

JAERI - M

84 - 211

中性子捕獲断面積測定用500 ℥大型
液体シンチレーション検出器

1984年11月

水本 元治・杉本 昌義・莊司 時雄

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 株原子力資料サービス

中性子捕獲断面積測定用 500 ℥ 大型
液体シンチレーション検出器

日本原子力研究所東海研究所物理部
水本元治・杉本昌義・莊司時雄

(1984 年 10 月 22 日受理)

中性子捕獲断面積の測定を目的とした、大型液体シンチレーション検出器を製作し、原研リニアック 55m 中性子測定屋に設置した。この検出器は、球形タンク状をしており、500ℓ のシンチレーター (NE 224) と 20ℓ のメチルボレイトが充填されている。タンクは、アルミニウムで被覆されたマイラによって光学的に両半球に分離され、それぞれの間で同時計数 (コインシデンス測定) を行い、バックグラウンドを減少させる機能を有している。検出器のエネルギー分解能は、ガンマ線源 ^{60}Co のサムピーク (2.5 MeV) で 24% (FWHM)、時間分解能は 4.3 ns (FWHM) である。

また検出器のガンマ線に対する検出効率を計算するために、Monte Carlo 法によるプログラムを開発した。このプログラムでは、同時計数及び非同時計数時における、標準ガンマ線源及び中性子捕獲ガンマ線の波高分布を計算する。計算による波高分布は、実験値を良く再現している。

この報告では、検出器の性能について述べるとともに、予備的な捕獲断面積測定例を示す。

A 500 l large liquid scintillation detector
for neutron capture cross section measurements

Motoharu MIZUMOTO, Masayoshi SUGIMOTO and Tokio SHOJI

Department of Physics,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received October 22, 1984)

A large liquid scintillation detector has been constructed for the purpose of measuring neutron capture cross sections. The detector is installed at a 55 m time-of-flight station at the JAERI electron linear accelerator. The detector tank is filled with 500 l scintillator liquid (NE224) and 20 l tri-methylborate. The tank is optically separated into halves by thin aluminized mylar so that background counts are reduced by operating the two halves of the tank in coincidence. The gamma pulse height resolution is found to be 24 % (FWHM) for 2.5 MeV sum peak of Co-60 source and the overall time resolution is 4.3 ns (FWHM).

The gamma-ray response function of the detector was investigated in order to determine the efficiency in either its coincidence or non-coincidence operation. Comparison was made between the observed pulse height distributions and calculations with a new Monte-Carlo code for various gamma-ray sources and neutron capture gamma-rays.

This report will describe the characteristic of the detector and the preliminary experiments for demonstrating the detector performance.

Keywords: Liquid Scintillation Detector, Neutron Capture Cross Section
Electron Linear Accelerator, Time-of-flight Spectrometer,
Resolution, Efficiency

目 次

1. はじめに	1
2. 検出器の概要	4
2.1 形状及び材質	4
2.2 シンチレータ及び内壁反射剤	6
3. エレクトロニクス回路	7
4. 検出器の性能	10
4.1 パルスハイト特性	10
4.2 時間分解能	14
4.3 中性子感度	14
4.4 捕獲ガンマ線スペクトル	16
4.5 T O Fスペクトル	21
5. モンテカルロ法による応答関数の計算例	23
6. おわりに	27
謝 辞	27
参考文献	28

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Description of the detector	4
2.1 Shape and material	4
2.2 Scintillator liquid and reflector	6
3. Electronics	7
4. Detector characteristics	10
4.1 Pulse height distribution	10
4.2 Time resolution	14
4.3 Neutron sensitivity	14
4.4 Capture gamma-ray spectra	16
4.5 Time-of-flight spectra	21
5. Monte-Carlo calculations of the detector response	23
6. Conclusion	27
Acknowledgment	27
References	28

1. はじめに

中性子捕獲断面積(neutron capture cross section)の値は原子炉設計及び遮蔽計算上重要であり、そのための測定精度向上が計られてきた。しかし未だにいくつかの重要な核種に対する捕獲断面積の値についても、応用上必要とされる精度を満たしていない(WRENDA81/82
⁽¹⁾
World request list of nuclear data)。

原研リニアックでは、測定装置として3500ℓ大型液体シンチレーション検出器を用いて、永年捕獲断面積の測定を行い、その結果を報告してきた。⁽²⁾ しかしこの装置は10年あまりの使用により、シンチレーターの性能の劣化や回路系の老朽化が著しくなった。今回我々は旧装置製作や使用上の経験を生かして、新たに性能の良い検出器の製作を行った。この報告では設計の詳細と得られた性能について記述する。

中性子捕獲断面積測定法としては、反応に常に付随する即発ガンマ線を検出するのが一般的であり、以下に述べる3種類の検出器がよく用いられる。(1)Moxon-Rae 検出器、(2)全エネルギー検出器、及び今回製作した(3)大型液体シンチレーション検出器である。それぞれの検出器には一長一短があり、一概にどの型の検出器が優れているとは言い難い。Table 1にそれぞれの主な特性を示した。

Table 1 即発ガンマ線を検出する捕獲断面積検出器の特性比較

	Moxon-Rae 検出器	Total Energy 検出器	大型液体シンチレーション 検出器
検出効率	小さい(数%)	中位(10~20%)	大きい>20%
応答関数	簡単	複雑(Weighting functionの作成)	比較的簡単
応答時間	速い	速い	大きくなると遅くなる。
バックグラウンド	小さい	小さい	大きい
製作費用	安い	中間	高い

我々は今迄使用してきた大型液体シンチレーション検出器に対する諸設備と経験を生かすために同タイプの検出器を採用し、大巾な改良を加えて、より良い検出器の製作を目指した。

現在世界各地の研究所で使用されている代表的な大型液体シンチレーション検出器の特性を
⁽³⁾
Table 2に示す。

一般に捕獲断面積用検出器が満たさなければならない重要な特性として、(1)S/N比が大きいこと(Background countsが少ないこと)、(2)検出効率が大きいこと、(3)検出器の応答関数が単純で、入射中性子エネルギー、測定核種によって大きく違わぬこと、(4)ガンマ線パルス波高の分解能が優れること。(これは(2)、(3)と密接に関連している。) (5)散乱中性子に対する感度が低いことなどを上げることが出来る。

Table 2 各国の大型シンチレーション検出器の比較

	大きさ (ℓ)	光電子増倍管の数	シンチレーター	同時計数
GA	4000	88	Decalin	Yes
JAERI	3500	4	mixture	
ORNL	3000	32	mixture	Yes
ANL	1300	12	mixture	
RPI	1100	10	mixture	
KFK	800	12	NE-224	
JAERI	500	8	NE-224	Yes
Harwell	270	12	NE-211	Yes

Fig. 1 に中性子捕獲に伴うガンマ線の一例として、熱中性子捕獲によるタンタルの例を示す。⁽⁴⁾

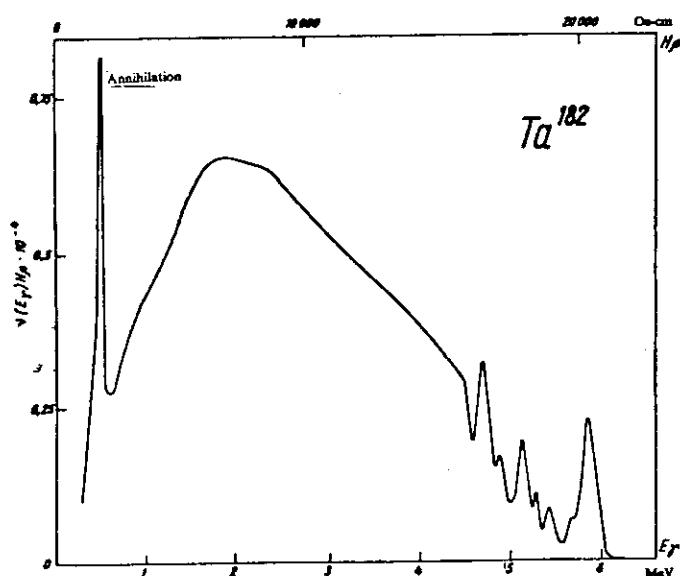


Fig. 1 An example of neutron capture gamma-ray spectrum
(Groshev et al. 1968)

この図からも分る様に、通常捕獲ガンマ線は 2 ~ 3 MeV にピークを持ち、4 ~ 5 本が同時に放出される。核種によっては、最高 5 ~ 10 MeV のエネルギーを持つガンマ線を放出する可能性もあり得る。Fig. 2 に Intrinsic Efficiency (入射したガンマ線がなんらかの形で検出器と相互作用を起す確率) のガンマ線のエネルギー依存性を示す。図では球の半径を 3 種類 $r = 30, 50, 100$ cm に変化させた計算値が示されている。検出効率を上げるために、半径の長い大きな検出器が望ましい。又大きな検出器は全てのガンマ線をとらえるために応答関数も単純となる。しかし半面バックグラウンドは容積に比例して大きくなることが知られており、時間分解能も悪くなる。

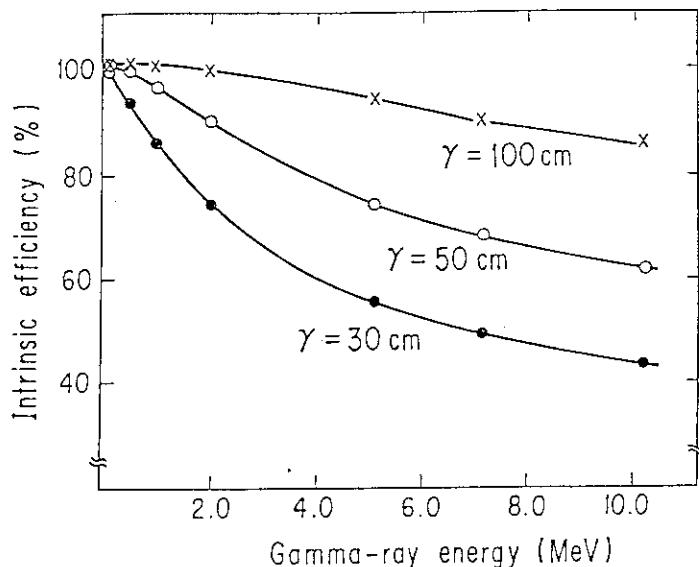


Fig. 2 Calculated intrinsic detector efficiencies for mono-energetic gamma-rays (r : radius)

我々はそれ等を考え合せて、 500ℓ ($r = 50 \text{ cm}$ に相当)の容積を持った検出器を製作した。

Fig. 3に検出器の概念図を示す。

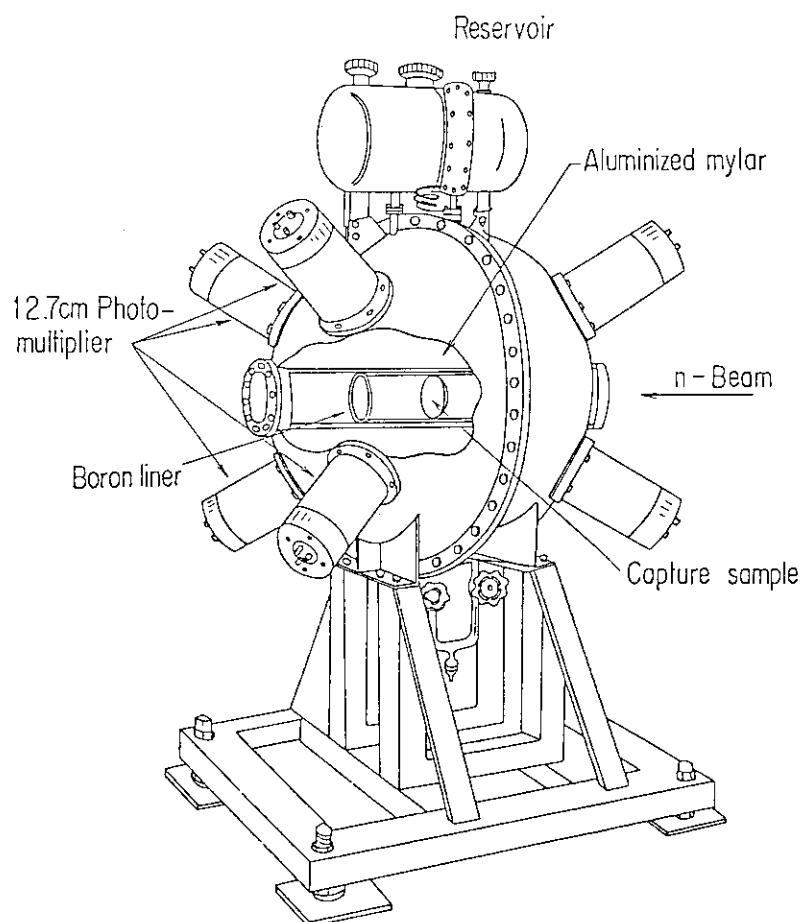


Fig. 3 Schematic drawing of the 500ℓ liquid scintillation detector

以下に検出器の詳細について順を追って、第2章で検出器の概要、第3章はエレクトロニクス回路、第4章では、検出器の性能、第5章では予備的な実験データを記述する。

2. 検出器の概要

この章では、検出器自体のデザイン、材質、液体シンチレータの内容について詳しく述べる。

2.1 形状及び材質

中性子捕獲に伴うガンマ線は、平均として全方向（ 4π 方向）に均等に放出されるため、検出器は球形（タンク状）に作られる。飛行管を通過してコリメート（ $6\text{ cm}\phi$ ）された中性子ビームはタンク中央に貫通された中性子導管によって検出器に導かれる。測定すべきサンプルはタンク中央に置かれる。

Fig. 4 は中央のパイプの内径の大きさを変化させた時の Intrinsic Efficiency の変化を

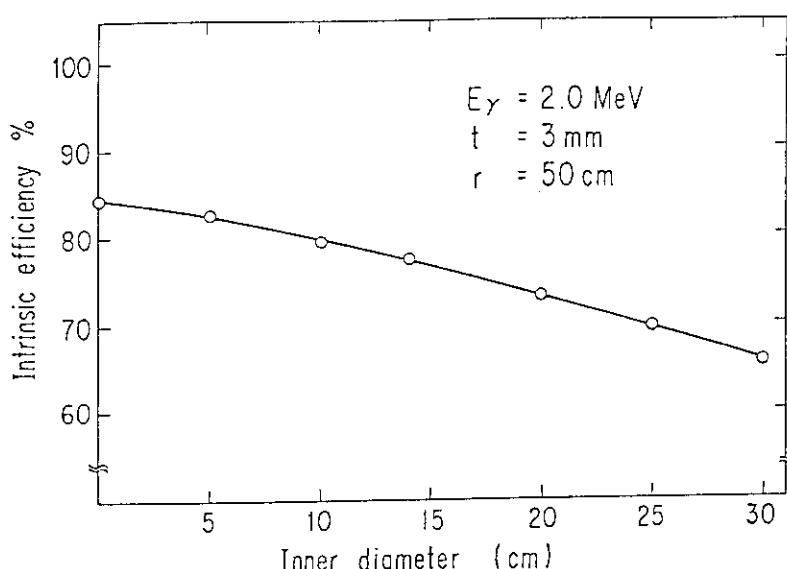


Fig. 4 Calculated intrinsic detector efficiencies as a function of inner diameter length of central tube (E_γ: gamma-ray energy, t: thickness of the central tube, r: radius of the tank)

モンテカルロ法を用いて計算したものである。（計算はガンマ線エネルギー 2.0 MeV、球半径 50 cm、パイプの厚み 3 mm の際のものである）我々のタンク用には結果的には内径 14 cm、厚み 2 mm アルミニウム製のパイプで製作された。Fig. 5 に製作図面の一部を示す。

タンクの外壁は 6 mm 厚のステンレス製であり、8 個の光電子増倍管を取り付けるための窓と、4 個の内部の状態をのぞくための窓が取り付けられている。タンク中央には前述のアルミニウム製のパイプが貫通しており、中央にサンプルが置かれる。このパイプは、真空中に引くことも考慮されており両側に、真空中用フランジが取り付けられている。タンクの構造は中央で 2 ケの半球に分離できるようになっており、その半球の境にはアルミニウムでコーティングした 100 μ のマイラーが取り付けられている（後述 Fig. 13 も参照）。これは球を光学的に半分に分離するためのものである。

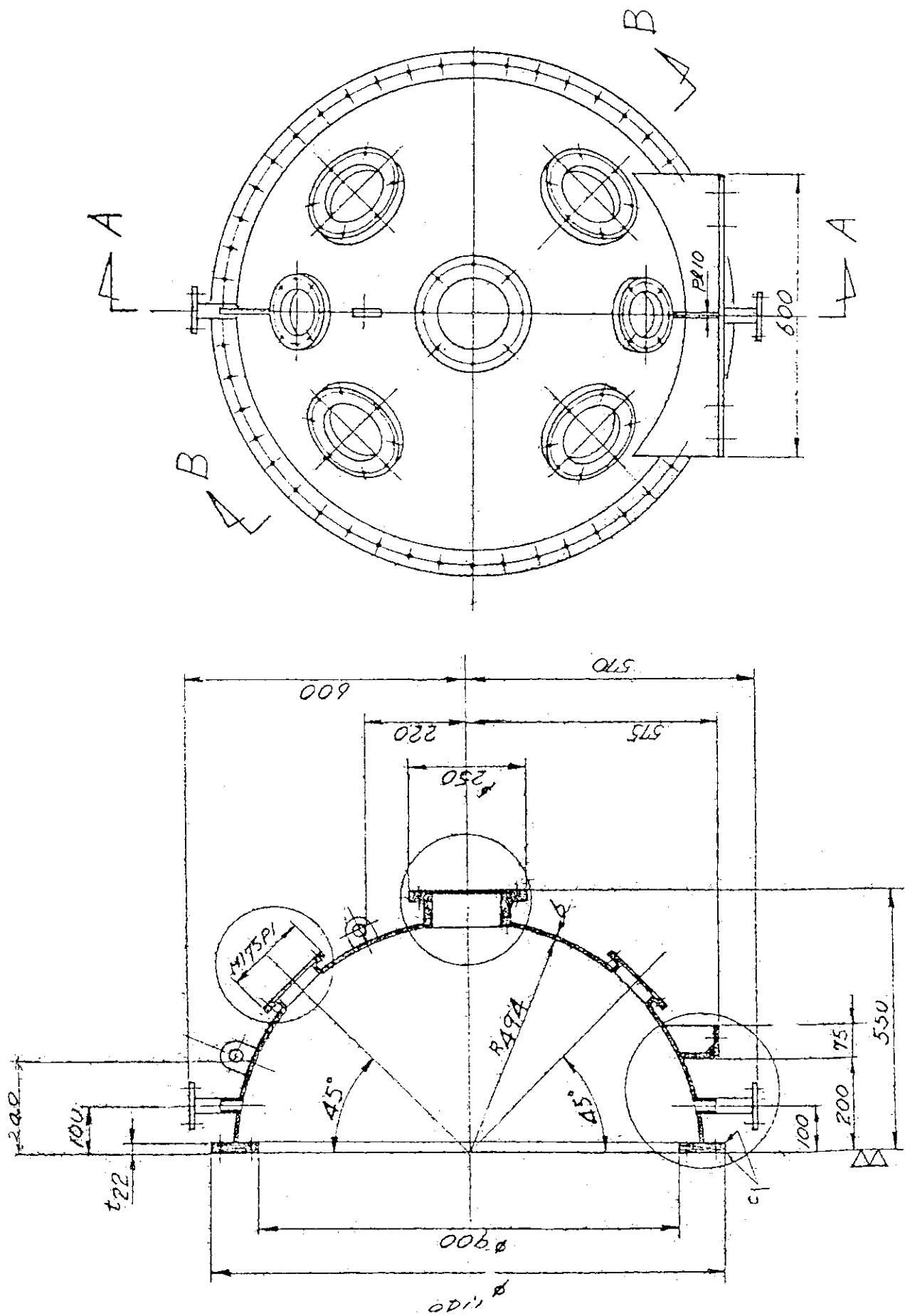


Fig. 5 A design drawing of the liquid scintillator tank

A~A

シンチレーターの総量は 485 ℓであり、タンク上部には温度による液の膨張、収縮を調整するためのリザーバータンクが設けられている。このタンクには液のレベルを表示するための目盛が取り付けられている。タンク下部にあるストッパーバルブは、液の注入及びバブリングのためのものである。（液注入後、液中の酸素を排除してシンチレーターの発光効率を良くするために、アルゴンガスによるバブリングが行なわれた。）タンク据付け架台は鋼板製で ± 5 cm のたかさの調整が可能である。サンプルのまわりには、散乱中性子がタンクに入射するのを減らすため、及び減速された熱中性子がサンプルで再度捕獲されるのを防止するため B_4C 入りのアルミニウム製（1 mm 厚）の円筒が据え付けられる（後述 Fig. 13 参照）。この円筒は取りはずし可能である。

2.2 シンチレーター及び内壁塗装剤

入射したガンマ線に反応して光を発するシンチレーターは Nuclear Enterprise 社製⁽⁵⁾の NE 224 が使用されている。この液体は媒体として 1,2,4 Trimethylbenzene ($C_6H_3(CH_3)_3$ 、別名 pseudo-cumene) が使用されており光を発するシンチレーターは P-terphenyl ($C_{18}H_{14}$) が約 4.5 g/ℓ、wave length shifter は POPOP ($C_{24}H_{16}N_2O_2$ 、[1,4-Bis-{2-(5-phenyloxazolyl)}-benzen] が ~0.10 g/ℓ の割合で混入されている。Table 3 ではシンチレーターの諸特性が示されている。

Table 3 NE-224 の特性

密 度	0.877 g/cm ³	減衰時間	2.6 ns
屈折率	1.505	最大発光波長	425 nm
沸 点	169 °C	H原子数/C原子数	1.33
発光量	80 % アントラセン	引火点	48 °C

このシンチレーターの特性として発光量が、トルエンやキシレンを媒体としたものよりやや大きいこと。光の透過率も極めて高いことが上げられる。有機溶剤としての発火の危険度も、トルエンやキシレンと比較して少ない。

さらに後述する様に、ガンマ線検出器としてのシンチレーターは、サンプルや中央パイプなどによって散乱された中性子に不感なことが重要である。通常散乱中性子はタンク内のシンチレーターによって減速された後、最終的に水素原子によって捕獲吸収され、2.2 MeV のガンマ線を放出する。これが実は中性子感度 (neutron sensitivity) を上昇させる要因になっている。今回の検出器ではこの効果を防ぐ為にシンチレーター内に 20 ℓ のメチルボレイト (methylborate, $BO_3(CH_3)_3$ 分子量 103.93 密度 0.92 g/cm³) が混入されている。ボロン中に 20% 含まれる ^{10}B は (n, α) 反応の断面積が大きく (3837 b)，この液体を混入することによって、水素に吸収させるよりも ^{10}B に吸収させる確率を増加させ、2.2 MeV のガンマ線の量を減らすことが出来る。（タンク内での水素の全原子数及び熱中性子断面積 0.33 b を考慮すると、20 ℓ のメチルボレイト中の ^{10}B に吸収される中性子の数は、水素によるものの約 10 倍にあたる。）

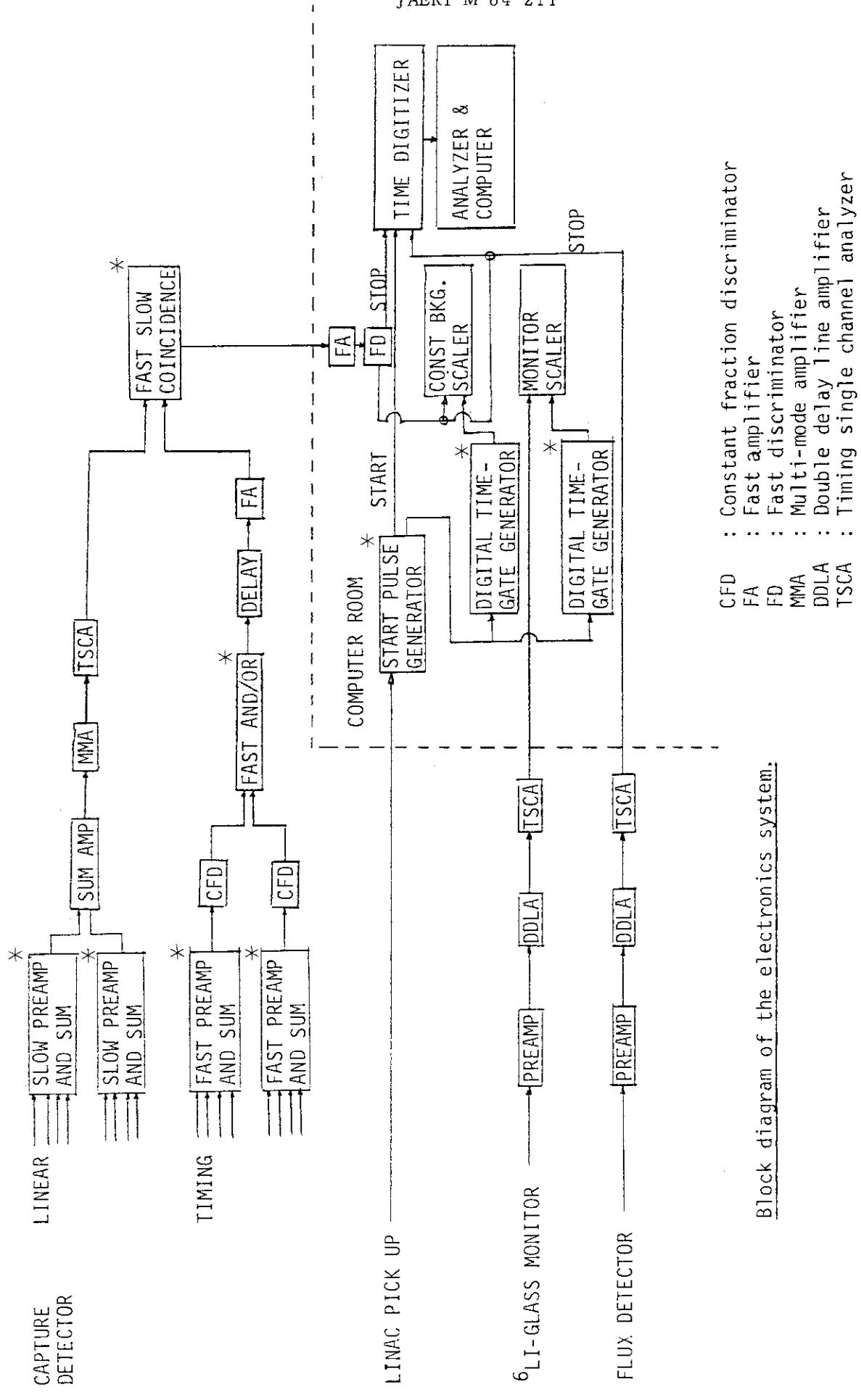
発光したシンチレーション光を出来るだけ効率良く集めてエネルギー分解能を向上させるために、タンク内面には白色の反射剤が塗ってある。この反射剤は、Nuclear Enterprise 社製の NE 561 であり、ポリウレタンをベースにした酸化チタニウムを成分としている。反射効率は 400 nm 以上の光に対して約 92% である。

3. エレクトロニクス回路

液体シンチレーションタンクからの光の信号を、電気信号に変換するために、タンクには 16 mm 厚の石英窓を介して 8 個の光電子増倍管が取り付けられている。この光電子増倍管として、浜松ホトニクス社製の $12.7\text{ cm}\phi$ の球 R 1250 x を使用している。この球は Line 型の 14 段のダイノード構造を有しており 3.4 ns (印加電圧 2000 V) の立ち上がり時間を保証している。光電子増倍管がおおっている面積は球の全表面積の約 3 % である。

Fig. 6 に信号を取り出す回路系のブロック図が示されている。ガンマ線のエネルギー情報を得るための LINEAR 信号は、光電子増倍管の第 14 番目のダイノードから、飛行時間法 (TOF 法) による中性子エネルギーの情報を得るための TIMING 情報はアノードから取り出される。光学的に分離されたタンク半球間のファーストコインシデンスを行うために 4 個づつがそれぞれ Sum される。回路図中で * を付けたのは研究室で独自に作成された回路であり、その他は既存の NIM モジュールを使用している。

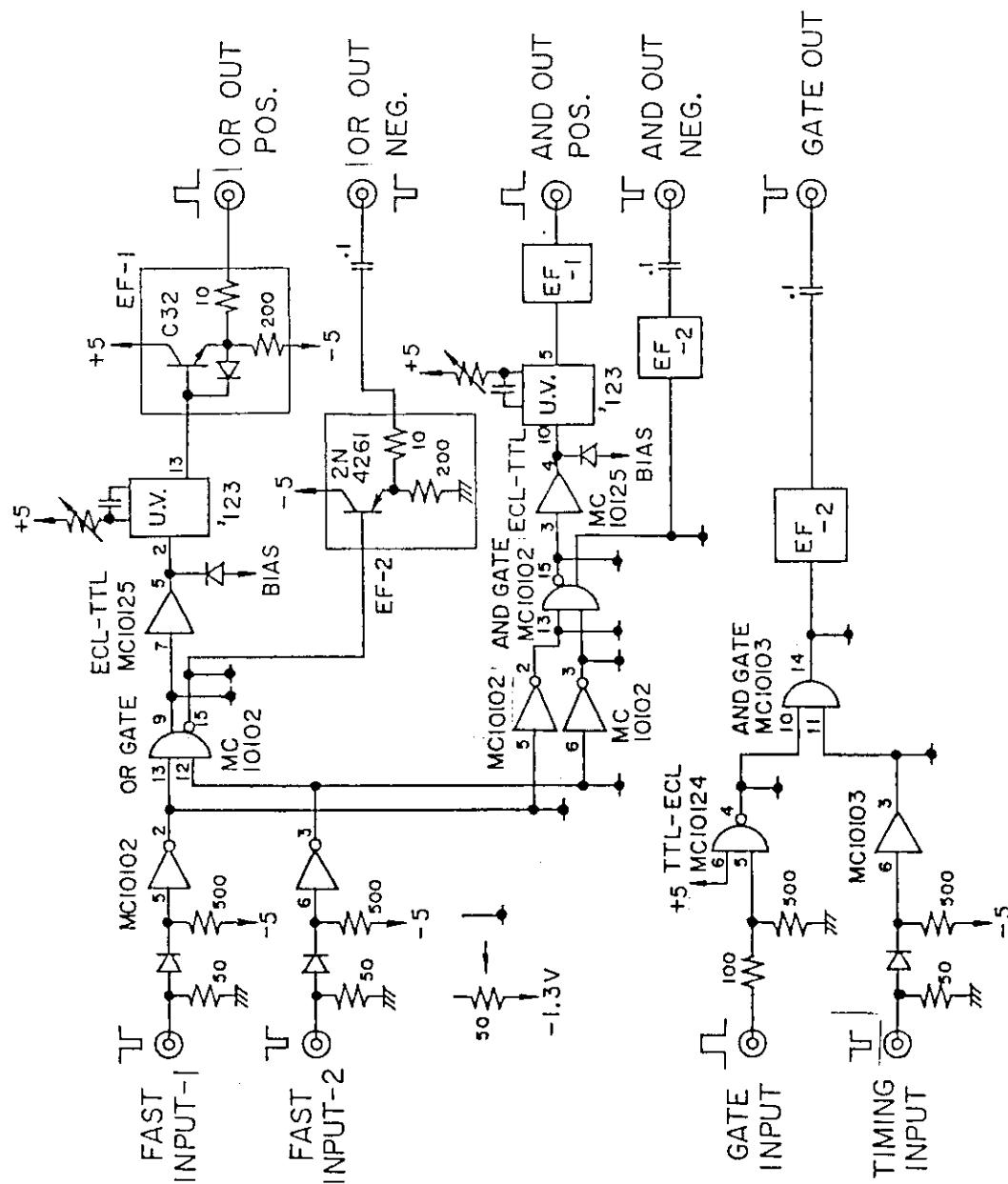
Constant Fraction Discriminator を通過した 2 つの Timing 信号は FAST AND/OR によって Coincidence (AND) 又は Non Coincidence (OR) の選択が行なわれ 1 つの信号となる。その後 Timing Single Channel Analyzer によりエネルギー弁別された。Slow 信号との間で FAST SLOW COINCIDENCE が行なわれる。FAST AND/OR 及び FAST SLOW COINCIDENCE 回路は 1 巾の NIM モジュールの中に組み込まれている。Fig. 7 にその回路図を示す。これらの回路の特徴は、それぞれの出力信号が、速い時間信号として再度使用される様設計されていることである。そのため回路内での時間的なふらつきを極力少なくする必要があり、ロジック回路はすべて ECL (Emitter coupled logic) 素子が用いられた。後述する様に。この回路系を使用して系全体の時間分解能を 4.3 ns にすることが可能となった。Fig. 7 中には Start pulse や中性子束検出器用の回路も同時に示されている。



CFD : Constant fraction discriminator
 FA : Fast amplifier
 FD : Fast discriminator
 MMA : Multi-mode amplifier
 DDLA : Double delay line amplifier
 TSCA : Timing single channel analyzer

Block diagram of the electronics system.

Fig. 6 A block diagram of the electronics system



Fast Slow Coincidence Circuit for TOF Experiment

Fig. 7 Schematic drawing of the fast slow coincidence circuit for TOF experiment

4. 検出器の性能

前章で述べた検出器及びエレクトロニクス回路系を用いて、検出器の特性を調べる実験を行った。実験には、 ^{60}Co などの標準ガンマ線源及びリニアックを利用した中性子線源を用いた。中性子の発生には高エネルギー電子による制動幅射線（ガンマ線）が、金属タンタルに衝突しておこる、 $\text{Ta}(r, Xn)$ 反応を用いる。中性子はさらに5%ボロン入り減速材によって減速され、結果的に中性子束は $\phi(E) \propto E^{-0.5} \sim -0.8$ の連続スペクトルを有する。リニアックの運転は、電子エネルギー120MeV、パルス繰り返し600pps、パルス巾20nsの条件で行なわれた。データの収集は、ミニ計算機FACOM U-200に付属したCAMACシステムが用いられ、この系では、波高分析器（200MHz, 8Kch）と時間分析器、（最小5ns, 8Kch一台、最小50ns, 4Kch一台）が付属している。

4.1 パルスハイト特性

検出器のエネルギー分解能を向上させることは、検出効率を上げ、応答関数を正確に評価する上で重要である。エネルギー分解能の測定には、Table 4、に示された標準線源及び中性子捕獲反応が用いられた。

Table 4 使用されたガンマ線源

核種及び反応	ガンマ線エネルギー (MeV)	エネルギー分解能 (%)
^{137}Cs	0.662	43
^{60}Co	1.25 (1.17の複合ピーク)	48
	2.5 (上記のサムピーク)	24
^{22}Na	1.28	—
	0.511×2 (陽電子消滅による ガンマ線)	43
	2.3 (サムピーク)	25
H(n, r)	2.2	26

Fig. 8にパルスハイト測定におけるピーク位置(Channel Number)のガンマ線エネルギーに対する依存性を示した。

上記、ガンマ線源の他に、バックグラウンド中の ^{40}K (1.46MeV), Th C''(2.6MeV)の2本のガンマ線によるものも含まれている。図からみて分るように ^{22}Na (3本のガンマ線) ^{60}Co (2本のガンマ線)によるサムピークは直線から一致が良くない。これはガンマ線のエネルギー

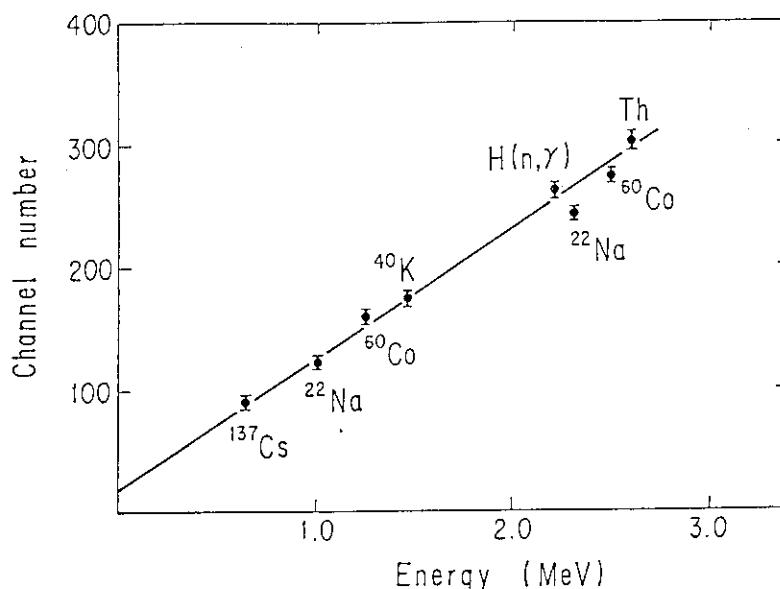


Fig. 8 Detector energy calibration curve. The points correspond to the peaks of the pulse height distributions.

の違いによって光を発するタンク内での位置の分布が異なるなどの効果によるものと思われる。

Fig. 9に⁶⁰Co線源による測定例とバックグラウンドの測定例を示す。測定時間は300秒である。2本のガンマ線ピーカーは1.25 MeV近傍(1.17と1.33 MeV)の単一ガンマ線及び2.5 MeVのサムピーカーによるものである。バックグラウンド中には1.46 MeV(⁴⁰K)と2.61 MeV(ThC")のピーカーが見える。不感時間の補正を行った後両スペクトル間の差をとって得られた真の測定値がFig. 10である。(図中の誤差は主に不感時間の不確定さに起因する)。上図の2山はタンク両半球間のコインシデンスをとらないもの、下図の1山はコインシデンスをとったものである。すなわちコインシデンス測定の場合は2本のガンマ線がそれぞれのタンクの半球に同時に観測される必要がある。両スペクトルの計数率の比は約1:4になっている。²²Naに関する同様の図をFig. 11に示す。この核の場合1.28 MeVの放出ガンマ線の他、陽電子崩壊に伴う0.511 MeVの2本のガンマ線を放出するためスペクトルはより複雑となる。

Fig. 12は測定されたエネルギー分解能をガンマ線エネルギーの平方根の逆数をとってプロットしたものである。エネルギー分解能は近似的には、シンチレーター内でガンマ線により発生する光の発生個数の統計変動に起因し(個数の平方根分の一)。光の発生個数はガンマ線エネルギーに大体比例する。Fig. 12中にある直線は、分解能(FWHM)% = $35/\sqrt{E_r(\text{MeV})}$ で表わすことができる。(図中 $1/\sqrt{E_r} = 0.89$ の⁶⁰Co及び1.0の²²Naはガンマ線自体が巾をもっているためこの直線との一致がよくない)。この値は世界各国の既存の液体シンチレーションタンクに対して、⁶⁰Coのサムピーカー(2.5 MeV)で比較すると以下の様⁽³⁾になる。

(JAERI 24%, ANL 26%, KFK 18%, GA 26%, ORNL 28%)

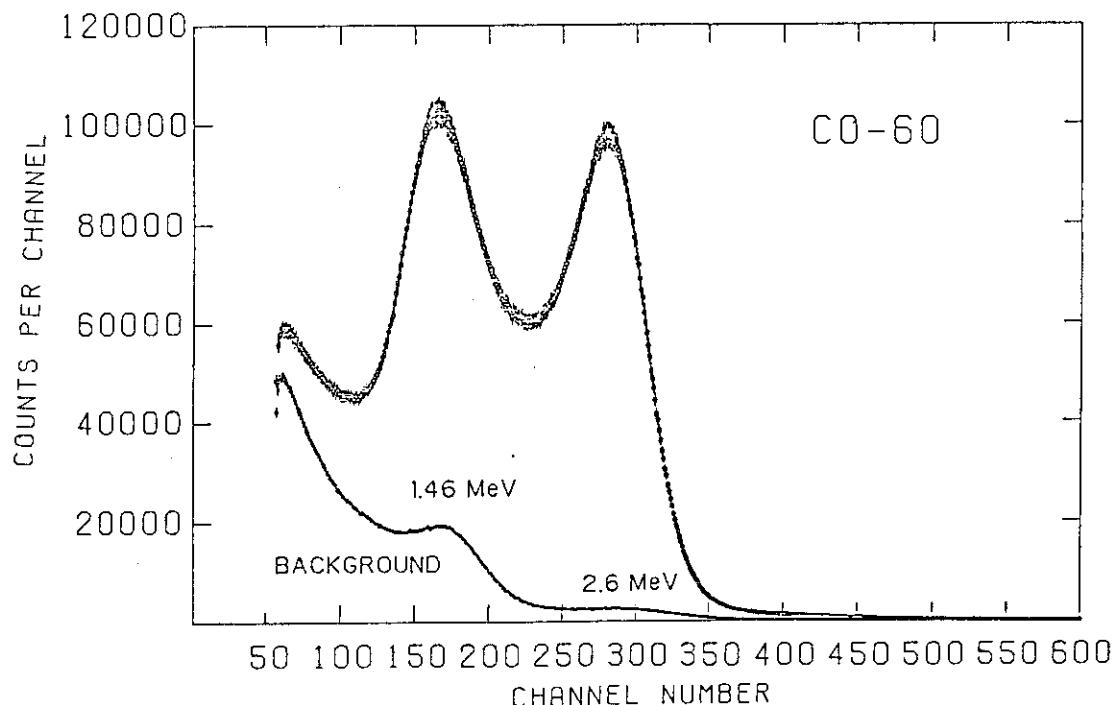


Fig. 9 Pulse height distributions of Co-60. The lower curve shows ambient background.

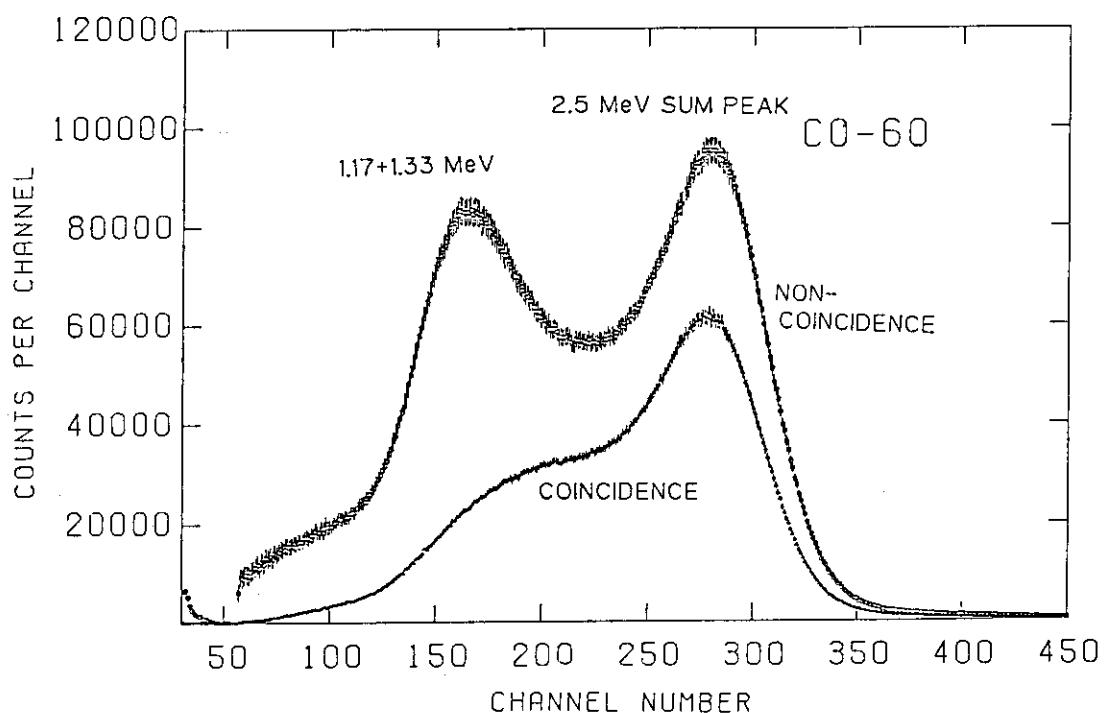


Fig. 10 Pulse height distributions of Co-60. The upper curve shows non-coincidence spectrum. The lower curve shows the coincidence spectrum. The uncertainties are mainly due to the background subtraction and dead time correction.

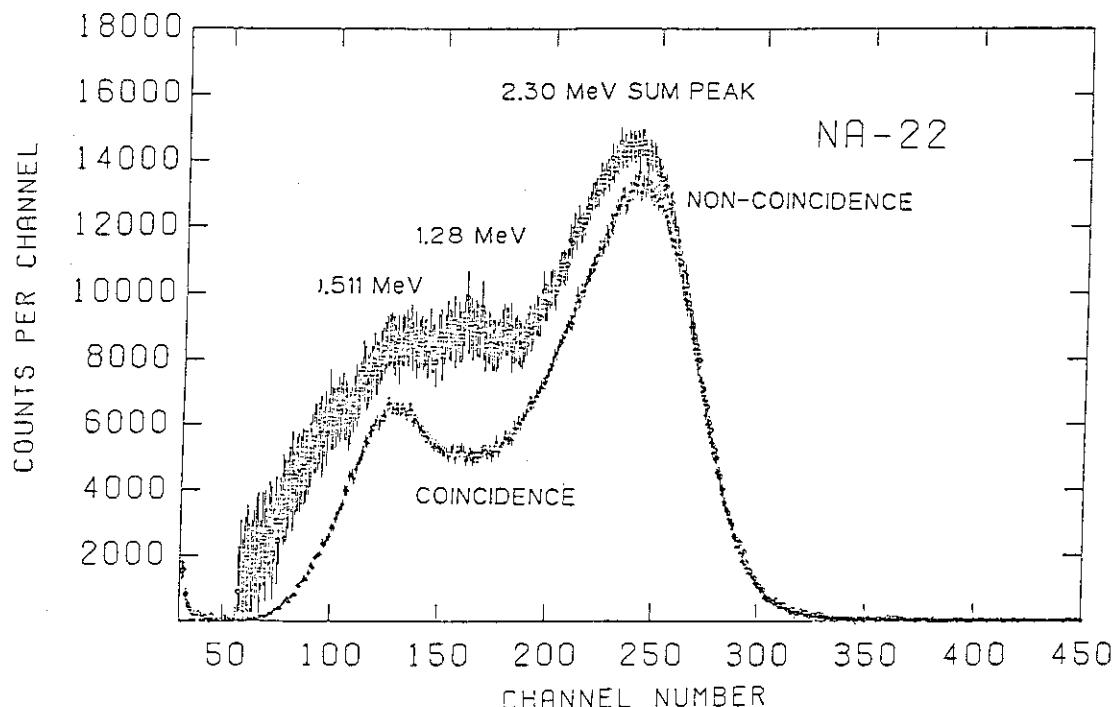


Fig. 11 Pulse height distributions of Na-22. The upper curve shows non-coincidence spectrum. The lower curve shows the coincidence spectrum. The uncertainties are mainly due to the background subtraction and dead time correction.

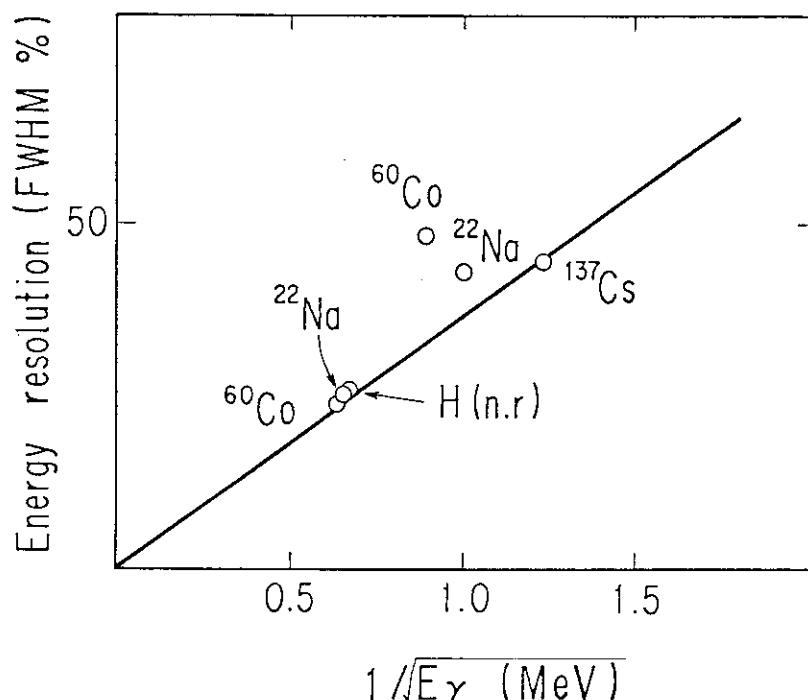


Fig. 12 The detector energy resolution as a function of $1/\sqrt{E_\gamma}$, where E_γ is the gamma-ray energy.

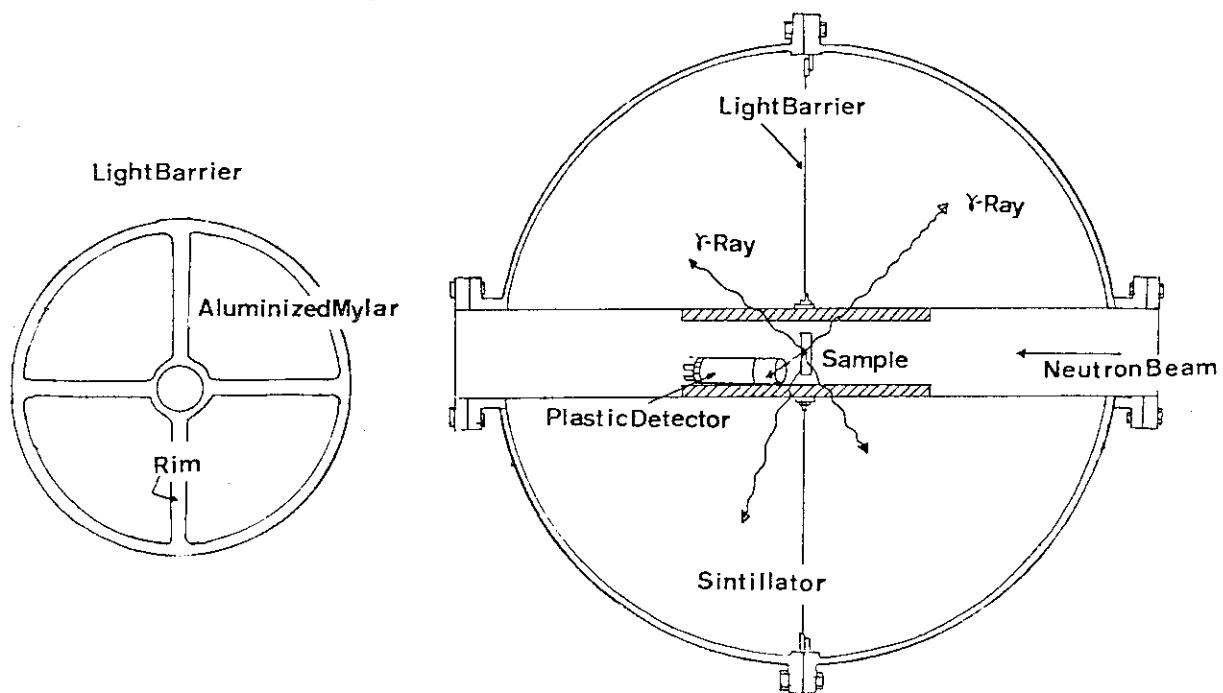
4.2 時間分解能

リニアックを中性子源とした測定では、TOF法によって中性子エネルギーを決定するため、検出器の時間分解能を向上させることは非常に重要である。この分解能を決定づけるものとして、(1)シンチレーター自体の光の減衰時間(2.6 ns)、(2)光の発光場所のばらつきによる信号の時間的な広がり(光が屈折率1.5の液体中を、50 cm通過する時間～2.5 ns)、(3)光電子増倍管の速さ(立上り時間3.4 ns)、(4)回路系の信号処理速度(ECL素子の立上り時間2 ns)等を上げることが出来る。オーバオールの時間分解能を⁶⁰Co線源(この線源は同時に0.73 psに2本のガンマ線を放出)とプラスチックシンチレータ検出器を使用してテストした。この実験ではFig.13に示した様に、プラスチックシンチレータをタンク中央に設置する。放出された2本のガンマ線のうち1本がプラスチック検出器により検出され、液体シンチレータタンク系の検出器の時間スタート信号としてとられ、タンクからの信号(ストップ信号)の時間的ふらつきが測定された。プラスチック検出器系は立上り時間1.36 nsのPilot Uで浜松フォトニクス社の3"φの光電子増倍管(R329-01)が取り付けられている、また回路系はFast Amplifier(ORTEC 934)とConstant Fraction Discriminator(ORTEC 473A)を用いた。スタート信号の時間的ふらつきは、ストップ信号のそれと比較して無視することが出来る。Fig. 14に測定された時間スペクトルを示す。時間のひろがり巾は4.3 nsであり、諸外国の既存のタンクと比較すると以下の通りである。(JAERI 4.3 ns, KFK 3 ns, RPI～30 ns, ANL 3～4 ns ORNL～6 ns)⁽³⁾

4.3 中性子感度

測定したいサンプルからは捕獲によって放出されるガンマ線と同時に散乱による中性子も検出器の中へ入ってくる。原子炉の構造材などとして使用される軽中重核の中性子共鳴準位による反応では、散乱断面積が、捕獲断面積の 10^3 倍も大きいのが普通である。（例えば ^{56}Fe の27.70 keVの共鳴の場合、中性子巾 Γ_n 1420 eVに対して、捕獲巾 Γ_t は約1 eVである。）そのため検出器の中性子感度は出来るだけ（ 10^{-3} 以下）小さいことが望ましい。中性子に感じる原因是、先に述べた検出器中の水素による捕獲の他、中央のパイプ（アルミニウム）や外部容器の壁（ステンレス）による捕獲ガンマ線が考えられる。

我々は keV 領域の中性子感度を測定するために、サンプルとしてほとんど捕獲反応を行なわない、グラファイト（炭素）の検出率を測定した。バックグランドを正確に測定するために、中性子ビーム中（中性子ターゲットから～8 m の位置）には、アルミニウム（42 mm）と金属ナトリウム（8 mm）のバックグランドフィルターを置いた。これらのフィルターの共鳴による TOF スペクトル中に見られる 90, 35, 2.8 keV 近傍のカウントのへこみから正確にバックグラウントカウントを決定することが出来る。逆にそれ以外のエネルギー領域での計数は中性子散乱によるものである。入射した中性子の総量は 5.6.3 2 m の位置で（タンク後方約 2 m）⁶Li ガラス検出器で測定された。この中性子検出器の効率は Monte-Carlo 法によって計算されている。⁽⁶⁾ 炭素の散乱断面積の評価値 4.6 2 b ($E_n = 15 \text{ keV}$), 4.5 9 b ($E_n = 30 \text{ keV}$) を用いることによって散乱さ



SCHEMATIC DIAGRAM OF CAPTURE TANK

Fig. 13 Schematic drawing of the time resolution experiment

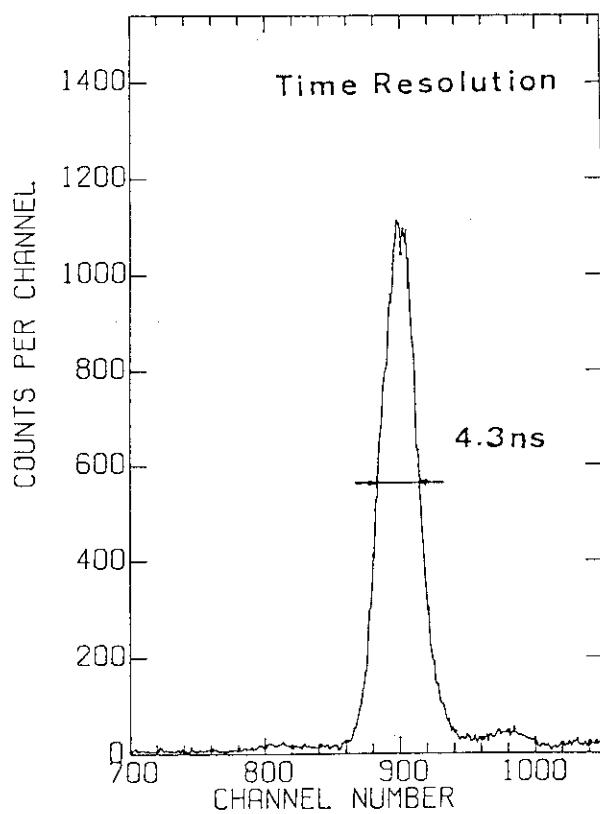


Fig. 14 The time resolution of the tank.

れた全中性子のうちいくつが捕獲信号として感知されたかを知ることが出来る。Fig. 15 に、世界の主だった捕獲断面積検出器と我々の検出器の中性子感度の比較を示す。⁽⁷⁾ 我々の値の誤差が大きいのは統計が充分でないのと、中性子束検出器のディスクリミネーションレベル以下の計数の評価に誤差が大きいことによる。この測定は、コインシデンスモードによって行ない、サンプルまわりには 20 mm 厚の B_4C 円筒を使用している。

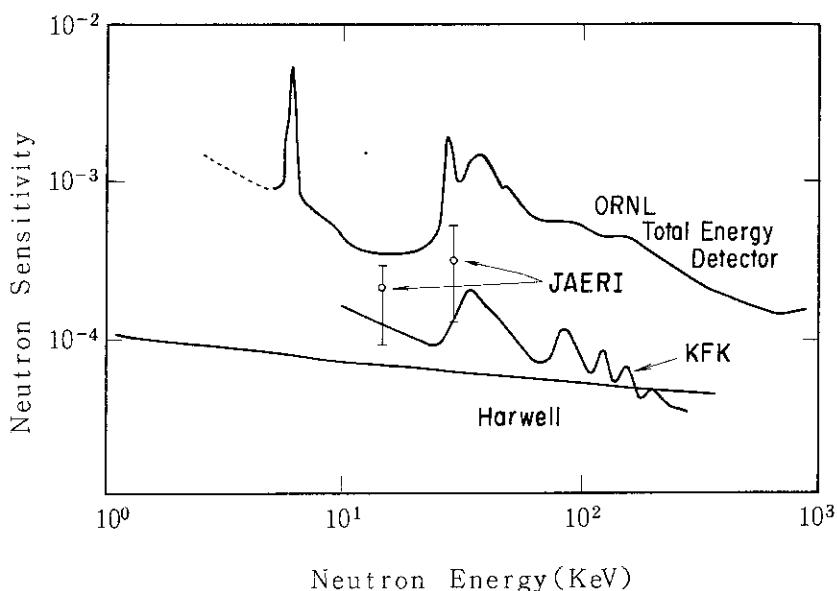


Fig. 15 A comparison of neutron sensitivities as a function of neutron energy for various capture tanks (Gayther and Thom, 1982). Large uncertainty of the JAERI detector is due to insufficient counting statistics.

4.4 捕獲ガンマ線スペクトル

断面積を測定すべきサンプルからのガンマ線は、前述した様に通常 3 ~ 5 本が同時に放出され、そのエネルギースペクトルは Fig. 1 の様になっている。原理的には、検出器タンクが充分大きく、反応の全エネルギー（中性子結合エネルギー + 入射中性子エネルギー）が検出器内で光に変換されれば、測定スペクトルは ^{60}Co の 2.5 MeV や ^{22}Na の 2.3 MeV に見られる様な（Fig. 10, Fig. 11）1 本のサムピークになるはずである。しかし実際のガンマ線は検出器タンクと反応せず通過してしまうものや、中央の中性子貫通口から抜け出すもの、又はアルミニウムのパイプ内でエネルギーを失うものなどがある。そのためガンマ線のパルスハイツスペクトルは低い方へなだらかな傾きを持つ。

Fig. 16 は 1 mm の金属タントル (Ta) (結合エネルギー 6.06 MeV) からの放出 ガンマ線を検出器タンクを用いて実測したものである。測定では中性子エネルギー 1 keV 近傍の多くの共鳴準位からの ガンマ線スペクトルが、時間ゲートをかけて得られている。バックグラウンドは共鳴のな

い領域の計数を用いて既に差し引いてある。200 ch 近くに見られるカウントの盛り上りは、水素の捕獲ガンマ線 2.2 MeV によるものである。図中 60 ch 以下の計数は波高分析回路上の問題で正確に得られていない。Fig. 17 はカドミウム (Cd) に対する同様の図である。Cd は 8 つの同位元素からなっており、結合エネルギーも 5.8 MeV から 9.4 MeV とまちまちであり、スペクトル中にもあきらかに 2 つの段が見られる ($\sim 550\text{ch}$ (6.5 MeV 近傍) と 800ch (9 MeV 近傍))。

これらのスペクトルも、測定上の条件を変化させることにより若干異なる。Fig. 18 の図は、Ta サンプル測定の際にタンク両半球のコインシデンスを取って計ったものである。図から明らかな様に水素による 2.2 MeV のガンマ線は非常に少なくなっている。(この図は Fig. 16 と違
りニアースケールで書かれていることに注意)。一方 Fig. 19 はコインシデンスを取らず、又サンプルまわりの B_4C の同筒もはづしたものである。2.2 MeV ガンマ線は非常に顕著となる。

中性子断面積を測定する TOF 測定の際は、これ迄に示したガンマ線スペクトルのうち、純粋に捕獲によって起った事象のみをとらえる必要がある。通常の測定では B_4C の円筒を用いて、タンク両半球の間でコインシデンスをとったものを採用(例えば Fig. 18)する。又ガンマ線エネルギー 3 MeV で波高弁別(Discrimination)を行ない、それ以上の高いスペクトルに相当する事象のみを記録する。

捕獲断面積の絶対値を得るためにには、検出器で測定されるディスクリレベル以上の事象の全体に対する割合(検出効率)を正確に評価しなければならない。このためには、放出ガンマ線の強度分布や、検出器の特定のガンマ線に対する応答関数を求める必要がある。通常はモンテカルロ法などを用いた詳細な計算が行なわれる。しかし一方では、中重核以上の核種からの捕獲ガンマ線スペクトルは、入射中性子のエネルギーに対してあまり変化しにいことが知られている。その為我々が従来行ってきた、Saturated resonance 法⁽²⁾のように、ある特定の中性子エネルギーで、標準断面積(例えば $^6Li(n, \alpha)$ や $^{10}B(n, \alpha r)$)の断面積等すでに何らかの方法で精度良く決定されているもの)と比較することによって、検出効率が決定出来れば、他のエネルギー領域にこの値を使用しても大きな誤差は生じない。

軽核種の断面積を測定する際は、事情はより複雑となる。例えば、鉄(中性子結合エネルギー 7.643 MeV)の keV 領域の中性子共鳴から放出されるガンマ線スペクトルでは、高いエネルギーの成分が非常に多い。Fig. 20 は ^{56}Fe の 1.15 keV から放出されたガンマ線をコインシデンスマードで測定したものである。Ta の例を比較すると明らかに、スペクトルは高い方へずれており 7.3 MeV 近傍にも上がりが見られる。又、これらの観測されたスペクトルは、共鳴ごとに違った様相を示す。ついでながら鉄 1.15 keV の共鳴では、本来 1 つの値であるべき中性子巾 Γ_n が全断面積測定から得られたものと、捕獲断面積測定から得られたものとの間に大きな違い($\sim 20\%$)があることで知られている。そして、未だにその原因が明らかにされておらず、各国の研究所での測定や、情報の交換が精力的に行なわれている。現在この不一致はガンマ線スペクトルの高エネルギー部が大きいことに起因しているのではないかと考えられている。

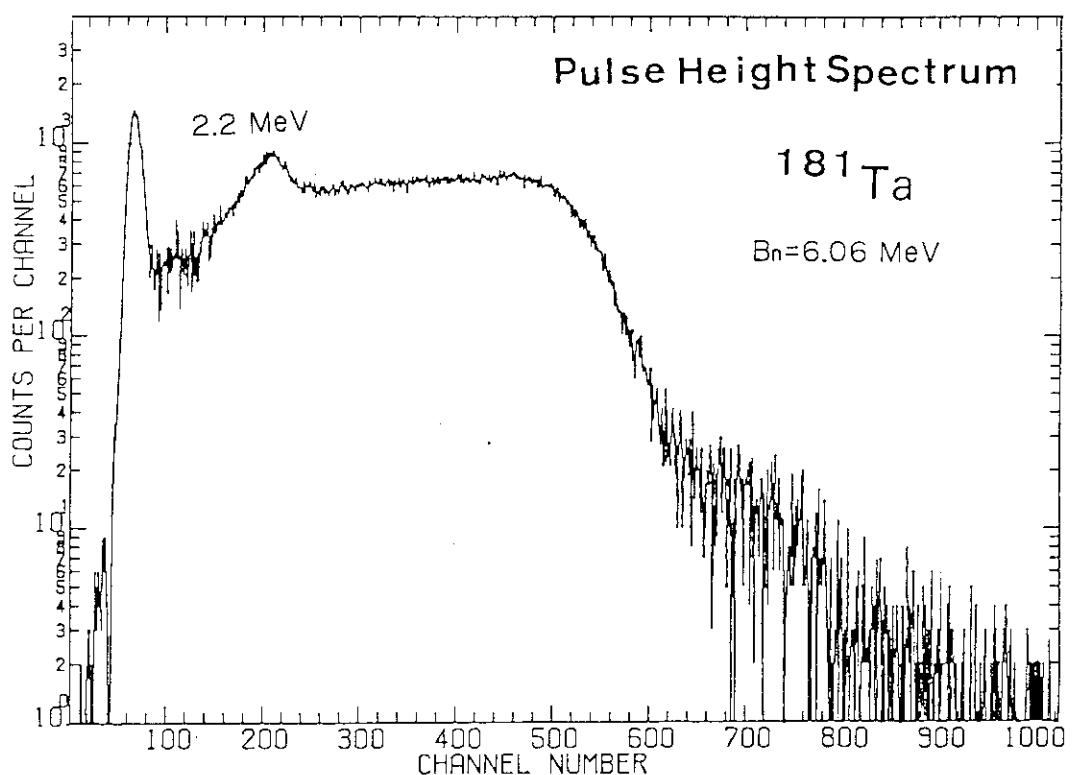


Fig. 16 Pulse height distribution of the neutron capture gamma-rays of Ta obtained with non-coincidence mode.

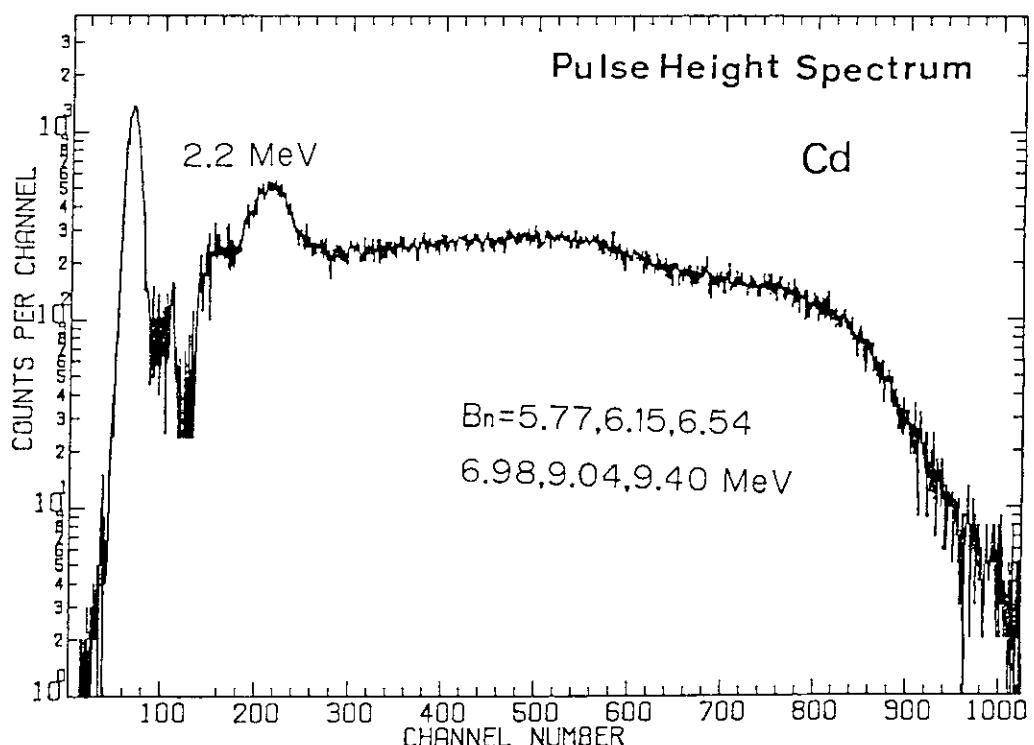


Fig. 17 Pulse height distribution of the neutron capture gamma-rays of Cd obtained with non-coincidence mode.

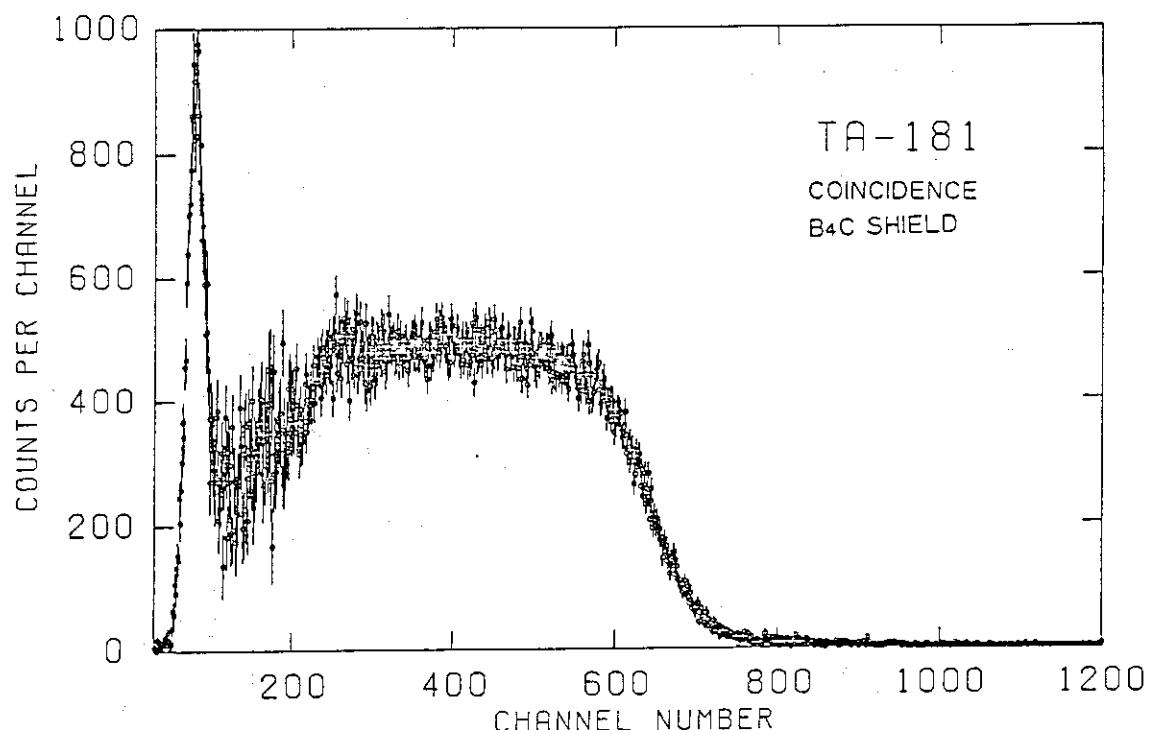


Fig. 18 Pulse height distribution of the neutron capture gamma-rays of Ta obtained with coincidence mode.

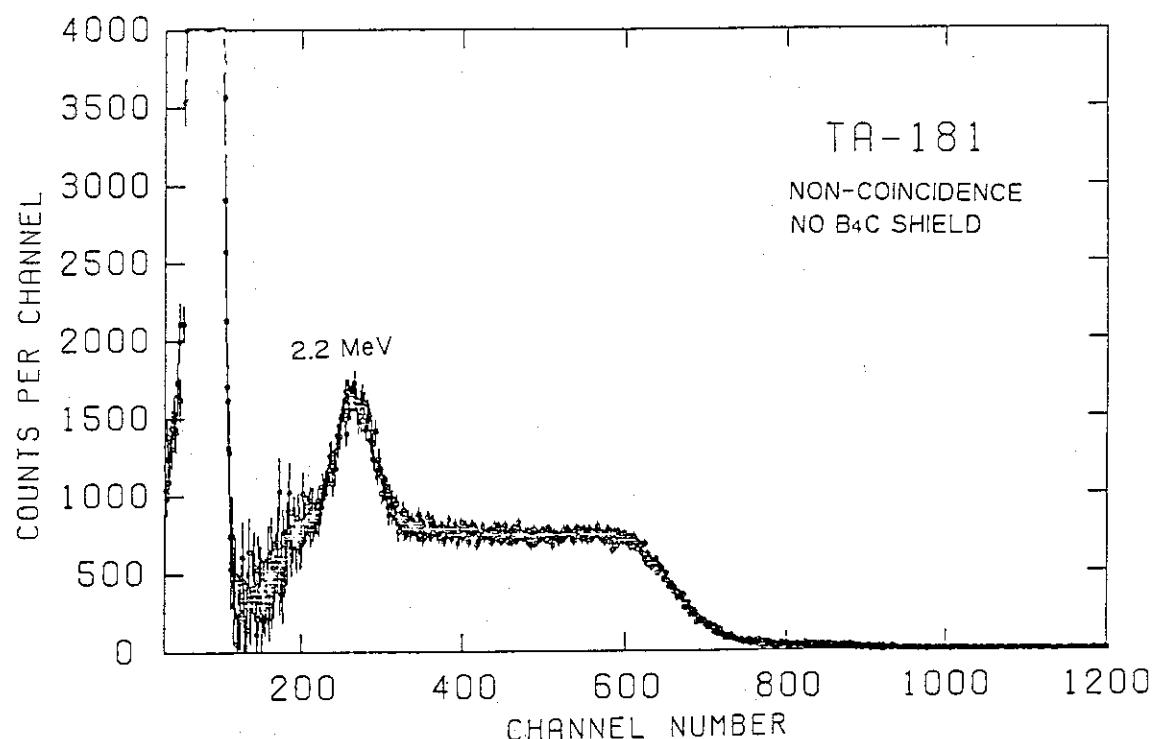


Fig. 19 Pulse height distribution of the neutron capture gamma-rays of Ta obtained with non-coincidence mode. The inner B₄C tube was removed.

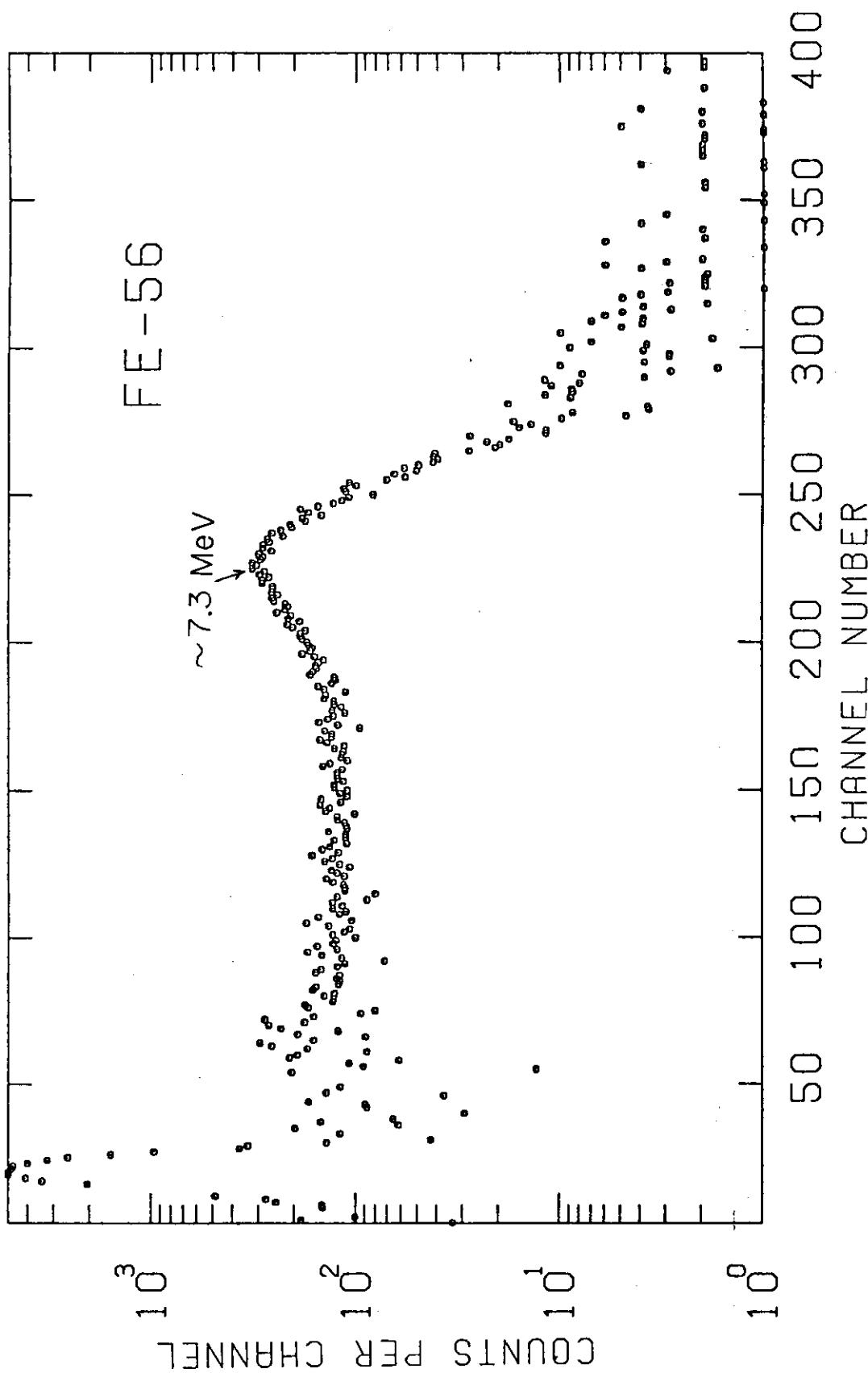


Fig. 20 Pulse height distribution of the neutron capture gamma-rays from the 1.15 keV Fe resonance obtained with coincidence mode.

4.5 TOFスペクトル

液体シンチレーション検出器を使用する最終目的は、 Time-of-flight スペクトルを測定することによって、 捕獲断面積の中性子エネルギー依存性を求ることである。 Fig. 21には TOF 測定の一例を示す。用いられた捕獲サンプルは、 標準断面積として知られる金(0.5mm)である。 図中チャンネル番号が増すに従って中性子エネルギーは低くなる。 1500 チャンネル近傍の計数のへこみは、 中性子ビームライン中に挿入された金属ナトリウムのフィルター(8mm)による 2.8 keV 共鳴に起因している。 このエネルギー点での計数はバックグラウンドによるもので S/N の値を知ることが出来る。 また、 450 チャンネルより高エネルギー側のスペクトル中に見られる構造は、 ガンマフラッシュを抑制するための Pb フィルター(9mm)の共鳴によるものである。 使用されたリニアックの運転条件はエネルギー 110 MeV、 繰り返し 300 pps パルス巾 30ns 平均ビーム電流 17 μ A であった。 時間分析器の 1 チャンネルのパルス巾は 50ns、 測定時間は 17.4 時間である。

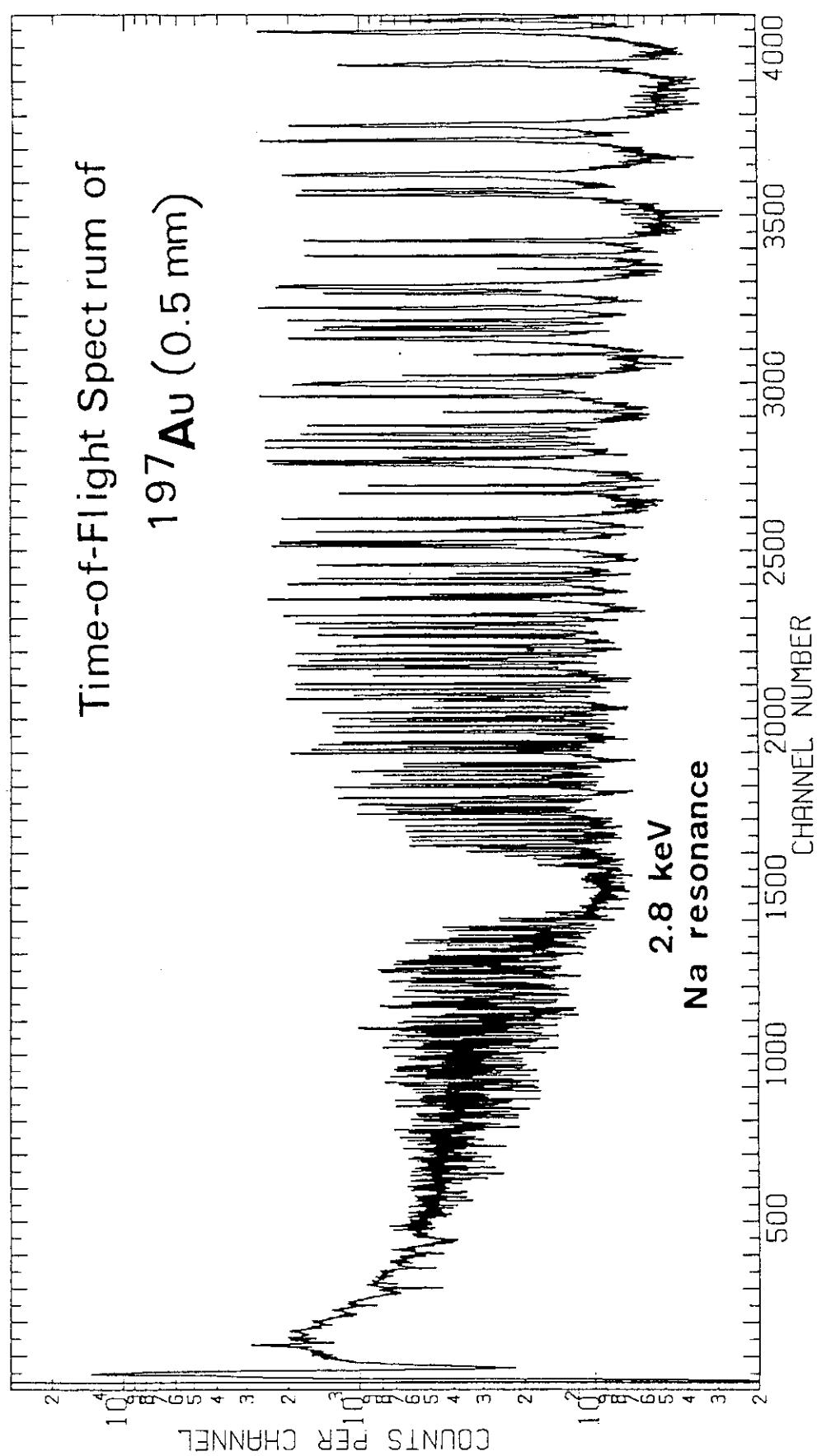


Fig. 21 Time-of-flight spectrum of Au(0.5 mm)

5. モンテカルロ法による応答関数の計算

原子炉構造材など軽い核種の捕獲断面積測定に際しては、 Saturated resonance 法が使用出来ず、 断面積値を得るために検出器の絶対効率を評価する必要があることは既に述べた。この章では、 検出器の応答関数(Response function)を計算するプログラム(PHORES)⁽⁸⁾を用いた計算結果と実験との比較について簡単に述べる。

このプログラムでは、 検出器タンクの構造(Fig. 5)や、 シンチレーターの特性(Table 3)を考慮して Monte Carlo 法を用いた計算を行ない、 検出器内でのガンマ線の挙動や、 シンチレーションの発光の様子を模擬する。Fig. 22 に計算の概略を示す。考慮されているのは、 ガンマ線による光電効果、 コンプトン散乱、 対生成などの電子へのエネルギー付与の確率、 検出器壁での吸収、 散乱によるガンマ線の消失の確率、 さらに電子の運動によるシンチレーションの発光量及び伝播の過程での光の減衰量、 最後に光電子増倍管による光電子への変換量等である。

Schematic diagram of PHORES (PHOton RESpone)

- 1 Input parameters:
 - Control for calculation
 - Tank geometry
 - Characteristics of scintillator
 - Photon cross sections (built-in)
 - Nuclear parameters for cascade process
- 2 Gamma-ray cascade:
 - Calculation of level populations
 - E1: Brink-Axel M1,E2,M2: Single particle
 - Level density: Composite formula
- 3 Initial condition:
 - Number of emitted gamma-rays and their energies
 - Direction of emitted gamma-rays
- 4 Interaction of gamma-rays and light emmission
 - Position of interaction or leakage probability
 - Energy transfer to electrons
 - Photo-electric interaction
 - Compton scattering
 - Pair production
 - Light emmission
 - Direction and energy of scattered gamma-ray
 - Coincidence or non-coincidence probability
- 5 Output of statistics:
 - Gamma-ray response function
 - Efficiency
 - Spectra of coincidence and non-coincidence

Fig. 22 Main functions of a Monte Carlo program (PHORES)

Fig. 23 では ^{137}Cs 及び ^{60}Co 線源による波高分布の測定値（実線、Fig. 10 と同じもの）と計算値の比較を示す。エネルギー分解能（ピークの広がり）は実験値（Fig. 10）を再現する様に、シンチレーター内の光の減衰率や光電子増倍管の電子変換効率のパラメータを調節することによって得られる。計算値は実験値をかなり良く表わしていることが分る。

中性子捕獲によって放出されるガンマ線のパルス波高分布を計算する際には、上記の单一或いは数本のガンマ線に対する分布計算に加えて、ガンマ線の放出スペクトル自体を模擬しなければならない。中性子の捕獲によって形成された複合核（サンプル核種に 1 個の中性子を加えた同位体）は、高いエネルギー（6～8 MeV）励起されている。この状態から通常 4～5 本のガンマ線を放出しながら、途中のエネルギー状態を経由して基底状態へと移行する。この際放出されるガンマ線は連続ガンマ線と離散ガンマ線とに分けることが出来る。この連続ガンマ線は平均準位密度を用いて、離散ガンマ線は準位の位置を入力することによって計算される。放出の過程は統計理論によるカスケードモデルが採用された。（E1 遷移は Brink Axel 型、M1, E2, M2 遷移は単一粒子模型のガンマ線強度関数が使用されている。）また離散ガンマ線の遷移確率が実験的に得られているものについてそれらの値を採用することも出来る。

Fig. 24 では ^{181}Ta の keV 領域の中性子によって放出されたパルス波高分布の実験値（+印）と計算値（○印）の比較を示す。この測定ではコインシデンスモードが用いられており、計算には 30000 ヒストリーの事象が追跡された。低いエネルギー側を除いて両者の一致は満足すべきものである。断面積を得るために Time-of-Flight 測定では、パルス波高に対しディスクリミネーションをかけることによって、ガンマ線エネルギー 3 MeV～12 MeV（～350 チャンネル以上）の事象のみが観測される。検出器の効率は全ガンマ線放出数に対するこのエネルギー範囲で観測されるイベントの数に相当する。

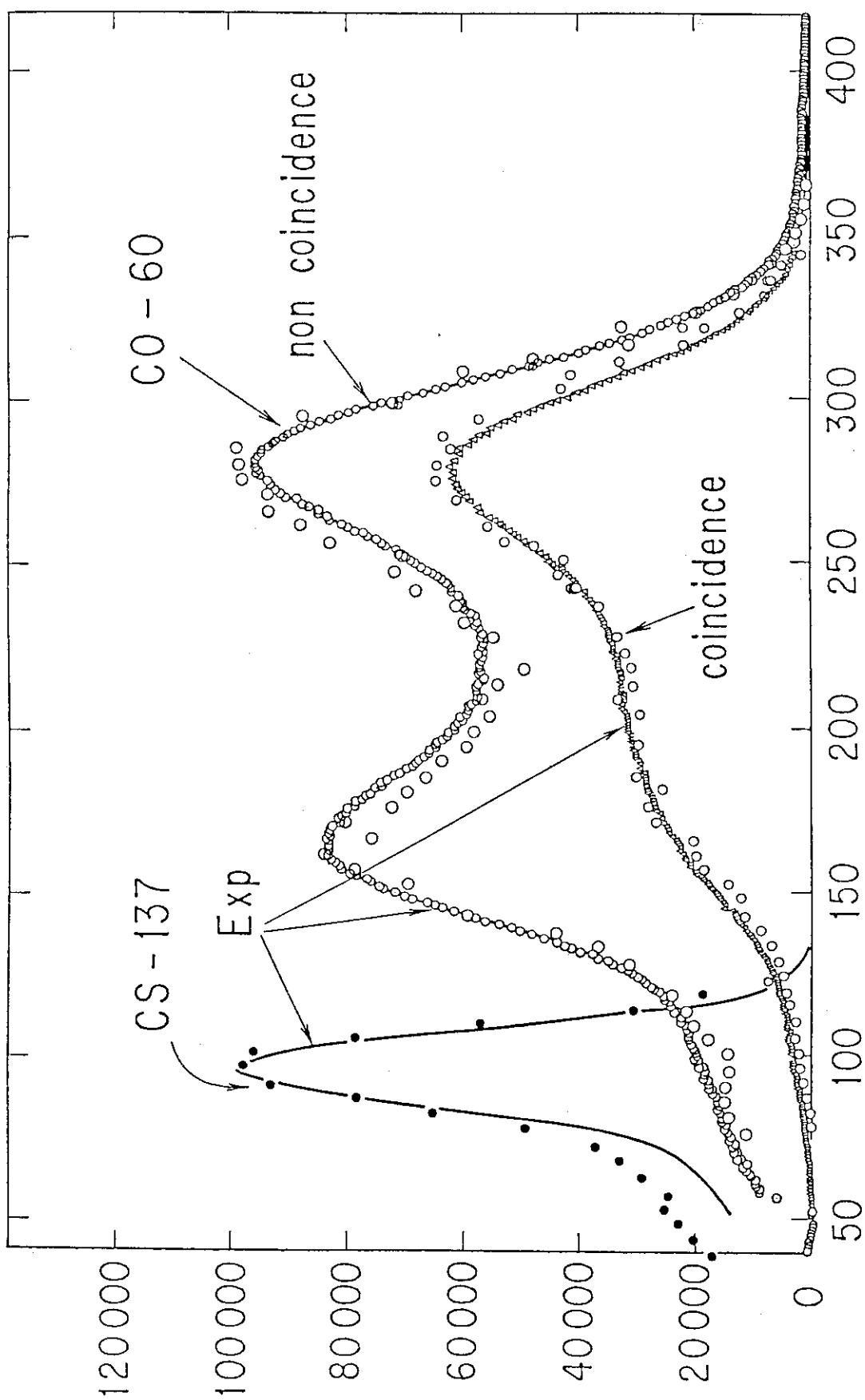


Fig. 23 Experimental and calculated pulse height distributions of Cs-137 (660 keV) and Co-60 (1.17, 1.33 and 2.5 (sum peak) MeV) sources.

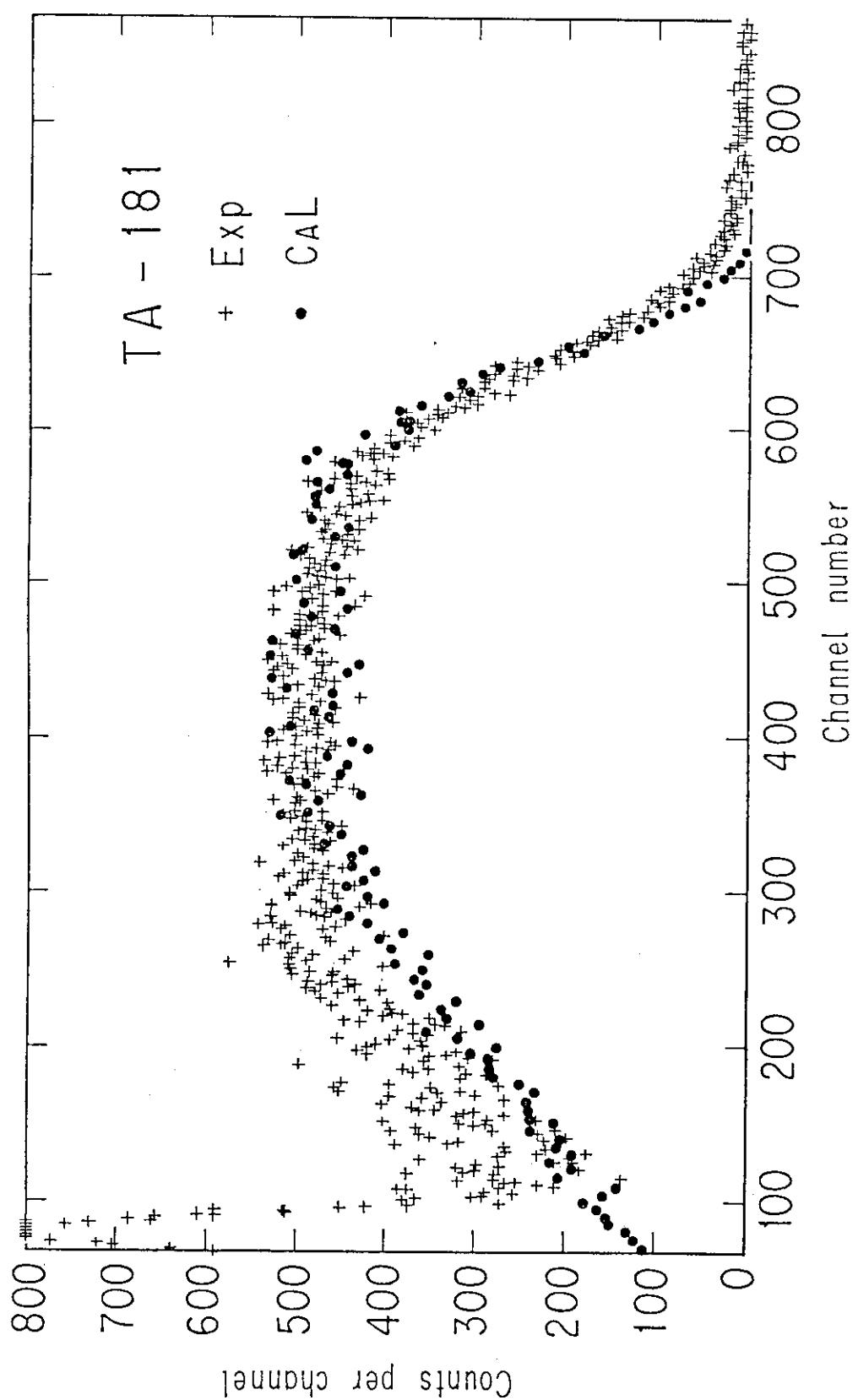


Fig. 24 Experimental and calculated pulse height distributions of
 $Ta(n,)$

6. おわりに

原研リニアックでは、中性子捕獲断面積測定のために500ℓ液体シンチレーション検出器が製作され、飛行時間法を用いて55m測定小屋で使用されている。検出器は現在諸々の特性試験を終了し、ガンマ線エネルギー分解能及び時間分解能ともに充分な性能を発揮することが確かめられた。

また検出器のガンマ線による波高分布を計算し検出効率を正確に評価するための新しい計算プログラムが開発され、実験と比較された。いくつかガンマ線源、及びTaの捕獲ガンマ線スペクトルとの比較の結果ではその一致は満足すべきものである。今後鉄等の原子炉構造材に対する測定と計算を続行し、精度の良い捕獲断面積の値を求めていく予定である。

謝辞

検出器を製作するにあたり、多くの有益な助言を頂いた、前核物理第2研究室長 田中茂也博士及び研究室員の皆様、また測定に際し御尽力いただいた加速器管理室リニアック運転グループの方々に深く感謝致します。検出器本体の製作は応用光研工業K.Kで行なわれた。

6. おわりに

原研リニアックでは、中性子捕獲断面積測定のために 500 ℓ 液体シンチレーション検出器が製作され、飛行時間法を用いて 55m 測定小屋で使用されている。検出器は現在諸々の特性試験を終了し、ガンマ線エネルギー分解能及び時間分解能ともに充分な性能を発揮することが確かめられた。

また検出器のガンマ線による波高分布を計算し検出効率を正確に評価するための新しい計算プログラムが開発され、実験と比較された。いくつかガンマ線源、及び Ta の捕獲ガンマ線スペクトルとの比較の結果ではその一致は満足すべきものである。今後鉄等の原子炉構造材に対する測定と計算を続行し、精度の良い捕獲断面積の値を求めていく予定である。

謝 辞

検出器を製作するにあたり、多くの有益な助言を頂いた、前核物理第 2 研究室長 田中茂也博士及び研究室員の皆様、また測定に際し御尽力いただいた加速器管理室 リニアック運転グループの方々に深く感謝致します。検出器本体の製作は応用光研工業 K.K で行なわれた。

References

- (1) N. DayDay (Editer), WRENDA 81/82 World Request List for Nuclear Data INDC(SEC)-78/URSF 1981
- (2) M. Mizumoto et al., J. Nucl. Sci. Technol. 16 (1979) 711
M. Mizumoto et al., Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Antwerp, Belgium (1982) p982
- (3) GA E. Haddad et al., Nucl. Instr. Methods. 31 (1964) 125
ORNL G. de Saussure et al. Nucl. Sci. Eng. 51 (1973) 385
ANL W.P. Poenitz, Nucl. Sci. Eng. 57 (1975) 300
RPI R.W. Hockenbury et al., Phys. Rev. 178 (1969) 1746
KFK R.R. Spencer and H. Beer, Nucl. Sci. Eng. 60 (1976) 390
Harwell D.B. Gayther et al., Neutron Data of Structural Materials for Fast Reactors, (1977) p547
- (4) G.A. Bartholomew, L.V. Groshev et al., Nucl. Data Table A5 (1968) 1
- (5) Nuclear Enterprises Limited, Sighthill, Edinburgh EH11 4EY Scotland, Japanese Supplier of NE Products and Manufacturer of Detector, Ohyo Koken Kogyo Co. LTD. (OKEN)
- (6) M. Sugimoto and M. Mizumoto, JAERI-M 82-193 (1982)
- (7) D.B. Gayther and R.B. Thom, Proc. of the NEANDC/NEACRP Specialists Meeting on Fast Neutron Capture cross Section Argonne NEANDC(US)-214/L (1982) p205
- (8) M. Sugimoto, To be Published (1984)