14MeV neutrons", Nucl. Instrum. Method, 115, 357(1974).
- 7) S. M. Grimes, R. C. Haight, J. D. Anderson : "Measurement of Sub-Coulomb-Barrier Charged Particles Emitted from Aluminum and Titanium Bombarded by 15-MeV Neutrons", Nucl. Sci. Eng., 62, 187(1977).
- 8) N. Ito, M. Baba, S. Matsuyama, I. Matsuyama, N. Hirakawa : "Large solid angle spectrometer for the measurements of differential (n,charged-particle) cross sections", Nucl. Instrum. Method, A337, 474(1994).
- 9) A. Takahashi, I. Murata, Kokooo, S. Ogino, Y. Murakami, H. Nishizawa, T. Kondo : "A time-of-flight spectrometer with pulse-shape discrimination for the measurement of double-differential charged-particle emission cross sections", Nucl. Instrum. Method, A401, 93(1997).
- 10) Kokooo, I. Murata, A. Takahashi : "Measurement of double-differential cross sections of charged-particle emission reactions for several structural elements of fusion power reactors by 14.1-MeV incident neutrons", Nucl. Sci. Eng., 132, 16(1999).
- 11) H. Sakane, Y. Uno, F. Maekawa, Y. Kasugai, C. Konno, J. Kaneko, Y. Ikeda, in: J.G. Williams, D.W. Vehar, F.H. Ruddy, D.M. Gilliam : "Reactor Dosimetry: Radiation Metrology and Assessment, American Society for Testing and Materials", West Conshohocken, PA, pp.375(2001).
- 12) P.F. Rose(Eds.) : "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation", BNL-NCS-17541, 4th Edition(1991).
- 13) J. F. Briesmeister, Ed.: "MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C", LA-13709-M (2000).
- 14) F. S. Goulding, B. G. Harvey : "Identification of Nuclear Particles", Ann. Rev. Nucl. Sci. 25, 167(1975).
- 15) J.F. Ziegler and J.P. Biersack : "The Stopping Power and Ranges of Ions in Matter", Pergamon, New York (1985) ; Computer code "SRIM-2003", (online) available from <<http://www.srim.org/>>(accessed 2006-1-13).

- 16) S. Iwasaki : "A new approach for unfolding PHA problems based only on the Bayes' Theorem", Proc. 9<sup>th</sup> International Symposium on Rector Dosimetry, Prague, Chezk Republic, Sep. 2-6, 1996, p.245(1998).
- 17) S. Iwasaki : "New CT image reconstruction slgorithm based on the Bayes Estimation", Nucl. Instrum. Meth., A422, 683(1999).
- 18) 岩崎信 : “ベイズ統計的手法による放射線逆問題の解法”, 平成 8~10 年度 科学研究費補助金萌芽的研究 研究成果報告書(1999).
- 19) 名内泰志 : “数十 MeV 中性子に対する荷電粒子生成反応に関する実験的研究”, 東北大学大学院工学研究科 博士学位論文(1998).
- 20) 高木寛之 : “DT 中性子による荷電粒子放出二重微分断面積の測定”, 大阪大学大学院工学研究科 修士学位論文(2000).
- 21) K. Shibata T. Kawano, T. Nakagawa, O. Iwamoto, J. Katakura, T. Fukahori, S. Chiba, A. Hasegawa, T. Murata, H. Matsunobu, T. Ohsawa, Y. Nakajima, T. Yoshida, A. Zukeran, M. Kawai, M. Baba, M. Ishikawa, T. Asami, T. Watanabe, Y. Watanabe, M. Igashira, N. Yamamuro, H. Kitazawa, N. Yamano, H. Takano : "Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3", J. Nucl. Sci. Technol., 39, 1125(2002).
- 22) A.B. Pashchenko et al., "FENDL/A-2.0 Neutron activation cross section data library for fusion applications", report IAEA(NDS)-173 (IAEA October 1998). Data library retrieved online (or: received on tape) from the IAEA Nuclear Data Section.
- 23) Vonach H.: "Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements", IAEA Technical Reports Series, 227(1983).
- 24) H. Takagi, Y. Terada, I. Murata, A. Takahashi : "Measurement of double differential cross section of charged particle emission reactions for <sup>nat</sup>Zr, <sup>27</sup>Al and <sup>nat</sup>Ti by incident DT neutrons", Proceedings of 1999 Symposium on Nuclear Data, JAERI, Tokai, Japan, Nov. 18-19, 1999, JAERI-Conf 2000-005, p.178(2000).
- 25) C. Kalbach, F. M. Mann : "Phenomenology of continuum angular distributions. I. Systematics and parametrization", Phys. Rev., C23, 112(1981).
- 26) C. Kalbach : "Systematics of continuum angular distributions: Extensions to higher energies", Phys. Rev. C37, 2350(1988).
- 27) D. W. Kneff, B. M. Oliver, H. Farrariv, L. R. Greenwood : "Helium Production in Pure Elements, Isotopes, and Alloy Steels by 14.8-MeV Neutrons", Nucl. Sci. Eng., 92, 491(1986).
- 28) T. Fukahori, Y. Kanda, H. Tobimatsu, Y. Maeda, K. Yamada, T. Nakamura, Y. Ikeda : "Measurement of Helium Production Cross Section of Aluminum for 14.8 MeV Neutrons", J. Nucl. Sci. Tech., 23, 91 (1986).
- 29) Y. Ikeda, C. Konno, Y. Oyama, K. Kosako, K. Oishi, H. Maekawa : "Absolute Measurements of Activation Cross Sections Of <sup>27</sup>Al(n,p)<sup>27</sup>Mg, <sup>27</sup>Al(n, $\alpha$ )<sup>24</sup>Na, <sup>56</sup>Fe(n,p)<sup>56</sup>Mn, <sup>90</sup>Zr(n,2n)<sup>89</sup>Zr<sup>m</sup>+ $\gamma$  and <sup>93</sup>Nb(n,2n)<sup>92</sup>Mb<sup>m</sup> at Energy Range of 13.3 - 14.9 MeV", J. Nucl. Sci. Tech., 30, 870(1993).
- 30) A. A. Filatenkov, S. V. Chuvaev, V. N. Aksenov, V. A. Yakovlev, A. V. Malyshenkov, K. Vasil`ev, M.

Avrigeanu, V. Avrigeanu, D. L. Smith, Y. Ikeda, A. Wallner, W. Kutschera, A. Priller, P. Steier, H. Vonach, G. Mertens, W. Rochow : "Systematic Measurement of Activation Cross Sections At Neutron Energies from 13.4 to 14.9 MeV", Khlopin Radiev. Inst., Leningrad Reports p.252 (1999).

- 31) J. D. Seagrave : "Recoil Deuterons and Disintegration Protons from the  $n-d$  Interaction, and  $n-p$  Scattering at  $E_n=14.1$  Mev", Phys. Rev., 97, 757 (1955).
- 32) M. Tanaka, N. Koori, S. Shirato : "Differential Cross-Section for Neutron-Proton Scattering at 14.1 MeV", J. Phys. Soc. Jpn., 28, 11(1970).

**Table 1 Details of the Silicon surface barrier detectors using in the present study.**

	$\Delta E$ detector		E detector	
Sensitive Thickness	9.6 $\mu\text{m}$	20 $\mu\text{m}$	769 $\mu\text{m}$	1500 $\mu\text{m}$
Active Area	50 $\text{mm}^2$	200 $\text{mm}^2$	300 $\text{mm}^2$	200 $\text{mm}^2$
5486keV Alpha Resolution (FWHM)	—	—	16.1 keV	20.5 keV
Noise Width (FWHM)	27.5 keV	33.5 keV	11.3 keV	14.3 keV
Operating Bias	5 V	11 V	300 V	350 V

**Table 2 Minimum energy with which various kinds of charged particles can penetrate  $\Delta E$  detector.**

Thickness of $\Delta E$ detector	9.6 $\mu\text{m}$	20 $\mu\text{m}$
Proton	750 keV	1.3 MeV
Deuteron	900 keV	1.5 MeV
Triton	1.0 MeV	1.7 MeV
$\alpha$ -particle	2.5 MeV	—
${}^6\text{He}$ particle	2.8 MeV	—
${}^7\text{Li}$ particle	4.5 MeV	—

**Table 3 Error sources and estimated errors in the present study.**

Items	Estimated error (%)
a) Determination of neutron flux	
Statistics of gamma-ray count	< 1.5
Detector efficiency	2.0
Sample weight	< 0.1
Irradiation, cooling and measuring time	< 0.1
Self-absorption of $\gamma$ -ray in a sample foil	< 0.1
Correction factor due to coincidence sum	< 0.1
Statistics of $^{238}\text{U}$ flux monitor	< 0.2
Standard reaction cross section	Not considered
b) Charged-particle measurement and data processing	
Sample weight	< 0.1
Uncertainty due to a particle discrimination	< 0.5
Geometrical factor of a detector and a sample	1
Response Function calculation	Not considered
Unfolding procedure	Not considered

**Table 4 Specification of sample materials.**

Target nuclide	Condition	Thickness	Shape
$^1\text{H}$	Polyethylene film	4.6mg/cm <sup>2</sup> (50 $\mu\text{m}$ )	2.51cm- $\phi$ , circular.
$^{19}\text{F}$	Teflon ((CF <sub>2</sub> ) <sub>n</sub> ) foil	10.7mg/cm <sup>2</sup> (50 $\mu\text{m}$ )	1.6cm×2.5cm, rectangle.
$^{27}\text{Al}$	Metal foil	50 $\mu\text{m}$	2.17cm- $\phi$ , circular.

**Table 5 Nuclear reactions of Teflon with 14MeV neutron.**

	Q-value[MeV]	E <sub>thr</sub> [MeV]
<sup>19</sup> F(n, $\alpha$ ) <sup>16</sup> N	-1.524	1.605
<sup>19</sup> F (n,n'+ $\alpha$ ) <sup>15</sup> N	-4.014	4.227
<sup>19</sup> F (n,p) <sup>19</sup> O	-4.039	4.253
<sup>19</sup> F (n,d) <sup>18</sup> O	-5.770	6.076
<sup>19</sup> F (n,t) <sup>17</sup> O	-7.557	7.958
<sup>19</sup> F (n,n'+p) <sup>18</sup> O	-7.994	8.419
<sup>12</sup> C(n, $\alpha$ ) <sup>9</sup> Be	-5.701	6.180
<sup>12</sup> C(n,n'+3 $\alpha$ )	-7.275	7.988
<sup>13</sup> C(n, $\alpha$ ) <sup>10</sup> Be	-3.835	4.133

**Table 6 Comparison of cross section for <sup>27</sup>Al(n,x $\alpha$ ) reaction.**

Authors	Cross section [mb]	Incident neutron energy [MeV]
Present experiment	134.5 ± 5.5	14.2
Kneff et al. <sup>27)</sup>	143 ± 7	14.8
Fukahori et al. <sup>28)</sup>	141 ± 8	14.8
Grimes et al. <sup>7)</sup>	121 ± 25	15.0
Takagi et al. <sup>24)</sup>	121 ± 3	14.1
ENDF-B/VI <sup>23)</sup>	126.2	14.2
	127.3	14.8
JENDL-3.3 <sup>20)</sup>	130.7	14.2
	131.5	14.8

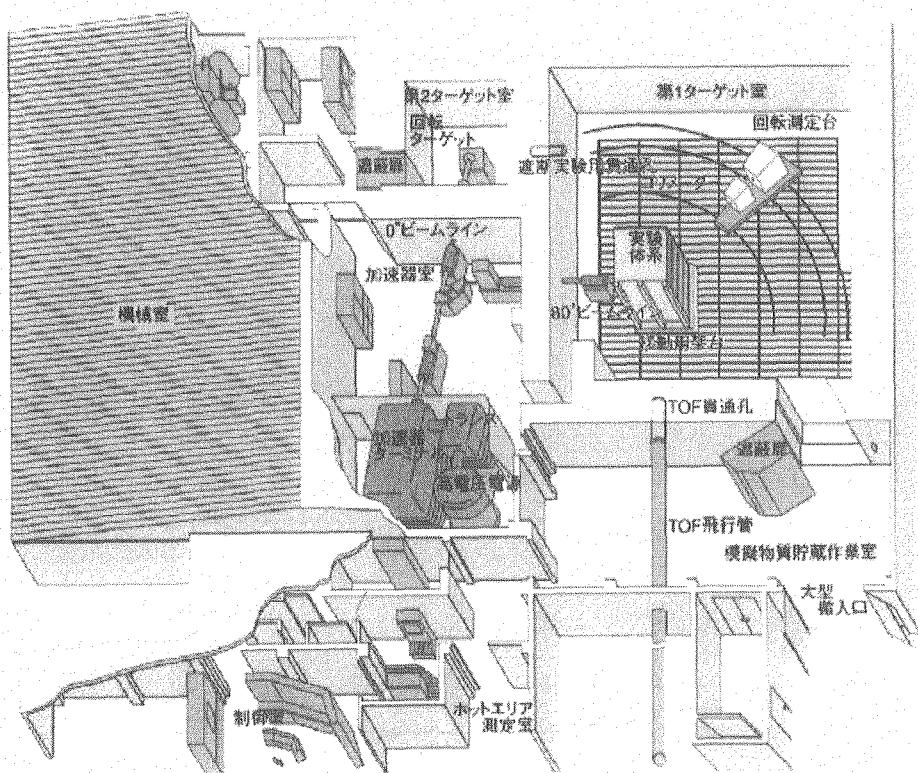


Fig. 1 Bird's eye view of FNS facility.

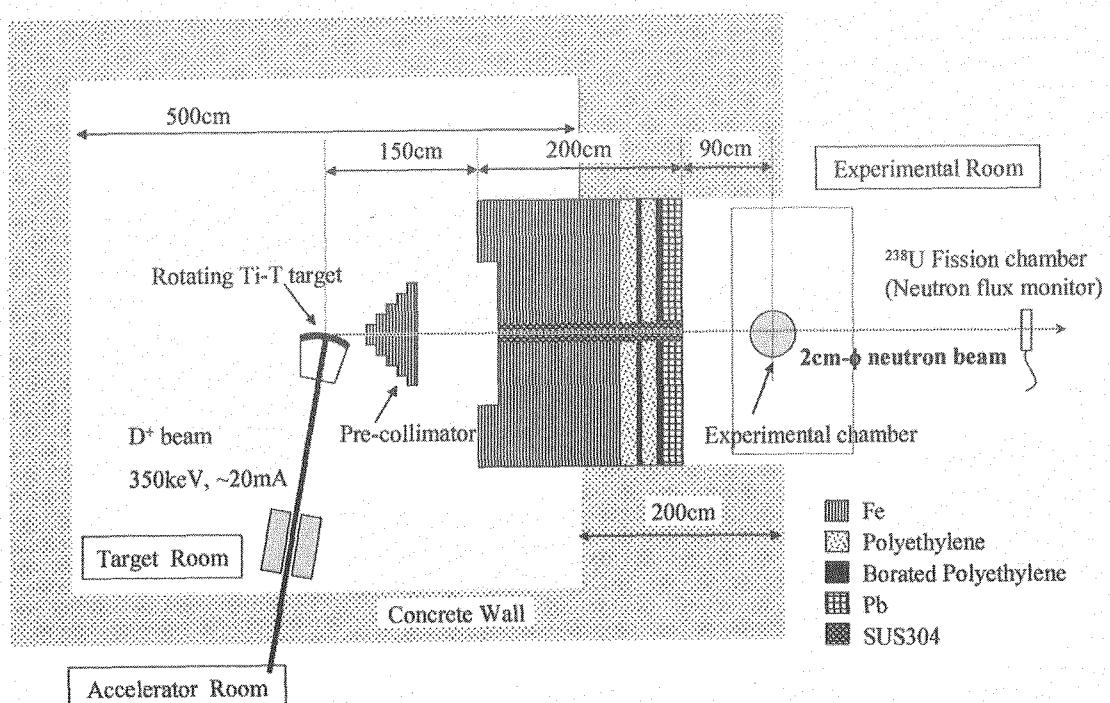
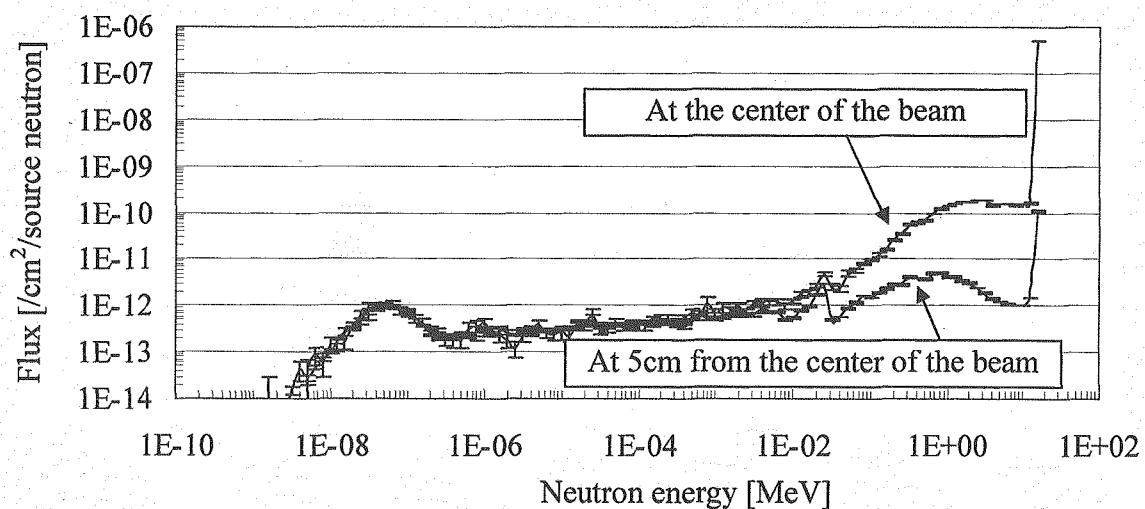
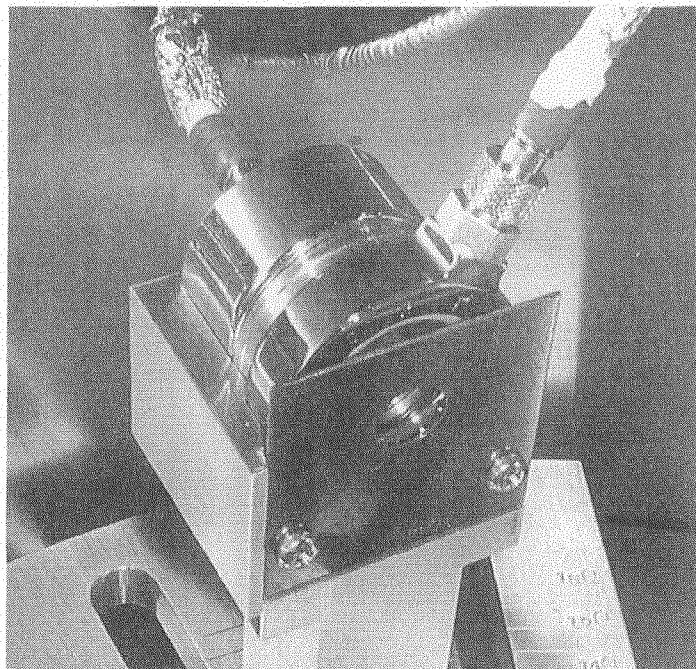


Fig. 2 Schematic view of the pencil-beam neutron source in FNS facility.



**Fig. 3** Calculated source spectrum and background spectrum of the pencil-beam neutron source.



**Fig. 4** Picture of the present detectors system. A tantalum aperture with a hole (9.0 mm in diameter) is placed just in front of the ΔE detector. The E detector is placed on the bottom.

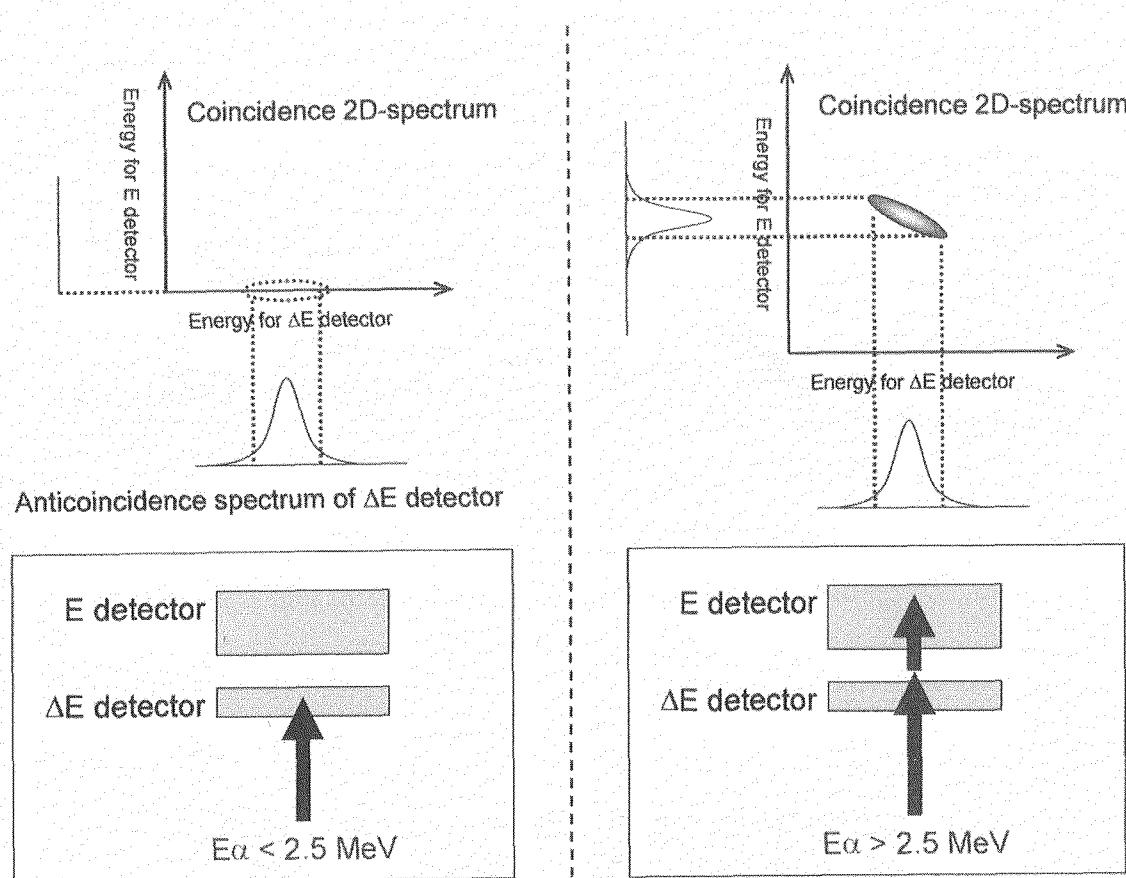


Fig. 5 The concept to use anticoincidence spectrum of  $\Delta E$  detector

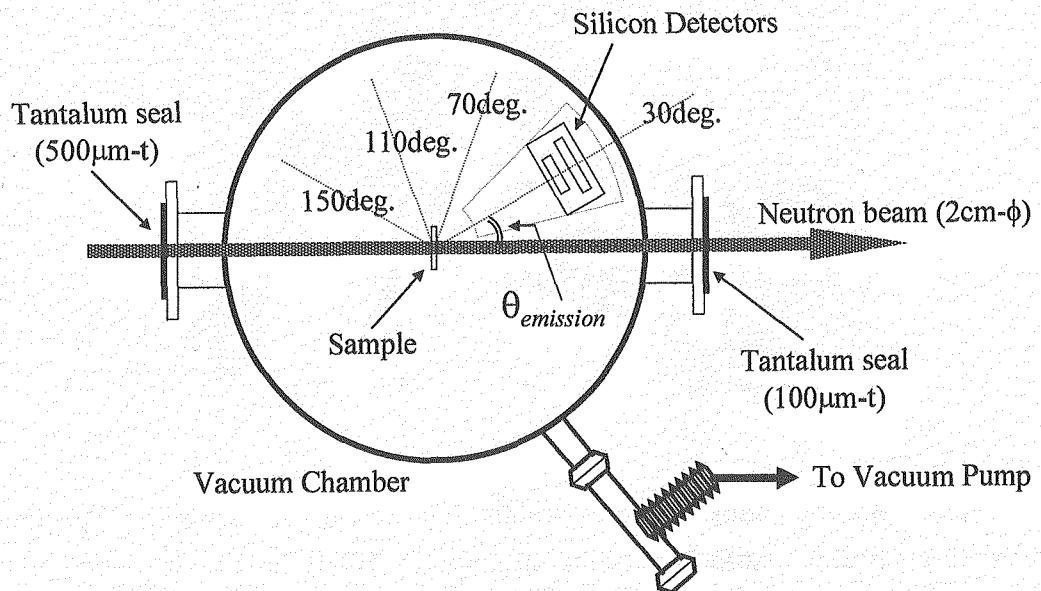


Fig. 6 Arrangement of the vacuum chamber and the detector system. The distance of the sample and the aperture can be set for 5 - 13 cm.

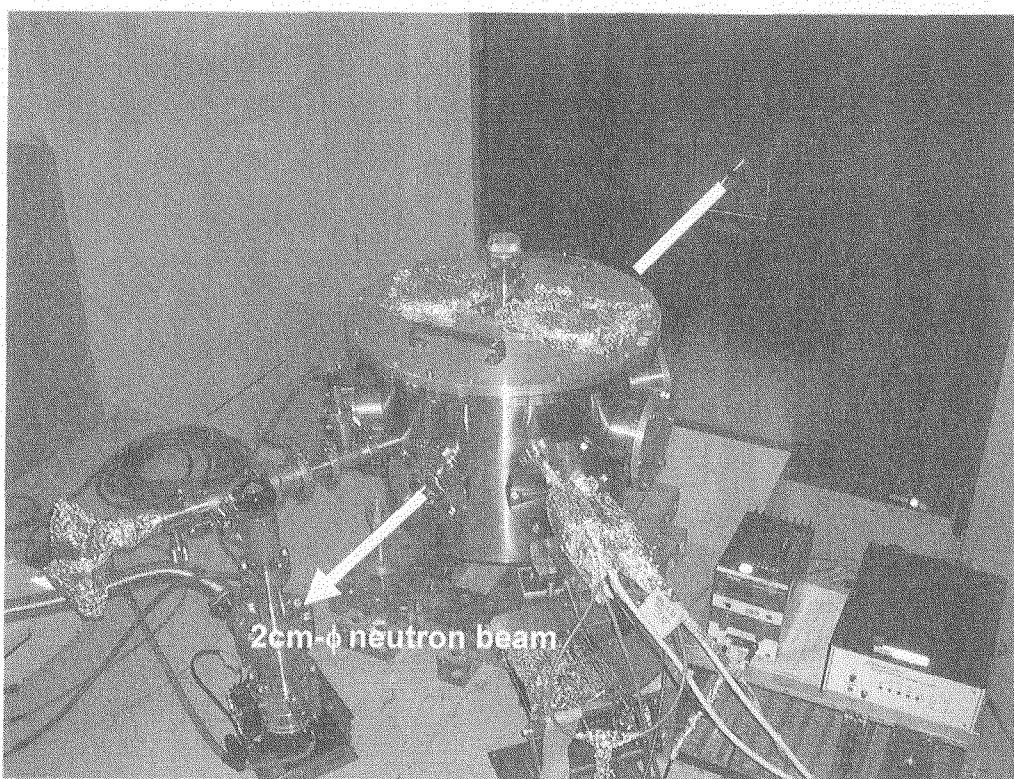


Fig. 7 Picture of the experimental setup.

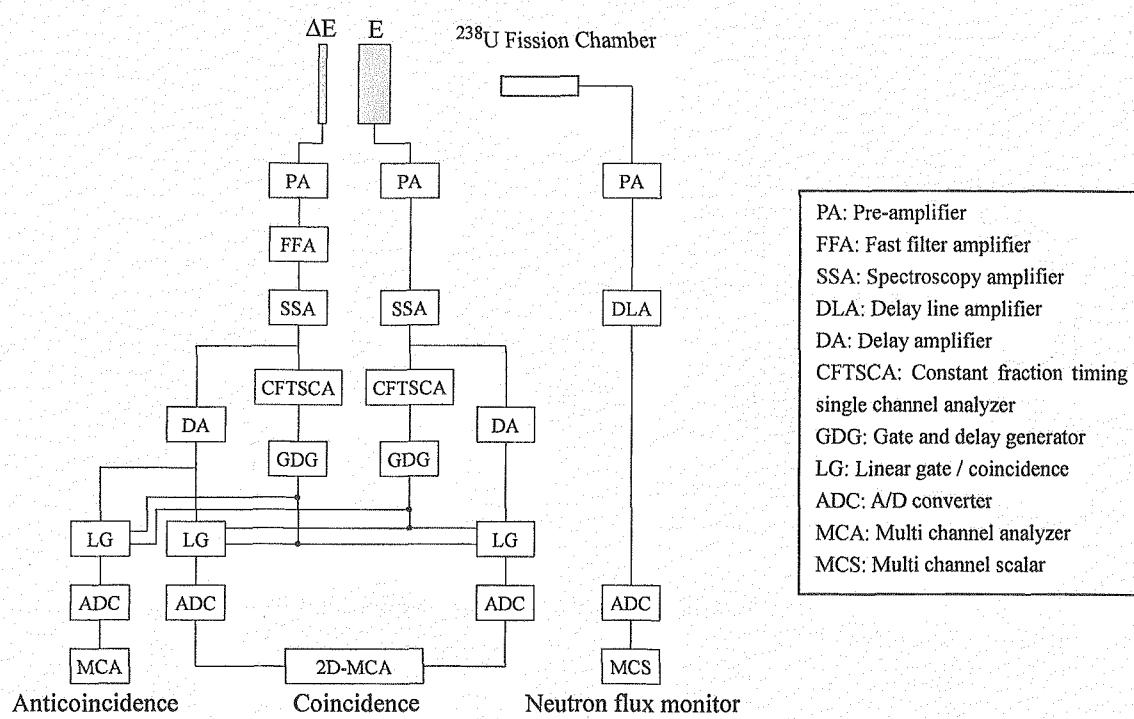
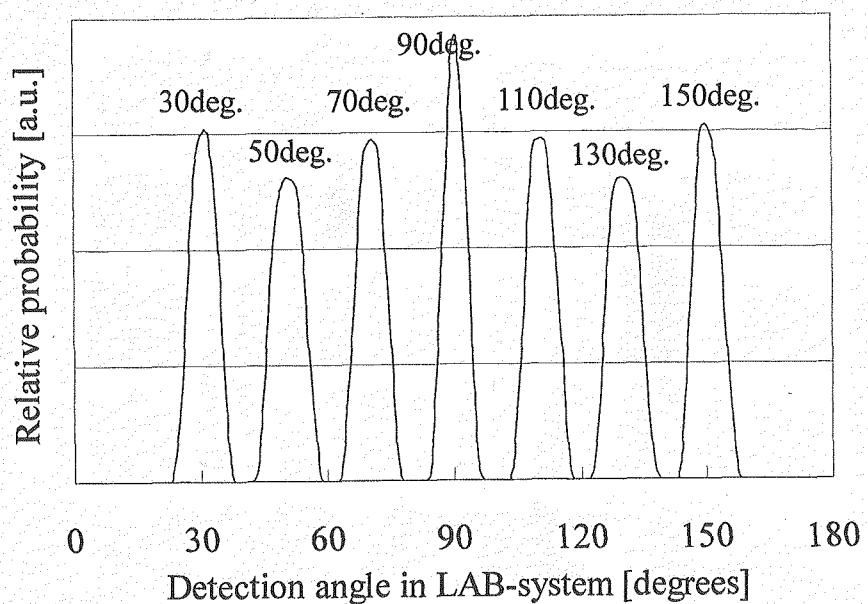
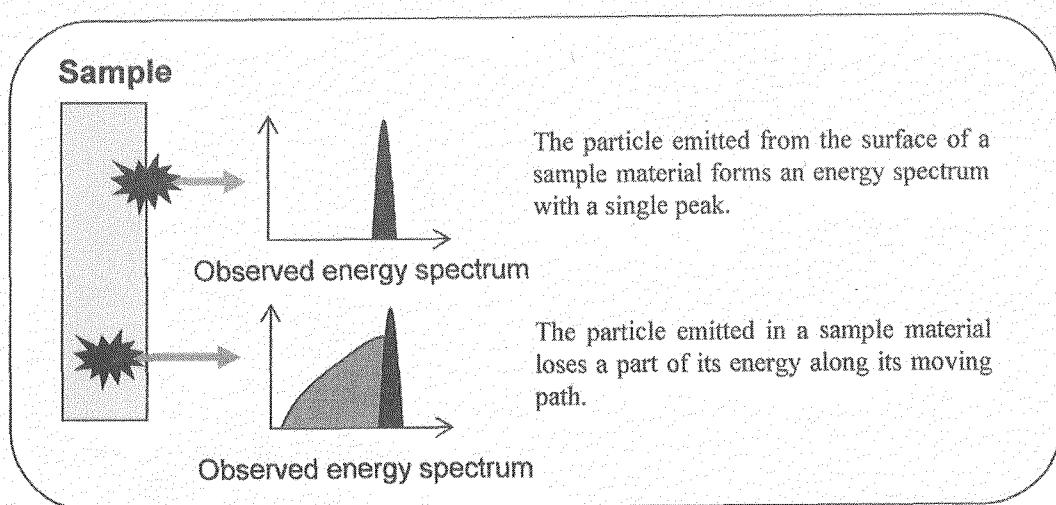


Fig. 8 Schematic diagram of the electronic circuit in the measurement system.

**Fig. 9 Calculated angular resolution function of the present spectrometer.**

In the calculation, the distance of a sample and an aperture was 9.0 cm. The sample rotated 40 degrees, except at 30 and 150 degrees of emission angles. The shape of the sample was 1.6 cm × 2.5 cm, rectangle. The diameter of the hole of the aperture was 9.0 mm. The solid angle for this condition was estimated about  $7.9 \times 10^{-3}$  sr.

**Fig. 10 Effect of energy loss of emitted charged-particles in a sample.**

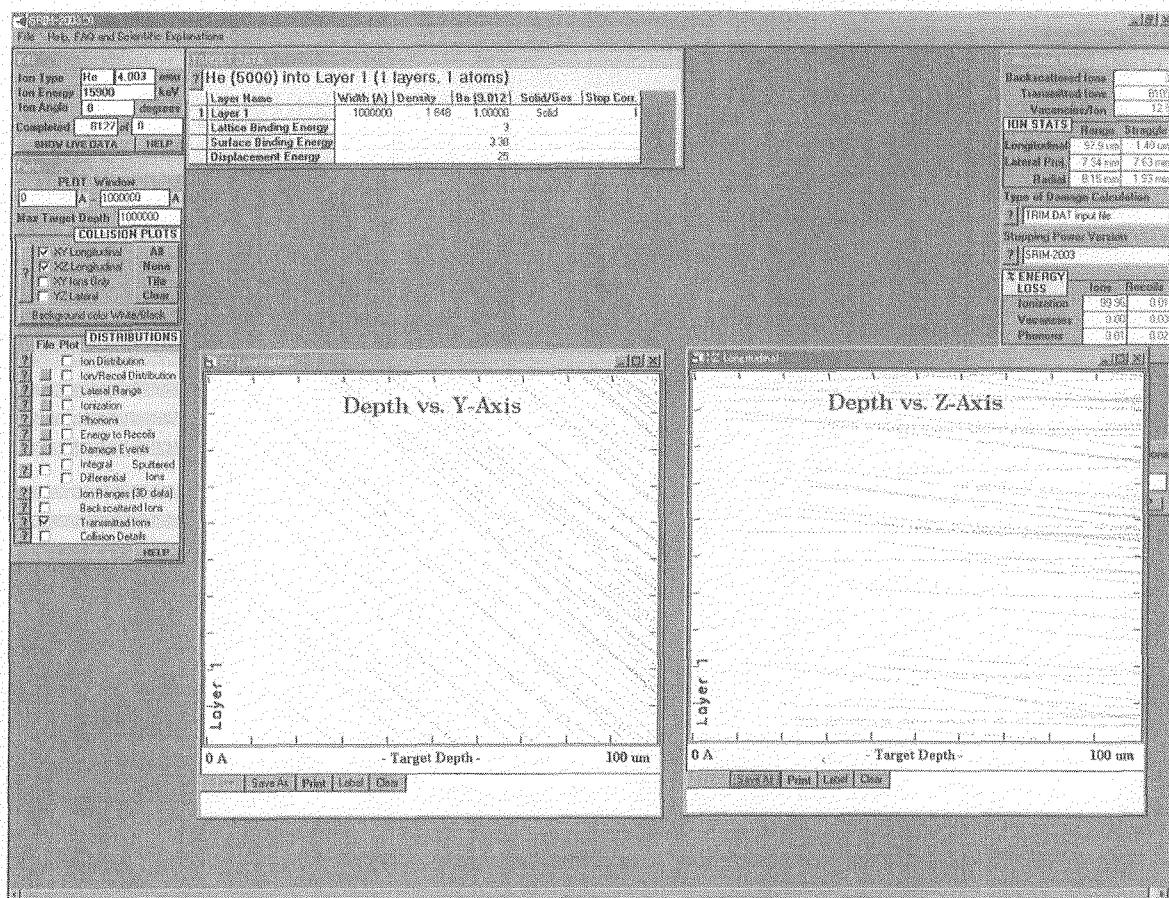


Fig. 11 Example of the calculation of Response Function with SRIM-2003.

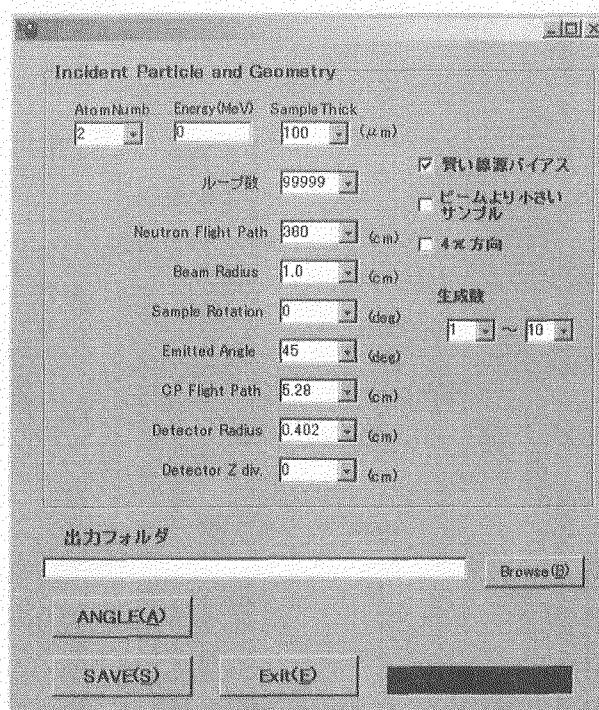


Fig. 12 “SRIMDDXc” window.

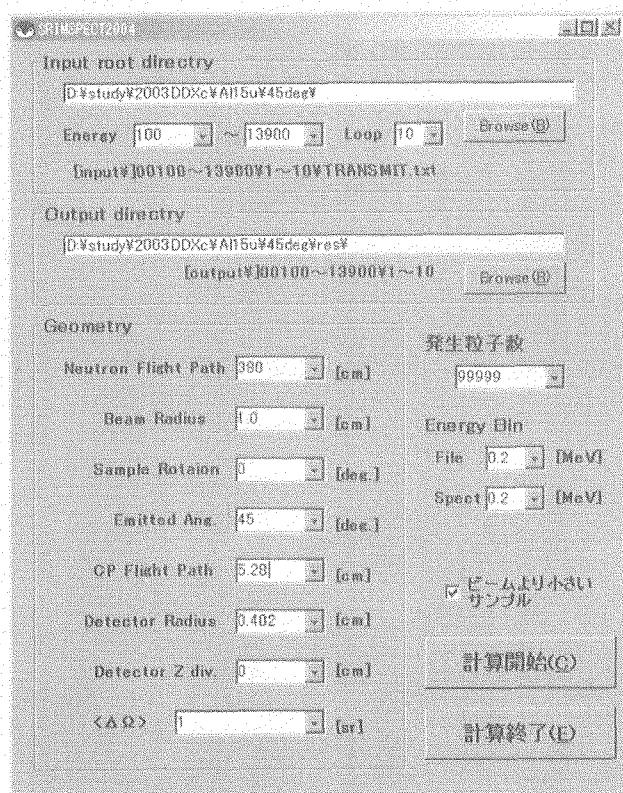
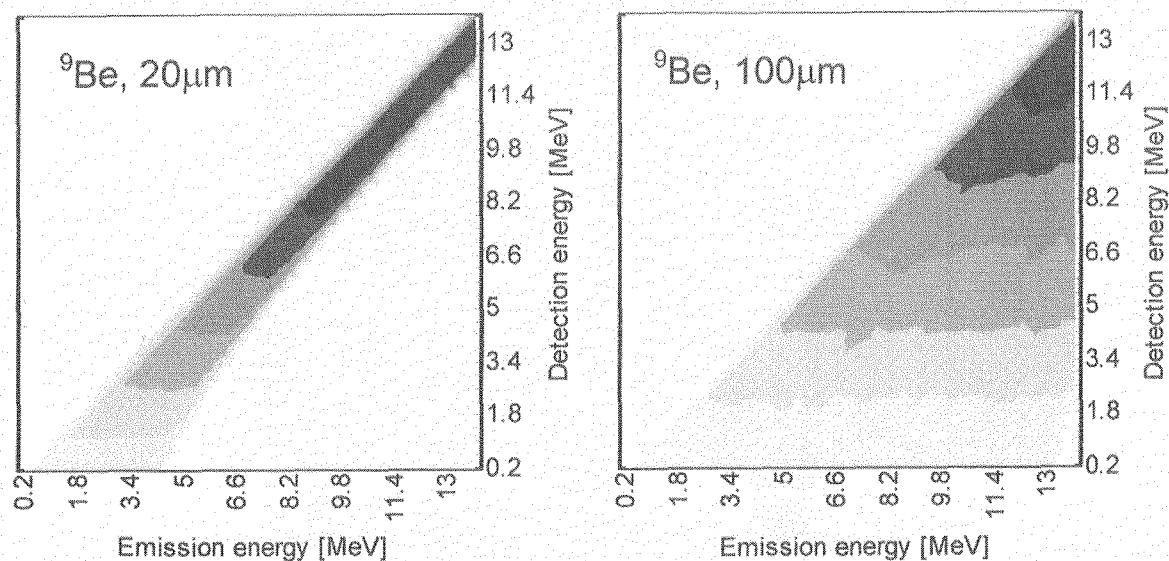


Fig. 13 "SRIM-SPECT" window.

Fig. 14 Calculated Response Functions for  ${}^9\text{Be}$  samples.

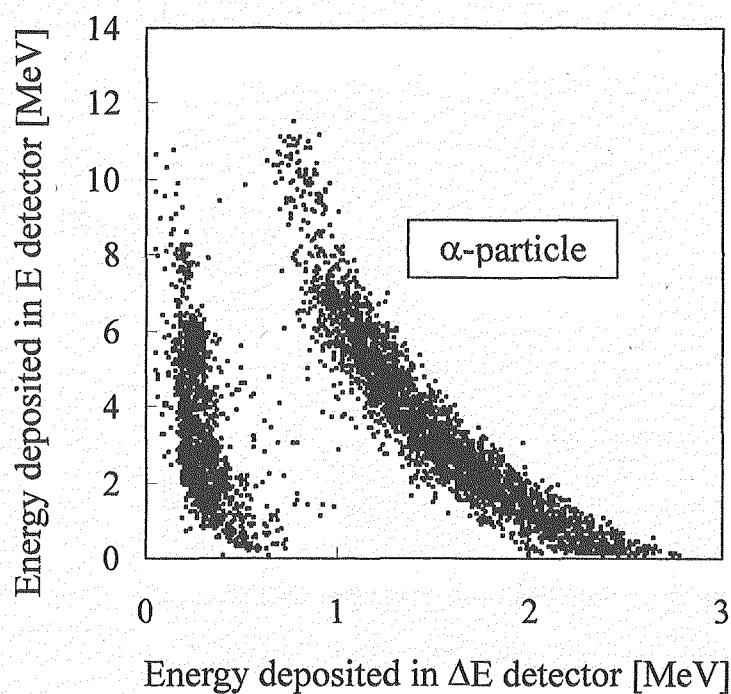


Fig. 15 2D-spectrum obtained in the measurement of  $^{19}\text{F}(n, \text{charged particles})$  reactions at 30degrees of emission angle with the  $9.6\mu\text{m}$ - $\Delta\text{E}$  detector. Background signals were not subtracted in this figure.

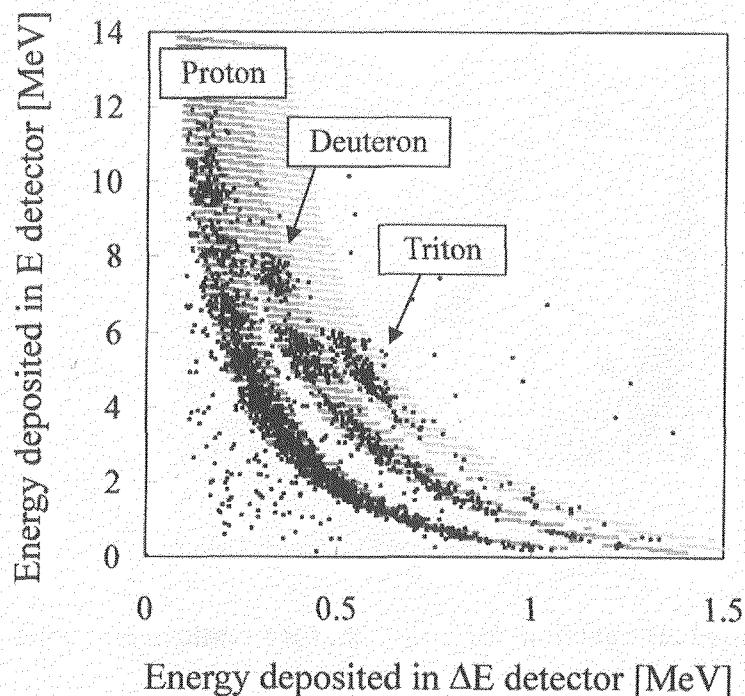


Fig. 16 2D-spectrum obtained in the measurement of  $^{19}\text{F}(n, \text{charged particles})$  reactions at 30degrees of emission angle with the  $20\mu\text{m}$ - $\Delta\text{E}$  detector. Background signals were not subtracted in this figure.

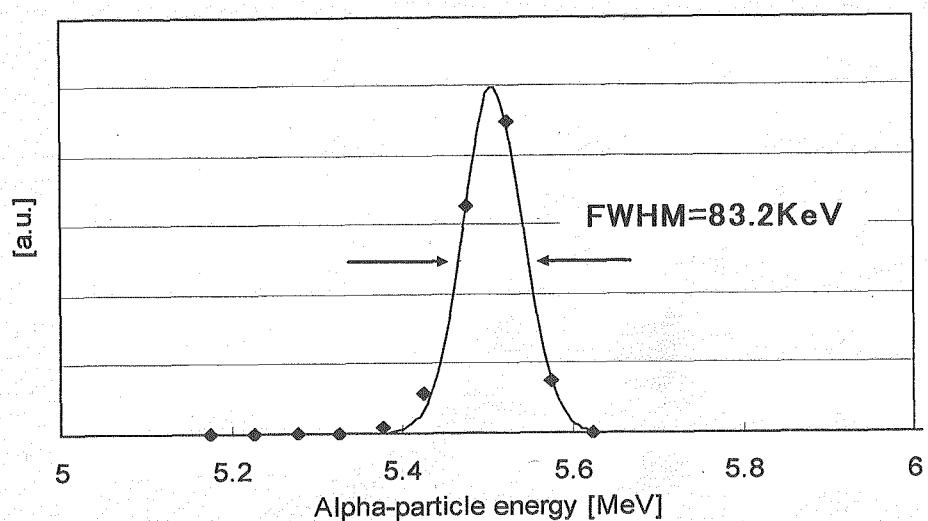


Fig. 17 Energy resolution obtained in the measurement using  $^{241}\text{Am}$  radiation source.

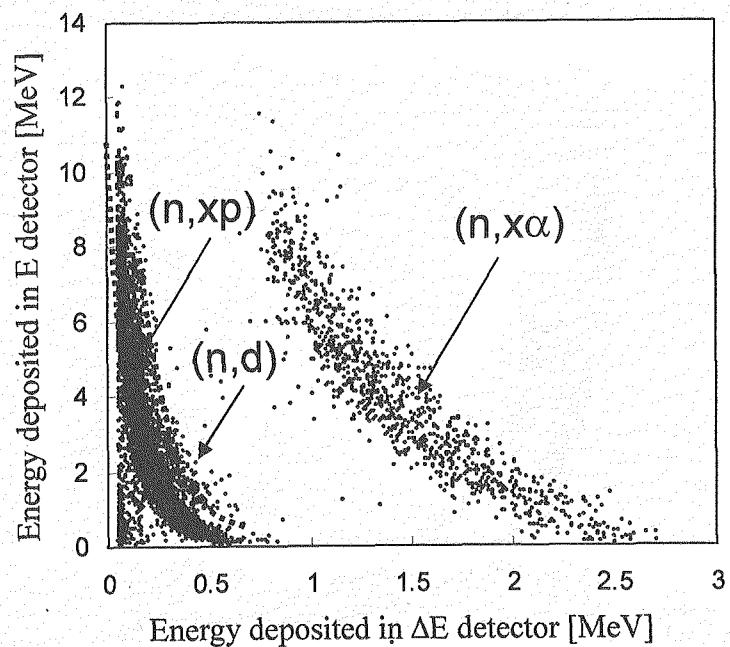


Fig. 18 Measured 2D-spectrum for  $^{27}\text{Al}(n, \text{charged particle})$  reactions at 45 deg.

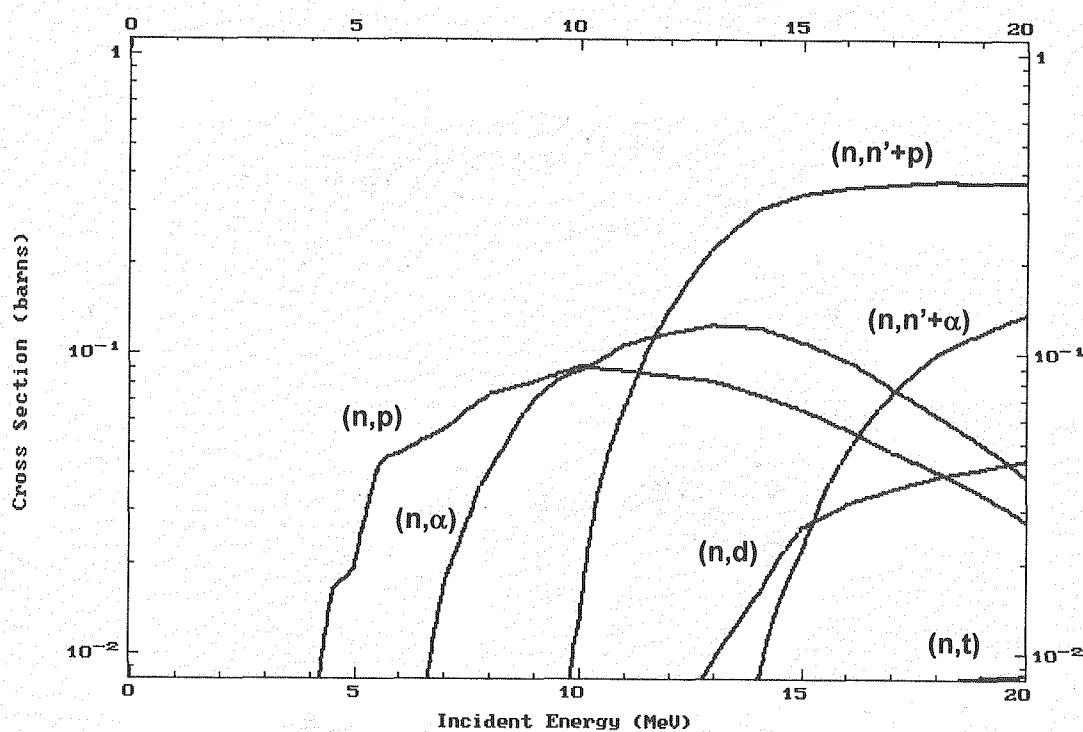


Fig. 19 Cross sections for  $^{27}\text{Al}(n, \text{charged particle})$  reactions evaluated in ENDF-B/VI.

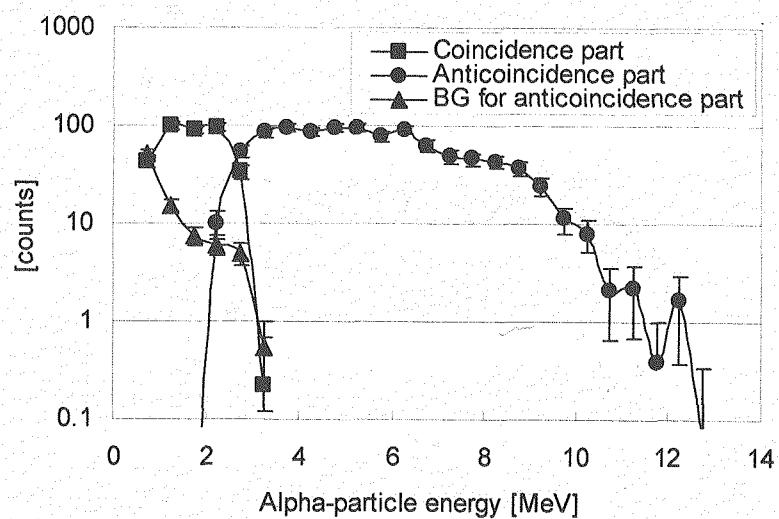
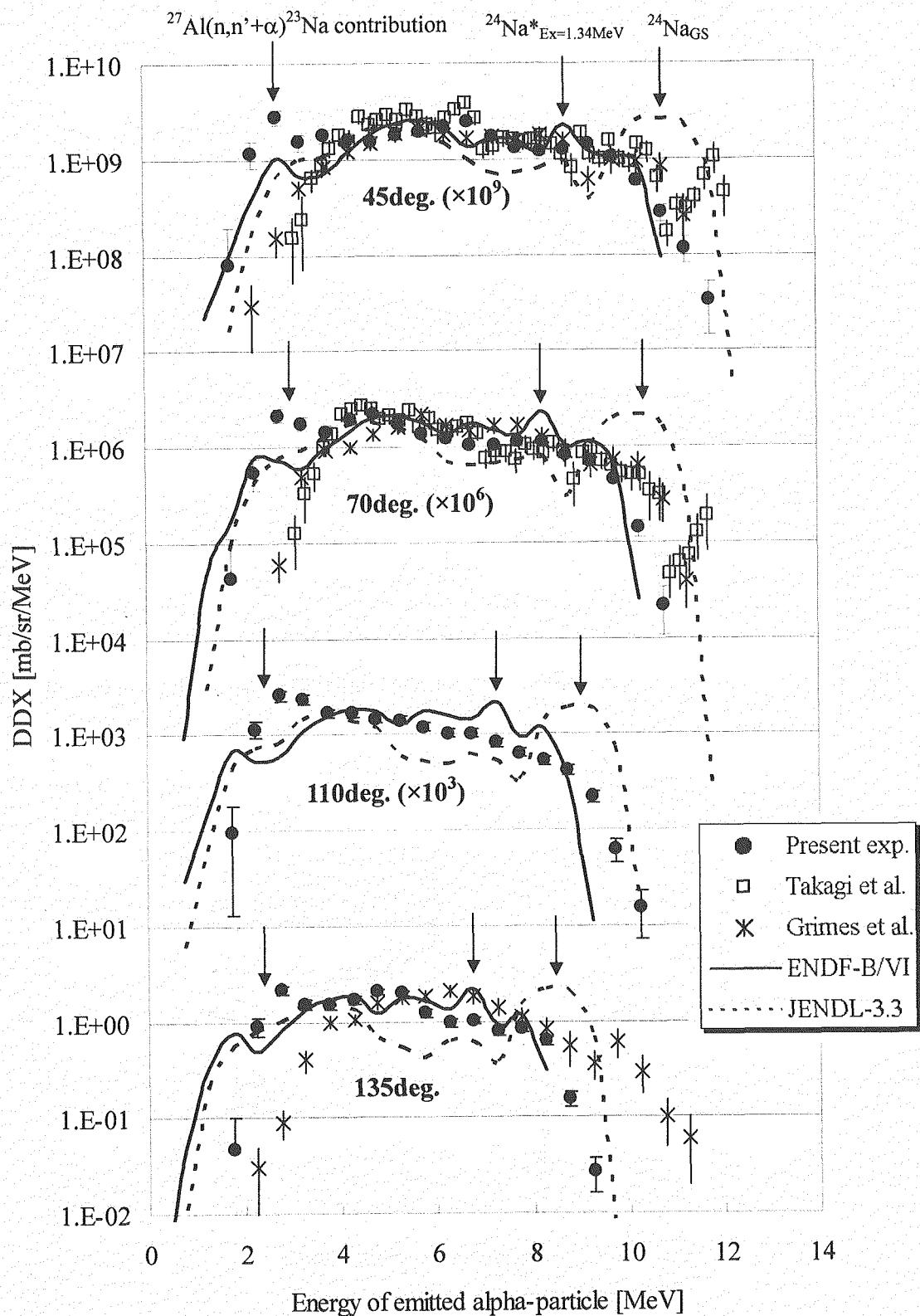
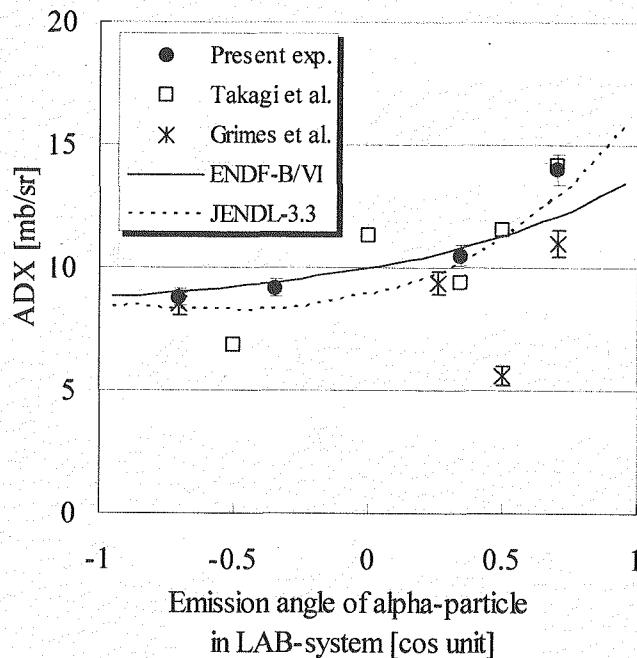


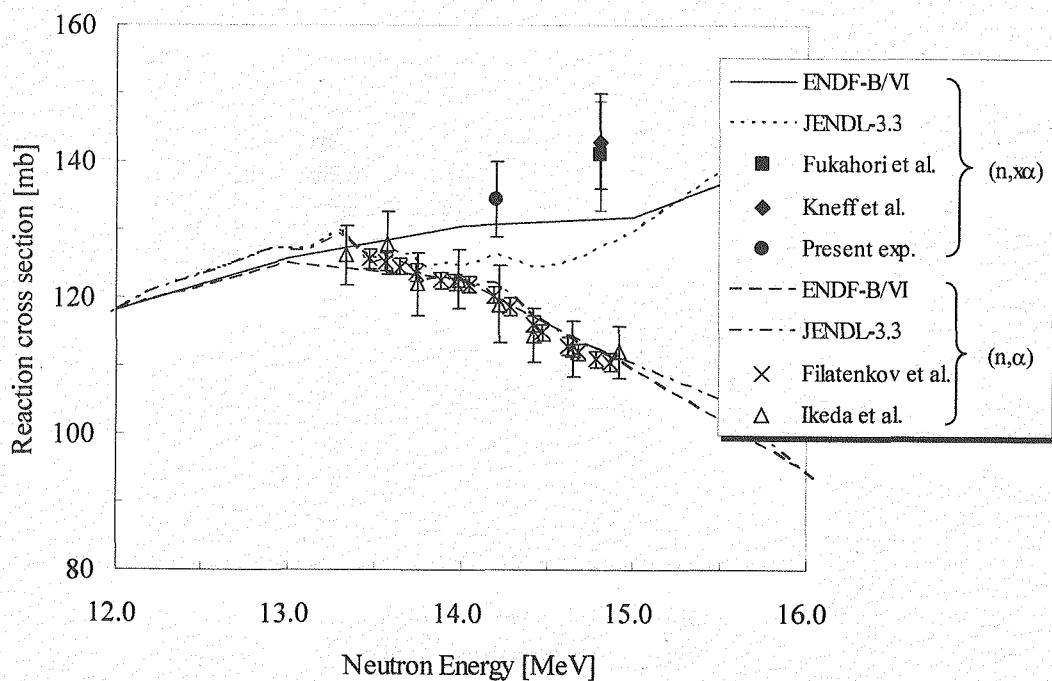
Fig. 20 Measured energy spectra for  $^{27}\text{Al}(n, x\alpha)$  reactions at 45 deg.



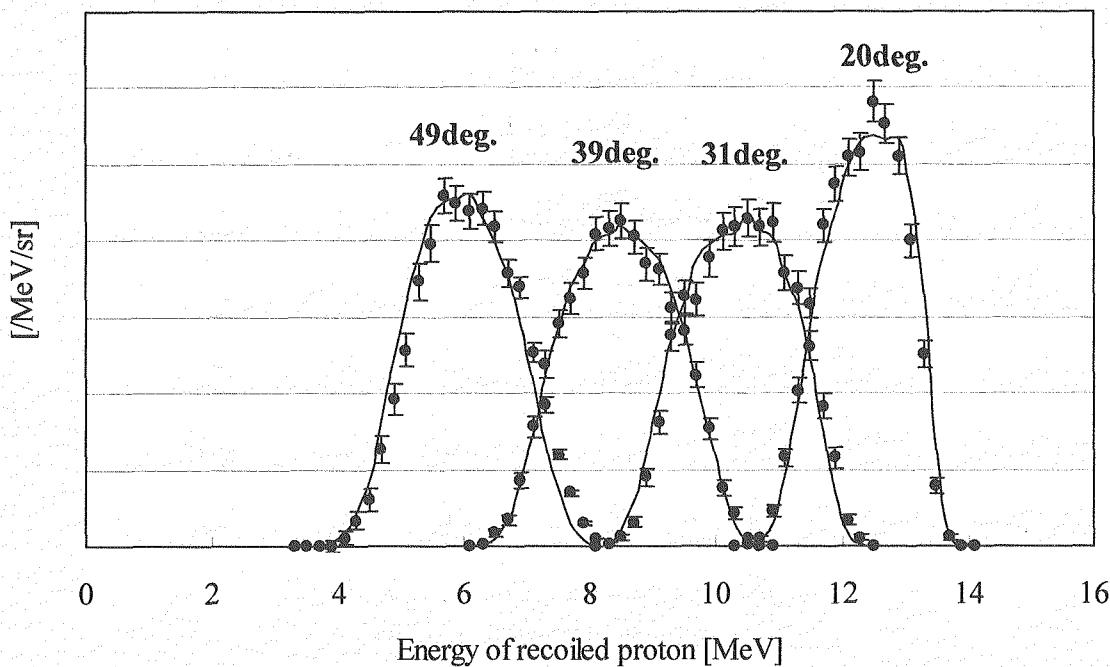
**Fig. 21** DDX measured for  $^{27}\text{Al}(n,x\alpha)$  reactions at each emission angle in LAB-system and comparison with the previous experiments and the evaluated data. The incident neutron energy of the previous experiments was tabulated in Table 5.



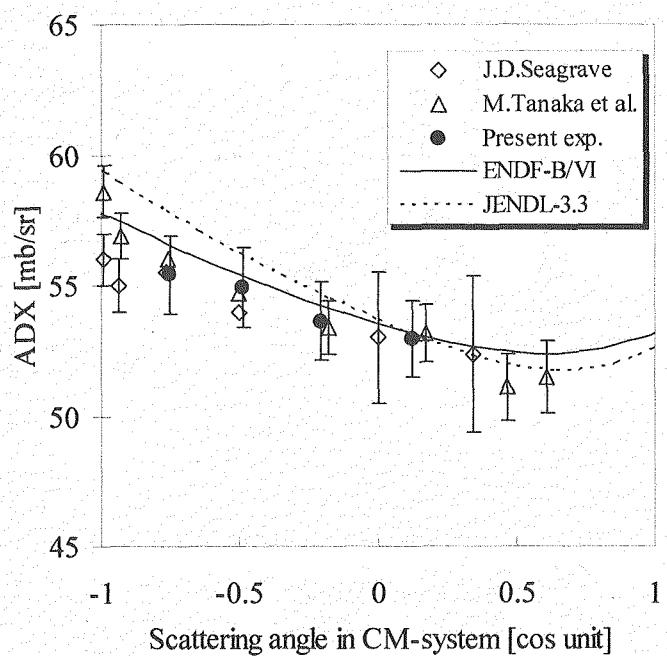
**Fig. 22** ADX measured for  $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{x}\alpha)$  reactions at each emission angle in LAB-system and comparison with the previous experiments and the evaluated data.



**Fig. 23** Comparison of TOXs for  $^{27}\text{Al}(\text{n},\text{x}\alpha)$  reaction and  $^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)$  reaction between the values obtained in the previous experiment, the previous experiments and the evaluated data.



**Fig. 24** Measured (dotted) and calculated (lined) energy distributions for recoiled proton via  $^1\text{H}(n,n)$  reaction at each scattering angle in LAB-system.



**Fig. 25** Obtained ADX for  $^1\text{H}(n,n)$  reaction and comparison with the previous measurements and the evaluated data. The previous measurements were carried out with 14.1 MeV of incident neutron energy.

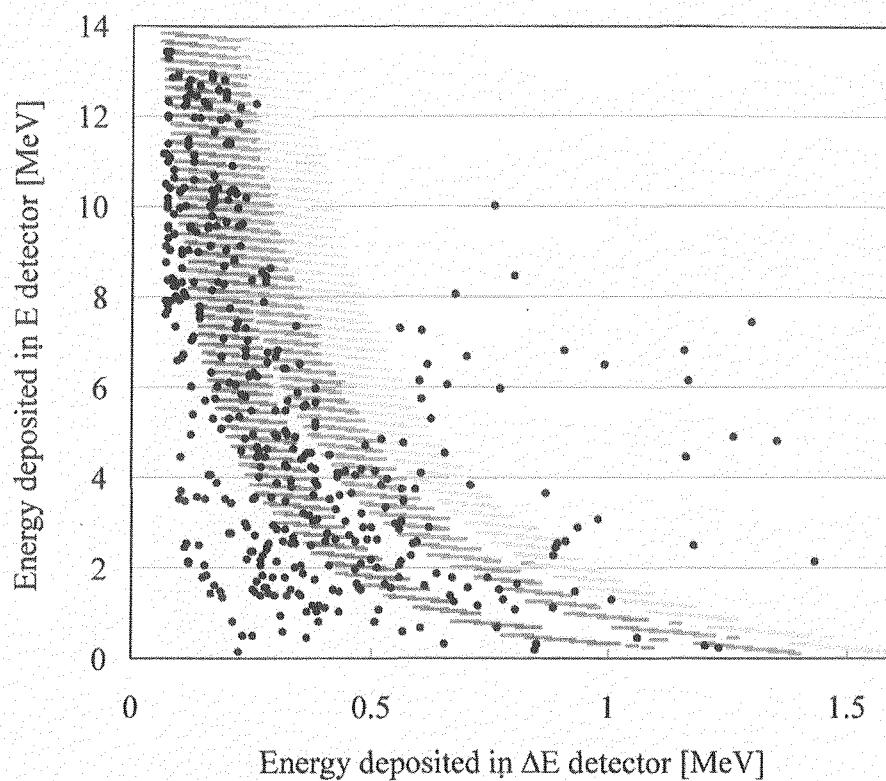


Fig. 26 Measured background 2D-spectrum at 45 degrees of detection angle.

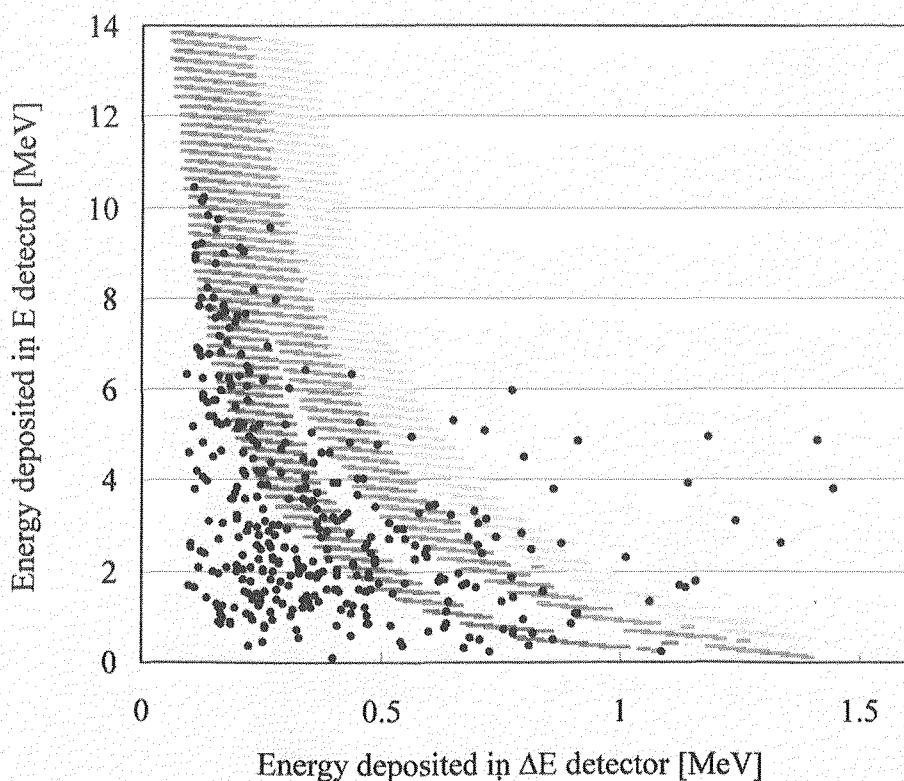


Fig. 27 Measured background 2D-spectrum at 70 degrees of detection angle.

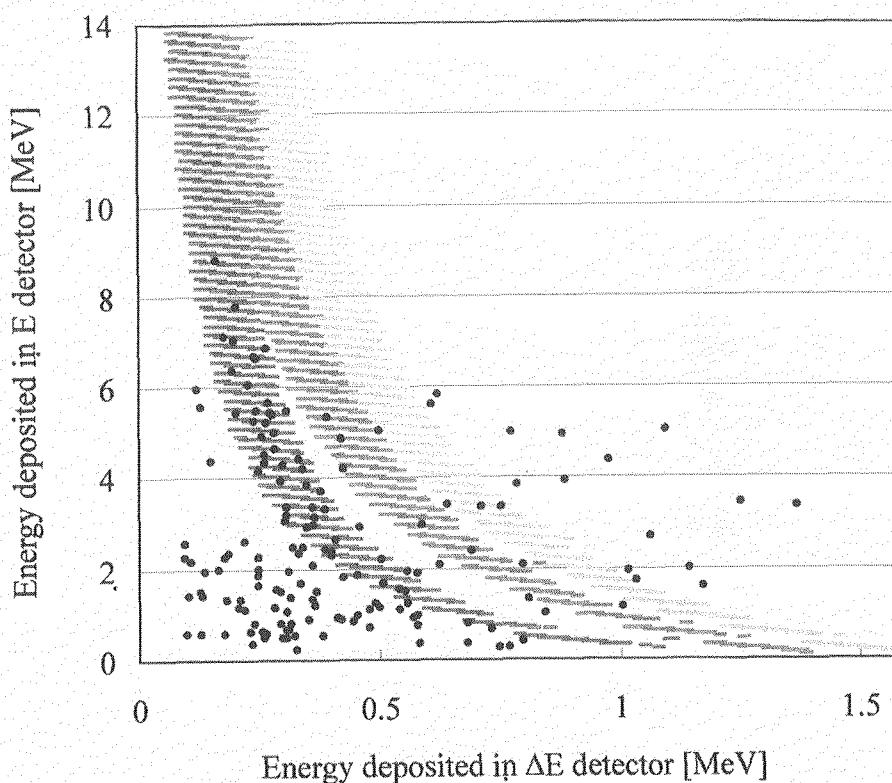


Fig. 28 Measured background 2D-spectrum at 90 degrees of detection angle.

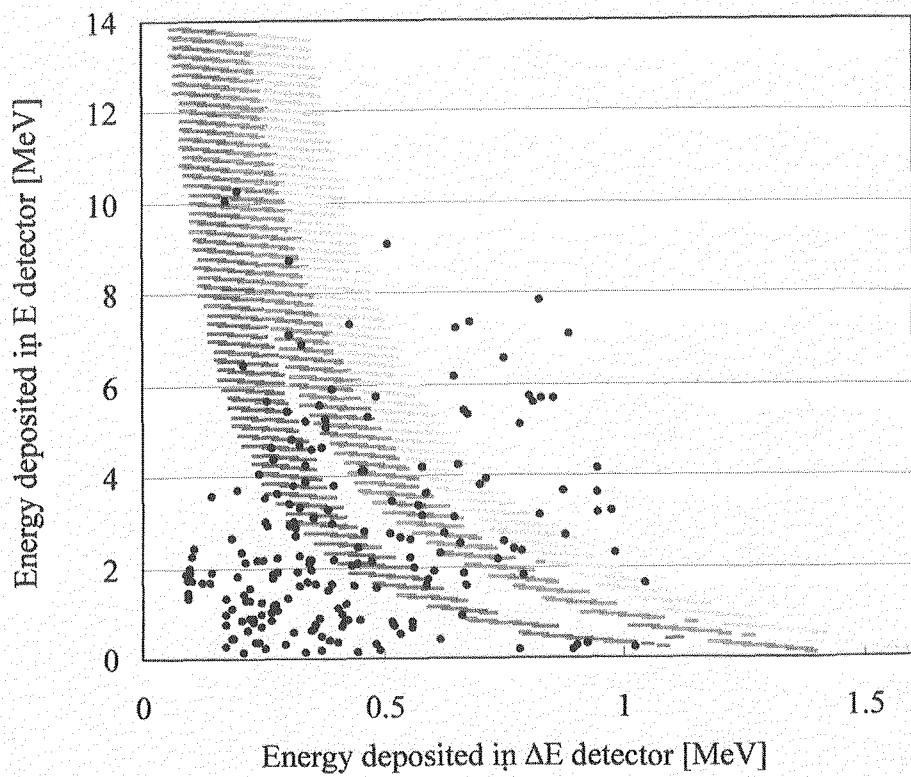
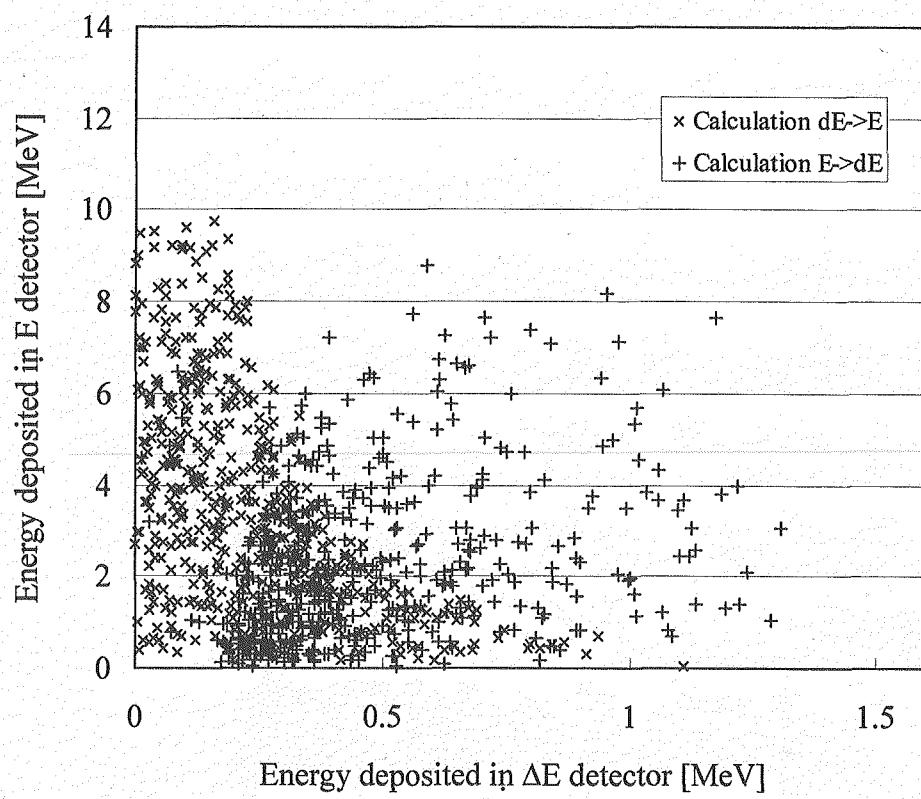
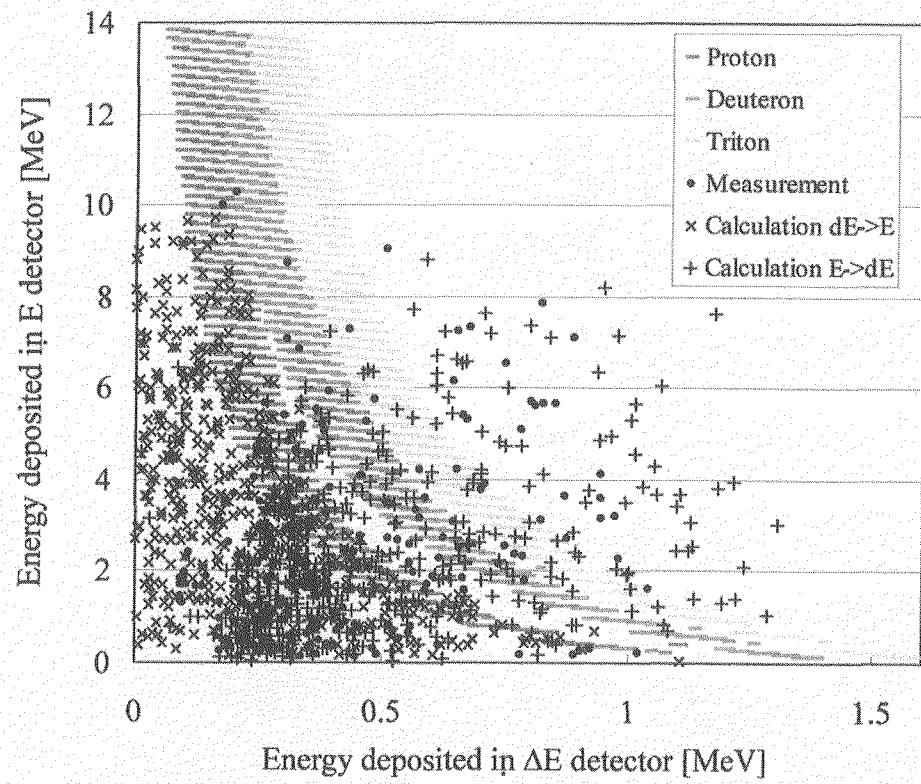


Fig. 29 Measured background 2D-spectrum at 135 degrees of detection angle.



**Fig. 30** Calculated background 2D-spectra.



**Fig. 31** Calculated and measured background 2D-spectra.

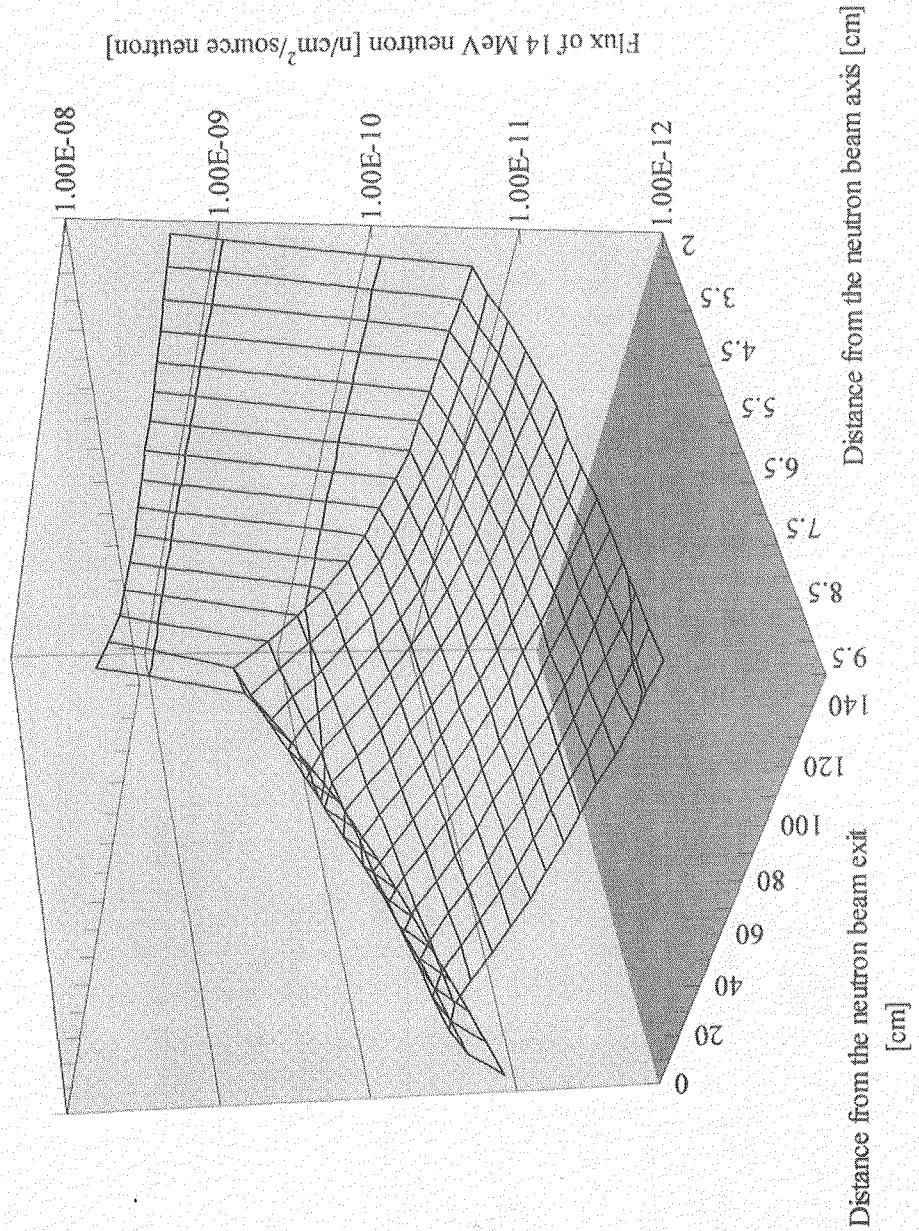


Fig. 32 Calculated flux distribution of scattered neutron at the beam exit.