九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

6Li 捕獲ゲート付高速中性子スペクトロメータの応答関数

林, 真照
九州大学総合理工学府先端エネルギー理工学専攻

渡辺, 幸信
九州大学大学院総合理工学研究院エネルギー理工学部門

加来, 大輔
九州大学総合理工学府先端エネルギー理工学専攻

中島, 秀紀
九州大学大学院総合理工学研究院エネルギー理工学部門

他

https://doi.org/10.15017/14546

出版情報：九州大学大学院総合理工学報告. 27 (3), pp.321-328, 2005-09. 九州大学大学院総合理工学府
バージョン：
権利関係：

^{6}Li 捕獲ゲート付高速中性子スペクトロメータの応答関数

林　真照[*1]・渡辺　幸信[*2,†]・加来　大輔[*3]
中島　秀紀[*2]・相良　建至[*4]

(平成17年10月31日　受理)

Response function of a ^{6}Li loaded fast neutron coincidence spectrometer

Masateru HAYASHI, Yukinobu WATANABE, Daisuke KAKU,
Hideki NAKASHIMA and Kenshi SAGARA

[†]E-mail of corresponding author: *watanabe@aees.kyushu-u.ac.jp*

We have investigated the response of a ^{6}Li loaded neutron coincidence spectrometer to MeV neutrons. The spectrometer has a structure consisting of three ^{6}Li-glass scintillators in a liquid organic scintillator BC-501A, which can detect selectively neutrons that deposit the full energy in the BC-501A using a coincidence signal generated from the capture event of thermalized neutrons in the ^{6}Li-glass scintillators. The efficiency and response functions were measured using 4.7, 7.2 and 9.0 MeV mono-energetic neutrons, and were compared with those derived by combination with both neutron transport calculation in the spectrometer and scintillator response calculation. The calculation results showed fairly good agreement with the measured ones. Finally, the response function matrices were obtained for 1 to 10 MeV neutrons.

Key words: *MeV-region, BC-501A, ^{6}Li-glass scintillator, Capture gate, Coincidence spectrometer, Full-energy absorption, Response function, SCINFUL code, PHITS code*

1. 緒言

高速中性子のエネルギースペクトル測定については、現在までに多くの研究がなされ、実用化されてきた。[1]近年の加速器技術の向上に伴った加速器駆動パルス中性子源の開発により、飛行時間（TOF）法を用いたエネルギースペクトルの測定が主流である。しかし、RI や環境中性子測定等の分野では TOF が使えない場合も多い。

TOF を用いないエネルギースペクトル測定には、高速中性子に対して高感度な有機液体シンチレータが有効である。しかし、有機液体シンチレータを使用する場合、その測定原理から、単色中性子を測定した場合でも、測定スペクトルは連続波高分布を示す。このため、エネルギースペクトル得るためには、既知の応答行列を使った測定結果のアンフォールディングが必要である。また、有機液体シンチレータは、その体積を大きくすれば、検出効率は大きくなるが、応答関数の歪みがひどくなりエネルギー分解能が悪化する問題がある。

*1 先端エネルギー理工学専攻博士課程
*2 大学院総合理工学研究院　エネルギー理工学部門
*3 先端エネルギー理工学専攻修士課程
*4 大学院理学研究院　物理学部門

これに対して、高エネルギー分解能の測定を行おうとすれば、陽子反跳テレスコープが適している。しかし、陽子反跳テレスコープでは、ラジエータ部分で発生する反跳陽子のうち、前方の小さな角度へ散乱する成分だけを検出するため、エネルギー分解能は高くなるが、小さい立体角が原因で検出効率が極めて低くなる。これは、環境中性子などの低計数率実験においては不利になる要因である。

そこで、当研究グループでは、テレスコープ方式に比べて検出効率を大きくすることが可能であり、全エネルギー付与イベントのみを測定可能な捕獲ゲート方式中性子スペクトロメータに注目した。

現在までに捕獲ゲートに ^{10}B と ^{6}Li の(n,α)反応を利用したスペクトロメータついて研究・開発が行われてきた。前者（^{10}B タイプ）[2, 3]は有機シンチレータ内に ^{10}B を均一に混入させることで、捕獲ゲート測定を可能にしたもので、既に市販されている。一方、後者（^{6}Li タイプ）は、(n,α)反応のQ値が前者に比べて大きいために、捕獲パルス波高が高くなり分離しやすい特徴を有する。これまで、^{6}Li タイプについても研究が行われてきたが、その応答関数の絶対値まで含めた詳細な報告は少ないのが現状である。[4, 5]

そこで、本研究では ^{6}Li 捕獲ゲート付高速中性子スペクトロメータの応答関数および検出効率を測定し、高速中性子スペクトロメータとしての特性評価を行うことを目的とする。

2. ^{6}Li 捕獲ゲート付高速中性子スペクトロメータ

本研究では ^{6}Li 捕獲ゲート付高速中性子スペクトロメータ（以下 FNS と略す）のプロトタイプに対する応答特性を調査した。

2.1 FNS の構造

Fig. 1 に FNS の構造図を示す。FNS のシンチレータ部分は、BICRON 社製の有機液体シンチレータ BC-501A が 3 枚の ^{6}Li ガラスシンチレータ GS-20 により 4 等分された構造となっている。シンチレータ部分は直径 12.7cm×長さ 12.7cm の円筒形である。シンチレータから出力されるシンチレーション光は、両側に装着された BURLE 社製の光電子増倍管 S800EM2 で電気信号パルスに変換される。

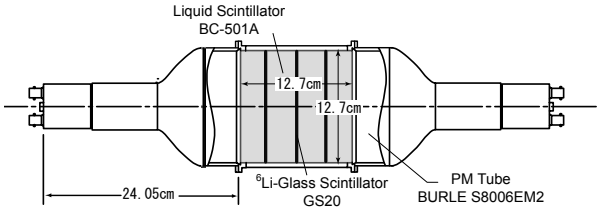

Fig. 1 Construction details of the coincidence spectrometer (FNS).

2.2 捕獲ゲートの測定原理

中性子は電荷を持たないため、直接電離作用を利用したエネルギー測定は行えない。そのため中性子と検出器内の水素との散乱で発生する反跳陽子のエネルギーを測定することによって中性子のエネルギーを求める。中性子―陽子散乱によって生じる反跳陽子のエネルギーは $E_R = E_n \cos^2\theta$ で表されるように散乱角 θ に応じて 0 から入射中性子のエネルギー E_n にいたる連続の値をとる。この結果、単色中性子を測定した場合でも、測定スペクトルは連続波高分布となる。

一方 FNS では、捕獲ゲートを使って検出器内に全てのエネルギーを付与した中性子イベントのみを抽出する測定が可能である。このため単色中性子を測定した場合、応答関数にピーク構造が観測できると期待される。

以下に FNS における捕獲ゲートを用いたエネルギースペクトル測定の原理を示す。Fig. 2 に捕獲ゲート測定を行うための測定回路を、Fig. 3 に捕獲ゲート作成までのパルス処理の流れを示す。

BC-501A 検出器に入射した高速中性子の多くは一部のエネルギーを付与して検出器から漏れていくが、その中の一部は検出器内の陽子との多重散乱により熱中性子のエネルギー領域まで減速する。この場合、入射中性子はその減速過程を通じて、全エネルギーを検出器に付与することになる。多重散乱による減速は数 10ns 程度の短時間で完了するため、Fig. 3 に示されるようにシンチレーション光は 1 つのまとまった発光パルス（以下、反跳パルスと呼ぶ。）として検出される。

熱化した入射中性子が検出器内を拡散した後、^{6}Li ガラスシンチレータに捕獲されれば、中性子捕獲 ^{6}Li(n, α)t 反応により t と α が発生する。これにより、^{6}Li ガラスシンチレータがシンチレーション発光し、捕獲パルスが検出される。このときの拡散時間（Fig. 3 中の①に相当）は平均μs オーダーである。

反跳パルスと捕獲パルスのコインシデンスにより捕獲ゲートを作り、測定におけるゲート信号とする。最後に、ディレイ（Fig. 2 中の①）を用いて、先に発生した反跳パルスをゲート内まで遅延させて測定する。これにより、検出器に全エネルギーを付与したイベントのみを選択して測定することが可能となる。

測定時には、FNS から出力される信号のうち、反跳パルスと捕獲パルスを弁別する必要がある。また BC-501A がγ線に対しても感度があるため、これも除去する必要がある。この処理には、放射線の種類により検出されるシンチレーション光の減衰時間が異なることを利用したパルス波形弁別法（PSD : Pulse Shape Discrimination）を用いている。Fig. 2 の PSD で示される部分でγ線パルスの除去を、また Recoil Window 及び Capture Window で示される部分で反跳パルスと捕獲パルスの分離を行っている。

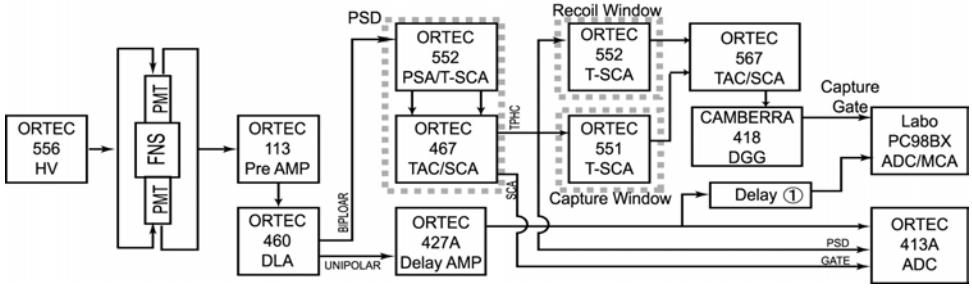

Fig. 2 Block diagram of electronics.

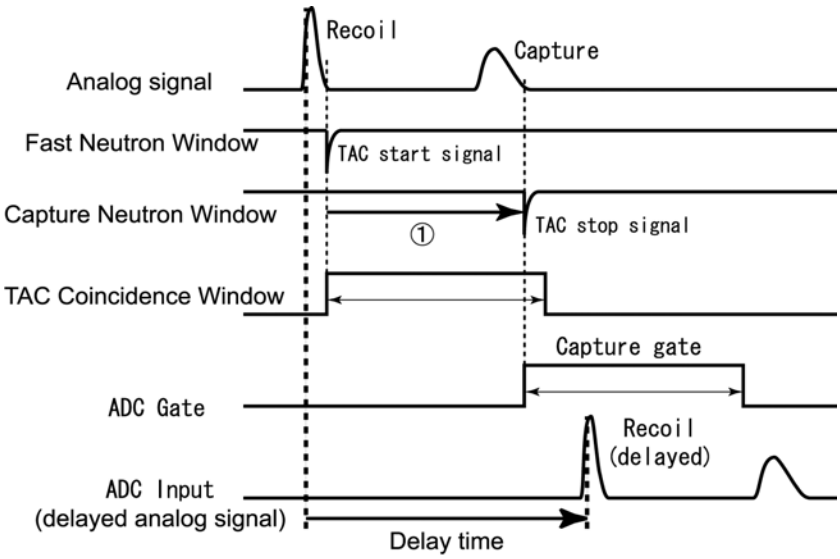

Fig. 3 Timing relationship for a typical neutron event.

3. 実験とデータ解析

本研究では KUTL 中性子源システム[6]を用いて d-D 反応により発生させた単色中性子に対する FNS の応答関数測定および FNS 内部での熱中性子拡散時間分布の測定を行った。

ここで、実験の概要を説明する。実験は 2 度行った。以下実験Ⅰ、実験Ⅱとする。実験Ⅰでは中性子源の性能確認と FNS の特性調査を、実験Ⅱでは MeV 領域の 3 つのエネルギー点、4.7、7.2、9.0MeV で、単色中性子に対する応答関数を測定した。すべての実験で、連続ビームを使用し、ガスセルと検出器の距離は 2 m に設定した。また、応答関数の測定では、ガスセル入射窓、ガスセルビームストッパーおよび壁・床・天井での散乱によるバックグラウンド中性子を差し引くため、鉄製の遮蔽体（20×20×40cm^3）を用いたバックグラウンド測定を追加して行った。なお、本測定方法の詳細は文献[6]に報告されている。

3.1 実験Ⅰの結果

中性子源の性能確認のため、直径 5.08cm×長さ 5.08cm の小型 BC-501A 検出器を用いて応答関数の測定を行い、測定結果のアンフォールディングを行い、発生中性子のエネルギースペクトルと中性子収量を求めた。Fig. 4 にアンフォールディングによって得られた線源スペクトルを示す。Fig. 4 はターゲットガス圧 1 気圧、入射重陽子のエネルギー4.3MeV、0° 方向の線源スペクトルである。アンフォールディングは FORIST コード[7]にて行い、その際に必要な応答行列は SCINFUL コード[8]を用いて計算により求めた。アンフォールディングによって得られたエネルギースペクトルをガウスフィッティングした結果、ピークエネルギーは 7.2MeV と求まった。また、中性子源シミュレーションコード NSR[9]で計算した結果との比較を行った結果、ピークエネルギー、中性子収量共に±10%程度の違いであった。

以上の結果より d-D 反応を用いて 7.2MeV 単色中性子の発生を確認できた。

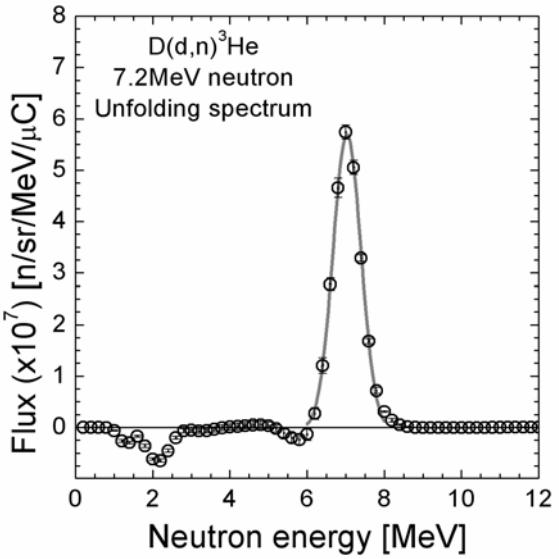

Fig. 4 Incident neutron energy spectrum of 7.2 MeV generated into 0° for the D(d,n)^{3}He reaction at 4.3 MeV, which was obtained using the unfolding method with the response matries calculated by the SCINFUL code.

次に、FNS を用いた測定を行い、捕獲ゲートを作成する測定回路のイベント分離性能を調べた。Fig. 5 に PSD の測定結果を示す。γ線パルス、反跳パルス、捕獲パルスがきれいに分離されている様子が確認できる。これにより、Fig. 2 で示した測定回路で、捕獲ゲートを用いた測定が可能であると判断された。

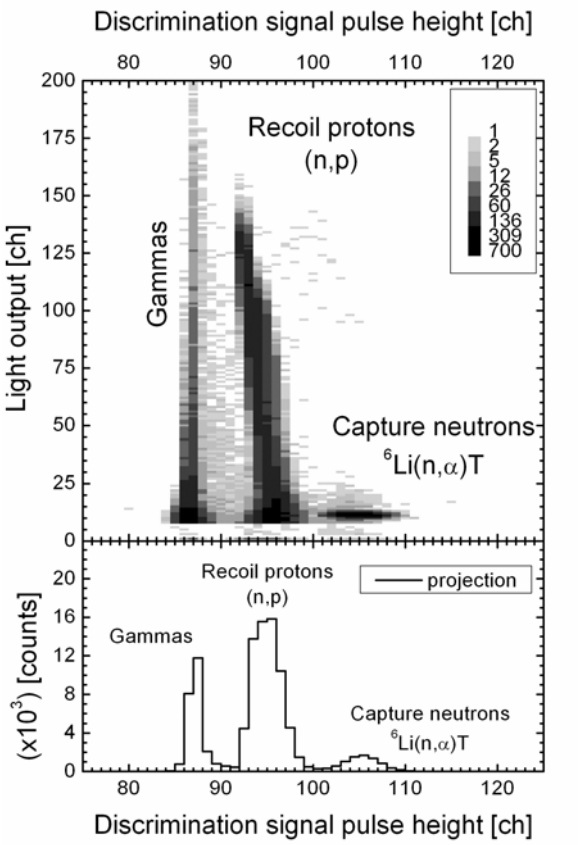

Fig. 5 Two-dimensional plot of light output from the PMT dynode and the pulse height of the PSD output signal (upper panel) and the projection plot (lower panel).

さらに、捕獲ゲート幅を決定するため、反跳パルスの発生から捕獲パルスの発生までの時間間隔（以下、中性子の拡散時間分布と呼ぶ）を測定した。Fig. 6 に測定結果を示す。横軸が反跳パルスから捕獲パルスまでの経過時間、縦軸が収量を示している。収量の分布を見ると、時間の経過と共に、収量が指数関数的に減衰している様子がわかる。

また、測定結果には、時間に依存しない成分があり、裾野が形成されている。この成分は、実験室内に存在するバックグラウンド中性子によってランダムに発生する捕獲パルスが原因の偶発同時計測事象であると考えられた。このため、次式で記述できる偶発事象の発生数 $N(t)$ を計算し、拡散時間分布の測定結果との比較を行った。

$$N(t) = n_1 r_2 \exp(-r_2 t) \quad (1)$$

ここで、n_1 は反跳パルスの全発生数、r_2 は偽の捕獲パルスの単位時間当たりの発生率、t は反跳パルスの発生から偽の捕獲パルスの発生までの経過時間である。

Fig. 6 に式(1)より計算したバックグラウンド成分を重ねてプロットしている。偶発同時計数事象の計算結果が拡散時間分布の裾野部分をよく再現している。このことから、時間に依存しない裾野成分は、反跳パルスと偽の捕獲パルスのコインシデンスによる偶発同時計数事象であると推定された。

以上の議論より、バックグラウンドが測定に入り込むことが確認されたので、バックグラウンドとフォアグラウンドの比、つまり S/N を求め、その結果から捕獲ゲート幅を 5μs とした。このときの S/N は 4:1 程度である。

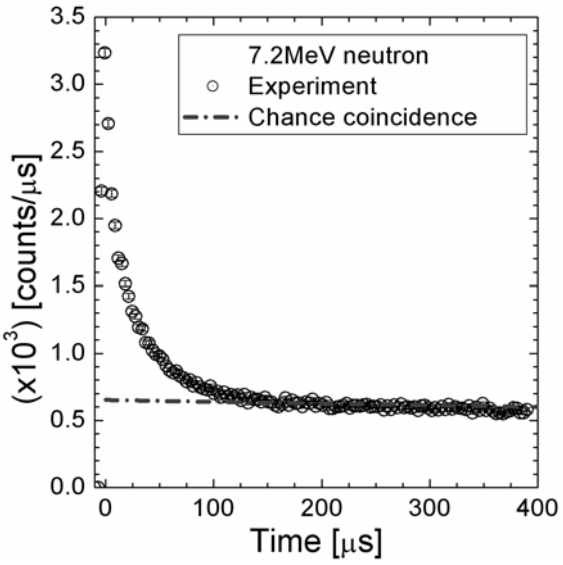

Fig. 6 Distribution of the time difference between the recoil and capture pulses. The background line corresponds to the equation of chance coincidence event.

3.2 応答関数測定

実験Ⅱでは 4.7, 7.2, 9.0MeV 単色中性子の入射に対して捕獲ゲートを用いた測定を行い、検出器の応答関数を測定した。

測定結果から、捕獲ゲートを使用した場合の応答関数と検出効率を導出する方法を示す。ここで、必要になってくる値は、実験時の検出器に入射してきた中性子数である。実験Ⅱでは、小型 BC-501A 検出器を用いた入射中性子数の測定結果と、NSR コードでの計算結果に矛盾が認められ、その絶対値をデータ処理に使えなかったので、入射中性子数 N_{EI} を、捕獲ゲートなしの場合の応答関数の測定結果から推定した。

入射中性子数を求めるために、まず実験における応答関数の閾値を設定した。この閾値をバイアスと呼ぶ。今回の実験では、バイアスを 1.0MeVee に設定した。そこで、SCINFUL コードを用いて 1.0MeVee バイアスでの捕獲ゲートなしの検出効率を計算し、この値と 1.0MeVee バイアスでの捕獲ゲートなしの場合の測定結果から入射中性子数 N_{EI} を求めた。次に、捕獲ゲートを用いた場合の応答関数 $R_{EG}(L)$ と、1.0MeVee バイアスでの実験効率 ε_{EG} を先に求めた入射中性子数

N_{EI} を用いて算出した。

Fig. 7 に 7.2MeV 単色中性子に対する FNS の応答関数について捕獲ゲート有無の比較を示す。捕獲ゲートなしの場合の応答関数は連続波高分布を示しているが、捕獲ゲートを使用した場合には応答関数の高光出力部にはっきりとしたピーク構造が観測された。また、応答関数の右肩の位置が同じであることから、検出器のエネルギー較正が適正に行われたことが確認された。捕獲ゲートを使用した場合の応答関数のピークは、低エネルギー側に広がって見えるが、これは BC-501A の光応答特性が非線形であることが原因と考えられる。Fig. 8 に BC-501A の光応答特性を示す。横軸が反跳陽子のエネルギー、縦軸がシンチレーション光の強度である。エネルギーが比較的高いところでは、両者は線形関係にあるが、低エネルギー側で特に非線形となっている。

SCINFUL コードによる応答関数の計算を行い、測定した応答関数との比較を行った。ここで、捕獲ゲート測定に対応させるため、SCINFUL を一部改造して、検出器に入射した中性子のうち、熱化したイベントのみを抽出して応答関数を求めた。改造した SCINFUL コードで求めた捕獲ゲート使用時の応答関数を $R_{SG}(L)$ とする。SCINFUL の計算では入射中性子と ^{6}Li の反応を考慮していないため、中性子捕獲確率が入っていない。そこで、1.0MeVee バイアスでの効率の計算値が、実験値 ε_{EG} と等しくなるように、次式に従って規格化を行った。

$$\eta = \varepsilon_{EG}(1.0\,\mathrm{MeVee}) \Big/ \int_{1.0\mathrm{MeVee}}^{\infty} R_{SG}(L)dL \quad (2)$$

ここで η は規格化定数である。

Fig. 9 に 3 つのエネルギー点での応答関数の測定結果と、SCINFUL での計算結果((2)式の $\eta R_{SG}(L)$)の比較を示す。各エネルギー点で、測定した応答関数にピーク構造が観測されている。BC-501A 中には水素以外に炭素も存在しており、炭素の第一励起状態以上のエネルギーを持った中性子が入射してきた場合、入射中性子と炭素との非弾性散乱の影響が現れてくるが、Fig. 9 では、7.2, 9.0MeV でシンチレーション光の低出力部分にその影響が大きく現れている。SCINFUL の計算結果は、測定された応答関数のピーク構造を良好に再現できていることがわかる。

Fig. 9 を見ると、低エネルギー領域において、測定結果が、計算結果よりも大きくなっていることが確認できる。これは、拡散時間分布において観測された時間に依存しないバックグラウンド成分の影響であると考えられる。特に 4.7MeV では、炭素との非弾性散乱の影響がほぼ無視できるはずであるが、バックグラウンドの影響で、他の 2 つのエネルギー点と同様に、実験値が計算値を上回っている。

SCINFUL の計算には、^{6}Li による熱中性子の吸収割合、即ち捕獲確率は含まれていないが、(2)式の η で規格化して比較した場合は、実験を再現可能である。このことから、^{6}Li での捕獲反応率を計算できれば捕獲ゲート付スペクトロメータの応答関数が導出できる。次章で述べるように、この部分の計算は中性子輸送計算コードを用いて行った。

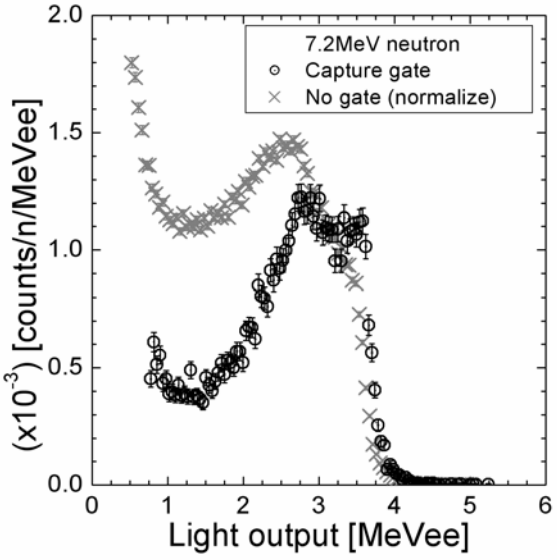

Fig. 7 Comparison of measured FNS response functions with and without capture gate for 7.2 MeV neutrons.

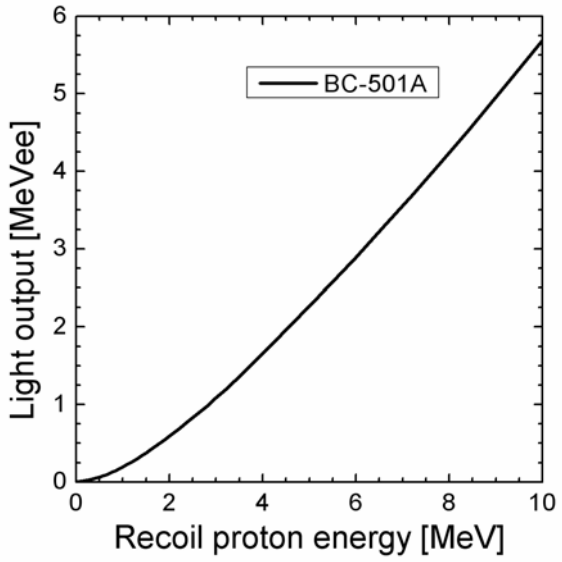

Fig. 8 Relationship on light output and recoil proton in BC-501A scintillator.

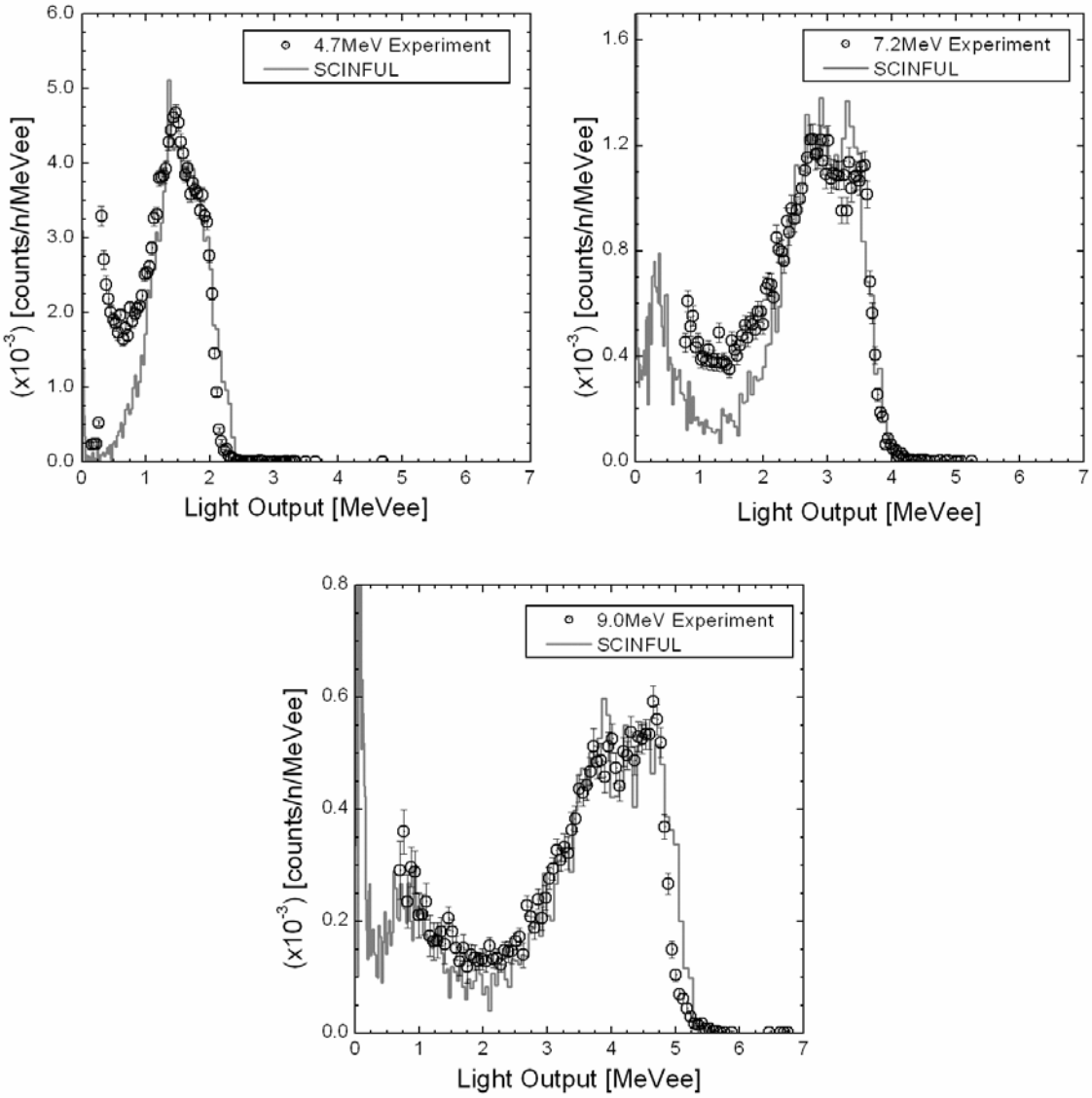

Fig. 9 Response functions of FNS. Comparisons between experimental response functions of FNS and those calculated by the SCINFUL code.

4. PHITS による計算

本研究では入射中性子と ^{6}Li ガラスシンチレータとの反応を解析するため、粒子・重イオン汎用モンテカルロコード PHITS[10] (Particle and Heavy Ion Transport System)を用いて検出器内の中性子挙動シミュレーションを行った。本計算では 20MeV 以下の断面積データとして JENDL-3.1[11]を用いた。

本解析では、FNS 内部での熱中性子拡散時間分布と、捕獲ゲートの発生率である熱中性子の捕獲効率の計算を行った。計算体系として実験室は模擬せず、中性子源と検出器を考え、その他は空気で満たした。中性子源は角度分布を持たせた点線源を用い、入射エネルギーは実験と同様 4.7、7.2、9.0MeV の単色とした。計算ヒストリーは 10^{7} である。具体的な計算方法は以下に示す。

4.1 中性子捕獲反応率の時間変化

捕獲効率を計算するために、^{6}Li ガラスシンチレータによる中性子捕獲確率の時間変化を計算した。これは Fig. 6 の拡散時間分布に相当する。検出器に高速中性子が入射した時刻を起点として、経過時間 t において熱化した中性子が ^{6}Li ガラスシンチレータに吸収される反応率は次式で与えられる。

$$R(t) = N\int_0^{E_{\max}} \int_V \phi(\vec{r},E,t)\sigma(E)dEd\vec{r} \qquad (3)$$

ここで、N は ^{6}Li の原子数密度、V は検出器の有感体積、$E_{\max}$ は中性子の上限エネルギー、$\phi(\vec{r},E,t)$は中性子束、$\sigma(E)$は ^{6}Li(n, α)反応断面積である。

4.2 捕獲効率計算

(3)式の捕獲反応率の時間変化を、ゲート幅 τ [s]まで時間積分したものを中性子捕獲効率 ε [%]と定義すると、次式で与えられる。

$$\varepsilon = \int_0^{\tau} R(t)dt \times 100 \quad [\%] \tag{4}$$

捕獲ゲートは熱化した入射中性子と ^{6}Li ガラスシンチレータの反応により発生するため、(4)式で計算した捕獲効率が検出器の 0-バイアス効率となる。そこで、実験で得られた 1.0MeVee バイアス実験効率 ε_{EG} と、改造した SCINFUL コードで計算した応答関数 R_{SG} を用いて、次式より実験での 0-バイアス効率を求めた。

$$\varepsilon_{EG}(0\ \mathrm{MeVee}) = \int_0^{\infty} \eta R_{SG}(L)dL \tag{5}$$

ここで、η は(2)式で与えられる規格化定数である。

Fig. 10 に測定結果から求めた 0-バイアス効率と PHITS での計算結果との比較を示す。また、ゲート幅 5μs における両者の比較を Table 1 に示す。Fig. 6 に示すように、拡散時間分布には偶発同時事象によるバックグラウンド成分が含まれている。この結果、5μs のゲート幅に入るイベントの中にも一部バックグラウンド成分が入ってくることになる。4.7MeV と 7.2MeV に対する実験値と計算結果との差はこれが原因と考えられる。

Table 1 Comparison of measured and calculated 0-bias efficiencies of FNS for 4.7, 7.2 and 9.0 MeV neutrons.

中性子エネルギー [MeV]	測定効率 (0 バイアス) [%]	PHITS 捕獲効率 [%]
4.7	0.45	0.35
7.2	0.28	0.23
9.0	0.16	0.17

4.3 応答行列の計算

Fig.11 に PHITS で計算した 0-バイアス検出効率のエネルギー依存性を示す。これに、SCINFUL で計算した応答関数を組み合わせて MeV 領域での応答行列を計算した。Fig. 12 にその結果を示す。検出効率を入射エネルギー別に比較すると、入射エネルギーが高くなるにつれ陽子－中性子弾性散乱断面積が小さくなるので、熱化成分が減少し捕獲反応率が小さくなっているのがわかる。また、MeV 領域単色中性子に対する応答関数は、各エネルギーで特徴的なピーク構造を持っているのが確認できる。測定を行っていないエネルギーに対しても計算により応答関数が求めることができた。

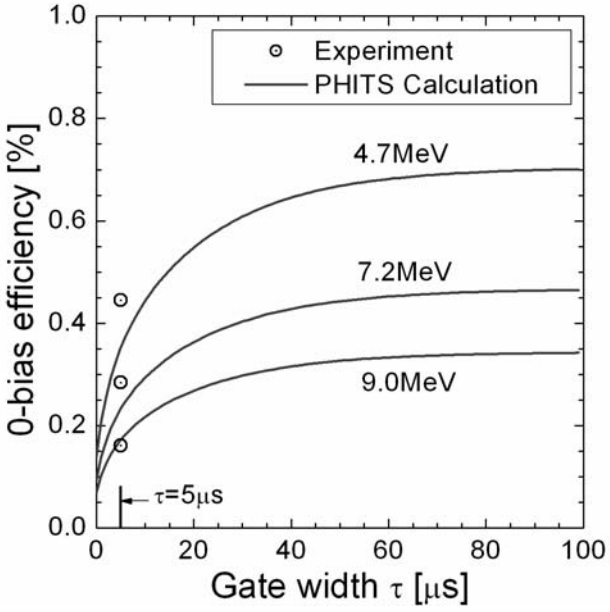

Fig. 10 Measurement and calculated 0-bias efficiency of FNS for 4.7, 7.2, and 9.0 MeV neutrons using capture gate.

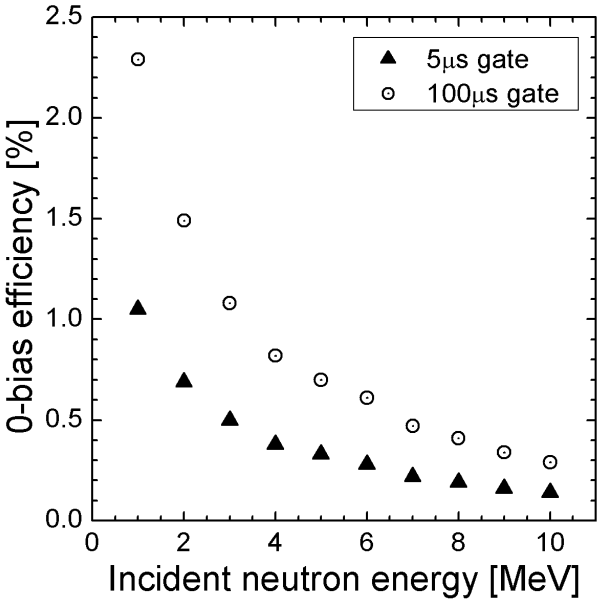

Fig. 11 The 0-bias efficiency of FNS for MeV-region neutrons using capture gate calculated by the PHITS code.

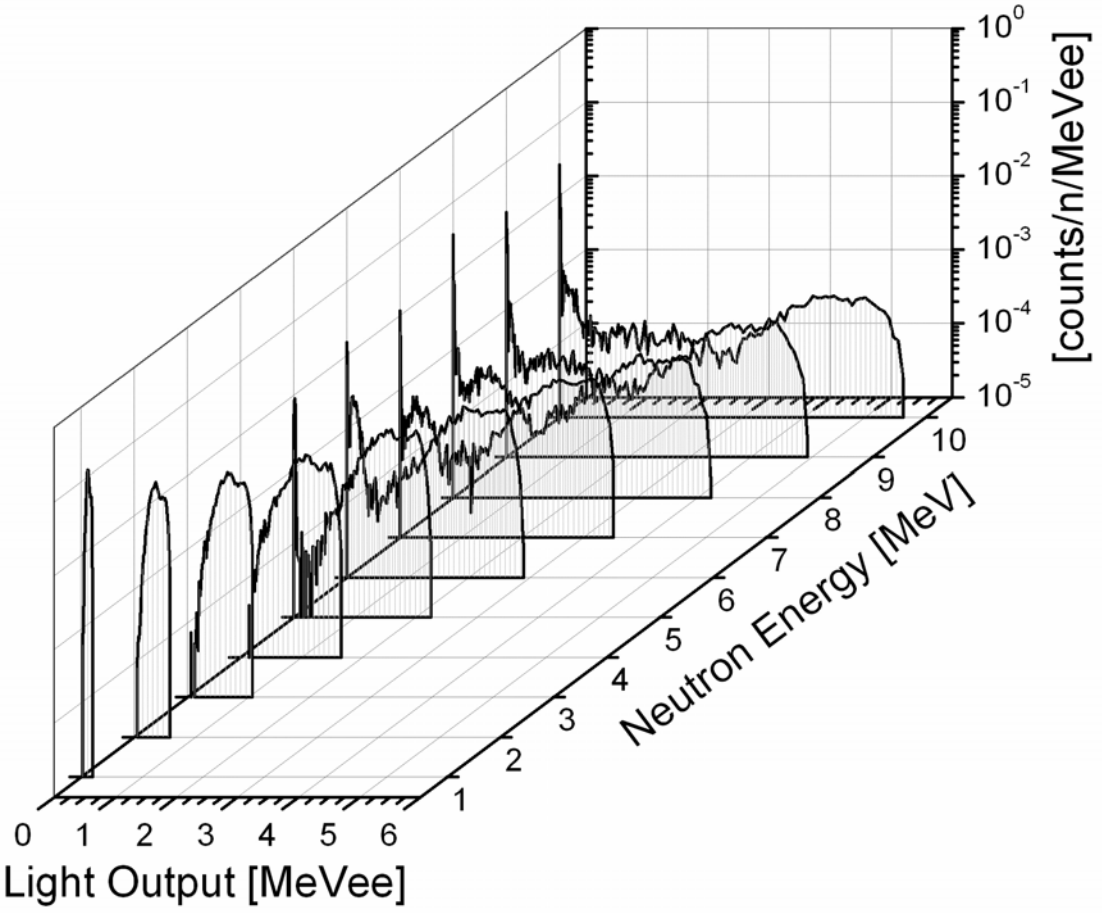

Fig. 12 FNS response functions for MeV-region neutrons calculated using both the PHITS code and the SCINFUL code.

7. 結論と今後の展望

本研究では ^{6}Li 捕獲ゲート付高速中性子スペクトロメータの MeV 領域中性子に対する応答関数を測定し、その特性評価を行った。得られた結果をまとめると次の通りである。

1. 捕獲ゲートを用いて FNS の 4.7, 7.2, 9.0MeV 単色中性子に対する応答関数を測定した。さらに測定結果と SCINFUL での解析から 1.0MeVee バイアスでの検出効率を求めることが出来た。
2. 拡散時間分布の測定結果から、時間に依存しない偶発同時計数事象によるバックグラウンド成分が観測され、この成分が応答関数の低エネルギー領域に影響を及ぼすことが確認できた。
3. ２つの計算コード SCINFUL と PHITS を組み合わせて、MeV 領域中性子に対する応答関数を計算することが可能になった。

本研究によって、FNS の基本的な中性子応答特性を把握することが出来た。今後の実用化に向けた取り組みとして、S/N 比の改善と検出効率向上を目指した改良や、より広範なエネルギー領域の標準中性子場での応答測定が必要であろう。

参考文献

1) G. F. Knoll, "放射線ハンドブック 第３版" 日刊工業新聞社 (2001).
2) T. Aoyama et al., Nucl. Inst. and Meth. **A333**, 492-501 (1993).
3) W. C. Feldman et al., Nucl. Inst. and Meth. **A306**, 350-365 (1991).
4) J. B. Czirr et al., Nucl. Inst. and Meth. **A284**, 365-369 (1989).
5) J. B. Czirr et al., Nucl. Inst. and Meth. **A349**, 532-539 (1994).
6) Y. Watanabe et al., Engineering Science Reports, Kyushu University Vol.**23**, No.3, 285-290 (2001).
7) R. H. Jhonson et al., Nucl. Sci. Eng. **73**, 93 (1980)
8) J. K. Dickens, ORNL-6452 (1988).
9) 松岡靖明, 九大院総理工修士学位論文, (2000).
10) H. Iwase et al., J. Nucl. Sci. and Technol., **39**, 1125 (2002).
11) T. Nakagawa et al., J. Nucl. Sci. Technol., **32**, 1259 (1995).