HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	低エネルギー中性子飛行時間実験
Author(s)	井上, 和彦; 大友, 詔雄; 岩佐, 浩克 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 66, 75-85
Issue Date	1973-03-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41112
Type	departmental bulletin paper
File Information	66_75-86.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

低エネルギー中性子飛行時間実験

井上和彦* 大友詔雄* 岩佐浩克* 鬼柳善明*

(昭和47年9月30日受理)

Low Energy neutron Time-of-flight Experiments

Kazuhiko INOUE, Norio OTOMO, Hirokatu IWASA and Yosiaki KIYANAGI.

(Received September 30, 1972)

Abstract

Low energy neutron time-of-flight experiments using the pulsed neutron source of the Hokkaido university 45-MeV electron LINAC were carried out. This paper describes the 5 meter neutron time-of-flight facility. Cold neutron spectra from the very cold ice at 18°K and the condensed ethane at 22°K were measured as an application of this facility.

1. 序　　言

昭和46年度から48年度にかけて北大に設置される大型の電子線型加速器 (LINAC) は強放射線源として各種の研究に利用することができる装置である。我々は LINAC をパルス状中性子源として用いて，低エネルギー中性子散乱の研究を行なうことを計画し，準備を進めている。中性子散乱の実験では，まず中性子のエネルギー分析を行なわなければならない。パルス状中性子源を用いる場合には，飛行時間 (time-of-flight, TOF) 法によって中性子のエネルギー分析を行なう。北大 LINAC はまだ一部が出来上っているのみであるが，或る程度の中性子を発生することができる。中性子散乱の実験を行なうためには中性子強度が不足しているが，単純な TOF 実験を行なうことは一応可能である。そこで，低エネルギー中性子の TOF 実験のための装置を整備し，これを用いて極低温の冷減速材内の冷中性子スペクトルの測定を行なった。

この報告では，LINAC による低エネルギー中性子 TOF 実験の装置と測定方法の概要および冷中性子スペクトルの測定について述べる。

2. 中性子の発生

2.1 装置の配置

現在は LINAC が未完成で，電子ビーム輸送管もなく加速管が1本あるのみで，所定の中性子飛行路設置場所をまだ使用することができない。そこで，加速管出口の窓の近傍で中性子を発生させることにして，低エネルギー中性子用飛行路を仮設している。図1に LINAC と中性子発生の場所，およびリニアックの傍らの仮設遮蔽壁内の飛行路の平面図を示す。LINAC が完成すれば，電子ビーム輸送管を経て，所定のターゲット室内で中性子を発生させ，3.5 m のコンクリート遮蔽壁を通して飛行路を設置できるようになる。

* 北海道大学工学部原子工学科放射線源工学講座

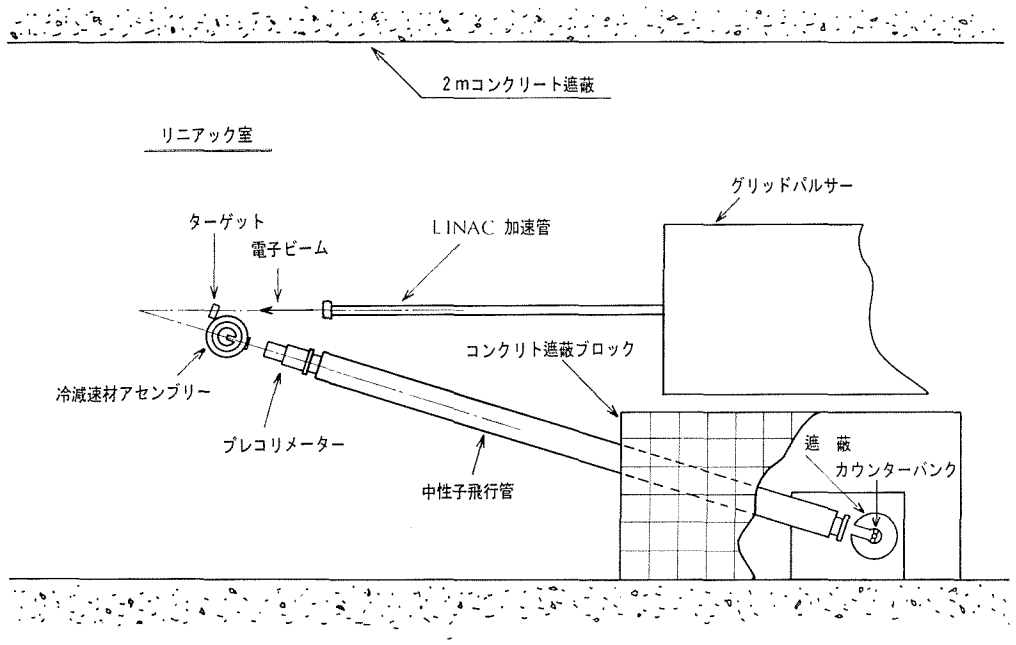

図1 LINAC と中性子飛行路および実験装置の配置

2.2 電子ビームエネルギー

現在では，中性子発生のさいには加速エネルギー約 20 MeV，ピーク電流約 25 mA，パルス幅 3 μS，繰り返し最大 200 PPS で LINAC を運転している。Al 層の厚さを変化させて，加速電子の透過率曲線を測り，これより Al 層内の電子の飛程を求めて，電子ビームエネルギーを定めた。加速エネルギーの変化は加速用高周波 (S バンド) の周波数を若干変えることによって行なうことができる。周波数を変えてビームエネルギーを変化させたさいの，飛程の測定結果を図 2 に示す。

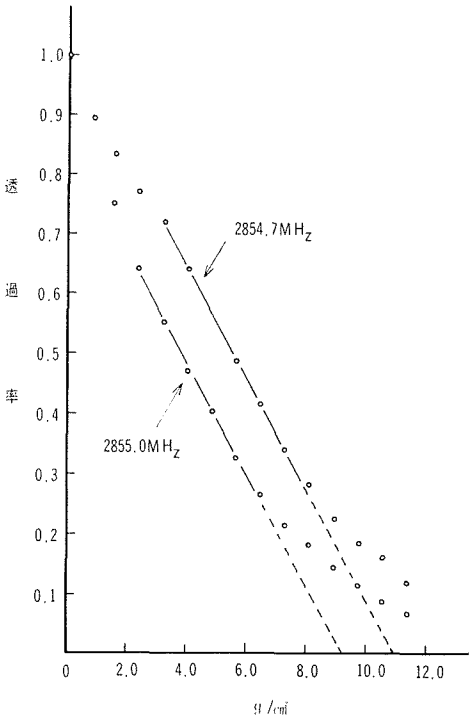

図2 LINAC からの高エネルギー電子ビームの Al 層の透過率の加速周波数による変化

2.3 中性子発生ターゲット

重元素に高エネルギー電子を当てると，制動輻射によって高エネルギー γ 線が発生する。次に，この γ 線を重元素に当てると，(γ, n) 反応によって光中性子が発生する。γ 線エネルギーが (γ, n) 反応の閾エネルギーを越えると光中性子の発生が始まり，エネルギーの増加とともに中性子発生率も増加する。さらに，エネルギーが増加して，光中性子反応の巨大共鳴を越えると，中性子発生率は電子ビーム電力にほぼ比例して増加するようになる。

電子・中性子変換用ターゲットとしては鉛，タングステン，タンタル，ウランなどがあるが，

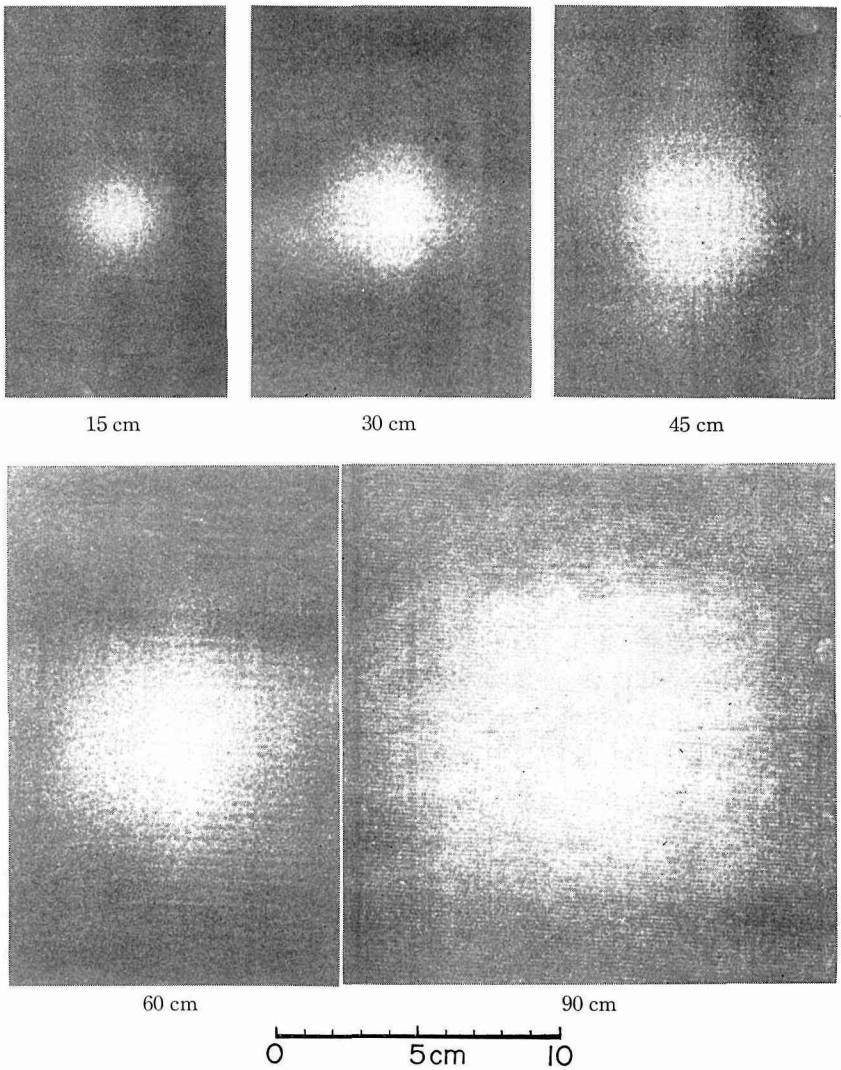

図3 電子線ビームの空気中での広がりの様子。各写真に添えた長さの値は加速管出口窓から観測位置までのビームの飛行距離を表わす。

鉛が最も簡便に使用できる。ただし，鉛の中性子発生率は上記元素中では最も少なく，また少し大きなビーム電力で使用しても，冷却なしでは熔融する恐れがある。他方，最も大きな中性子発生率はウランによって得られるが，放射化による汚染防止の措置が必要となり面倒である。我々は，当面は鉛をターゲットとして水冷または空冷で使用しているが，将来は他のより効果的なターゲットを使用する予定である。

一般に，ターゲットの厚さが厚い方が発生率が多いが実用上は2～3輻射長程度でよい[1]。ターゲットの断面は電子ビームの空気中における広がりを考慮してきめなければならない。図3に電子ビームの空気中での広がりの測定結果を示す。

2.4 減速材アセンブリー

中性子散乱実験に必要なパルス状低エネルギー中性子源を作るためには，発生した光中性子を減速材によって減速しなければならない。パルス状熱中性子源のための減速材アセンブリーには

軽水を用いるのが最も効果的である。その形状寸法は，アセンブリーからの熱中性子パルスの平均放出時間を左右するから，使用目的に応じて形状寸法を選ばねばならない。板状アセンブリーで，熱中性子強度を最大にするためには厚さを約5 cm にすればよいが，平均放出時間が約65 μS 程度になる[2]。さらに中性子強度を増すためには大きなアセンブリーからリエントラントホールを通して中性子を引き出せばよいが，平均放出時間が長くなり，またアセンブリーからの中性子の放射面を大きくとれなくなる。

3. 飛行路と遮蔽

3.1 飛　行　路

飛行路は図1に示すように，電子ビーム方向に対し，斜後方に約20° の開きをもって設置されている。内径10 cm の鉄製飛行管には，中性子ビームをコリメートするため，炭化硼素を合成樹脂で固めた厚さ15 cm の，中心孔直径2 cm のプレ・コリメータと厚さ15 cm，中心孔直径4 cm のコリメータが飛行管端末部に挿入されており，アセンブリーのリエントラントホールの底面から出た中性子がカウンターに入るようになっている。

現在の飛行路長は，上記飛行管長が4 m，その前後のアセンブリーとカウンター迄の距離を合せて全長4.8 m である。我々の測定対象のエネルギー下限は，数 meV 以下であり，数10 mS 程度迄の飛行時間の測定を正確に行なう必要がある。図4に，飛行路長を4.5，5，5.5 m としたときの中性子エネルギーの函数としての飛行時間と，代表的な平均放出時間を示す。

一般に，飛行路長が長いと，その間の空気による中性子の散乱，吸収が大きくなる。したがって，長い飛行路では飛行管内を真空にするか，1気圧のヘリウム・ガスを充塡して用いる。しかし，5 m 前後の短い飛行路の空気層では，散乱・吸収もさほど大きくはなく，データ処理の際の透過率補正も小さいので現在の飛行管は排気しないで使用している。

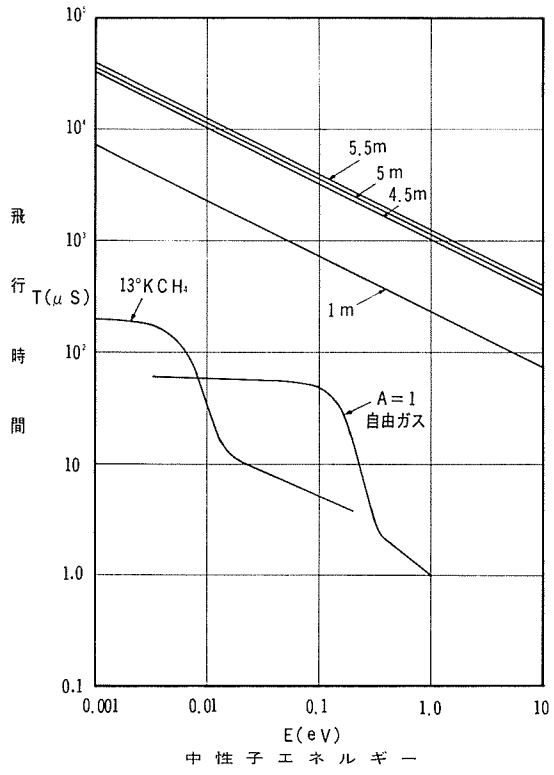

図4　中性子エネルギーと飛行時間の関係
A＝1 の自由ガスおよび 13°K の固体メタンにおける平均放出時間を併せて示す。

3.2 遮　　蔽

飛行管の周囲には，γ 線の影響と中性子のバックグランドを低減させるための遮蔽がある。飛行管全体は，硼酸を合成樹脂で固めた厚さ5～10 cm の遮蔽で覆われ，飛行管の後半分はカウンター・バンクを納めたコンクリート遮蔽内に入っている。コンクリート遮蔽は，カウンターの前方が約2.2 m，横及び上下方向が0.6 m～1 m，後方0.4 m の厚さになるように，コンクリートブロックを積んだものである。カウンターバンクは，さらに厚さ20 cm に硼酸を詰めたカウンター遮蔽内に置かれている。このように遮蔽を施すことによって，γ 線フラッシュによるカウンター

の不感時間を数 10 μS 以内に押えることができる。また，中性子のバックグランドも，高エネルギー領域を除いて，約 1%以下に減らすことができる。

4. カウンターと電子回路

中性子測定装置は中性子スペクトル測定系統と，LINAC の出力変動の補正のためのモニター測定系統の 2 系統からなる。

図 5 に全測定系統のブロック図を示す。

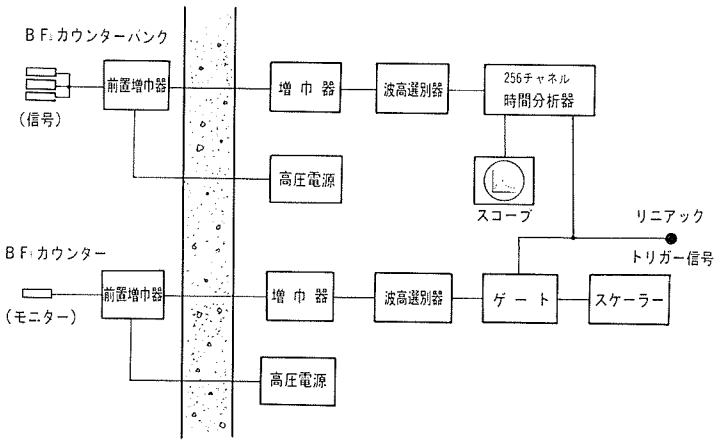

図 5 中性子検出電子回路系統図

4.1 中性子スペクトル測定系統

中性子検出用カウンターには，富士通製 PR-5055，直径 1″，有効長 15 cm の BF_3 カウンター 3 本を並べて用い，有効長中心を飛行管中心に一致させ，飛行路に対し垂直に置いて使用した。カウンターの動作電圧は +2300 V で，高圧電源 (ORTEC 446) から供給されている。検出された信号は，前置増巾器 (ORTEC 410) に入って増巾され，さらにデスクリミネータ (ORTEC 420 A) によって波高選別され，多重時間分析器に入力されている。カウンターと前置増巾器は，強い γ 線を避けていずれも，コンクリート遮蔽内に置かれている。

多重時間分析器には，NAIG の 256 チャンネル・プロセス・メモリー (NAIG D-171) に 30 および 60 μS タイミングチャネル送り用発振器を付加して用いている。LINAC のトリガー信号を時間分析器のスタート信号として用いて飛行時間を分析し，飛行時間に対応するメモリーに入力した信号を積算記憶する。チャンネル巾は，30 μS から最大 1 mS 迄選ぶことが可能で，約 7.7 mS から数 100 mS 迄の測定が可能である。これは，5 m 飛行路では，0.001 eV 以下のエネルギー領域迄の測定が可能で，冷中性子スペクトル測定に十分使用できる。

4.2 モニター用測定系統

LINAC のビーム出力は時間とともに若干変動するから，これに応じて中性子発生率も変動する。したがって，バックグランドの補正のためにはこの出力変動の補正をあわせて行なわなければならない。そこで上述のスペクトル測定系とは独立に，ターゲットよりの中性子に対して 10000 cpm 程度計数率になるようなモニター用測定系統を用いた。検出された信号は，前置増巾器 (NAIG D-201)，比例増巾器 (ORTEC 140)，デスクリミネータ (ORTEC 420 A) を通し，増巾・波形整形・波高選別し，さらにゲート回路 (NAIG D-116) によって，γ 線パルスのみを除去して，計数装置 (ORTEC 431) に入力して積算する。ゲート回路のトリガーには LINAC

のトリガー信号を用いたので，中性子パルスを約数 100 pS の遅延線を通してゲートに入力するようにした。

5. エネルギー軸の較正

飛行路長が既知であれば飛行時間から中性子エネルギーが定まるはずであるが，実際には6章で述べるような種々の補正が必要になる。その補正の量は測定または計算によって定めなければならないので，独立に中性子エネルギーを較正することによって補正をチエックしておくことが望ましい。通常用いるのは，既知の断面積を測定して，中性子エネルギーに対する断面積変化の特徴から中性子エネルギーを定める方法である。最もよく用いられる断面積としては，明瞭な Bragg 切断を有するもの，および熱中性子エネルギー領域において典型的な 1/v 吸収を示す金などがある[3]。

我々の測定では，Be，黒鉛，鉄および金を用いた。図6に Be，および鉄の透過スペクトルを

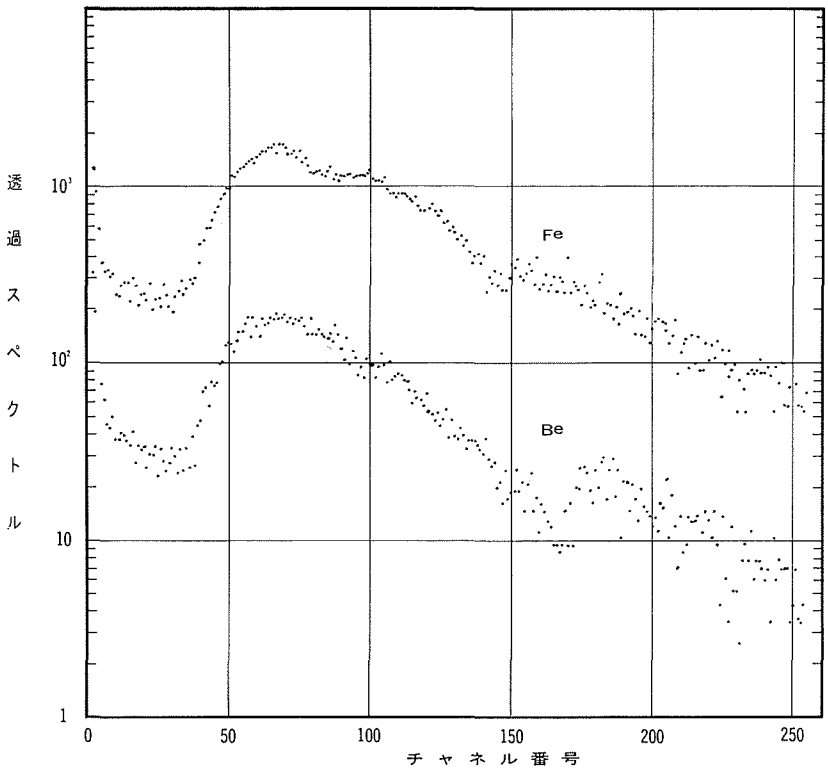

図6 ベリリウムおよび鉄の透過スペクトル

示す。既知の Bragg ピークの位置から対応する中性子エネルギーが定まる。Bragg ピークを用いる場合には特定のエネルギーしか較正できないが，1/v 吸収を用いる場合には広いエネルギー領域にわたって較正を行なうことができる。

一種類の熱中性子源アセンブリーを使用する場合には，1回較正を行なっておけばよいが，何種類ものアセンブリー内の中性子スペクトルを測定する場合には補正量が一般に変化するから，厳密には各アセンブリーについてそれぞれ較正が必要である。

6. データ処理

TOF による中性子エネルギー分析は定まった長さの飛行路における飛行時間を測定することによって行われる。LINAC によって中性子バーストを発生させた時刻を零時として，カウンターに到着する迄の時刻を測定するのであるが，電子線ビーム巾，ターゲットによる電子線から中性子への変換に要する時間巾，中性子が減速材内で減速熱化して外部へ出て来る迄の放出時間などによって，零時を厳密に定めることは困難である。特に，減速材から出てくる放出時間は中性子エネルギーによって変化するし，中性子源の空間的な拡がりや減速媒質によっても大きく変化し，数 μS から数 100 μS にもなる。代表的な放出時間を図 4 に示してある。

飛行路内の空気によって，中性子は吸収，散乱を受け，ビームから除去される。熱中性子に対しては，この除去の割合は 1 m 当り数%にも達するし，エネルギーによって変化する。したがってこれを，空気の透過率として補正しなければならない。

アセンブリーの中性子取出しのためのリエントラントホールの底面は，アルミ製である。中性子はこのアルミの厚さによっても散乱・吸収をうける。特にアルミの全断面積は 3.8 meV 及び 5 meV 付近にピークをもつため，スペクトルにこの影響が出る。このため，アルミの透過率の補正も行なう必要がある。

用いているカウンターは BF_3 であるが，感度が比較的悪く，理論計算によると，中性子検出効率は 15%程度，さらに高エネルギー中性子では数%程度にまで下っている。従って，真の中性子スペクトルを得るには，この検出効率を補正しなければならない。

検出効率を求めるには実験による方法と計算による方法があるが，ここでは計算によって求めた。カウンター壁の内半径を R，壁厚を l とすると中性子エネルギー E に対する検出効率 $\varepsilon(E)$ は次式で与えられる。

$$\varepsilon(E)=\Sigma_a(E)R^{-1}\int_0^R\int_0^{2\pi}\exp\{-(\sqrt{R^2-r^2\sin^2\theta}-r\cos\theta)\Sigma_a(E)\}$$
$$\times\exp[-\{\sqrt{(R+l)^2-r^2\sin^2\theta}-\sqrt{R^2-r^2\sin^2\theta}\}\Sigma_w(E)]r\sin\theta d\theta dr$$

ここで $\Sigma_a(E)$ と $\Sigma_w(E)$ は BF_3 ガスと壁材料の中性子吸収断面積を表わす。

6.1 バックグランド

現在の測定では，バックグランドは著しく改善されているが，高エネルギー領域の中性子に対してはまだ充分でなく，水の常温のスペクトル測定では，数 eV の中性子に対する S/N 比は約 10%程度となっている。しかし，熱中性子領域よりも低いエネルギーに対してはほとんど無視できる程度に小さくなっている。バックグランドは，データ処理の際に，測定されたスペクトルから差し引かれなければならない。

6.2 処理コード

上述の各種補正を含めて，測定された時間スペクトルをエネルギースペクトルに変換する必要がある。これには，大型計算機 FACOM 230-60 を使用した。256 点のエネルギー点に対する中性子束の値の計算に要する時間は約 15S である。

7. 冷中性子スペクトル

冷減速材よりの冷中性子スペクトルに関するデータは，冷中性子源に使用する冷減速材の有効性を調べる上で重要である。この章では，軽水氷および固体エタンを極低温まで冷却して冷中性子スペクトルの測定を行なったので，実験装置と測定結果について述べる。

7.1 冷減速材アセンブリークライオスタット

冷減速材は Al 製の内容積 6 立の直円筒状のチエンバー内で，液体窒素および冷凍機によって冷却される*。チエンバーには中性子ビームを引き出すための厚さ 1 mm の Al 製の円筒状のリエントラントホールがもうけられている。このリエントラントホールによって減速材の中央部付近の中性子スペクトルを観測することができる。アセンブリーの操作については，既報で述べたので省略する[4]。冷減速材の温度は熱電対（クロメル・コンスタンタン）および水素蒸気圧温度計によって測られる。熱電対はチエンバー壁に装着されており，蒸気圧温度計のヘッドはチエンバー内に挿入されている。これによって，室温から 77°K 付近まで，および 22°K から 10°K までの領域を比較的良い精度で測ることができる。これらの温度領域の中間の温度領域については熱電対の精度はあまり良くない。

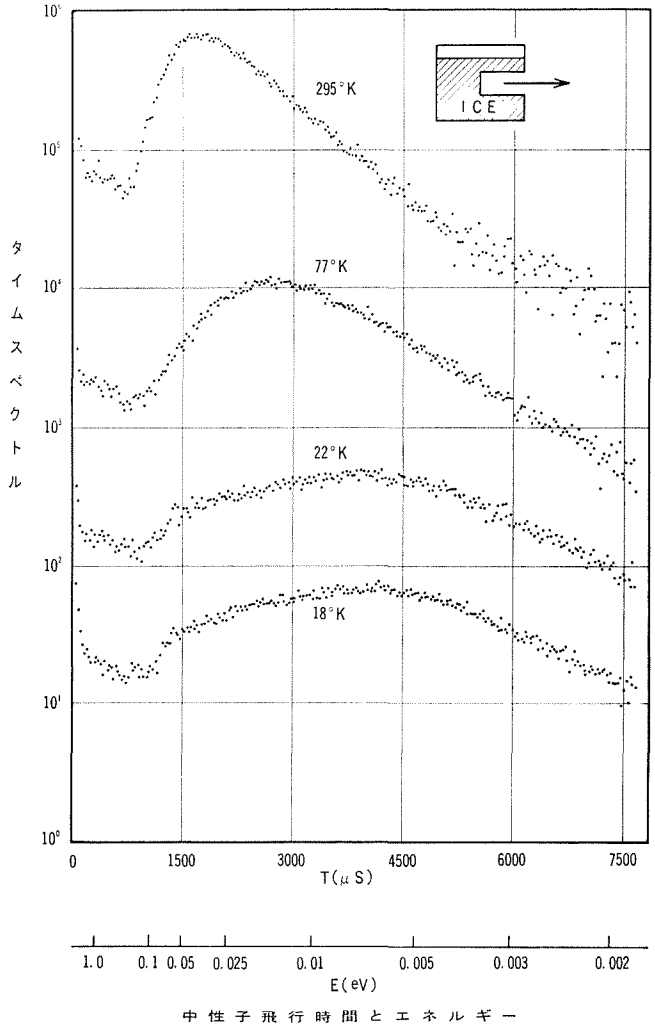

図 7 軽水氷内の中性子のタイムスペクトルの測定結果。縦軸はタイムスペクトル N(t) を表わし，規格化されていない。

* 減速材アセンブリークライオスタットは大阪酸素工業 K. K. において製作した。冷凍機には CRYOMECH -GB 12 型を使用した。

7.2 スペクトルの測定

冷減速材アセンブリーに約3 μS のパルス巾の光中性子を打ち込むと，光中性子は水素原子核によって減速して急速にエネルギーを失い，冷減速材と熱平衡状態に達しようとする。中性子が約1 eV に減速するまでの減速時間は1 μS 以下であり，それよりさらに低エネルギーに減速してアセンブリー外に出てくるまでにはおよそ数10 μS 程度あるいはそれ以上の放出時間 τ を要する。中性子検出器までの中性子飛行時間 T が，$T \gg \tau$ の条件を充していれば，中性子 TOF 法によって測った中性子エネルギースペクトルは，アセンブリー内に定常中性子源を置いたときの定常スペクトルに等しいことになる。したがって，TOF による中性子スペクトルの実験値を適切な散乱模型を用いて計算した中性子スペクトルの理論値と直接比較することが可能になる。

実際の測定にあたっては，3章で述べたように飛行路長の選定に注意をはらい，さらに LINAC のパルス繰り返し数を適当に選択しなければならない。我々が用いた 4.8 m 飛行路の場合には，冷減速材の温度および時間分析器チャネル巾に応じて，60 ないし 100 pps の間にパルス繰り返し数を選べば，計数率を最大にとり，かつ各分析サイクルのフレームアウトを実質的に避けることができる。

中性子スペクトル $\phi(E)$ はタイムスペクトル $N(t)$ と次式によって結ばれる。

$$\phi(E)=ct^3N(t)$$

ここで，c は中性子質量を含む係数である。実際の測定値からの変換では，前章で述べた補正を加えなければならない。

7.3 測 定 結 果

図7に各温度における5立の容積の氷内のリエントラントホールから引き出した中性子タイム

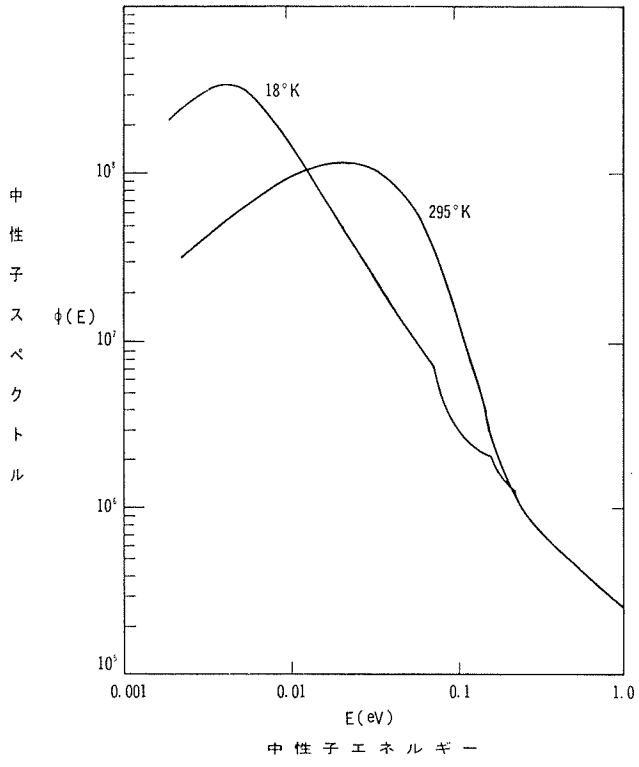

図8 軽水氷内の中性子スペクトル。1/E 分布で規格化してある

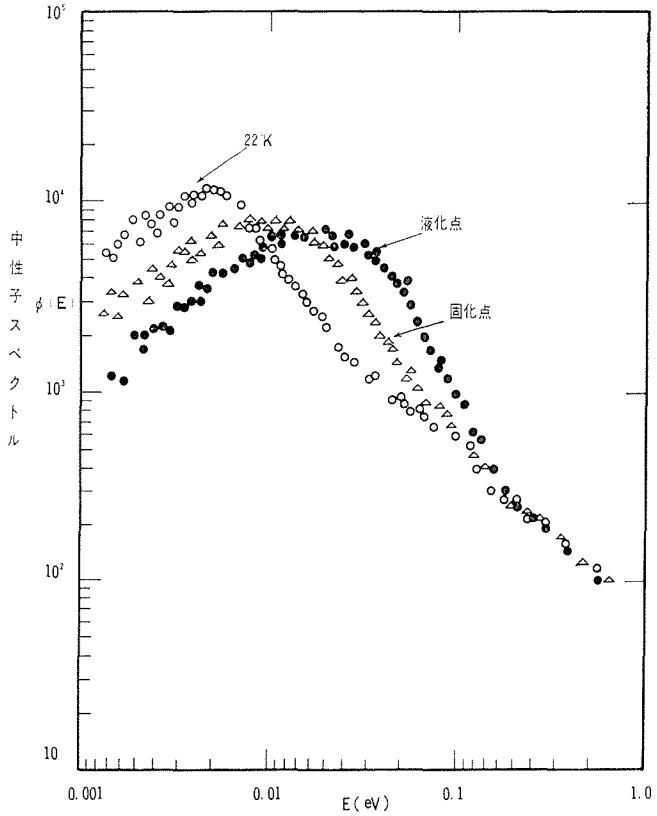

図9 凝集エタン内のタイムスペクトルの測定

スペクトルの測定結果を示す。軽水分子の束縛回転レベルの影響が，氷の温度が低い程顕著に現れている。液体時の回転レベルエネルギー 0.06 eV が固相では 0.075 eV になると言われているが，18°K における測定もこのことを支持している。分子内振動の影響が 0.1—0.2 eV 領域に現われているように見えるが，計数の統計が悪く明確ではない。中性子源強度を増すか測定時間を延ばせば認められるはずである。

図8に軽水氷内のタイムスペクトルを前章の方法で処理したエネルギースペクトルを示す。常温では，熱中性子スペクトルは殆んど熱平衡に達し，典型的な Maxwell 分布になっている。この結果から，バックグランドの処理および各種補正等が一応妥当に行なわれていることが結論される。したがって，0.1 eV 以下のエネルギー領域の中性子スペクトルの各温度における測定結果はかなり信頼度があるものと考えてよい。極低温氷内のスペクトルは Maxwell 分布とかなり違った型をしており，既に井上によって議論された減速と吸収が競合して生ずるスペクトルの型になっている[5]。また，いわゆる中性子温度の冷却の限界温度も予測されているように 40°K ないし 50°K 付近になる[5]。

凝集エタン内の中性子スペクトルの測定では，エタンの量が不足して，約3立の凝集エタンしか作れなかったので，中性子はリエントラントホールからではなく，チエンバー側面からのものが観測された。測定結果を図9に示す。

8. 結　　言

中性子源強度は必ずしも充分ではないが，単なるエネルギースペクトルの測定ならば，組立て

た 5 mTOF 装置を用いて，妥当な測定時間で充分有意なデータを得られることを立証できた。使用したカウンターが比較的低感度のものであったので，これを直径 2″ の高圧の高感度のものに取換えることを計画しており，以後の測定ではこれを用いるが，これによってジオメトリーが同一のままで計数効率を5倍あげることができる。したがって，今後の予定されている LINAC の増力によって，エネルギースペクトル測定にとっては充分過ぎる中性子強度を得られる。

本実験の初期の段階では，速迷中性子の遮蔽にかなり困難を感じたが，これはターゲットとカウンターが同一の部屋の中にあったためで，カウンターバンクの周囲を速中性子に対して充分遮蔽することによって解決した。これらの結果から，予定しているターゲット室と 3.5 m 厚遮蔽を用いることができるようになれば，γ 線および中性子の遮蔽はともにあまり問題にはならないことがわかった。

軽水氷では極低温に近くなると，上方散乱が殆んどなくなり，中性子スペクトルに束縛回転の影響が明瞭に現われてくる。液相での束縛回転の固有エネルギー 0.06 eV が固相で 0.075 eV に変ると云われているが，18°K においても 0.075 eV 付近にあることが 18°K のスペクトルからも確認される。

極低温の軽水氷は数 meV の冷中性子のための冷減速材としてはある程度効果的であるから，取扱いの安全性の点から考えて，パルス状冷中性子源アセンブリーの反射体としての利用価値がある。

極低温の凝集エタンは冷減速材として軽水よりは効果的であるが，分子構造から予測されるように，メタンよりはすぐれていない。今回の測定ではエタンの量が不足したために，冷中性子の収量が少なく，統計が良くなかったので，定量的な結論を出すために充分な量のエタンを用いて測定を繰り返す必要がある。

参 考 文 献

1) K. M. Murray; Nucleonics **22**, 61 (1964).
2) D. H. Day, R. N. Sinclair: Nucl. Instru. methods **72**, 237 (1969).
3) D. H. Hughes, J. A. Harvey: BNL-325 (1958).
4) K. Inoue: J. Nucl. Sci. Technol **7** [11], 580 (1970).
5) 井上和彦：北大工学部研究報告 63 号，99 (1972).