



Title	パルス中性子共鳴吸収分光法を用いた核種定量分析に関する研究
Author(s)	長谷美, 宏幸
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第11888号
Issue Date	2015-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k11888
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/58700
Type	doctoral thesis
File Information	Hiroyuki_Hasemi.pdf



博 士 論 文

パルス中性子共鳴吸収分光法を用いた
核種定量分析に関する研究

Study on quantitative estimation of nuclide using
pulsed neutron resonance absorption spectroscopy

北海道大学大学院工学院
量子理工学専攻

長 谷 美 宏 幸

目次

第 1 章 序論	1
1.1 背景	1
1.1.1 中性子共鳴吸収分光法の有用性	1
1.1.1.1 中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS) の概要	1
1.1.1.2 N-RAS の特長	3
1.1.2 N-RAS の応用例	4
1.1.2.1 原子数密度分析	4
1.1.2.2 温度測定	5
1.1.3 他手法との比較	6
1.1.3.1 原子数密度分析	6
1.1.3.2 温度測定	7
1.1.4 N-RAS に関する研究の歴史	8
1.1.4.1 核データ研究	8
1.1.4.2 核燃料物質の定量化	8
1.1.4.3 ISIS における温度測定	9
1.1.4.4 KENS における原子ダイナミクス測定	10
1.1.4.5 GELINA における研究	11
1.1.4.6 北海道大学における研究	12
1.1.4.7 大強度陽子加速器施設 J-PARC における研究	15
1.1.4.8 近年の動向	16
1.2 N-RAS の原理	19
1.2.1 基本式	19
1.2.2 N-RAS による核種情報の取得方法	21
1.2.2.1 核種同定	21
1.2.2.2 原子数密度定量	21
1.2.2.3 温度測定	22
1.3 N-RAS による原子数密度分析の定量化への課題・問題点	22
1.4 研究目的と方法	25
1.4.1 研究目的	25
1.4.2 研究方法	25
1.5 論文の構成	26

第 2 章 共鳴断面積の表式	29
2.1 複合核の形成と励起	29
2.2 複合核の基底状態への遷移	31
2.3 共鳴断面積の表式	32
2.3.1 R-Matrix の導出	32
2.3.2 R-Matrix と Collision matrix U との関係	34
2.3.3 R-Matrix の近似法	36
2.3.3.1 Level matrix A の導入	36
2.3.3.2 Multilevel Breit-Wigner 近似	37
2.3.3.3 Single Level Breit-Wigner 近似	39
2.3.3.4 Reich-Moore 近似	39
2.4 REFIT コード	42
2.5 Doppler 効果による断面積の広がり	43
2.5.1 理想ガスモデル	43
2.5.1.1 Doppler 効果を考慮した共鳴断面積の一般的な表式	43
2.5.1.2 Doppler 効果を考慮した SLBW 公式による共鳴断面積の表式	44
2.5.2 理想ガスモデル以外のモデルによる Doppler 広がり の表現	45
2.5.3 理想ガスモデルにおける実効温度の導入	47
2.6 第 2 章のまとめ	50
 第 3 章 定量化のための解析システムの開発	 51
3.1 減速材中の中性子の減速過程とパルス関数	51
3.1.1 減速過程	51
3.1.2 パルス関数の種類	53
3.1.2.1 共鳴解析に用いられるパルス関数	53
3.1.2.2 共鳴解析以外に用いられるパルス関数	55
3.2 シミュレーションによる NOBORU のパルス関数の計算	57
3.2.1 モンテカルロシミュレーションコード	57
3.2.2 シミュレーションモデル	59
3.2.3 シミュレーション結果	61
3.2.4 既存関数を用いたフィッティング	63
3.2.4.1 Ikeda-Carpenter 関数によるフィッティング	63
3.2.4.2 擬 Voigt 関数によるフィッティング	63
3.2.4.3 Cole-Windsor 関数によるフィッティング	67

目次

3.2.5 パルス関数のパラメータのエネルギー依存性	67
3.3 即発 γ 線測定による妥当性確認	69
3.3.1 陽子パルスの時間構造	70
3.3.2 ダブルバンチ運転における実験と解析	72
3.3.2.1 実験概要	72
3.3.2.2 プラスチックシンチレーション検出器	73
3.3.2.3 試料	74
3.3.2.4 試料及び検出器のセットアップ	75
3.3.2.5 測定された各試料の即発 γ 線スペクトル	76
3.3.2.6 解析	78
3.3.3 シングルバンチ運転における実験と解析	83
3.3.3.1 実験概要	83
3.3.3.2 試料及び検出器のセットアップ	83
3.3.3.3 測定された各試料の即発 γ 線スペクトル	84
3.3.3.4 解析	87
3.3.4 NOBORU のパルス関数についてのまとめ	90
3.4 シミュレーションによる HUNS 熱中性子源のパルス関数の計算	90
3.4.1 モンテカルロシミュレーションコード	90
3.4.2 シミュレーションモデル	91
3.4.3 シミュレーション結果	92
3.4.4 既存関数を用いたフィッティング	94
3.4.4.1 Ikeda-Carpenter 関数によるフィッティング	94
3.4.4.2 Cole-Windsor 関数によるフィッティング	94
3.4.5 パルス関数のパラメータのエネルギー依存性	97
3.5 REFIT へのパルス関数の組み込み	99
3.5.1 Cole-Windsor 関数の組み込み	99
3.5.2 ダブルバンチの再現	99
3.5.3 デモンストレーション計算	100
3.5.3.1 NOBORU における共鳴スペクトルの計算例	100
3.5.3.2 HUNS における共鳴スペクトルの計算例	102
3.6 第3章のまとめ	105
第4章 核種定量化手法の検証実験	107
4.1. 距離を離れた測定	107
4.2 散乱の影響が無視できる試料に対する密度分析	108

目次

4.2.1 実験	109
4.2.1.1 実験概要	109
4.2.1.2 GEM 検出器	109
4.2.1.3 試料	112
4.2.1.4 試料及び検出器のセットアップ	112
4.2.2 解析	113
4.2.2.1 測定された透過率スペクトル	113
4.2.2.2 REFIT によるフィッティング	114
4.2.2.3 Ta 箔の原子数密度分析結果に関する考察	116
4.3 散乱の影響がある場合の密度分析	117
4.3.1 シミュレーションによる試料位置の決定	117
4.3.1.1 シミュレーション計算の概要	117
4.3.1.2 シミュレーション結果	117
4.3.1.3 散乱中性子の影響に関する考察	119
4.3.2 実験	120
4.3.2.1 実験概要	120
4.3.2.2 GEM 検出器	121
4.3.2.3 試料	121
4.3.2.4 試料及び検出器のセットアップ	122
4.3.3 解析	123
4.3.3.1 測定された透過率スペクトル	123
4.3.3.2 REFIT による 1 mm 厚試料に対するフィッティング	125
4.3.3.3 Ag 板及び Cu 板の 1 mm 厚試料の原子数密度分析結果に関する考察	132
4.3.3.4 複数の厚さの試料に対するフィッティング	134
4.4 Black Resonance の適用によるバックグラウンド評価	137
4.4.1 Black Resonance を利用したバックグラウンド評価の原理	137
4.4.2 BR フィルター	138
4.4.3 実験	139
4.4.3.1 実験概要	139
4.4.3.2 GEM 検出器	140
4.4.3.3 試料	140
4.4.3.4 試料、BR フィルター及び検出器のセットアップ	140
4.4.4 解析	142
4.4.4.1 BR フィルターの透過スペクトル	142
4.4.4.2 Ag 板及び Cu 板の透過スペクトル	144
4.4.4.3 補正された透過率に対するフィッティング	147

4.5 第4章のまとめ	149
第5章 原子数密度イメージングへの応用	151
5.1 BL10 における鉛フリーはんだの組成イメージング	151
5.1.1 鉛フリーはんだのイメージング試料	151
5.1.2 実験	153
5.1.2.1 実験概要	153
5.1.2.2 試料と検出器のセットアップ	153
5.1.3 解析	155
5.1.3.1 透過画像	155
5.1.3.2 測定された透過率スペクトル	157
5.1.3.3 REFIT によるフィッティング	159
5.1.3.4 原子数密度イメージング	163
5.2 第5章のまとめ	166
第6章 結論	167
付録 HUNS における核種・温度イメージング	171
A.1 背景と目的	171
A.2 実験	172
A.2.1 実験概要	172
A.2.2 試料	172
A.2.3 温度コントロールシステム	173
A.2.4 実験体系	174
A.3 解析	176
A.3.1 ラジオグラフィ	176
A.3.2 原子数密度分析	177
A.3.2.1 試料中心部分における原子数密度分析	177
A.3.2.2 原子数密度イメージング	178
A.3.3 温度測定	181
A.3.3.1 試料中心部分における温度測定	181
A.3.3.2 温度イメージング	183
A.3.4 パルス関数に関する議論	184

目次

A.3.5 新しいパルス関数による再解析	187
A.3.5.1 原子数密度イメージング	187
A.3.5.2 温度イメージング	189
A.4 付録のまとめ	190
参考文献	191
本研究に関連して発表した論文・講演	197
謝辞	199

図の目録

図 1.1	透過型 N-RAS 及び即発 γ 線型 N-RAS の概略図	2
図 1.2	触媒を透過した中性子のスペクトルにおける Sm の 0.34 eV 共鳴	9
図 1.3	N-RAS/CT の概略図と Ta による温度の CT 画像	10
図 1.4	GELINA の中性子ビームライン	12
図 1.5	HUNS の N-RAS 用分光システムの写真とイラスト	13
図 1.6	透過型 N-RAS による CT イメージングの概略図と In の原子数密度分布 及び温度分布	14
図 1.7	J-PARC/MLF/BL10 NOBORU の概略図	16
図 1.8	J-PARC/MLF/BL22 RADEN の構想段階のビームライン構成	16
図 1.9	KURRI-LINAC の中性子源と 12 m 測定室へ向かうビームライン	17
図 1.10	INES において測定された belt mount に含まれる核種のイメージ	18
図 1.11	INES において測定されたレリーフに含まれる Au のイメージ	18
図 1.12	Ta-181 の 4.28eV 共鳴に対する共鳴積分の定義と共鳴積分値の温度 依存性のシミュレーション結果	23
図 2.1	Bohr が講義で使用した複合核のイメージ	30
図 2.2	^{238}U の中性子断面積	30
図 2.3	各種近似法を用いて計算された ^{56}Fe の全断面積	41
図 2.4	Cu と Ta の実効温度の実温度に対する変化	48
図 2.5	^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴に対する捕獲断面積の温度による変化の計算例	49
図 3.1	いくつかの速度における中性子の時間分布	53
図 3.2	PHITS に組み込まれている物理モデル	58
図 3.3	JSNS のシミュレーションモデル	60
図 3.4	NOBORU の全中性子エネルギーにおけるパルス関数	61
図 3.5	モンテカルロシミュレーションによって求められた NOBORU の パルス関数	62
図 3.6	Ikeda-Carpenter 関数による NOBORU のパルス関数へのフィッティング	64
図 3.7	擬 Voigt 関数による NOBORU のパルス関数へのフィッティング	65
図 3.8	Cole-Windsor 関数による NOBORU のパルス関数へのフィッティング	66
図 3.9	NOBORU における Cole-Windsor 関数の各パラメータのエネルギー依存性	68
図 3.10	3NBT の CT で測定された陽子ビーム強度の時間構造 (2011 年 12 月 22 日、 ダブルバンチ 300 kW 運転)	70
図 3.11	シングルバンチ運転時 (ビームパワー 120 kW) の陽子パルス波形 に対するフィッティング	71

図の目録

図 3.12	ダブルバンチ運転時（ビームパワー300 kW）の陽子パルス波形 に対するフィッティング	72
図 3.13	プラスチックシンチレーション検出器の外観と検出器周りの遮蔽の様子	74
図 3.14	プラスチックシンチレーション検出器用の飛行時間分析システム	74
図 3.15	ダブルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの概略図	75
図 3.16	ダブルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの様子	76
図 3.17	ダブルバンチ実験におけるバックグラウンド γ 線の TOF スペクトル	77
図 3.18	ダブルバンチ実験における Ta 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル	77
図 3.19	ダブルバンチ実験における Au 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル	78
図 3.20	ダブルバンチ実験における Cu 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル	78
図 3.21	Ta、Au、Cu の共鳴エネルギーと TOF の関係（ダブルバンチ運転）	80
図 3.22	Ta の共鳴ピークに対するフィッティング（ダブルバンチ運転）	81
図 3.23	Au の共鳴ピークに対するフィッティング（ダブルバンチ運転）	81
図 3.24	Cu の共鳴ピークに対するフィッティング（ダブルバンチ運転）	82
図 3.25	パルス関数のパラメータのシミュレーション値と実験値との比較 （ダブルバンチ運転）	82
図 3.26	シングルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの概略図	84
図 3.27	シングルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの様子	84
図 3.28	シングルバンチ実験におけるバックグラウンド γ 線の TOF スペクトル	85
図 3.29	シングルバンチ実験における Ta 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル	86
図 3.30	シングルバンチ実験における Au 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル	86
図 3.31	シングルバンチ実験における Cu 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル	87
図 3.32	Ta、Au、Cu の共鳴エネルギーと TOF の関係（シングルバンチ運転）	87
図 3.33	Ta の共鳴ピークに対するフィッティング（シングルバンチ運転）	88
図 3.34	Au の共鳴ピークに対するフィッティング（シングルバンチ運転）	88
図 3.35	Cu の共鳴ピークに対するフィッティング（シングルバンチ運転）	89
図 3.36	パルス関数のパラメータのシミュレーション値と実験値との比較 （シングルバンチ運転）	89
図 3.37	HUNS のシミュレーションモデル	91
図 3.38	HUNS の全中性子エネルギーにおけるパルス関数	92
図 3.39	モンテカルロシミュレーションによって求められた HUNS のパルス関数	93
図 3.40	Ikeda-Carpenter 関数による HUNS のパルス関数へのフィッティング	95
図 3.41	Cole-Windsor 関数による HUNS のパルス関数へのフィッティング	96
図 3.42	HUNS における Cole-Windsor 関数の各パラメータのエネルギー依存性	98
図 3.43	断面積から計算した透過率と NOBORU における Ta の透過率の比較	101

図の目録

図 3.44	厚さの異なる Ta による透過率スペクトル (厚さ 1、10、100 μm 及び 1、10 mm)	101
図 3.45	HUNS の電子線形加速器の電子線パルス幅の概念図	102
図 3.46	各パルス幅における HUNS における Ta による透過率スペクトル	104
図 3.47	各パルス幅における HUNS における Au による透過率スペクトル	104
図 3.48	各パルス幅における HUNS における Cu による透過率スペクトル	104
図 4.1	試料と検出器の距離が近い場合における試料からの散乱中性子の影響	108
図 4.2	試料と検出器の距離が遠い場合における試料からの散乱中性子の影響	108
図 4.3	GEM ホイルによるガス増幅の原理	110
図 4.4	GEM チェンバー内部の構成図	110
図 4.5	GEM 検出器の外観	111
図 4.6	Ta 試料と GEM 検出器のセットアップの概略図	112
図 4.7	Ta 試料と GEM 検出器のセットアップの様子	113
図 4.8	Ta 箔の透過率スペクトル	114
図 4.9	^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴に対するフィッティング	115
図 4.10	^{181}Ta の 10.36 eV 共鳴に対するフィッティング	115
図 4.11	1 mm 厚 Ag を透過した中性子フラックスの試料位置による変化	118
図 4.12	1 mm 厚 Cu を透過した中性子フラックスの試料位置による変化	118
図 4.13	推量された原子数密度の透過率依存性	120
図 4.14	Cu 板試料と GEM 検出器のセットアップの概略図	122
図 4.15	Cu 板試料と GEM 検出器のセットアップの様子	122
図 4.16	Ag 板の透過率スペクトル	124
図 4.17	1mm 厚 Ag 板の透過率スペクトルにおける 71 eV 共鳴と 133.9 eV 共鳴の拡大図	124
図 4.18	Cu 板の透過率スペクトル	125
図 4.19	1mm 厚 Cu 板の透過率スペクトルにおける 230 eV 共鳴と 579 eV 共鳴の拡大図	125
図 4.20	^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング	126
図 4.21	^{109}Ag の 30.6 eV 共鳴に対するフィッティング	127
図 4.22	^{109}Ag の 71 eV 共鳴に対するフィッティング	127
図 4.23	^{109}Ag の 133.9 eV 共鳴に対するフィッティング	128
図 4.24	JENDL-4.0 及び Weigmann の共鳴パラメータを用いて計算した Cu の透過率	129
図 4.25	^{65}Cu の 230 eV 共鳴に対するフィッティング	130
図 4.26	^{63}Cu の 579 eV 共鳴に対するフィッティング	131
図 4.27	^{63}Cu の 2038 eV 共鳴に対するフィッティング	131

図の目録

図 4.28	原子数密度の定量性の共鳴エネルギー依存性	136
図 4.29	ISIS の INES で測定された BR スペクトル	138
図 4.30	BR フィルターの透過率の計算値	139
図 4.31	改良された GEM 検出器の外観	140
図 4.32	試料、BR フィルター及び検出器のセットアップの概略図	141
図 4.33	試料、BR フィルター及び検出器のセットアップの様子	141
図 4.34	BR フィルターを透過した中性子スペクトル	142
図 4.35	BR フィルターを透過した中性子スペクトルから求めたバックグラウンド 曲線	143
図 4.36	1 mm 厚 Ag 板の透過中性子スペクトルとバックグラウンド曲線	145
図 4.37	1 mm 厚 Ag 板の補正前後の透過率と理論値	145
図 4.38	1 mm 厚 Cu 板の透過中性子スペクトルとバックグラウンド曲線	146
図 4.39	1 mm 厚 Cu 板の補正前後の透過率と理論値	146
図 4.40	補正した ^{109}Ag の 71 eV 共鳴に対するフィッティング	147
図 4.41	補正した ^{109}Ag の 133.9 eV 共鳴に対するフィッティング	148
図 4.42	補正した ^{63}Cu の 579 eV 共鳴に対するフィッティング	148
図 5.1	鉛フリーはんだのイメージング試料	153
図 5.2	イメージング試料と検出器のセットアップの概略図	154
図 5.3	イメージング試料と検出器のセットアップの様子	154
図 5.4	試料のラジオグラフィ（中性子エネルギー 3 eV 以上）	155
図 5.5	試料のラジオグラフィ（中性子エネルギー 16.3 eV 付近）	156
図 5.6	平均透過率の 1 次元分布	157
図 5.7	試料厚さが異なる領域における透過率スペクトル	158
図 5.8	試料厚さが異なる領域における透過率スペクトルの拡大図	158
図 5.9	^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング（試料厚さ 3.2 mm）	160
図 5.10	^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対するフィッティング（試料厚さ 3.2 mm）	160
図 5.11	^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング（試料厚さ 4.8 mm）	161
図 5.12	^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対するフィッティング（試料厚さ 4.8 mm）	161
図 5.13	^{107}Ag の面密度分布	164
図 5.14	^{107}Ag の平均面密度の 1 次元分布	164
図 5.15	^{118}Sn の面密度分布	165
図 5.16	^{118}Sn の平均面密度の 1 次元分布	165
図 A.1	二重円筒試料の外観と断面図	173
図 A.2	試料温度コントロールシステムの概要	174
図 A.3	HUNS における原子数密度・温度イメージング実験の実験体系	175
図 A.4	二重円筒試料と検出器の写真	175

図の目録

図 A.5	二重円筒試料のラジオグラフィ	176
図 A.6	試料中心部分における透過率スペクトルとフィッティング曲線 (試料：温度勾配なし)	177
図 A.7	^{115}In の核種の面密度分布	179
図 A.8	^{115}In の原子数密度の CT 再構成画像	179
図 A.9	^{109}Ag の核種の面密度分布	180
図 A.10	^{109}Ag の原子数密度の CT 再構成画像	180
図 A.11	二重円筒試料内部の温度分布の計算値	182
図 A.12	試料中心部分における透過率スペクトルとフィッティング曲線 (試料：温度勾配あり)	182
図 A.13	平均温度の分布の実験値及び計算値	183
図 A.14	試料内部の温度分布の再構成画像	183
図 A.15	理想的なパルス関数の計算に用いた体系と実験体系を模擬した体系	185
図 A.16	実験体系を模擬した場合のパルス関数と理想的なパルス関数の比較	186
図 A.17	試料中心部分における透過率スペクトルの実験値と計算値	187
図 A.18	新しいパルス関数により求めた ^{115}In の原子数密度の CT 再構成画像	188
図 A.19	新しいパルス関数により求めた ^{109}Ag の原子数密度の CT 再構成画像	188
図 A.20	新しいパルス関数により求めた試料内部の温度分布の再構成画像	189

表の目録

表 1.1	原子密度分析に用いられる手法のまとめ	7
表 3.1	ダブルバンチ運転におけるパルス測定実験のビーム条件	73
表 3.2	パルス関数測定に用いた試料と厚さ	75
表 3.3	シングルバンチ運転におけるパルス測定実験のビーム条件	83
表 3.4	HUNS の電子線形加速器の性能	102
表 4.1	Ta 箔の原子数密度分析実験のビーム条件	109
表 4.2	GEM 検出器の諸元	111
表 4.3	Ta 箔の諸元	112
表 4.4	フィッティングにより求められた Ta 箔の原子数密度	116
表 4.5	入射中性子に対する散乱中性子の影響	120
表 4.6	Ag 板及び Cu 板の原子数密度分析実験のビーム条件	121
表 4.7	Ag 板の諸元	121
表 4.8	Cu 板の諸元	121
表 4.9	Cu の JENDL-4.0 の共鳴パラメータと本研究で使用した共鳴パラメータ	130
表 4.10	フィッティングにより求められた 1 mm 厚 Ag 板の原子数密度	132
表 4.11	フィッティングにより求められた 1 mm 厚 Cu 板の原子数密度	133
表 4.12	フィッティングにより求められた各厚さの Ag 板の原子数密度	135
表 4.13	フィッティングにより求められた各厚さの Cu 板の原子数密度	135
表 4.14	BR フィルターに用いた核種と厚さ	138
表 4.15	BR によるバックグラウンド実験のビーム条件	139
表 4.16	バックグラウンド曲線のパラメータ	143
表 4.17	補正した透過率に対するフィッティングにより求められた Ag 板及び Cu 板の原子数密度	149
表 5.1	鉛フリーはんだ試料に含まれる核種組成及び面密度	152
表 5.2	フィッティングにより求めた ^{107}Ag 及び ^{118}Sn の面密度	162
表 A.1	原子数密度・温度イメージング実験における北大 LINAC の運転条件	172
表 A.2	試料内部の原子数密度	173

第1章 序論

中性子共鳴吸収分光法とは、中性子と原子核の共鳴現象を中性子の飛行時間法の利用により観測する手法である。この手法により測定された共鳴スペクトルには試料を構成する核種に関する様々な情報が含まれている。主に得られる情報として同位体の識別、原子数密度、温度が挙げられ、多くの分野における応用が期待されている。本研究では、中性子共鳴吸収分光法による原子数密度分析の定量化を目指し、解析システムの開発や実験手法の改良を行った。

本章では、研究の背景として中性子共鳴吸収分光法の有用性やその歴史、国内外の研究状況を紹介する。また、中性子共鳴吸収分光法の原理及び原子数密度分析の定量化に関する問題点を指摘し、それに対する方策をまとめ、それらを基にした研究の目的について述べる。

1.1 背景

1.1.1 中性子共鳴吸収分光法の有用性

1.1.1.1 中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS) の概要

特定のエネルギーを有する中性子が原子核に非常に強く吸収される現象を中性子共鳴吸収という。この共鳴を起こすエネルギーは核種に固有であることから、物質に含まれる元素・同位体の同定が可能である。中性子が物質を透過する確率は物質に含まれる核種の断面積と密度に対して指数関数的に減少するという一般的な性質から、核種の原子数密度¹を定量することができる。また、原子核の Doppler 効果により共鳴断面積の幅が広がる。原子核の Doppler 効果とは、原子核と中性子の相対速度（エネルギー）が原子核の熱振動により変化する現象であり、つまりは物質の温度により共鳴断面積が変化するのである。この Doppler 効果による広がりを観測することで、物質の温度測定を行うことが可能である。

以上に述べたように、中性子の共鳴現象を観測することで、同位体の同定、原子数密度の分析、温度測定を行うことができる。この中性子の共鳴現象を観測する手法が中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS : Neutron Resonance Absorption Spectroscopy) である[1-4]。N-RAS は共鳴現象の中性子エネルギー依存性をパルス中性子源における飛行時間 (TOF : Time of Flight) 法により取得する手法である。共鳴現象の中性子エネルギー依存性とは中性子断面積のことに他ならず、つまりは N-RAS における測定とは TOF 法による共鳴領域における中性子捕獲断面積の測定と同義であるといっても過言ではない。ただし、中性子捕獲断面積の測定では核データの収集が目的にあるのに対して、N-RAS

¹ 本論文では、特に断らない限り「密度」という言葉は原子の数密度を表す。

はその核データを利用して核種の情報を求め、さらにはそれをマッピングしたイメージングにまで拡張することが目的である。したがって、N-RAS と中性子捕獲断面積の測定とは求めたい情報や応用される分野が異なるということは認識しなくてはならない。

N-RAS は透過型[4]及び即発 γ 線型[1-3]の 2 つの方式に分けられる。図 1.1 に透過型 N-RAS 及び即発 γ 線型 N-RAS の概略図を示す。透過型 N-RAS は中性子透過率を測定し、透過率スペクトル中に現れる共鳴吸収及び共鳴散乱に起因した透過率の急激な減少（共鳴ディップなどと呼ぶ）を観測対象としている。一方、即発 γ 線型 N-RAS は中性子が原子核に共鳴吸収された際に放出される即発 γ 線を測定し、スペクトル中に現れる共鳴に起因したピーク（共鳴ピークなどと呼ぶ）が観測対象である。また、分野によるが、透過型 N-RAS は NRTA (Neutron Resonance Transmission Analysis)、即発 γ 線型 N-RAS は NRCA (Neutron Resonance Capture Analysis) と呼ばれる場合がある。透過型 N-RAS と即発 γ 線型 N-RAS の特長や相違点については後述する。透過型 N-RAS に 2 次元画像検出器を組み合わせる[4]か、即発 γ 線型 N-RAS をスポットスキニング法[3, 5, 6]と組み合わせることで核種や温度の分布をイメージングすることが可能である。これらも同様に NRTI (Neutron Resonance Transmission Imaging) 及び NRCI (Neutron Resonance Capture Imaging) と呼ばれることがある。

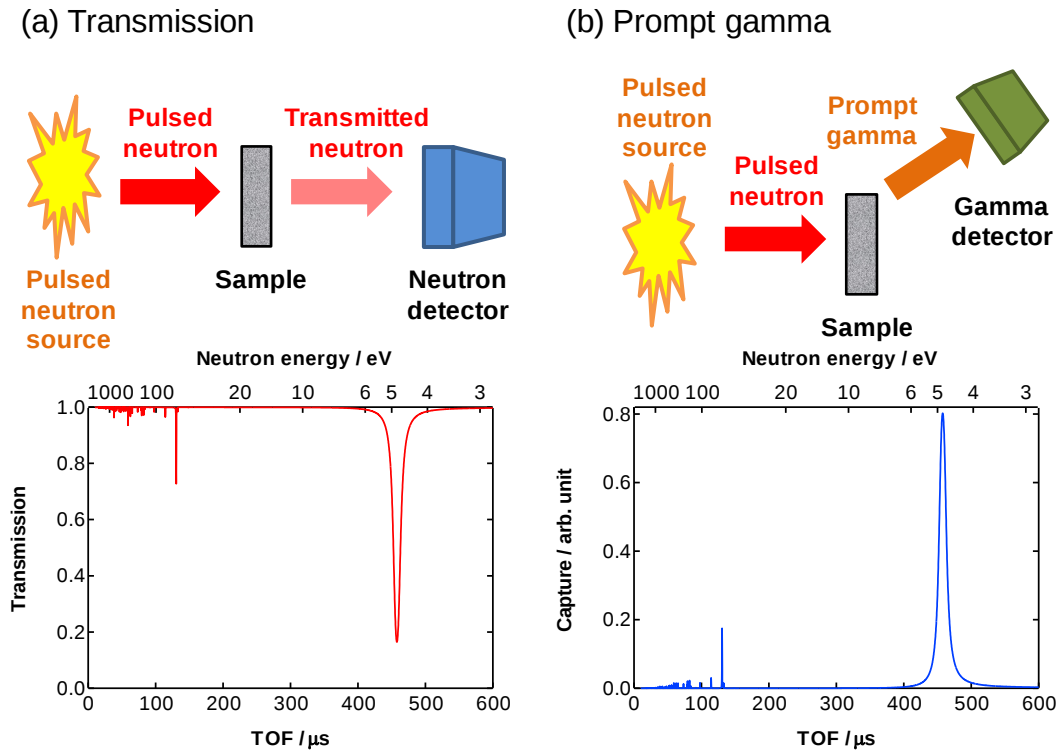


図 1.1：透過型 N-RAS 及び即発 γ 線型 N-RAS の概略図。(a) 透過型 N-RAS の測定体系及び Au の透過率スペクトルの例、(b) 即発 γ 線型 N-RAS の測定体系及び Au の共鳴吸収スペクトルの例。

N-RAS のようにパルス中性子を用いたイメージングを総称してパルス中性子イメージング (Pulsed Neutron Imaging) という[7]。パルス中性子イメージングは非破壊で物質内部の観察・分析を行うことのできる手法として、近年様々な分野から注目されている。N-RAS に関しては 1.1.2 で述べるような応用例が期待され、主に産業方面での活用が期待される。

1.1.1.2 N-RAS の特長

N-RAS には様々な特長がある。まずは、中性子そのものの特性から来る特長が考えられる。よく知られているように、中性子は電荷を持たない。そのため電子線などの荷電粒子や X 線などと比べて厚い試料を透過できる。つまり N-RAS はバルク材などボリュームがある試料の内部まで非破壊・非接触で原子数密度や温度の測定を行うことができる。また、核種やエネルギーによる共鳴断面積は数 100 barn から数 10000 barn に上る。つまり、N-RAS は非常に感度が高い測定方法であるため、中性子強度の弱い小型中性子源においても十分に測定が可能である。すなわち、N-RAS の利点としてはバルク材の内部に含まれる核種の情報を非破壊・非接触で取得可能であるということ、強度の弱い線源でも十分に適用可能なほど高感度であるということが挙げられる。

次に、透過型及び即発 γ 線型 N-RAS それぞれの特長について述べる。まず、透過型 N-RAS は即発 γ 線型 N-RAS に比べてイメージングに適している。透過型の場合には 2 次元検出器を用いることで、一挙にイメージング画像を取得することが可能である。一方で、即発 γ 線型の場合は反応箇所から全立体角に放出される即発 γ 線を検出するため 2 次元画像検出器で一挙にイメージング画像を取得することはできない。そのため、スリットなどを用いてスポット状の中性子ビームを試料に照射し、スキヤニングする必要がある。例えば、即発 γ 線型 N-RAS を用いて 1 mm 角の位置分解能で 100 mm 角の範囲のイメージングを行うには 100×100 回の測定が必要である。透過型 N-RAS ではその要求を満たす 2 次元検出器を用意できれば測定は 1 回で済む。つまり、透過型の方が効率的にイメージングを行うことができる。一方で、即発 γ 線型 N-RAS の利点としてはバックグラウンド補正が容易であるということが挙げられる。即発 γ 線型におけるバックグラウンドとして考えられるのは、試料由来でない γ 線、実験室内の散乱中性子、検出器・データ収集系の電気ノイズである。これらのバックグラウンドは適切な遮蔽を行った上で試料が無い状態での測定を行うことで評価でき、試料有りのデータからこれを差し引くことで補正を行うことができる²。これに対し、透過型の場合には、試料からの即発 γ 線や散乱中性子がバックグラウンドとして加わる。 γ 線については適切な検出器の選択や設定によってほぼ無視できるレベルまで低減することは可能であるが、散乱中性子は真

² 厳密にはバックグラウンド評価のためには試料有り無しそれぞれの測定に対してブラックレゾナンスによる更なる補正を加える必要がある。そのため、ここで述べているのは核データ測定のような厳密な測定を除いた話である。

の信号である透過中性子との区別が困難である。そのため、1.3 節で述べる手法を用いてこれを評価する。バックグラウンドの補正が容易であることから、即発 γ 線型 N-RASの方が定量化に向いているといえる。ただし、中性子束や検出器の検出効率といったデータが核種量の絶対値化に不可欠であるため、バックグラウンドの補正という点を除けば透過型の方が有利であると言える。

1.1.2 N-RAS の応用例

ここでは N-RAS 及び N-RAS を利用したイメージングの応用例について述べる。先にも述べたように、N-RAS を用いることで核種の同定や密度分析、温度測定を行うことが可能であり、近年実際に行われたものや将来的に期待されている応用例についてまとめる。

1.1.2.1 核種の同定及び密度分析

共鳴を起こすエネルギーは核種によって固有であることから、共鳴ピーク及び共鳴ディップは試料に何の核種が含まれているかということを指し示していることになる。それぞれの共鳴ピーク/ディップを解析することで、どの核種がどの割合で試料に含まれているのか求めることが可能である。

(a) 考古学・文化財

考古学資料に含まれる元素を調べることは、対象となる資料の作製された年代を特定したり、製造方法や過程を推定したりすることができるため、非常に重要な調査である。通常、考古学資料もしくは文化財と呼ばれるようなものは非破壊で調査を行う必要がある。中性子は高い透過性を能有するためバルク材でも測定が可能であり、N-RAS は考古学資料や文化財に含まれる元素の分析やイメージングに非常に有用である。

(b) 核燃料物質

2011 年の福島第一原子力発電所の事故やそれ以前の 1979 年におきたスリー・マイル・アイランド原子力発電所の事故では冷却材喪失により炉心溶融が起り、燃料デブリが生じている。燃料デブリには核燃料物質であるウランやプルトニウムなどが含まれているため、計量管理の対象となる。したがって、燃料デブリの回収・管理に当たっては内部に含まれている核燃料物質の特定及び定量を行う必要が生じてくる。燃料デブリには核燃料物質だけではなく、燃料集合体や制御棒、原子炉を構成する様々な物質が混ざり合った状態であり、それぞれを分離して計量することは不可能であると考えられる。また、核分裂生成物から γ 線が生じるために、作業者の安全を考えると非接触での測定を行わなくてはならない。ウランやプルトニウムの同位体は共鳴核種であるために、N-RAS での計量が可能であり、かつ、非接触での測定が可能である。

(c) 均一性

合金の機能を担保するために、その組成比や均一性を調べる必要がある。N-RAS を用いた原子数密度イメージングを行うことで、合金に含まれる特定の核種分布の均一性を調べる事が可能である。特に、対象となる核種量が少量であるためにエネルギー分散型 X 線分析などでは測定が困難な場合では、断面積の大きな共鳴を利用した N-RAS による元素分布イメージングが有用となる。また、合金の表面のみではなく、合金内部の原子数密度測定が可能である。

(d) 時間的な変動がある現象

試料の中に含まれる核種の密度が時間的に変化をしている様子を観察することが重要な場面がある。時間的に濃度が変化する現象として最も代表的なのは拡散現象であろう。拡散は原子が濃度の高い場所から低い場所に移動する現象であり、日常生活以外にも多くの場面で見られる現象である。例えば、原子力発電所で使用された放射性廃棄物の地層処分では、放射性物質を封じ込めている容器へ放射性核種が拡散することが予想される。このような拡散挙動を調査することは放射性物質の環境への放出を避けるためにも非常に重要な研究となってくる。N-RAS では観察対象となる核種が他の物質の中に存在していても測定が可能であり、また断面積が大きいいため短時間で効率的な測定が可能であることからこのような拡散現象を観察するのには非常に有効である。

1.1.2.2 温度測定

共鳴断面積は原子の熱振動に起因する Doppler 効果により幅が変化する。その幅の変化を分析することで試料の温度を非破壊・非接触で測定することが可能となる。

(a) 触媒

触媒は特定の化学反応の反応速度を増加させる物質であり、自動車の排気ガスの浄化などにも使用されている。触媒を機能させるためには温度管理が必要であり、使用中の触媒の温度を測定することは非常に重要である。N-RAS は動作状態の製品に対する非接触の温度イメージングを成し得る可能性を有しており、触媒そのものやその周りの構造物の温度分布を測定することが可能であると考えられる。

(b) モーター内部の磁石

モーターには磁石が使われているが、磁石は温度が変化するとその磁気特性が変化する。モーターの使用状況によっては磁石の周囲の環境が高温になることも考えられ、使用時の温度分布を調べることは非常に重要である。近年では、電気自動車の登場により、より高性能なモーターの開発が不可欠となり、磁石の温度測定の需要は多くなると考え

られる。N-RAS では磁石に添加されるネオジムやジスプロシウムなどの元素を利用した温度測定が可能であると考えられる。

1.1.3 他手法との比較

原子数密度分析及び温度測定を行う場合、N-RAS には他の手法と比較して優れた点が多い。ここでは、他手法との比較についてまとめ、N-RAS による原子数密度分析及び温度測定の優位性について述べる。

1.1.3.1 原子数密度分析

試料中に含まれる特定核種の存在量を非破壊で調べる方法はいくつか存在する。

X 線を入射粒子として元素同定・定量を行う方法としては、特性 X 線を利用するエネルギー分散型蛍光 X 線分析 (ED-XRF : Energy Dispersive X-ray Fluorescence) や放出された光電子を利用する X 線光電子分光分析 (XPS : X-ray Photoelectron Spectroscopy) がある。ED-XRF では線源として放射光を用いれば 1 at% から ppm オーダーの微量成分まで広い範囲で分析が可能である。一方で XPS では主成分から 0.1 at% 程度までの成分の分析が可能である。これらの手法を用いてイメージングを行う場合、数 μm 径の入射ビームを走査する必要があるため、大面積のイメージングには適さないという問題点がある。また、ED-XRF では試料からの特性 X 線を利用するため、試料の比較的深部までの測定が可能であるが、XPS の場合には試料から放出された光電子を利用するため試料表面の測定しか行うことはできない。

X 線ではなく陽子などの荷電粒子を利用する方法として有名なものに粒子線誘起 X 線分析 (PIXE : Particle Induced X-ray Emission) がある。PIXE は ED-XRF と同様に試料からの特性 X 線を測定して元素分析を行う手法であり、数 ppm までの微量分析が可能である。この手法も同様に大面積のイメージングは適さず、厚い試料に対しては表面のみの分析を行うことができる。

測定プローブとして X 線や荷電粒子ではなく、中性子を利用する手法として中性子放射化分析 (NAA : Neutron Activation Analysis) と即発 γ 線分析 (PGA : Prompt Gamma-ray Analysis) がある。NAA では、原子炉や加速器中性子源を利用して試料に中性子ビームを照射することで試料を放射化し、その後放射能を測定することで元素分析を行う。NAA は分析感度が極めて高く、ppb ~ ppm での微量分析が可能である。NAA のこの手法では試料からの γ 線を測定するため、核種分布のイメージングはほぼ不可能である。また、PGA は試料に中性子ビームを照射しながら即発 γ 線を測定し、元素分析を行う手法である。PGA では、NAA に比べると感度が劣る元素が多いが、NAA では分析が困難な元素の分析が可能である。PGA を用いれば即発 γ 線型 N-RAS と同様にスリットを用いたイメージングが可能である[8]が、中性子のエネルギースペクトルを測定しているわけではないので Doppler 広がりを利用した温度測定を行うことはできない。NAA

及びPGAは透過力の高い中性子を用いるため、プローブとしてX線や荷電粒子を用いる手法と異なりバルク材に対する分析が可能である。

N-RASでは中性子の高い透過能力を活かして数cmの厚さを有するバルク材の原子数密度分析が非破壊で可能である。ただし、NAAやPGAといった手法に比べて分析可能な検出限度はそれほど低くはなく、核種や条件によるが0.1 at%程度である。一方で、2次元画像検出器を用いて透過型N-RAS測定を行うことでバルク材内部の元素分布イメージングを容易に効率的に行うことが可能であり、CT (Computed Tomography) 画像の取得も可能である。

以上、原子数密度分析に用いられる手法について述べた。これをまとめたものを表1.1に示す。このように、原子数密度分析手法としてのN-RASの優位性は、非破壊・非接触でバルク材の内部を分析可能であり、透過型N-RASの場合にはイメージングへ応用ができるという点にある。

表 1.1：原子数密度分析に用いられる手法のまとめ。

入射放射線	X 線		荷電粒子		中性子	
手法	ED-XRF	XPS	PIXE	NAA	PGA	N-RAS
検出感度限度	ppm	0.1 at%	ppm	ppb	ppb	0.1 at%
検出深さ	10 μm	nm	10 μm	cm	cm	cm
大面積イメージング	×	×	×	×	△	○

1.1.3.2 温度測定

温度測定方法として一般的な手法は、熱電対などの接触型のプローブを用いる方法である。この手法の弱点としては、点測定しか行うことができない、接触して測定することで試料の平衡状態を乱す可能性がある、プローブの融点以上の温度の測定は不可能である、試料内部の温度分布を非破壊で測定できないといったことが挙げられる。熱電対以外の接触型の温度プローブとしては、古い体温計に使われていたような液体の熱膨張を利用したものや電気抵抗の温度依存性を利用したもの、温度に依存して色が変化するサーモシールなどがあるが、何れも同様の弱点を有している。

非接触で温度測定を行う方法としては、サーモグラフィー (thermography) がある。物体から放出される赤外線量は温度と共に増加するため、これを分析して温度測定・イメージングを行う手法である。サーモグラフィーは物体表面の温度イメージングに対しては非常に優れた手法といえるが、物体の内部の温度分布情報を得ることはできない。また、赤外線放出が少なくなるために低温の測定には不向きである。

N-RASでは非破壊・非接触で温度測定が可能である。また、原子数密度分析の場合と同様に2次元画像検出器と組み合わせれば、温度イメージングを効率的に行うことが

できる。このように、非破壊・非接触で物質内部の温度分布測定が可能なのは現時点では N-RAS のみであるといっても過言ではない。

1.1.4 N-RAS に関する研究の歴史

ここでは、N-RAS の前提となる核データに関する研究及びこれまでに行われてきた N-RAS を利用した密度分析及び温度測定の歴史について概観し、N-RAS に利用された施設・装置の説明と共に本研究に至るまでの流れを示す。

1.1.4.1 核データ研究

中性子の共鳴現象は原子炉の炉物理において非常に重要な要素であり、古くから研究が行われてきた。原子炉の設計においては中性子断面積が必要不可欠であるが、中性子断面積（共鳴断面積も含めて）は理論的に求めることが難しいために実験で求められている。測定された共鳴断面積をパラメータ化したものを共鳴パラメータという。具体的には、第2章で説明する共鳴幅やスピンなどの情報を共鳴パラメータという。また、この共鳴パラメータ及び他の中性子断面積に関するデータが格納されたものを核データ³という。様々な施設で測定された核データを評価しデータベース化する試みは 1960 年代の終わりにイギリス、西ドイツ、アメリカにおいて行われ、各国の「評価済み核データライブラリ」が順次公開されていった[9]。日本においては 1970 年代に独自の評価済み核データライブラリ JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) が作成・公開された[9]。現在では、JENDL の最新版である JENDL-4.0[10]をはじめとしてアメリカの ENDF/B (Evaluated Nuclear Data File Version B) [11]、ヨーロッパの JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion File) [12]など様々な国・地域における評価済み核データライブラリが公開されている。N-RAS ではこれらの評価済み核データライブラリに格納されている共鳴パラメータを利用しており、核データ研究の積み重ねの上に成り立つものである。

1.1.4.2 核燃料物質の定量化

先に述べた通り、炉物理における重要性から原子炉の登場以降核データ測定は行われ続けてきたが、共鳴現象の応用として初めに考えられたのは使用済み核燃料などに含まれる U や Pu などの核燃料物質 (SNM : Special Nuclear Material) の定量化である。この分野においては NRD (Neutron Resonance Densitometry) と呼ばれることが多い。1970 年代以降、使用前後の核燃料に含まれる SNM を非破壊で求めるため、透過法に基づく NRD を行った例がいくつか見られる (Priesmeyer ら[13]、Behrens[14]など)。これらの研究は原子炉（定常ビームをチョッパーでパルス化したもの）や電子線形加速器によるパルス中性子源によって行われていたが、現在ではこれらの装置・施設において NRD

³ 中性子以外の放射線の反応断面積に関するデータも核データと呼ぶが、ここでは狭義的に中性子の反応断面積に関するデータを核データと呼ぶ。

は行われていない。

1.1.4.3 ISIS における温度測定

ISIS はイギリスの Rutherford Appleton 研究所 (RAL) にある核破砕パルス中性子実験施設である。現在、ISIS の第 1 ターゲットステーション (TS-1) では W ターゲットに 800 MeV 陽子を照射して核破砕反応を起こし、パルス中性子を発生させている。減速材には軽水、固体メタン及び液体水素が用いられており、18 本の中性子ビームラインを備えている。ISIS における共鳴を利用した温度測定は TS-1 の粉末回折装置 PEARL[15] や粉末回折や検出器テストに利用される INES (Italian Neutron Experimental Station) [16] が利用されている。

共鳴現象の温度測定への応用を最初に行ったのはイギリスの Fowler や Taylor らのグループである[17]。彼らは 1984 年に (当時はイギリスに適切な中性子源が存在しなかったため) アメリカの Los Alamos 国立研究所において、Ta 箔や W、Ta、Hf を含む Ni 合金に対して中性子透過測定を行い、温度測定の実証実験を行った。この共鳴を利用した最初期の温度測定の手法は、標準温度 (低温) における中性子透過率と調べたい温度 (高温) における中性子透過率の比をとり、その比の変化から温度を求めるというものである。同じ手法によって後に Frost らも ISIS において Sm 及び Pt を利用した触媒の温度測定を行っている[18]。図 1.2 に触媒を透過した中性子のスペクトルにおける Sm の 0.34 eV 共鳴を示す。異なる温度におけるスペクトルの比をとり、温度に対して比のピークをプロットすることで検量曲線を作成し、温度を求める。この手法では測定対象の核種の共鳴パラメータが未知でも解析を行うことが可能であるが、一方で測定対象の温度をコントロールして検量曲線を作成しなければならないという欠点がある。

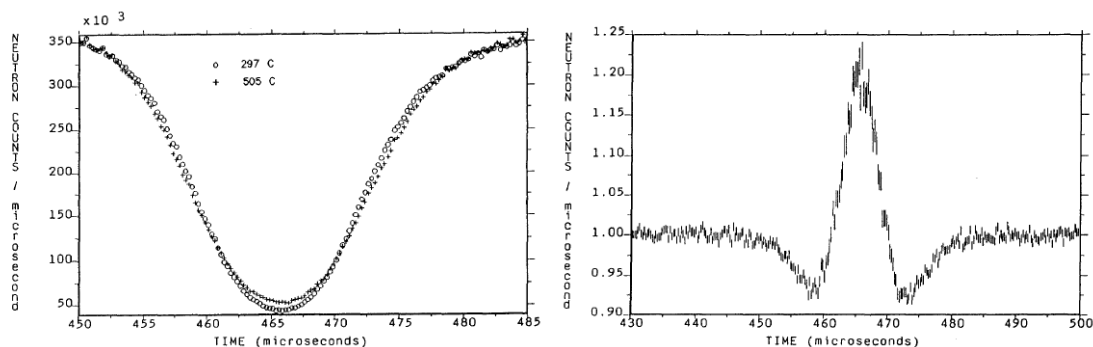


図 1.2: 触媒を透過した中性子のスペクトルにおける Sm の 0.34 eV 共鳴[18]。左図は 297 °C におけるスペクトルと 505 °C におけるスペクトルを示しており、右図はそれらのスペクトルの比を示している。

ISIS ではその後、2005 年に Stone らがスペクトルフィッティングに基づく温度測定を行っている[15, 19]。これらの温度測定における研究においては、イメージングが最終目的ではあるものの、行われていたのは 0 次元測定のみである。

1.1.4.4 KENS における原子ダイナミクス測定

KEK がかつて有していた中性子科学研究施設 KENS において、核破砕によるパルス中性子を利用した様々な中性子散乱実験が行われていた。KENS では 12 GeV 陽子加速器のブースターを利用して加速した 500 MeV 陽子を Ta ターゲットに照射し、核破砕反応によりパルス中性子を生成していた。軽水減速材及び固体メタン減速材が用いられており、N-RAS に用いられた装置である DOG は軽水減速材を見込む形になっていた。なお、KENS は 2006 年にシャットダウンしている。

1988 年に KENS において、Ikeda らによる eV 中性子を利用した中性子散乱・吸収による超伝導物質の原子ダイナミクス測定が行われた[20]。これらの内、中性子吸収を利用したものは本論文で言う即発 γ 線型 N-RAS である。その後、Kaneko らによりイオン伝導体 AgI の Ag イオンの Debye 温度測定や[1]や Tokuda らによる層状化合物 TaS₂ の実効温度測定[2]などが行われている（N-RAS という言葉が使われ始めたのはこの時期からである）。これらの研究は試料の実温度の測定が目的ではなく、原子のダイナミクスを測定するということが目的である。

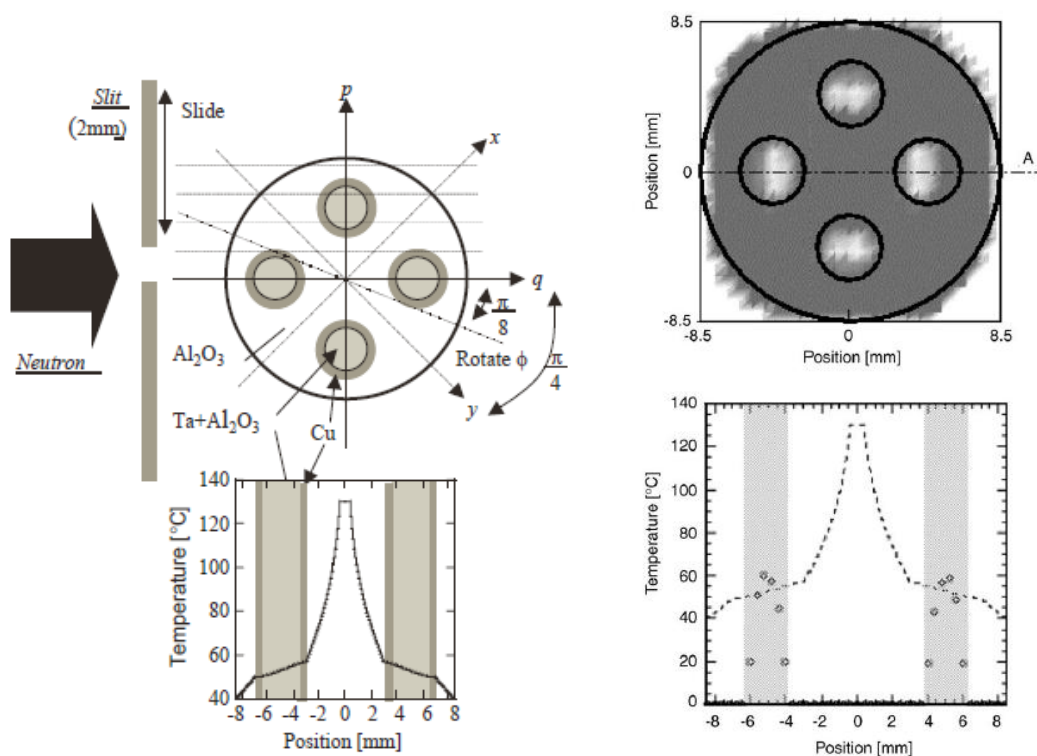


図 1.3 : N-RAS/CT の概略図 (左) と Ta による温度の CT 画像 (右) [3]。

KENS においてはその後、試料内部の温度分布を測定するために、即発 γ 線型 N-RAS と CT を組み合わせた N-RAS/CT が開発され、N-RAS/CT による Ta の共鳴ピークを利用した円筒サンプル内温度分布のイメージング[3, 5, 6]が行われている。例として、図 1.3 に N-RAS/CT の概略図と Ta を利用した温度の CT 画像を示す。Ta の存在する領域における温度を定量化できている。これにより、即発 γ 線型 N-RAS を用いることで試料内部の温度分布の定量化が可能となった。

1.1.4.5 GELINA における研究

欧州共同体 EC の共同研究センター JRC (Joint Research Center) に設置されている研究機関の 1 つであるベルギーの標準物質・計量研究所 IRMM (Institute for Reference Materials and Measurements) には GELINA (Geel Electron LINear Accelerator Facility) [21] と呼ばれるパルス中性子源がある。GELINA では電子線加速器を用いてパルス中性子を発生させており、主に核データ測定に利用されている。中性子発生ターゲットは U-Mo 合金であり、中性子の減速を防ぐため液体 Hg を容器内に流すことで冷却を行っている。さらにターゲットを回転させることで制動放射により発熱している箇所が常に変わるようにしている。減速材には軽水を用いている。GELINA の中性子源はターゲットと減速材のみで構成されている。そのため、ビームラインからみてターゲットを遮蔽材で隠せば減速された中性子スペクトルを得ることができ、逆に減速材を隠せばターゲットから直接飛んでくる高エネルギーの中性子を利用できる。GELINA には図 1.4 に示すように複数の中性子ビームラインがあり、計 12 通りの飛行距離を選択することができる。最大の飛行距離は 400 m であり、高分解能での中性子捕獲断面積測定が可能となっている。また、GELINA のユニークな点として、繰り返し周波数 800 Hz での加速器の運転が挙げられる。TOF 施設では通常幅広いエネルギー（波長）領域の中性子を利用するために、フレームオーバーラップの問題から大抵は数 10 Hz で加速器が運転されている。一方で、GELINA では低エネルギー（長波長）領域の中性子は利用しないため、フィルターを用いてオーバーラップしている中性子を消すことで 800 Hz での運転を可能にしている。これにより、時間当たりの中性子強度を稼ぐことができる。

GELINA では、2000 年代以降現在に至るまで SNM に対する NRD（例えば、Becker ら[22]など）や中性子を用いた考古学資料や文化財（Cultural heritage）の非破壊元素分析・イメージングに関するプロジェクトである ANCIENT CHARM (Analysis by Neutron Resonant Capture Imaging and other Emerging Neutron Techniques: new Cultural Heritage and Archaeological Research Methods) に関する研究が行われている。ANCHIENT CHARM プロジェクトの一環としてベルギーで出土した剣や斧といった考古学資料に含まれる金属の組成比の決定などを行っている[23, 24]。また、ISIS において NRTI を行うための位置敏感型 Li グラスシンチレーション検出器の開発[25]やそれを用いた NRTA による原子数密度分析[26]も行われている。

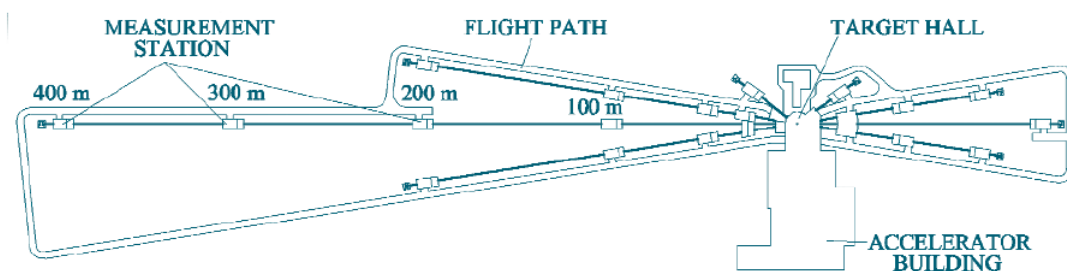


図 1.4 : GELINA の中性子ビームライン[21]。

1.1.4.6 北海道大学における研究

北海道大学の有する電子線形加速器施設（通称北大 LINAC）では N-RAS を始めとする様々な中性子実験が行われている。北大 LINAC では 45 MeV 電子線形加速器によりパルス状の電子線を発生し、鉛ターゲットに照射することで光核反応により中性子を発生させる。この時の電子の加速エネルギーは電流値を最大にするため 33 MeV 程度が用いられる。電子線は偏向磁石によって RIGHT、CENTER、LEFT という 3 つのラインへ振り分けることができる。パルス中性子イメージングに用いられるのはそのうち RIGHT と CENTER の 2 本である。RIGHT ビームラインには固体メタン減速材が設置されており、パルス冷中性子を利用することができる。もう 1 つの CENTER ビームラインでは、現在は常温のポリエチレン減速材が設置されており、パルス熱中性子を利用することができる。また、TMRA（Target Moderator Reflector Assembly）を載せているステージを操作することで X 線発生装置と切り替えることが可能である。N-RAS に用いるのは熱中性子強度が高い CENTER ビームラインである。なお、2013 年度までは CENTER ビームラインでは異なる TMRA を用いて N-RAS 実験を行っていた。これについては第 3 章で説明する。これら RIGHT 及び LEFT に設置された中性子源を総称して HUNS（Hokkaido University Neutron Source）と呼ぶ。

熱中性子源を見込むビームライン上には TMRA から約 13 m の位置に N-RAS 用の分光システムが設置されている（図 1.5）。この分光システムは即発 γ 線型 N-RAS によるトモグラフィーを行うためのシステムとして設計されたものである。検出器としては BaF_2 シンチレーション検出器を用いており、統計精度を高めるために図 1.5 に示すような試料を大きな立体角で見る配置をとっている。検出器群の中心部に試料用の CT ステージが設置できるようになっている。また、フラッシュガンマと呼ばれるターゲットに荷電粒子が衝突した際に発生する高エネルギーの γ 線やその他様々な要因で発生する γ 線及び散乱中性子などが検出器に当たってバックグラウンドとなることを避けるために、分光システムの周りにはホウ酸レジン及び鉄、鉛遮蔽材で覆われている。また、中性子ビームライン上の遮蔽の間もしくは後方に中性子検出器を置くことで透過型 N-RAS 測定も可能である。

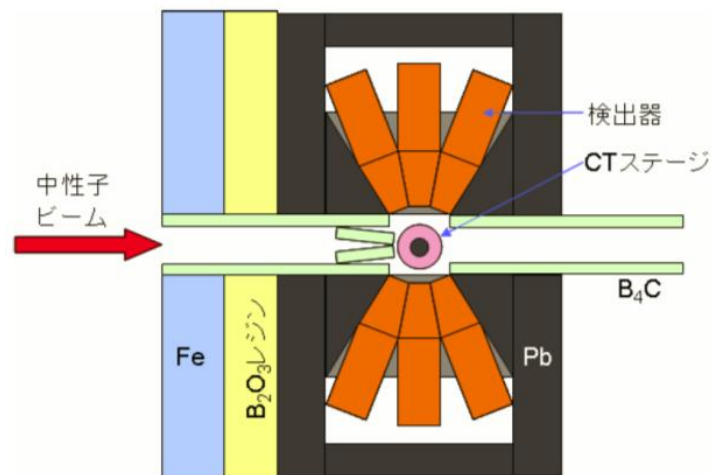
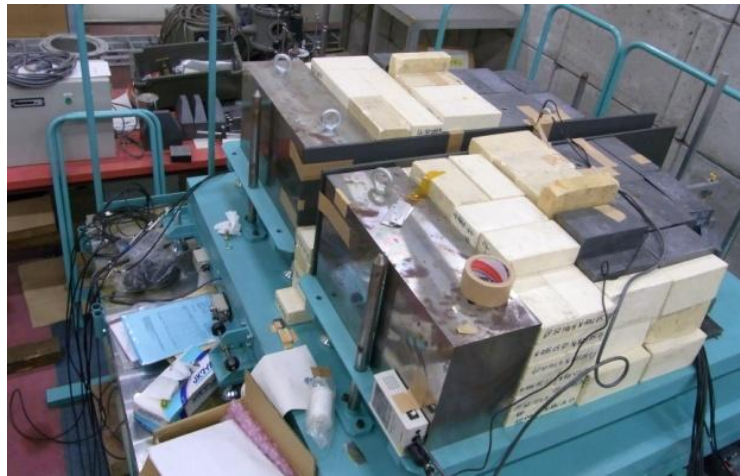


図 1.5 : HUNS の N-RAS 用分光システムの写真（上）とイラスト[27]（下）。

KENS における成果によって、即発 γ 線型 N-RAS により原子のダイナミクス測定や温度イメージングが可能となった。北海道大学においても N-RAS/CT に関する研究が継続して行われていた[27]。しかし、先に述べたように透過型 N-RAS の方が効率的にイメージングを実施することが可能である。また、2000 年代には中性子イメージングに利用可能な中性子 2 次元画像検出器[28]が開発されたこともあり、Sato らは北海道大学の HUNS において透過型 N-RAS による密度・温度イメージング手法の開発を行った[4]。図 1.6 に透過型 N-RAS による CT イメージングの概略図と密度・温度の CT 画像を示す。この結果は、即発 γ 線型 N-RAS の解析用に開発されたコードを流用し、スペクトルフィッティングに基づく解析によって求められている。しかしながら、試料内部の温度分布は定量的にイメージングできているものの、原子数密度は過小評価されてしまうという結果となっている。

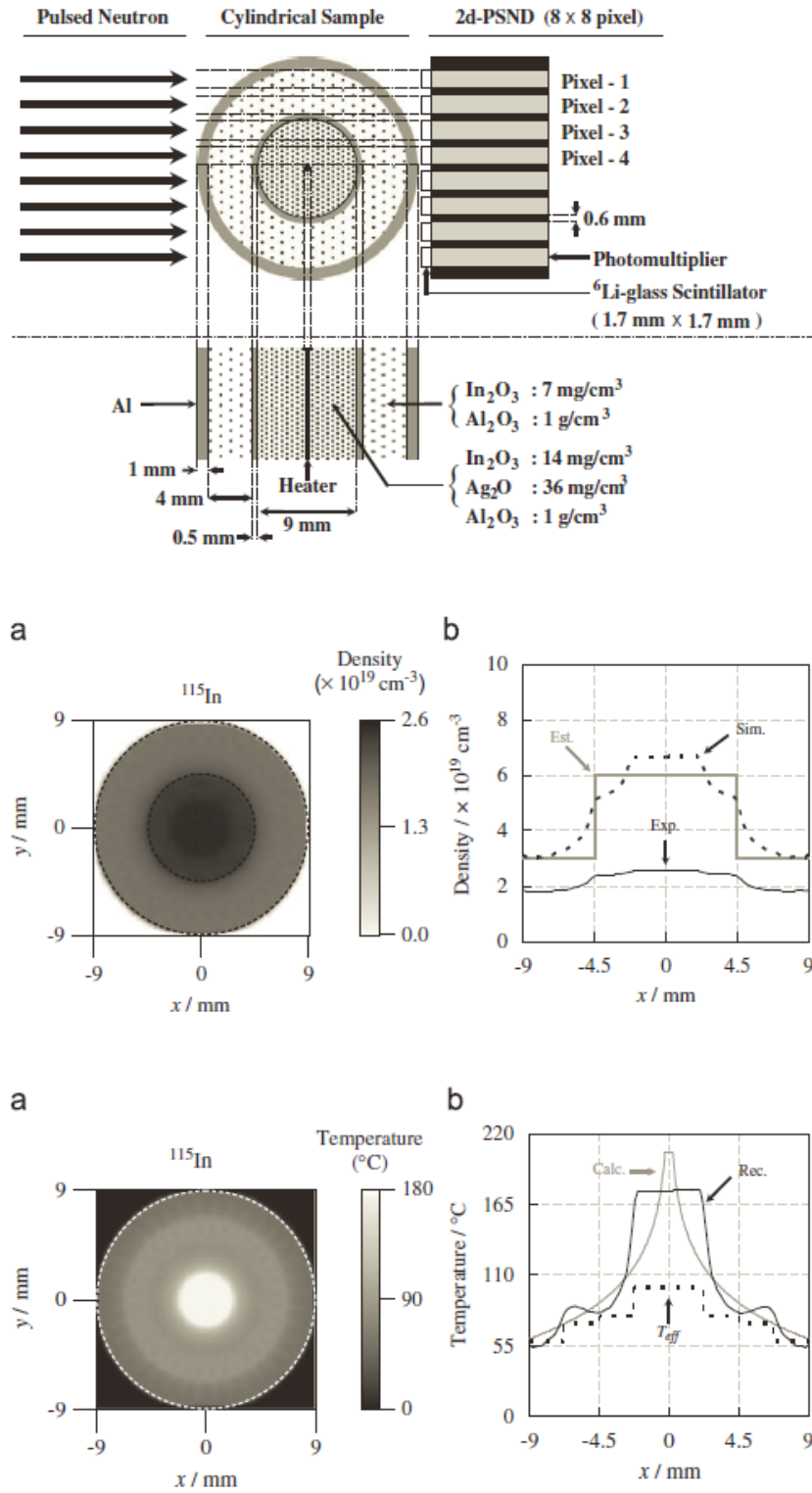


図 1.6 : 透過型 N-RAS による CT イメージングの概略図 (上) と In の原子数密度分布 (中) 及び温度分布 (下) [4]。

1.1.4.7 大強度陽子加速器施設 J-PARC における研究

大強度陽子加速器施設 J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) は日本原子力研究開発機構 JAEA (Japan Atomic Energy Agency) と高エネルギー加速器研究機構 KEK が共同で建設した、茨城県東海村にある実験施設群のことである。J-PARC には様々な実験施設が存在するが、その内の物質・生命科学実験施設 MLF (Material and Life Science Experimental Facility) では、加速器からのパルス陽子ビームを用いて中性子及びミュオンを発生させて、文字通り物質科学や生命科学に関する実験・研究に利用している。この中性子源は核破砕中性子源であり、JSNS (Japan Spallation Neutron Source) と呼ばれる。JSNS の詳細については第3章で説明する。MLF には 23 本の中性子ビームライン (BL) があり、目的に応じて使い分けられている。そのうちの BL04 と BL10、または 2014 年 11 月にコミッショニングを開始した BL22 が共鳴測定に用いられる。J-PARC/MLF ではこれまで N-RAS に関する実験・研究は主に BL10 において行われてきた。BL10 には中性子源特性試験装置 NOBORU (NeutrOn Beam-line for Observation and Research Use) [29, 30] が設置されている。図 1.7 に NOBORU の概略図を示す。NOBORU はその名の通り、JSNS の中性子源から供給される中性子ビームの特性を調べるための装置である。BL04 では中性子核反応測定装置 ANNRI (Accurate Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument) [31] という装置が運用されている。これは革新的な原子炉開発や宇宙核物理の研究に重要な放射性核種の中性子捕獲断面積を TOF 法によって測定を行う装置である。微量分析に用いることも可能であるが、基本的には核データ測定 (断面積測定) のために使用されている。新しい装置である BL22 の物質情報 3 次元可視化装置 RADEN は中性子イメージング専用の装置である[32]。図 1.8 に RADEN の構想段階のビームライン構成を示す。ここでいう中性子イメージングはパルス中性子イメージングのみならず従来の定常的な中性子ラジオグラフィをも含む。RADEN では 2015 年度からの供用利用を目指し、2014 年 11 月からコミッショニングが開始された。

このうち、NOBORU は広い実験室空間を有するために検出器やビーム制御機器など様々な機器を持ち込んでフレキシブルに実験を行うことが可能である。そのため、N-RAS を含めたパルス中性子イメージング手法の開発にも用いられてきた。NOBORU において行われてきた N-RAS に関する研究の例として、JSNS に用いられている AIC (Au-In-Cd) デカップラーの元素分布イメージング[33]、ハイスピードカメラ[34]や MCP 検出器[35]など高空間分解能の新しいタイプの 2 次元検出器を用いた共鳴核種イメージングなどが挙げられる。

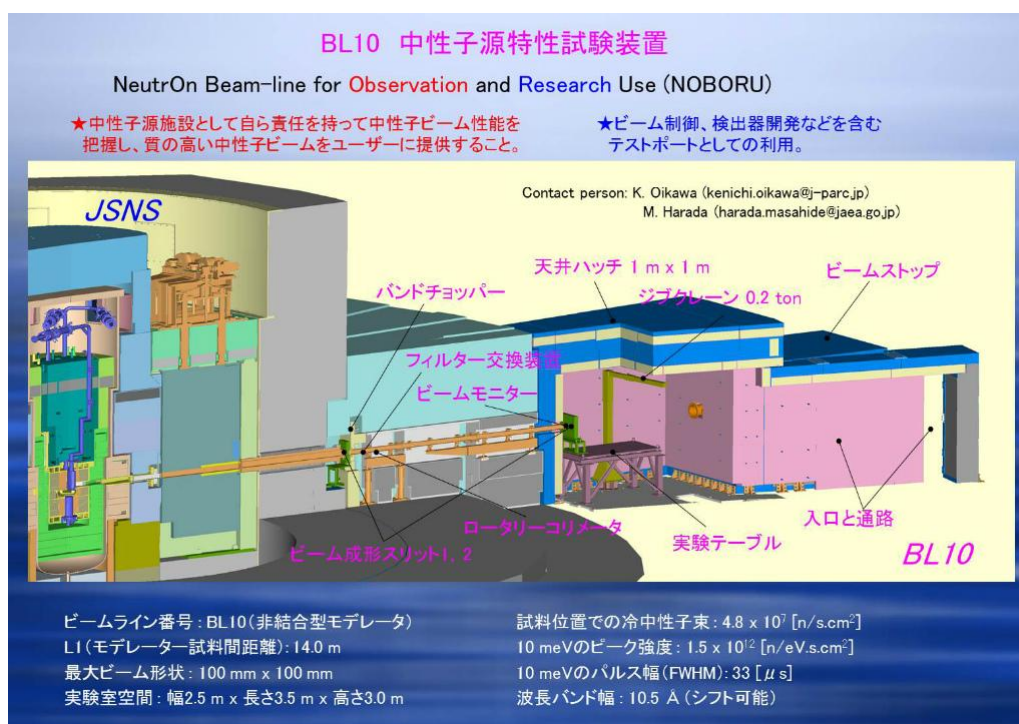


図 1.7 : J-PARC/MLF/BL10 NOBORU の概略図 (J-PARC の HP より)。

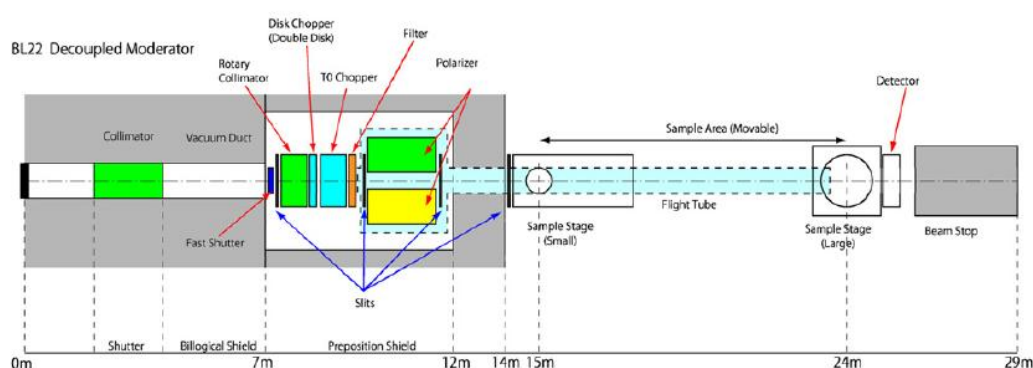


図 1.8 : J-PARC/MLF/BL22 RADEN の構想段階のビームライン構成[32]。

1.1.4.8 近年の動向

京都大学原子炉実験所 KURRI (Kyoto University Research Reactor Institute) には北大 LINAC と同様に電子線形加速器 KURRI-LINAC が設置されている。KURRI-LINAC には中性子発生ターゲットが設置されており、TOF 法を用いた中性子捕獲断面積測定などが行われている。図 1.9 に KURRI-LINAC の中性子源及び 12 m 測定室へ向かうビームラインの図を示す。ターゲットは Ta で HUNS と同様に 30 MeV 程度の電子線を照射し、光核反応によって中性子を発生させる。また、減速材は軽水である。図 1.9 に示しているビームラインは 12 m 先にある測定室へ向かうものを示しており、電子ビームとのなす角が 45°となっている。また、電子ビームとのなす角が 90°となっているビームライ

ンもあり、その先 22 m 先に測定室がある[36]。KURRI-LINAC では中性子捕獲断面積測定に加えて、近年では使用済み核燃料や燃料溶融物に対する Self-indication 法を利用した核種定量分析技術の開発を行っている[37]。

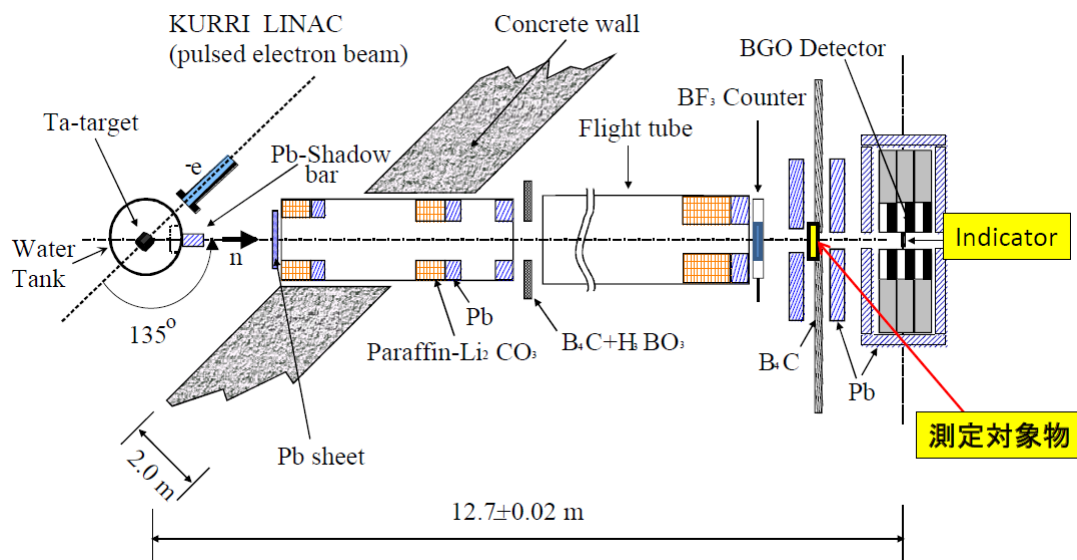


図 1.9 : KURRI-LINAC の中性子源と 12 m 測定室へ向かうビームライン[37]。このビームライン構成は Self-indication 法による測定における場合のものである。

また、ISIS の INES においては、GELINA における成果を基にして考古学資料に対する N-RAS イメージングへの応用が試みられ始めている。即発 γ 線型 N-RAS イメージングに関しては測定用の検出器バンクの開発段階であるが[38]、透過型 N-RAS についてはいくつかの測定が行われている。例えば、装飾品やレリーフの元素分布イメージングが行われている（図 1.10 及び図 1.11）[39]。ただし、現在までに INES において行われた N-RAS イメージングは、透過測定により作成した検量曲線により核種量をマッピングしたものであり、スペクトルフィッティングを用いた精密な解析によるイメージングは未だに行われていない。

第1章 序論

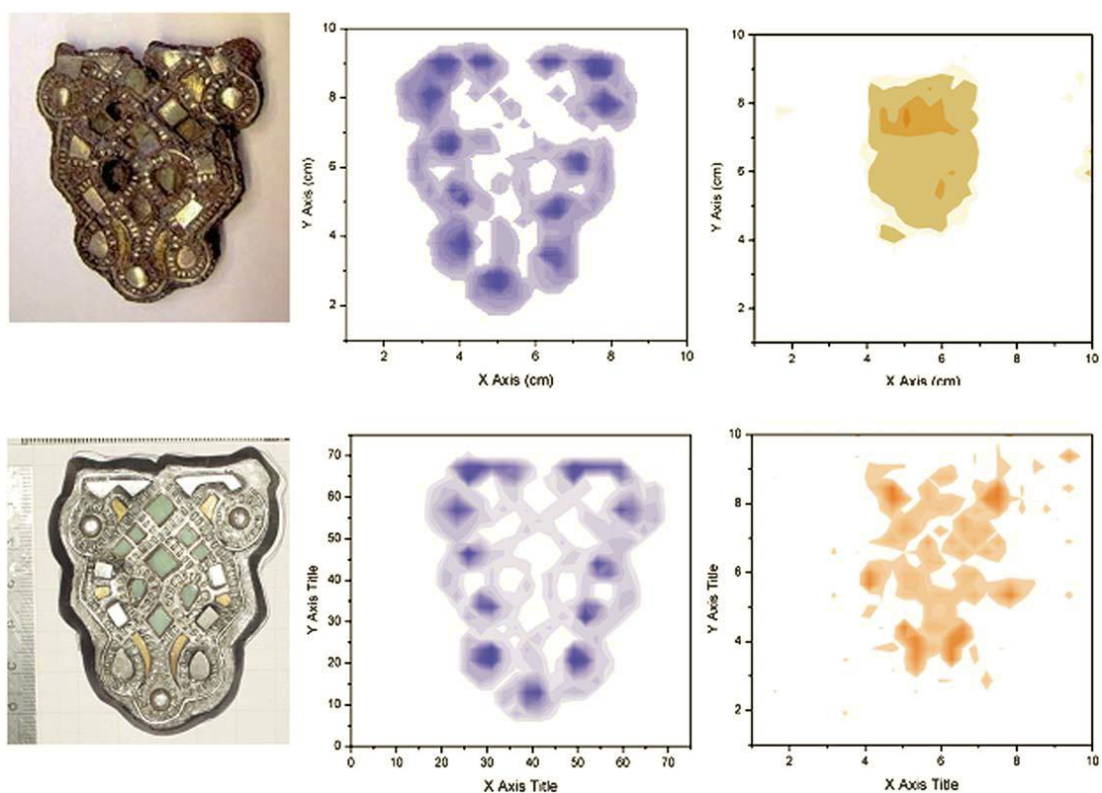


図 1.10 : INES において測定された belt mount に含まれる核種のイメージ [39]。左は belt mount の写真、中央は Ag の分布、右は Cu の分布である。上は実物で、下はそれを模したレプリカである。

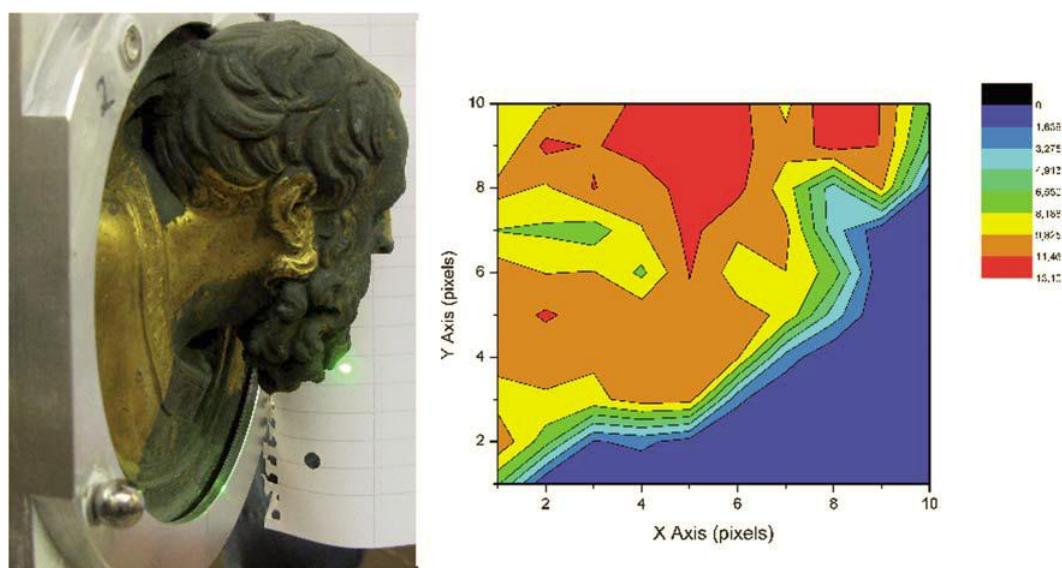


図 1.11 : INES において測定されたレリーフに含まれる Au のイメージ [39]。

1.2 N-RAS の原理

ここでは N-RAS の原理について説明を行う。透過型 N-RAS 及び即発 γ 線型 N-RAS に関する基本式を示した後、共鳴ディップ及び共鳴ピークの解析による核種同定、原子数密度分析、温度測定について説明する。

1.2.1 基本式[40]

面密度 d [atoms/barn] (1 barn = 10^{-24} cm²)、全断面積 $\bar{\sigma}(E)$ [barn] を持つ試料を、エネルギー E を有する中性子が透過する確率 (透過率 $T_{th}(E)$) は次のように表される。

$$T_{th}(E) = \exp[-\bar{\sigma}(E) \cdot d] \quad (1-1)$$

一方で、共鳴吸収量 (Capture yield) $Y_{th}(E)$ は次のように表される。

$$Y_{th}(E) = [1 - \exp(-\bar{\sigma}(E) \cdot d)] \frac{\bar{\sigma}_\gamma(E)}{\bar{\sigma}(E)} \quad (1-2)$$

ここで、 $\bar{\sigma}_\gamma(E)$ は捕獲断面積である。式(1-2)の[1-exp]の部分は試料中での中性子の減衰を表している。また、実際には試料中で中性子が複数回散乱されてから捕獲されることもあるが、式(1-2)ではそれらを考慮していない (散乱を考慮した共鳴吸収量の定式化は文献[40]を参照)。

中性子のエネルギー E は中性子の速度 v を測定することで決定することができる。

$$E = \frac{1}{2}mv^2 \quad (1-3)$$

ここで、 m は中性子の質量を表す。エネルギー E [eV] を有する中性子がある距離 L [m] を飛行するのにかかる時間 t [μ s] は、式(1-3)を用いて以下のように表すことができる。

$$t = \frac{72.298L}{\sqrt{E}} \quad (1-4)$$

このようにして中性子のエネルギーを決定する方法が TOF 法である。中性子に対して TOF 法が適用できるのは、中性子が質量 ($1.674928(1) \times 10^{-27}$ kg [41]) を有するために、その速度は電子回路を用いれば十分決定可能だからである (例えば、熱中性子の代表的なエネルギーである 0.0253 eV を有する中性子の飛行速度は約 2200 m/s であり、これは 10 m 飛行するのに約 4.5 ms かかるということである。同様に、共鳴現象が現れるエネルギー領域 (熱外中性子) においては、中性子が 10 m 飛行するのに 10 eV の場合は 229 μ s、100 eV の場合は 72.3 μ s かかる)。

共鳴断面積が既知であれば、この透過率から試料の面密度や温度といった情報を得る

ことができる。しかし、式(1-1)及び式(1-2)で示した中性子の透過率・共鳴吸収量はあくまでも理論的な値であり、現実には分解能関数によってそのスペクトル形状は変化する。観測される中性子透過率 $T_{obs}(t)$ は、透過率 $T_{th}(E)$ と分解能関数 $R(t, E)$ との畳み込みによって表される。

$$T_{obs}(t) = \int_0^{\infty} R(t, E') T_{th}(E') dE' \quad (1-5)$$

一方で、観測される共鳴吸収量 $Y_{obs}(t)$ も同様に、

$$Y_{obs}(t) = \int_0^{\infty} R(t, E') Y_{th}(E') dE' \quad (1-6)$$

と表される。ここで分解能関数 $R(t, E)$ は時間 t に関して積分を行う場合に面積が 1 となるように規格化してある。分解能関数としては主に、(1)中性子源に固有の分解能関数、(2)検出器及びそれに付随するエレクトロニクスの応答関数などが考えられる。

ここで、中性子源に固有の分解能関数について説明する。パルス中性子源では、加速器によって加速した荷電粒子を金属ターゲットに照射し、中性子を発生させる。発生した中性子のエネルギースペクトルは使用する加速器のエネルギーやターゲットによって異なるが、核破碎中性子源の場合、数 MeV という高エネルギー領域にピークを持つ。したがって、パルス中性子源ではターゲットで生み出された中性子は減速材によってエネルギーを落とされる。中性子を効率的に減速させるため、減速材には中性子とほぼ同じ質量をもつ水素原子を多く含む物質が用いられる。中性子は減速材内部もしくは減速材をとり囲む反射体において散乱を繰り返し、エネルギーを落としてゆくのである。減速された中性子の一部（減速されていないものも含め）は減速材の表面から飛び出て各ビームラインの分光器へ向けて飛行するが、この減速材から放出されるタイミングというのは同じエネルギーを持っていても各中性子によってばらばらである。これは、中性子の放出時間が、中性子がどこで散乱されてどの方向に飛んで行ったかというランダムな現象に依存するためである。したがって、あるエネルギーを有する中性子はある時間分布に従って減速材から放出されることとなる。これを中性子放出時間分布と呼ぶ。この中性子放出時間分布はエネルギー分解能に大きく影響してくるため、パルス中性子源においては非常に重要な装置パラメータとなる。また、中性子放出時間分布はパルス関数とも呼ばれる（分野によっては **Response function** などとも呼ばれる）。中性子放出時間分布は中性子源に関する研究で主に用いられる一方、分光学的な観点からはパルス関数と呼ばれる場合が多い。本論文ではこれ以降、パルス関数という名称を用いることとする。

パルス関数が共鳴ピーク及び共鳴ディップに与える影響は非常に大きい。例えば、JSNS における熱外中性子領域のパルス関数は数 100 ns から数 μ s のオーダーの半値幅を有している[42]。共鳴核種の密度や断面積にも依存するが、NOBORU の標準的な試料位置である 14 m において N-RAS 測定を行った場合、共鳴ピーク及び共鳴ディップの半

値幅はパルス幅と同じ程度である。すなわち、式(1-5)及び式(1-6)にしたがってパルス関数の畳み込みを行えば、その結果得られる共鳴ピーク及び共鳴ディップの半値幅は2倍程度に広がる場合もあるということになる。また、 $R(t,E)$ は強度が規格化されているため、畳み込みによって幅が広がればその分ピーク強度は減少するということである。以上のことから、パルス関数を考慮して解析を行わなければ原子数密度や温度を定量的に求めることはできなくなる。

1.2.2 N-RAS による核種情報の取得方法

N-RAS によって様々な核種に関する情報（核種の同定、原子数密度、温度）が取得可能である。そのためには対象となる核種の断面積の情報が不可欠であるが、その詳細な説明については第2章で行う。ここでは、それらを具体的にどのように取得するのかについてまとめる。

1.2.2.1 核種同定

先にも述べた通り、共鳴現象が起こる中性子のエネルギーは核種によって固有であるため、N-RAS によって求められた共鳴ピークの位置を分析することで試料に含まれる核種の同定が可能である。N-RAS で測定されるのは TOF スペクトルであるため、式(1-4)を用いて TOF をエネルギーに変換する必要がある。ただし、測定された TOF スペクトルはパルス関数が畳み込まれた形となっているため、TOF 法で見積もった共鳴エネルギーは本来のエネルギーとはずれが生じるはずである。また、データ収集系などによる T0 信号の時間的な遅れも考慮する必要がある。厳密にはこれらの影響を考慮して観測された共鳴ピークのエネルギーを求め、核データとして公開されている共鳴パラメータを参照することで核種同定を行うことが正しい。しかしながら、現実にはそれほど厳密な補正を行う必要はなく、測定された共鳴エネルギーと近い共鳴エネルギーを有する核種をピックアップしてゆき、それを複数の共鳴ピークに対して行うことで未知の核種を絞り込むという作業をすることが多い。

1.2.2.2 原子数密度定量

透過型 N-RAS、即発 γ 線型 N-RAS のどちらにおいても、式(1-1)、(1-2)を見てわかるように、ある核種の断面積がわかっていればその面密度を定量化することが可能である。共鳴ディップや共鳴ピークを利用して原子数密度を定量化する意味というのは、共鳴断面積が非常に大きいために対象とする核種が少量でも感度良く測定が可能だからである。しかし、パルス関数によって共鳴ディップ及び共鳴ピークは鈍らされるため、断面積から算出される値よりもそれらの深さ及び高さは過小評価されることになる。定量的に原子数密度を求めるためには、測定された共鳴スペクトルに対し式(1-5)及び(1-6)を用いてスペクトルフィッティングを行う必要がある。この時、パルス関数や断面積は既知

であるとして、面密度をフィッティングパラメータとすることになる。

1.2.2.3 温度測定

原子の熱振動に起因する Doppler 拡がりによって共鳴の幅が広がる。具体的には式 (1-1) 及び (1-2) で示されている断面積の半値幅は拡がり、最大値は減少する。Doppler 効果による拡がりとはパルス幅による拡がりが畳み込まれた形で共鳴ディップや共鳴ピークが測定されるため、パルス関数が既知でなければ温度を一意に決定することは不可能である。

温度を定量的に求めるのは基本的に原子数密度の定量化の場合と同様である。つまり、断面積の式に現れる温度に関するパラメータ（第2章で説明）をフィッティングパラメータとして扱い、測定された共鳴スペクトルにフィッティングを行う。

1.3 N-RAS による原子数密度分析の定量化への課題・問題点

原子数密度を定量化する方法として、スペクトルフィッティングではなく、共鳴スペクトルの面積を用いる方法がある。この方法は京都大学における核燃料物質の定量化や ISIS における考古学資料のイメージングにおいて行われている手法である。また、北海道大学における透過型 N-RAS による核種定量化に関する研究においても検討されていた。この共鳴積分による方法では、予め核種の密度が異なる複数の試料に対して共鳴スペクトルの測定を行い、原子数密度と共鳴積分値の相関関係を表した検量曲線を作成する。調べたい試料の共鳴積分値を求め、検量曲線を参照することで原子数密度の推量が可能となる。この方法の利点としては、パルス関数を用意してスペクトルフィッティングを行う必要が無いので解析が容易であることが挙げられる。反面、調べたい核種が異なったり、実験条件が変わったりすればその都度検量曲線を作成しなければならず、実用上問題がある。さらに、試料の温度が変われば共鳴積分値が変化してしまうため、原子数密度の定量化という観点でも問題がある。第2章で詳細を説明するが、Doppler 効果を考慮した共鳴断面積は以下のように表される[43]。

$$\bar{\sigma}(E) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \int_0^\infty dE' \left\{ \exp\left[-\left(\frac{E - \sqrt{EE'}}{\Delta/2}\right)^2\right] - \exp\left[-\left(\frac{E + \sqrt{EE'}}{\Delta/2}\right)^2\right] \right\} \sqrt{\frac{E'}{E}} \sigma(E') \quad (1-7)$$

Δ は Doppler 拡がりと呼ばれるパラメータであり、

$$\Delta = \sqrt{\frac{4Ek_B T}{M/m}} \quad (1-8)$$

と表される。ここで、 E は中性子のエネルギー、 k_B は Boltzmann 定数、 T は温度、 M は

標的核の質量、 m は中性子の質量である。共鳴積分値を求めるということは式(1-7)もしくはそれを用いて計算した式(1-5)及び(1-6)をエネルギー E について適切な範囲で積分するという他にない。温度 T は定数であるため、共鳴積分値は温度に依存してしまう。さらに、Doppler 幅が広がるということは共鳴の裾も広がるため、適切な積分範囲が温度によって変わってしまう。図 1.12 に Ta-181 の 4.28eV 共鳴に対する共鳴積分の定義と共鳴積分値の温度依存性のシミュレーション結果を示す。ここでは、NOBORU において 10 μm 厚の Ta の透過率を測定した場合を想定している。この場合では共鳴積分値に約 0.35%/K の誤差が生じることになるため、これを利用して密度測定を行った場合には同程度の誤差が生じるはずである。さらに、検量曲線を用いる方法では複数の核種を含んだ試料に対して適用できない場合がある。一般に、検量曲線は単一の元素のみを含む試料による共鳴から作成する。そのため、測定試料に複数の核種が含まれている場合に、注目する共鳴ピークに他の核種の共鳴ピークが一部でも重なるような状況では検量曲線の適用が不可能になってしまう。このことは ISIS において行われていたスペクトルの比をとることによる温度測定手法にも言えることである。以上のことから、共鳴積分値による検量曲線を用いた原子数密度分析には原理上・実用上の問題点があり、定量化には適さないと考えられる。

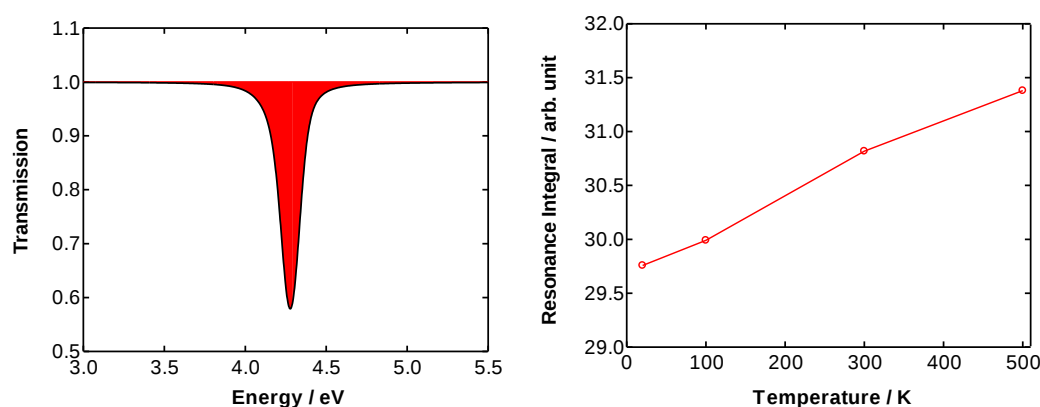


図 1.12 : Ta-181 の 4.28eV 共鳴に対する共鳴積分の定義（左）と共鳴積分値の温度依存性のシミュレーション結果（右）。左図の赤く塗られた部分（エネルギー範囲：3～5.5 eV）の面積を共鳴積分値とし、温度に対してプロットしている。

以上より、原子数密度分析の定量化のためにはスペクトルフィッティングによる解析が必要であり、そのためには正確なパルス関数が不可欠である。過去には HUNS において透過型 N-RAS を用いて原子数密度及び温度のイメージングを試みた研究[4]が行われ、スペクトルフィッティングによる解析が行われているが、この研究では予め求めておいたパルス関数を利用するのではなく、測定データに対してパルス関数を細密化するという手法をとっている。この手法ではパルス関数や密度などが同時にフリーパラメー

タとなってしまうため、原子数密度及び温度を定量的にイメージングしたとは言えない。また、NOBORU において行われた共鳴イメージング実験[33, 34]においては、スペクトルフィッティングではなく、透過率の深さをマッピングしたコントラストイメージングにとどまっている。一方で、GELINA などの核データ測定を行っている施設においては、パルス関数を考慮したスペクトルフィッティングによる共鳴スペクトル解析が行われている。しかし、これらの施設における測定の目的は共鳴を利用したイメージングではなく、あくまでも核データ測定であり、未だにイメージングの分野ではパルス関数を用いた解析は行われていないのが現状である。

また、J-PARC の MLF における解析を考えた場合、そこに供給される陽子ビームは 1 周期に 2 つのパルスを有するダブルバンチ構造になっているため、幅の短い高エネルギーの共鳴ではディップ及びピークが 2 つに分離する問題もある。Harada らによるシミュレーション[42]では、JSNS の非結合型減速材において中性子エネルギーが 100 eV 前後からダブルバンチのパルス関数への影響がはっきりと表れるという結果となっている。つまり、この程度以上のエネルギーの共鳴をフィッティング解析する場合はダブルバンチ構造を考慮しなければならない。

N-RAS による原子数密度分析の定量化において最も問題となっているのはパルス関数であるが、実験手法的な側面においても問題がある。イメージング実験においては検出器と試料を近づけることで画像のボケを抑えることができるが、それと同時に試料からの散乱線が検出されてしまい定量性を悪化させるという板挟みの問題がある。核データ測定に用いられる装置ではイメージングを行うことを考えていないため、中性子源と検出器の中間付近に試料を設置するなどして検出器と試料の距離を十分にとることで、試料からの散乱中性子の影響をほとんど無視できるほどに低下させている。一方で、イメージングを目的とした装置では、慣例的に検出器と試料の距離をほとんど取らずに実験を行っている。このように、パルス関数に加えて、試料からの散乱線による定量性の悪化の問題も存在する。

以上をまとめると、N-RAS を利用した原子数密度分析の定量化のためには以下を改善点として考える必要がある。

1. パルス関数及びダブルバンチ構造までを考慮したスペクトルフィッティングコードの開発
 2. 透過型 N-RAS において試料からの散乱中性子を除去する測定手法の開発
 3. 散乱中性子や γ 線、電気ノイズなどのバックグラウンドを評価する実験手法の開発
- これらが解決されれば温度測定にも応用が可能である。

1.4 研究目的・方法

1.4.1 研究目的

N-RAS を用いることで、考古学資料・文化財に含まれる元素分布イメージングや核燃料・燃料デブリに含まれる核燃料物質の定量化、または各種工業製品に対する温度イメージングなどを定量的に行うことで、各分野における研究の発展・飛躍に資することが可能である。N-RAS による定量的な核種・温度イメージングのためには、原子数密度の定量化を成功させることが必要不可欠である。原子数密度の定量化が成功すれば、自ずと温度の定量化も可能となるため、原子数密度の定量化手法の確立が最も重要となる。そのため本研究では、これまで中性子イメージング用装置において達成されていない、透過型 N-RAS による原子数密度の定量化を目的とする。そのため、本研究では N-RAS に適した熱外中性子を利用でき、かつ中性子イメージングが実施可能な装置である J-PARC/MLF/BL10 NOBORU を主たるターゲットとして解析手法の開発及び実験手法の開発を行う。この N-RAS を用いた核種イメージングは J-PARC 以外にも HUNS や ISIS において研究が行われており、需要が高いと考えられる。そこで、ここで開発する解析・実験手法は他のパルス中性子源におけるイメージング装置においても適用可能な手法とすることを目指す。加えて、開発した手法を N-RAS イメージングに適用することで定量的な核種イメージングを試みる。

以上、本研究ではこの N-RAS を用いた核種定量分析手法の確立により、中性子イメージングの分野における貢献、ひいてはマテリアルサイエンスの発展に資することを目指す。

1.4.2 研究方法

本研究ではスペクトルフィッティングに基づく解析を行い、核種情報の定量化を行う。フィッティング関数である共鳴スペクトルは共鳴断面積を決める核データを基にした共鳴パラメータ及び実験条件によって計算される。試料に含まれる核種の密度もしくは温度を求めるということは、共鳴パラメータは既知でなくてはならない。したがって、N-RAS の解析に用いる共鳴パラメータはすべて正しいという前提で解析を進めていく必要がある。ただし、共鳴パラメータは報告されている値が文献によって異なる場合が多いため、用いた共鳴パラメータの出典によっては解析結果が異なることがある。そのため、本研究は最も妥当とされる共鳴パラメータを利用して解析を進めてゆく系統的研究となる。

以下、具体的な研究方法・内容について述べる。まず、スペクトルフィッティングに用いるパルス関数を求めるために、モンテカルロシミュレーションにより各装置のパルス関数を計算した。求めたパルス関数に対して、いくつかの既存の関数をフィッティングし、最もその装置のパルス関数を再現できる関数を求めた。また、パルス関数のパラ

メータのエネルギー依存性を調べることで任意のエネルギーでパルス関数を計算することを可能にする。シミュレーション結果の妥当性を確認するために、NOBORU において即発 γ 線 N-RAS によっていくつかの核種の共鳴スペクトルの測定を行い、フィッティングによってパルス関数のパラメータのエネルギー依存性を求め、シミュレーション結果と比較を行った。また、求めたパルス関数を用いてスペクトルフィッティングを行うために、共鳴解析コードにパルス関数を実装して、共鳴スペクトルを計算できるようにした。

次に、パルス関数を実装した共鳴解析コードの実証実験を行うため、NOBORU においていくつかの核種に対して透過型 N-RAS 実験を行った。ここで選定した試料は Ta、Ag、Cu である。これらの試料を選んだ理由は、幅広いエネルギー範囲における共鳴ディップの解析を行うためである (Ta は数 eV から数 10 eV まで、Ag は数 10 eV から数 100 eV まで、Cu は数 100 eV から数 keV までの共鳴)。測定した共鳴ディップに対してスペクトルフィッティングを行い、原子数密度分析の定量性の評価を行った。

実験手法に関しては、試料からの散乱線の除去のために試料と検出器間の距離を離して測定を行った。まず、モンテカルロシミュレーション計算により、散乱線の影響が一定レベルまで小さくなるような試料位置を求める。シミュレーションによって求めた試料と検出器間の距離で透過型 N-RAS 実験を行い、原子数密度分析の定量性評価を行った。また、上記の方法で除去しきれなかった散乱線やその他のバックグラウンド成分を評価するために、Black Resonance (BR) を用いたバックグラウンドレベルの評価[44]を試みた。BR は透過率が殆んど 0 になるような強い共鳴のことであり、この BR を有する核種を複数用いて TOF スペクトルを測定することでバックグラウンド曲線の作成が可能となる。

最後に、以上で述べた解析手法及び実験手法を用いて透過型 N-RAS による共鳴イメージングを実施する。このイメージング実験では共鳴核種を含む鉛フリーはんだを用いし、原子数密度分布及び組成比の分布の取得を試みた。

1.5 本論文の構成

第2章では、N-RAS の基本要素である共鳴断面積の表式についてまとめる。まず、共鳴現象を理解する上で必要な複合核反応について、その概観を説明する。その複合核反応を式で表すための R-Matrix 理論を紹介し、さらにその各種近似法の導出過程及びそこから導き出される共鳴断面積について記す。また、原子振動の熱運動に起因する Doppler 効果を記述するための物理モデルについて説明し、共鳴反応における温度の取り扱いについて説明する。

第3章では、原子数密度分析定量化のための解析システムについてまとめる。まず、減速材中の中性子の振る舞いについて概観を説明し、その記述に使用される関数につい

てまとめる。次に、パルス関数を求めるために使用したモンテカルロシミュレーションコードの説明を行い、NOBORU のパルス関数についての計算結果と解析結果について示す。また、シミュレーションにより求めたパルス関数の妥当性を確認するために行った即発 γ 線型 N-RAS 実験及び解析結果について示す。HUNS についても同様にシミュレーション計算によりパルス関数の評価を行ったので、これの説明も行う。最後に、スペクトルフィッティングを行うための共鳴解析コードである REFIT[40, 45]の概略を示し、本研究で求めたパルス関数の実装について説明し、いくつかのデモンストレーション計算を行う。

第4章では、原子数密度分析の定量化のために開発した手法の実証実験についてまとめる。まず、試料からの散乱中性子の影響を減らすための手法である試料と検出器を離れた測定とバックグラウンド測定を行う手法である BR 法についてその原理の説明を行う。それらの手法を NOBORU で行う透過型 N-RAS 実験に適用し、Ta 箔、Ag 板及び Cu 板の共鳴ディップの測定を行う。測定した共鳴に対して第3章で説明する解析システムを用いてスペクトルフィッティングを行うことで原子数密度分析を行い、その定量性の評価を行う。

第5章では、本研究で開発した解析手法及び実験手法を用いて行った、透過型 N-RAS イメージング実験についてまとめる。試料に用いる物質として複数の核種を含んでいる鉛フリーはんだを選び、NOBORU において透過型 N-RAS 実験を行った。位置ごとに鉛フリーはんだの厚さが異なるような試料を作成し、まずは透過率のコントラストイメージングを行う。また、試料の厚さが異なる領域における透過率スペクトルを求め、解析システムを用いて原子数密度分析を行った。最後に、コントラストイメージング及びスペクトル解析の結果を利用して、スペクトルフィッティングによる原子数密度イメージングを行い、その結果に対する評価を行う。

第6章では、本研究の総括を述べる。

付録では HUNS において行った原子数密度・温度イメージングの結果について述べる。

第 2 章 共鳴断面積の表式

中性子の共鳴現象は、中性子と標的原子核が複合核を形成するという複合核モデルを用いて説明される。励起状態にある複合核は γ 線や核子の放出などにより基底状態へと遷移する。この一連の共鳴現象を記述する理論として **R-Matrix** 理論が存在する。**R-Matrix** 理論はこれまで核データ研究の分野で断面積の計算に用いられてきたものである。本章ではまず、**R-Matrix** 理論の説明とそれを利用した共鳴断面積の導出について説明する。また、**R-Matrix** 理論に基づいた共鳴解析コードである **REFIT** コードについて説明する。さらに、共鳴現象において重要な要素である **Doppler** 効果に関して、そのモデル化の方法について説明する。

2.1 複合核の形成と励起

中性子が標的原子核へ入射した時、その反応機構は複合核形成、ポテンシャル散乱、もしくは直接相互作用の 3 つに分類される。

共鳴理論において最も重要な反応機構は複合核 (**Compound nucleus**) 形成である。複合核のアイディアは **Bohr**[46]によって 1936 年に提案されている。中性子と標的原子核の衝突による複合核の形成は、たらいとビリヤードの玉に例えられて説明される[47] (図 2.1)。たらいの中に多数のビリヤード玉が入っている状態をイメージする。たらいの中にビリヤード玉を入射すると、たらいが空ならばビリヤード玉はそのままの速度で反対側へ抜けていく。しかし、たらいの中に多数のビリヤード玉が存在すれば、入射してきたビリヤード玉は最初に衝突した玉と運動エネルギーを分け与える。このエネルギーは次から次へと他の全ての玉に分配され、たらいとビリヤード玉が完全に滑らかで摩擦が無いと仮定すれば、弾性衝突を繰り返し、たらいの中は準平衡状態になる。ある時、偶然に一つの玉に運動エネルギーが集中すれば、その球はたらいの外に脱出し、残された玉の系はたらいから脱出するためのエネルギーを失うことになる。これを複合核形成に当てはめて考えてみると、入射した中性子は核子と次から次へと衝突を繰り返し、さらに核子同士が衝突を繰り返す。この核子同士が衝突を続けている状態が複合核過程である。偶然にも一つの核子にエネルギーが集中した時に核子の放出が起こり、複合核過程が終了する。そのため、複合核の寿命は非常に長い。例えば、1 eV の中性子が 10^{-24} cm^2 程度の断面積を有する原子核を通過する時間は 10^{-18} s 程度である。その一方で、複合核の寿命は 10^{-15} s に上ることも珍しくはない[48]。そのため、複合核過程においては、核子を放出するよりも γ 線を放出する確率が高くなるのである。

第2章 共鳴断面積の表式

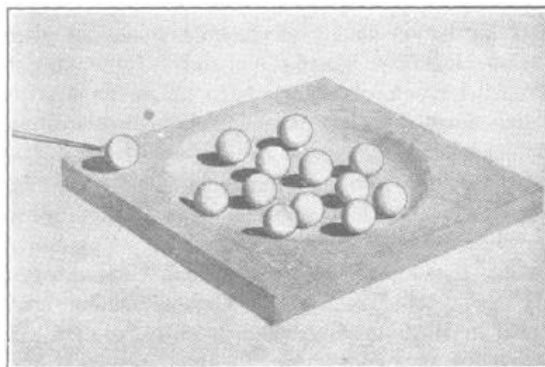


図 2.1 : Bohr が講義で使用した複合核のイメージ[47]。ビリヤードの玉で満たされたたらいにビリヤード玉を打ち込んでいる様子を、原子核に中性子が入射する現象になぞらえて説明した。

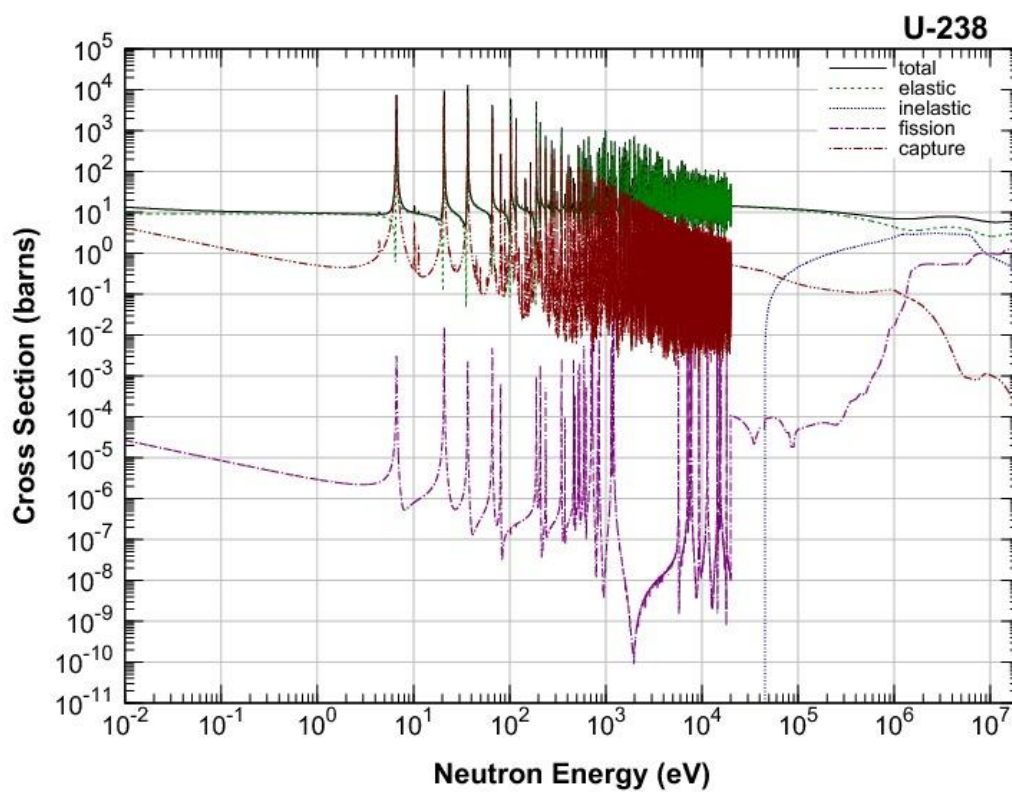


図 2.2 : ^{238}U の中性子断面積[49]。全断面積、弾性散乱断面積、非弾性散乱断面積、核分裂断面積、捕獲断面積を表している。

複合核状態というのは長い寿命を持った準安定状態であると言える。よって、入射中性子のエネルギーが複合核の励起準位 (0.1 eV 以上) と等しい場合に複合核形成が強く起こるため、共鳴的に中性子の吸収断面積が変動する。図 2.2 に一例として共鳴核種である ^{238}U の中性子断面積を示す。共鳴的な断面積の増加が 6.67 eV において最初に見られる。原子核の励起準位密度は励起エネルギーとともに上昇するため、高エネルギー側では共鳴が段々と密になり、20000 eV よりも上のエネルギーでは一つ一つの共鳴を分離することは不可能となる。また、質量数の大きな原子核ほど励起準位密度は広くなり、かつ、第一励起状態のエネルギーは低くなる傾向がある。ただし、魔法数を持つ安定な原子核においてはこの限りではない。

ポテンシャル散乱は核ポテンシャルによって中性子が散乱される現象であり、これは常に起こる。また、直接相互作用は中性子と核子が直接衝突を起こし、複合核を形成しない反応であるが、これを引き起こす中性子のエネルギーは非常に高いため共鳴理論においては重要ではない。

2.2 複合核の基底状態への遷移[48, 50]

励起状態の複合核は様々な過程を経て基底状態へと遷移する。一つは入射中性子と同じエネルギーを持つ中性子が複合核から放出される過程でありこれを共鳴散乱と呼ぶ。この場合、重心系においてはエネルギーの変化が無い、弾性的な過程である。一方、中性子放出によって基底状態へ遷移するのではなく、 γ 線放出によって励起エネルギーを放出する過程を放射捕獲 (もしくは (n,γ) 反応) と呼ぶ。さらに十分高い励起エネルギーの場合、荷電粒子の放出や 2 つ以上の中性子を放出する過程も存在する ((n,p) 反応、 (n,α) 反応、 $(n,2n)$ 反応)。また、 ^{235}U などの重い元素においては核分裂を引き起こすこともある。

このような複合核状態から基底状態への遷移を放出チャンネルと呼ぶことにする (逆に中性子が標的原子核に入射することを入射チャンネルと呼ぶ)。複合核の内部では核子同士の衝突が繰り返し起こっているため、内部の状態を知ることは非常に困難である。また、中性子が入射してからそのような複雑な過程を経て複合核過程が終了するまで非常に長い時間を要する。そのため、複合核は入射チャンネルを”忘れた”状態となり、放出チャンネルに対しては依存しない。つまり、どの放出チャンネルを選ぶかは全て統計的に決定される。この確率は幅 Γ を用いて表される。複合核が基底状態になるまでの寿命を τ とすると、幅は

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau} \quad (2-1)$$

で表される。通常、 Γ は全幅を表し、全ての放出チャンネル i に対する部分幅 Γ_i の総和である。

$$\Gamma = \Gamma_\gamma + \Gamma_n + \dots \quad (2-2)$$

ここで、 Γ_γ は γ 線放出のチャンネルに対する幅（放射幅）、 Γ_n は中性子放出のチャンネルに対する幅（中性子幅）を表している。正確にはその他にも多くのチャンネルに対する部分幅が存在するが、本論文で注目する部分幅は主に放射幅と中性子幅である。これらの部分幅（放射幅、中性子幅、さらに核分裂幅）は共鳴現象を記述するために多くの機関で調べられており、共鳴パラメータとして核データに格納されている。

2.3 共鳴断面積の表式

共鳴現象を記述する手法の一つとして R-Matrix 理論がある。R-Matrix 理論は元々 Wigner と Eisenbud によって導かれた理論である[51]。先にも述べたように、入射チャンネルと放出チャンネルは互いに相関しないことから複合核の内部で何が起きているのか正確に記述することは意味が無い。R-Matrix 理論においては、実験パラメータである入射チャンネルと測定・観測量である放出チャンネルについてさえわかればよい。R-Matrix を用いる利点としては共鳴断面積のパラメータ化がある。実験データをポイントワイズデータとして用いる場合、異なるエネルギー間において内挿が必要であることや、温度による断面積変化を考慮できないといった問題がある。共鳴断面積のパラメータ化とは、共鳴のエネルギーや幅、スピンといった量をパラメータとして用いることでそういった問題を克服することに他ならない。本研究で用いている REFIT コード（詳細は後述）は R-Matrix 理論を用いて共鳴断面積を計算しているため、本節では R-Matrix 理論とその近似法について説明する。なお、この節における式の導出は文献[52]を参考にしている。

2.3.1 R-Matrix の導出

複合核内部のポテンシャル $V(r)$ 内における波動関数 $\phi_l(E, r)$ を考える。ここで l は角運動量、 r は原点からの距離、 E は任意のエネルギーである。この時、ポテンシャル $V(r)$ を知ることは不可能であるため、波動関数 $\phi_l(E, r)$ の振る舞いをシュレーディンガー方程式を用いて計算することはできない。R-Matrix 理論では、波動関数 $\phi_l(E, r)$ は固有値 E_λ の固有関数 $\phi_l(E_\lambda, r)$ の線形結合に拡張される。つまり、任意の係数 A_λ を用いて

$$\phi_l(E, r) = \sum_\lambda A_\lambda \phi_l(E_\lambda, r) \quad (2-3)$$

となる。球形の体系の場合、ハミルトニアン H は

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{d^2}{dr^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} \right) + V(r) \quad (2-4)$$

となるから、波動関数 $\phi_l(E, r)$ と固有関数 $\phi_l(E_\lambda, r)$ はそれぞれ、時間に依存しないシュレーディンガー方程式の解として次のように表される。

$$\left\{ \frac{d^2}{dr^2} + \frac{2m}{\hbar^2} \left[E - V(r) - \frac{l(l+1)\hbar^2}{2mr^2} \right] \right\} \phi_l(E, r) = 0 \quad (2-5)$$

$$\left\{ \frac{d^2}{dr^2} + \frac{2m}{\hbar^2} \left[E_\lambda - V(r) - \frac{l(l+1)\hbar^2}{2mr^2} \right] \right\} \phi_l(E_\lambda, r) = 0 \quad (2-6)$$

ここで、境界条件を考える。原子核の表面 $r = a$ における固有関数 $\phi_l(E_\lambda, r)$ の対数微分は一定値 B_l (実数) となるので、

$$\left[\frac{d\phi_l(E_\lambda, r)}{dr} \right]_{r=a} = a^{-1} B_l \phi_l(E_\lambda, a) \quad (2-7)$$

という関係が成り立つ。また、固有関数 $\phi_l(E_\lambda, r)$ は直行性を有するので、適切な規格化がなされているとすれば、

$$\int_0^a \phi_l(E_\lambda, r) \phi_{l'}(E_{\lambda'}, r) dr = \delta_{\lambda\lambda'} \quad (2-8)$$

となる。式(2-3)、(2-8)から、係数 A_{λ} は次のようになる。

$$A_{\lambda} = \int_0^a \phi_l(E_\lambda, r) \phi_l(E, r) dr \quad (2-9)$$

次に、ポテンシャル $V(r)$ を消去することを考える。式(2-5)に固有関数 $\phi_l(E_\lambda, r)$ をかけたものと、式(2-6)に波動関数 $\phi_l(E, r)$ をかけたものの差をとり、 r に関して 0 から a まで積分を行うと、式(2-9)より、

$$A_{\lambda} = \frac{\hbar^2}{2m} (E_\lambda - E)^{-1} \left[\phi_l(E_\lambda, r) \frac{d}{dr} \phi_l(E, r) - \phi_l(E, r) \frac{d}{dr} \phi_l(E_\lambda, r) \right]_{r=a} \quad (2-10)$$

となる。つまり、式(2-3)、(2-7)より、 $r = a$ の場合には、

$$\phi_l(E, a) = \frac{\hbar^2}{2ma} \sum_{\lambda} \left[\frac{\phi_l(E_\lambda, a) \phi_l(E_\lambda, a)}{E_\lambda - E} \right] \left[r \frac{d\phi_l(E, r)}{dr} - B_l \phi_l(E, r) \right]_{r=a} \quad (2-11)$$

という関係が得られる。この時、R-Matrix を以下のように定義する。

$$R_l = \frac{\hbar^2}{2ma} \sum_{\lambda} \left[\frac{\phi_l(E_\lambda, a) \phi_l(E_\lambda, a)}{E_\lambda - E} \right] \quad (2-12)$$

もしくは次のように表記する。

$$R_l = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda l} \gamma_{\lambda l}}{E_\lambda - E} \quad (2-13)$$

ここで、

$$\gamma_{\lambda l} = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2ma}} \phi_l(E_\lambda, a) \quad (2-14)$$

は換算幅 (reduced width amplitude) と呼ばれ、共鳴パラメータの Γ と関係のある量である。入射チャンネル c 、放出チャンネル c' とすると、**R-Matrix** は一般的に、

$$R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E} \quad (2-15)$$

$$\gamma_{\lambda c} = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m_c a_c}} \phi_c(E_{\lambda}, a_c) \quad (2-16)$$

と表記される。

このようにして、複合核内部の波動関数 $\phi_l(E, r)$ をポテンシャル $V(r)$ に依存しない形式で表現することができた。

2.3.2 R-Matrix と Collision matrix U との関係

ポテンシャル $V(r)$ の外側の領域 ($r \geq a$) では、波動関数 $\phi_l(r)$ は入射してくる自由粒子の波動関数 $\phi_l^{in}(r)$ と放出される自由粒子の波動関数 $\phi_l^{out}(r)$ の足し合わせで表現される。

$$\phi_l(r) = C_l [\phi_l^{in}(r) - U_l \phi_l^{out}(r)] \quad (2-17)$$

ここで、 C_l は規格化係数、 U_l は断面積の表現に用いられる **Collision matrix** である。また、波動関数 $\phi_l^{in}(r)$ と $\phi_l^{out}(r)$ はそれぞれ、球 **Bessel** 関数 (n_l) と **Neumann** 関数 (j_l) を用いて、

$$\phi_l^{in}(r) = kr [n_l(kr) + ij_l(kr)] \quad (2-18)$$

$$\phi_l^{out}(r) = kr [n_l(kr) - ij_l(kr)] \quad (2-19)$$

と表される ($i = \sqrt{-1}$)。

式(2-11)は

$$\phi_l(E, a) = \left[r \frac{d\phi_l(E, r)}{dr} - B_l \phi_l(E, r) \right]_{r=a} R_l \quad (2-20)$$

と表されるので、式(2-17)より、

$$U_l = \left(\frac{\phi_l^{in}}{\phi_l^{out}} \right)_{r=a} \frac{1 - \left[\left(\frac{r}{\phi_l^{in}} \frac{d\phi_l^{in}}{dr} - B_l \right)_{r=a} \right] R_l}{1 - \left[\left(\frac{r}{\phi_l^{out}} \frac{d\phi_l^{out}}{dr} - B_l \right)_{r=a} \right] R_l} \quad (2-21)$$

となる。ここで、

$$L_l^* = \left(\frac{r}{\phi_l^{out}} \frac{d\phi_l^{out}}{dr} \right)_{r=a} \quad (2-22)$$

$$L_l = \left(\frac{r}{\phi_l^{in}} \frac{d\phi_l^{in}}{dr} \right)_{r=a} \quad (2-23)$$

とすると、

$$U_l = \left(\frac{\phi_l^{in}}{\phi_l^{out}} \right)_{r=a} \frac{1 - (L_l^* - B_l)_{r=a} R_l}{1 - (L_l - B_l)_{r=a} R_l} \quad (2-24)$$

となる。また、一般的に行列の形では

$$\mathbf{U} = \boldsymbol{\rho}^{1/2} \boldsymbol{\phi}_{out}^{-1} [\mathbf{I} - \mathbf{R}(\mathbf{L} - \mathbf{B})]^{-1} [\mathbf{I} - \mathbf{R}(\bar{\mathbf{L}} - \mathbf{B})] \boldsymbol{\phi}_{in} \boldsymbol{\rho}^{-1/2} \quad (2-25)$$

となる。ここで、 $\boldsymbol{\rho}$ は $k_c a_c$ で与えられる。

この Collision matrix を用いて、断面積を表現すると、弾性散乱断面積は

$$\sigma_s = \pi \tilde{\lambda}^2 \sum_l (2l+1) |1 - U_l|^2, \quad (2-26)$$

吸収断面積、非弾性断面積、核分裂断面積（これらを総称して reaction cross section と呼ぶ）は

$$\sigma_r = \pi \tilde{\lambda}^2 \sum_l (2l+1) (1 - |U_l|^2), \quad (2-27)$$

全断面積は

$$\sigma_t = \pi \tilde{\lambda}^2 \sum_l (2l+1) (1 - \text{Re}|U_l|) \quad (2-28)$$

となる。ここで、

$$\tilde{\lambda} = \frac{\hbar}{\sqrt{2mE}} \quad (2-29)$$

であり、換算波長と呼ばれる。

2.3.3 R-Matrix の近似法

式(2-25)の導出において、近似は用いられていない。R-Matrix それ自体は数学的には非常に厳密であり、巨大な次元の行列を扱うことになる。そのため、R-Matrix 理論に関しては、いくつかの近似法が導入されている。代表的な近似法として、Single Level Breit-Wigner 近似、Multilevel Breit-Wigner 近似、Reich-Moore 近似[53]、Adler-Adler 近似[54]が挙げられる。本論文では、Adler-Adler 近似を除いた 3 つの近似法について説明する。

2.3.3.1 Level matrix A の導入

R-Matrix を近似するにあたり、Level matrix $\mathbf{A}$ を導入する。まずは、 $\mathbf{L}_0 = \mathbf{S}_0 + i\mathbf{P}$ 、 $\mathbf{L}_0 = \mathbf{L} - \mathbf{B}$ 、 $\mathbf{S}_0 = \mathbf{S} - \mathbf{B}$ という関係を持つ行列 $\mathbf{S}$ と $\mathbf{P}$ を導入する。ここで、式(2-19)、(2-22)から $\mathbf{P} = \rho(\boldsymbol{\varphi}_{\text{in}}\boldsymbol{\varphi}_{\text{out}})^{-1}$ となり、式(2-25)は次のように表される。

$$\mathbf{U} = \boldsymbol{\Omega} \left[\mathbf{I} + 2i\mathbf{P}^{1/2} (\mathbf{I} - \mathbf{R}\mathbf{L}_0)^{-1} \mathbf{R}\mathbf{P}^{1/2} \right] \boldsymbol{\Omega} \quad (2-30)$$

ここで、 $\boldsymbol{\Omega} = \boldsymbol{\varphi}_{\text{in}}^{1/2} \boldsymbol{\varphi}_{\text{out}}^{1/2}$ である。また、R-Matrix を行列の形式で書くと、

$$\mathbf{R} = \sum_{\lambda} \frac{\boldsymbol{\gamma}_{\lambda} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}}{E_{\lambda} - E} \quad (2-31)$$

となる。 $\boldsymbol{\beta}_{\lambda} = \mathbf{L}_0 \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}$ と定義される行列を導入すると、

$$\mathbf{I} - \mathbf{R}\mathbf{L}_0 = \mathbf{I} - \sum_{\lambda} \frac{\boldsymbol{\gamma}_{\lambda} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}}{E_{\lambda} - E} \mathbf{L}_0 = \mathbf{I} - \sum_{\lambda} \frac{\boldsymbol{\gamma}_{\lambda} \times \boldsymbol{\beta}_{\lambda}}{E_{\lambda} - E} \quad (2-32)$$

となる。ここで、Level matrix $\mathbf{A}$ を導入し、

$$(\mathbf{I} - \mathbf{R}\mathbf{L}_0)^{-1} = \mathbf{I} + \sum_{\mu\lambda} (\boldsymbol{\gamma}_{\mu} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}) \mathbf{A}_{\mu\lambda} \quad (2-33)$$

となる。ここで、 μ と λ はそれぞれ複合核におけるエネルギー準位を表している。

Level matrix $\mathbf{A}_{\mu\lambda}$ は次の関係を満たす。

$$\mathbf{A}_{\lambda\nu} (E_{\lambda} - E) - \sum_{\mu} (L_0 \boldsymbol{\gamma}_{\lambda} \cdot \boldsymbol{\gamma}_{\mu}) \mathbf{A}_{\mu\nu} = \delta_{\lambda\nu} \quad (2-34)$$

また、式(2-30)中に現れる $(\mathbf{I} - \mathbf{R}\mathbf{L}_0)^{-1} \mathbf{R}$ は式(2-31)と(2-33)を用いて、

$$(\mathbf{I} - \mathbf{R}\mathbf{L}_0)^{-1} \mathbf{R} = \sum_{\lambda} \left[\frac{\boldsymbol{\gamma}_{\mu} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}}{E_{\lambda} - E} + \frac{1}{E_{\lambda} - E} \sum_{\lambda} (\boldsymbol{\gamma}_{\mu} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}) \sum_{\nu} (\boldsymbol{\beta}_{\nu} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}) \mathbf{A}_{\mu\lambda} \right] \quad (2-35)$$

さらに、式(2-34)から

$$(\mathbf{I} - \mathbf{R}\mathbf{L}_0)^{-1} \mathbf{R} = \sum_{\mu\lambda} (\boldsymbol{\gamma}_{\mu} \times \boldsymbol{\gamma}_{\lambda}) \mathbf{A}_{\mu\lambda} \quad (2-36)$$

となる。つまり、Collision matrix $\mathbf{U}$ と Level matrix $\mathbf{A}$ の関係は次のようになる。

$$\mathbf{U} = \mathbf{\Omega} \left[\mathbf{I} + 2i\mathbf{P}^{1/2} \left(\sum_{\mu\lambda} (\gamma_\mu \times \gamma_\lambda) \mathbf{A}_{\mu\lambda} \right) \mathbf{P}^{1/2} \right] \mathbf{\Omega} \quad (2-37)$$

ここで、

$$\Gamma_{\mu c}^{1/2} = \gamma_{\mu c} (2P_c)^{1/2} \quad (2-38)$$

とすると、チャンネル c と c' に対する Collision matrix $U_{cc'}$ は

$$U_{cc'} = \mathbf{\Omega}_c \left[\delta_{cc'} + i \sum_{\mu\lambda} \left(\Gamma_{\mu c}^{1/2} A_{\lambda\mu} \Gamma_{\mu c'}^{1/2} \right) \right] \mathbf{\Omega}_{c'} \quad (2-39)$$

である。

最終的に、入射チャンネル c と放出チャンネル c' に対する Collision matrix $U_{cc'}$ と Level matrix A は

$$U_{cc'} = e^{-i(\phi_c + \phi_{c'})} \left[\delta_{cc'} + 2iP_c^{1/2} \left(\sum_{\mu\lambda} \gamma_{\lambda c} A_{\lambda\mu} \gamma_{\mu c'} \right) P_{c'}^{1/2} \right] \quad (2-40)$$

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = (E_\lambda - E) \delta_{\lambda\mu} - \sum_c \gamma_{\lambda c} L_{0c} \gamma_{\mu c} \quad (2-41)$$

と表される。

2.3.3.2 Multilevel Breit-Wigner 近似

R-Matrix の近似とは基本的には Level matrix の要素を減らしてゆくことである。Multilevel Breit-Wigner (MLBW) 近似とは、Level matrix を対角行列であるとみなす、つまり、Level matrix の非対角成分を全て無視するという近似法である。このことは式 (2-41) の右辺第2項を次のように表すということである。

$$\sum_c \gamma_{\lambda c} L_{0c} \gamma_{\mu c} \approx \delta_{\lambda\mu} \sum_c L_{0c} \gamma_{\mu c}^2 \quad (2-42)$$

したがって、式(2-41)は

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = \left(E_\lambda - E - \sum_c L_{0c} \gamma_{\mu c}^2 \right) \delta_{\lambda\mu} \quad (2-43)$$

となる。 $L_{0c} = (S_c - B_c) + iP_c$ 、 $\gamma_{\lambda c}^2 = \frac{\Gamma_{\lambda c}}{2P_c}$ であるから、

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = \left(E_\lambda - E + \Delta_\lambda - \frac{i}{2} \Gamma_\lambda \right) \delta_{\lambda\mu} \quad (2-44)$$

である。ここで、 $\Delta_\lambda = -\sum_c \frac{S_c - B_c}{2P_c} \Gamma_{\lambda c}$ 、 $\Gamma_\lambda = \sum_c \Gamma_{\lambda c}$ とする。 $E_\lambda \rightarrow E_\lambda + \Delta_\lambda$ とシフト

すると、Level matrix は以下ようになる。

$$A_{\lambda\mu} = \frac{\delta_{\lambda\mu}}{E_{\lambda} - E - \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda}} \quad (2-45)$$

これを式(2-40)に代入すると、Collision matrix $U_{cc'}$ は

$$U_{cc'} = e^{-i(\phi_c + \phi_{c'})} \left[\delta_{cc'} + i \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{E_{\lambda} - E - \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda}} \right] \quad (2-46)$$

となる。

捕獲反応などのように入射チャンネルと放出チャンネルが異なる場合 ($c \neq c'$)、Collision matrix $U_{cc'}$ と reaction cross section はそれぞれ次のように与えられる。

$$U_{cc'} = e^{-i\left(\phi_c + \phi_{c'} - \frac{\pi}{2}\right)} \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{E_{\lambda} - E - \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda}} \quad (2-47)$$

$$\sigma_{cc'} = \pi \hat{\lambda}^2 |U_{cc'}|^2 = \pi \hat{\lambda}^2 U_{cc'} U_{cc'}^* \quad (2-48)$$

式(2-47)を式(2-48)に代入すると、reaction cross section は

$$\sigma_{cc'} = \pi \hat{\lambda}^2 \sum_{\lambda} \sum_{\lambda'} \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \Gamma_{\lambda c'}^{1/2} \Gamma_{\lambda' c}^{1/2} \Gamma_{\lambda' c'}^{1/2}}{(\varepsilon_{\lambda} - E)(\varepsilon_{\lambda'}^* - E)} \quad (2-49)$$

で与えられる。ここで、 $\varepsilon_{\lambda} = E_{\lambda} - \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda}$ 、 $\varepsilon_{\lambda}^* = E_{\lambda} + \frac{i}{2}\Gamma_{\lambda}$ である。この式を分解すると、

$$\sigma_{cc'} = \pi \hat{\lambda}^2 \left\{ \sum_{\lambda\lambda'} \frac{M_{\lambda\lambda'}^{cc'}}{(\varepsilon_{\lambda'}^* - \varepsilon_{\lambda})(\varepsilon_{\lambda} - E)} - \sum_{\lambda\lambda'} \frac{M_{\lambda\lambda'}^{cc'}}{(\varepsilon_{\lambda'}^* - \varepsilon_{\lambda})(\varepsilon_{\lambda'}^* - E)} \right\} \quad (2-50)$$

となる。ここで、 $M_{\lambda\lambda'}^{cc'} = \Gamma_{\lambda c}^{1/2} \Gamma_{\lambda c'}^{1/2} \Gamma_{\lambda' c}^{1/2} \Gamma_{\lambda' c'}^{1/2}$ である。式(2-50)の右辺第2項は右辺第1項の複素共役であるから、

$$\sigma_{cc'} = 2\pi \hat{\lambda}^2 \operatorname{Re} \left\{ \sum_{\lambda} \frac{1}{(\varepsilon_{\lambda} - E)} \sum_{\lambda'} \frac{M_{\lambda\lambda'}^{cc'}}{(\varepsilon_{\lambda'}^* - \varepsilon_{\lambda})} \right\} \quad (2-51)$$

となる。 λ' に関する総和を展開すると、reaction cross section は最終的に、

$$\sigma_{cc'} = 4\pi \hat{\lambda}^2 \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\lambda c'}}{\Gamma_{\lambda}^2} \left[(\operatorname{Re} C_{\lambda}^{cc'}) \nu_{\lambda} + (\operatorname{Im} C_{\lambda}^{cc'}) \chi_{\lambda} \right] \quad (2-52)$$

となる。ここで、

$$C_{\lambda}^{cc'} = 1 + \sum_{\lambda \neq \lambda'} \frac{\gamma_{\lambda'c}}{\gamma_{\lambda c}} \frac{i\Gamma_{\lambda c}}{E_{\lambda'} - E + \frac{i}{2}(\Gamma_{\lambda'} + \Gamma_{\lambda})} \frac{\gamma_{\lambda'c'}}{\gamma_{\lambda c'}} \quad (2-53)$$

$$\psi_{\lambda} = \frac{\Gamma_{\lambda}^2/4}{(E_{\lambda} - E)^2 + \Gamma_{\lambda}^2/4} \quad (2-54)$$

$$\chi_{\lambda} = \frac{(E_{\lambda} - E)\Gamma_{\lambda}/2}{(E_{\lambda} - E)^2 + \Gamma_{\lambda}^2/4} \quad (2-55)$$

である。式(2-52)から式(2-55)を用いて、MLBW 近似による共鳴断面積の計算を行うことができる。また、同様に弾性散乱断面積についても同様の導出を行うことが可能である。

2.3.3.3 Single Level Breit-Wigner 近似

Single Level Breit-Wigner (SLBW) 近似は MLBW 近似の特別な場合であり、式(2-53)の右辺第2項を0にする近似である。つまり、 $C_{\lambda}^{cc'} = 1$ であるから、

$$\sigma_{cc'} = \pi \tilde{\lambda}^2 \frac{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\lambda c'}}{(E_{\lambda} - E)^2 + \Gamma_{\lambda}^2/4} \quad (2-56)$$

となる。この式は Breit-Wigner の一準位公式[55]としてよく知られた形であり、孤立した共鳴に対しての計算に用いられる。

2.3.3.4 Reich-Moore 近似

Reich と Moore は核分裂断面積中に現れる非対称の形状をした共鳴を再現するため、多準位の共鳴の干渉を考慮した R-Matrix の近似法を導いた[53]。MLBW 近似においては Level matrix の非対角成分を全て無視していたが、Reich-Moore (RM) 近似においてはそれらの非対角成分の多くを残すことになる。したがって、MLBW よりも厳密な表現をすることができる。言い換えれば、ある放出チャンネル、ある準位の共鳴が他のどの位の共鳴から干渉を受けているかという問題に対して、RM 近似は MLBW 近似よりも多くの共鳴からの干渉を考慮しているということである。RM 近似では、 γ 線放出チャンネルの内、 $\mu \neq \lambda$ となる共鳴同士の干渉が非常に小さいとして扱っている。式(2-41)を次のように書き換える。

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = (E_{\lambda} - E)\delta_{\lambda\mu} - \left(\sum_{c \in \gamma} \gamma_{\lambda c} L_{0c} \gamma_{\mu c} + \sum_{c \notin \gamma} \gamma_{\lambda c} L_{0c} \gamma_{\mu c} \right) \quad (2-57)$$

RM 近似では、式(2-57)の第2項目を次のように近似する。

$$\sum_{c \in \gamma} \gamma_{\lambda c} L_{0c} \gamma_{\mu c} \approx \delta_{\mu\gamma} \sum_{c \in \gamma} L_{0c} \gamma_{\lambda c}^2 \quad (2-58)$$

MLBW 近似の場合と同様に、 $\Delta_{\lambda\gamma} = -\sum_{c \in \gamma} \frac{S_c - B_c}{2P_c} \Gamma_{\lambda c}$ 、 $\Gamma_{\lambda\gamma} = \sum_{c \in \gamma} \Gamma_{\lambda c}$ と定義し、

$E_\lambda \rightarrow E_\lambda + \Delta_\lambda$ とシフトすると、

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = \left(E_\lambda - E - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda\gamma} \right) \delta_{\lambda\mu} + \sum_{c \notin \gamma} \gamma_{\lambda c} L_{0c} \gamma_{\mu c} \quad (2-59)$$

となる。

次に、RM 近似における Level matrix と Collision matrix の関係は次のようになる。

$$U_{cc'} = e^{-i(\phi_c + \phi_{c'})} \left\{ \delta_{cc'} + 2iP_c^{1/2} \left[\sum_{c'' \notin \gamma} R_{cc''} (\delta_{c''c'} - L_{0c''} R_{c''c'})^{-1} \right] P_{c'}^{1/2} \right\} \quad (2-60)$$

ここで、

$$R_{cc''} = \sum_{\mu} \frac{\delta_{\mu c} \delta_{\mu c''}}{E_\mu - E - \frac{i}{2} \Gamma_{\mu\gamma}} \quad (2-61)$$

である。式(2-61)は R-Matrix の一般的な形である式(2-15)と似た形である。式(2-61)を reduced R-Matrix と呼ぶ。また、

$$K_{cc'} = iP_c^{1/2} R_{cc'} P_{c'}^{1/2} \quad (2-62)$$

という量を新たに導入すると、Collision matrix は最終的に以下の形となる。

$$U_{cc'} = e^{-i(\phi_c + \phi_{c'})} \left[2(I - K)_{cc'}^{-1} - \delta_{cc'} \right] \quad (2-63)$$

この時、

$$(I - K)_{cc'} = \delta_{cc'} - \frac{i}{2} \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{E_\lambda - E - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda\gamma}} \quad (2-64)$$

となる。また、

$$\rho_{cc'} = \delta_{cc'} - (I - K)_{cc'} \quad (2-65)$$

という量を新たに導入すると、

$$U_{cc'} = e^{-i(\phi_c + \phi_{c'})} [\delta_{cc'} - 2\rho_{cc'}] \quad (2-66)$$

と表すことができる。

RM 近似における断面積は、 ρ_{cc} を用いて表すと、

$$\sigma_t = 2\pi\hat{\lambda}^2 \sum_l (2l+1) \left[(1 - \cos 2\phi_l) + 2 \operatorname{Re}(\rho_{nn} e^{-2i\phi_l}) \right] \quad (2-67)$$

$$\sigma_{\text{abs}} = 4\pi\hat{\lambda}^2 \sum_l (2l+1) \left[\operatorname{Re}(\rho_{nn}) - |\rho_{nn}|^2 \right] \quad (2-68)$$

$$\sigma_{\text{fission}} = 4\pi\hat{\lambda}^2 \sum_l (2l+1) \sum_{c \in \text{fission}} |\rho_{nc}|^2 \quad (2-69)$$

$$\sigma_\gamma = \sigma_{\text{abs}} - \sigma_{\text{fission}} \quad (2-70)$$

となる。

それぞれの近似法の違いを示す一例として、図 2.3 に RM 近似、MLBW 近似、SLBW 近似を用いて計算された ^{56}Fe の全断面積を示す。SLBW 近似を用いた場合、負の断面積を与えてしまう場合がある。MLBW 近似を用いた場合には、負の断面積は与えないが、近い準位間の干渉の効果を正しく評価できていない。

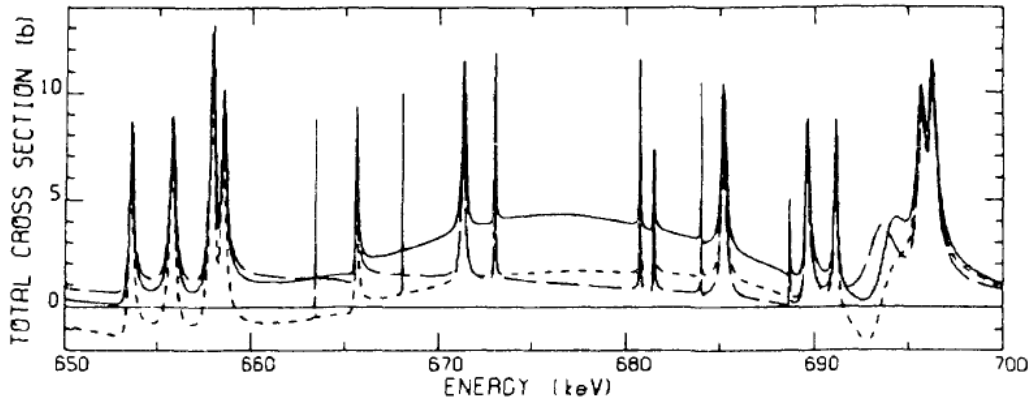


図 2.3: 各種近似法を用いて計算された ^{56}Fe の全断面積[56]。実線は RM 近似、長い破線は MLBW 近似、短い破線は SLBW 近似による計算値を示す。

2.4 REFIT コード

REFIT の正式名称は「A Least-Square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission, Capture, Fission and Scattering Data」という。つまり、共鳴現象に基づく吸収・核分裂・散乱といった TOF 法に基づく観測データを最小二乗フィッティングによって解析するという目的で作成されたプログラムである。具体的には実験データに対するフィッティングから共鳴パラメータの推定を行うことを主目的としており、核データ研究の分野で使用されている。REFIT が取り扱うことのできる共鳴データは①透過率、②吸収もしくは核分裂反応からの即発 γ 線、③Self-Indication、④共鳴散乱である。REFIT はベルギーの IRMM によって開発されたもので、2.3.3.4 で説明した RM 近似に基づく R-Matrix を用いて断面積の計算を行っている。また、使用されている言語は Fortran90 である。同じように R-Matrix を用いて共鳴に関するデータ解析を行うコードとしてオークリッジ国立研究所で開発された SAMMY[57]があり、REFIT とはライバル的な関係にある。

REFIT の主な機能は、JENDL や ENDF/B などの評価済み核データライブラリに格納された共鳴パラメータを利用して断面積の計算を行うこと、入力された実験条件を基に分解能関数を計算してそれを断面積に畳み込み理論的な共鳴スペクトルを作成すること、また、その理論的な共鳴スペクトルを実験データに対してフィッティングすることで未知の情報を推定することである。参照される共鳴パラメータは ENDF-6 フォーマット[58]を始めとするいくつかのフォーマットに対応している。また、Doppler 広がりに関しては後述する4つのモデルが用意されており、原子の熱振動による断面積の広がりを計算することができる。分解能関数としては装置由来のものや検出器に関するもの、ランダムタイムジッター (Random Time Jitter) などを含む。装置由来の分解能関数としては、中性子発生反応における入射荷電粒子のパルス形状と本研究で言うところのパルス関数である減速材による中性子パルスの広がりが含まれる。REFIT では基本的に減速材の水素密度や平均自由行程などを入力値として Ikeda-Carpenter 関数を利用してパルス関数を計算している。検出器としては Li-glass シンチレータや液体シンチレータ、プラスチックシンチレータなど様々なタイプのものを使用することを想定しており、それぞれの応答関数を計算するようになっている。ランダムタイムジッターはデータ収集系などのエレクトロニクスに関するパルス波形の電氣的な揺らぎを意味する。REFIT ではこれらの分解能関数を計算して断面積に畳み込むことで理論的な共鳴スペクトルを計算し、さらにバックグラウンド曲線の仮定や強度の規格化を行うことができる。こうして最終的に実験データに対する最小自乗フィッティングを行う。

2.5 Doppler 効果による断面積の広がり

R-Matrix 理論を用いて求められるのは、静止した原子核に対する中性子断面積である。実際には、原子核は熱振動をしているため、中性子がある速度で標的原子核に入射したとしても標的原子核と中性子の相対速度は変化してしまう（標的原子核が中性子に向かってくれば相対速度は増加し、逆の場合は減少する）。今、エネルギー E を持つ質量 m の中性子が速度 v で速度 u ($u \ll v$) を持つ標的核に向かっている時、中性子の標的核の相対的なエネルギー E' は以下になる。

$$E' = \frac{1}{2} m(v \pm u)^2 = E \pm u\sqrt{2mE} \quad (2-71)$$

これは、中性子の標的核に対する相対的なエネルギーが標的核の速度によって変化するということを示している。つまり、標的原子核の熱振動が激しければ激しいほど（温度が高いほど）、共鳴を引き起こす中性子のエネルギーの幅が増加してゆくということである。標的原子核と中性子の相対速度が広がりを持つことを Doppler 効果という。この Doppler 効果による広がりを考慮した共鳴断面積の計算について説明する。

2.5.1 理想ガスモデル

2.5.1.1 Doppler 効果を考慮した共鳴断面積の一般的な表式

理想ガスモデル（英語では Ideal gas model もしくは Free gas model）では、標的原子核が速度分布をもつ理想気体であると仮定する[59, 60]。エネルギー E 、温度 T における Doppler 効果によって幅を広げられた断面積 $\bar{\sigma}(E)$ は、静止している標的原子核に対する断面積 $\sigma(E)$ にエネルギー伝達関数 $S(E, E')$ を畳み込んだ形で表される[61]。

$$\bar{\sigma}(E) = \int dE' S(E, E') \sigma(E') \quad (2-72)$$

また、理想気体の場合、標的核の速度分布 $p(u)$ は Maxwell-Boltzmann 分布で記述される。

$$p(u)du = \sqrt{\frac{M}{2\pi k_B T}} \exp\left(-\frac{Mu^2}{2k_B T}\right) du \quad (2-73)$$

ここで、 M は標的核の質量、 T は温度、また、 k_B は Boltzmann 定数である。この時、エネルギー伝達関数は以下になる[62]。

$$S(E') = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{(E'-E)^2}{\Delta^2}\right] \quad (2-74)$$

ここで、

$$\Delta = \sqrt{\frac{4Ek_{\text{B}}T}{M/m}} \quad (2-75)$$

であり、これは Doppler 幅と呼ばれる量であり、 m は中性子の静止質量である。この場合、断面積 $\bar{\sigma}(E)$ は以下のように表される[43]。

$$\bar{\sigma}(E) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} dE' \left\{ \exp\left[-\left(\frac{E - \sqrt{EE'}}{\Delta/2}\right)^2\right] - \exp\left[-\left(\frac{E + \sqrt{EE'}}{\Delta/2}\right)^2\right] \right\} \sqrt{\frac{E'}{E}} \sigma(E') \quad (2-76)$$

また、 $E \gg \Delta$ ならば、断面積 $\bar{\sigma}(E)$ は以下のように近似される[43]。

$$\bar{\sigma}(E) \approx \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} dE' \exp\left[-\left(\frac{E' - E}{\Delta}\right)^2\right] \sqrt{\frac{E'}{E}} \sigma(E') \quad (2-77)$$

これは Doppler 効果を考慮した共鳴断面積の一般的な表式である。また、この式において、断面積 $\sigma(E)$ は SLBW 近似や RM 近似によって計算されるものである。より具体的な表式として、次に SLBW 公式に対する Doppler 効果の考慮を考える。

2.5.1.2 Doppler 効果を考慮した SLBW 公式による共鳴断面積の表式

SLBW 近似に関する式(2-56)をより具体的な形として書き直すと次のようになる。

$$\sigma(E) = \pi\lambda^2 g \sqrt{\frac{E_0}{E}} \frac{\Gamma_n \Gamma_{\gamma'}}{(E - E_0 - R)^2 + \Gamma^2/4} \quad (2-78)$$

ここで、 Γ 、 Γ_n 、 $\Gamma_{\gamma'}$ はそれぞれ全幅、中性子幅、放射幅を示す。 λ は2.3.2で示した通り換算波長であるが、ここでは標的核（質量 M ）と中性子（質量 m ）による換算質量を用いて計算される。 g は統計的な因子であり、複合核のスピン J と標的核のスピン I 、中性子のスピン s （ $= 1/2$ ）によって次のように表される。

$$g = \frac{2J+1}{(2s+1)(2I+1)} = \frac{1}{2} \left(\frac{2J+1}{2I+1} \right) \quad (2-79)$$

ここで、 E_0 は原子が無限の質量を持ち、複合核が反跳エネルギーを持たない場合の重心系における共鳴エネルギーである。また、 R は反跳エネルギーであり、

$$R = \frac{m}{M} E_0 \quad (2-80)$$

となる。

Lamb[60]によると、式(2-78)で示した Doppler 効果を考慮した共鳴断面積は以下のよ

うになる。

$$\sigma(E) = \sigma_0 \frac{\xi}{2\sqrt{\pi}} \int dy \frac{\exp\left[-(\xi/2)^2(x-y)^2\right]}{1+y^2} \quad (2-81)$$

ここで、変数 σ_0 及び x 、 ξ はそれぞれ以下のように定義される。

$$\sigma_0 = 4\pi\hbar^2 g \frac{\Gamma_n}{\Gamma} \quad (2-82)$$

$$x = \frac{2}{\Gamma}(E - E_0 - R) \quad (2-83)$$

$$y = \frac{2}{\Gamma}(E' - E_0 - R) \quad (2-84)$$

$$\xi = \frac{\Gamma}{\Delta} \quad (2-85)$$

2.5.2 理想ガスモデル以外のモデルによる Doppler 拡がりの表現

低温における低エネルギーの共鳴に対しては、結晶や分子中の原子核の振動による影響が大きくなってくる[45]。より正確に Doppler 効果を考慮した共鳴断面積の計算を行う場合には、理想ガスモデルではなく、中性子とフォノンとの相互作用を考慮するようなモデルを用いる必要がある。

例えば、REFIT コードには理想ガスモデルに加えて、Moxon's Phonon モデル[40]、Meister's Einstein Crystal モデル[63]、Naberejnev's Harmonic Crystal モデル[40]による Doppler 拡がりの計算方法が実装されている。

Moxon's Phonon モデルでは断面積を2つの成分に分けて計算を行う。まずは、中性子が I-フォノンからエネルギーを得たり失ったりする場合を考える。それらの相互作用の寄与は Debye-Waller 因子に依存した量となる。入射中性子のエネルギーを E_n とすると、Debye-Waller 因子は、

$$W = E_n \left(\frac{M_n}{M} \right) \left(\frac{3T}{\theta^2} \right) \left[1 + \alpha \left(\frac{\theta}{T} \right)^2 + \beta \left(\frac{\theta}{T} \right)^4 \right] \quad (2-86)$$

となる。ここで、 α と β は一般的にはそれぞれ 1/36 と 1/3600 となる。I-フォノンによる相互作用の寄与は

$$F_0 = \exp(-2W) \quad (2-87)$$

$$F_{\pm 1} = 2W \exp(-2W) \quad (2-88)$$

$$F_{\pm 2} = \frac{1}{2}(2W)^2 \exp(-2W) \quad (2-89)$$

となる。 F_0 は中性子がエネルギーを得たり失ったりしない場合の寄与、 $F_{\pm 1}$ は I-フォノンによって中性子がエネルギーを得たり失ったりする場合の寄与である。Doppler 拡がりを考慮した断面積はこれらの寄与を利用して以下のように表される。

$$\bar{\sigma}(E_n) = \sum_j F_j \sigma(E_n + jE_p) \quad (2-90)$$

ここで、 E_p はフォノンのエネルギーである。つまり、中性子の入射エネルギー E_n がフォノンのエネルギー E_p によって増減し、その変化した入射エネルギーにおける断面積を足し合わせることで結合を考慮した Doppler 拡がり表現している。また、2 つ目の成分は、残りのさらなる多フォノンとの相互作用による寄与、つまり残りの $(1 - \sum F_j)$ の分は理想ガスモデルを用いて計算を行う。

Meister's Einsten Crystal モデルと Naberejnev's Harmonic Crystal モデルに関しても、Moxon's Phonon モデルと基本的には同様で、入射中性子のシフトしたエネルギーにおける断面積の足し合わせで Doppler 効果を考慮した共鳴断面積を表現する。これらは、より詳細にフォノンによる寄与の計算を行うため、より正確な Doppler 効果の表現を可能にするが、その反面非常に多くの情報が必要になってくる。

理想ガスモデルの場合、それぞれの核種に対して個別に必要な情報というのは、Debye 温度のみである。対して、Moxon's Phonon モデルを始めとするそれ以外のモデルを用いる場合、それに加えてフォノンの状態密度関数などの情報が不可欠となってくる。全ての核種、全ての化合物についてそういった情報が与えられているわけではないため、Doppler 拡がりの表現には理想ガスモデルを使うことが一般的である。また、REFIT による断面積計算に関して、いくつかの核種に対して理想ガスモデルと Moxon's Phonon モデルにより計算した断面積の比較を行った研究によると、双方に有意な差が見られないという結果がある[64]。加えて、本研究で扱う試料の温度は全て室温であり、かつ、計算時間も理想ガスモデルが最も短い。そのため、本研究では Doppler 拡がりの計算に関しては、理想ガスモデルを使用している。

2.5.3 理想ガスモデルにおける実効温度の導入

理想ガスモデルでは標的原子核を気体として取り扱っているが、実際の試料は固体結晶である場合が大半である。固体結晶の場合、標的原子核同士は結合しており、この効果を考慮に入れなくてはならない。そのため、試料の実温度 T の代わりに実効温度 T_{eff} を用いて計算を行う。実効温度 T_{eff} は結晶の格子振動の自由度あたりの平均エネルギーを温度に換算したものに等しい。実温度 T と実効温度 T_{eff} の関係は以下のように表される[60, 61]。

$$k_B T_{\text{eff}} = \frac{1}{2} \int g(\nu) h \nu \coth\left(\frac{h \nu}{2 k_B T}\right) d\nu \quad (2-91)$$

ここで、 $g(\nu)$ は振動数 ν のフォノンの状態密度関数である。 $E = h \nu$ の関係を用いて式(2-91)を書き換えると、

$$k_B T_{\text{eff}} = \frac{1}{2} \int_0^\infty g(E) E \coth\left(\frac{E}{2 k_B T}\right) dE \quad (2-92)$$

となる。固体結晶を Debye 連続体として扱い、弱い結合近似を用いると、式(2-92)は

$$k_B T_{\text{eff}} = \frac{3}{2} \int_0^{k_B \theta} \frac{1}{(k_B \theta)^3} E^3 \coth\left(\frac{E}{2 k_B T}\right) dE \quad (2-93)$$

となる。ここで、 θ は Debye 温度を表す。

さらに、Einstein モデルについて考える。よく知られているように、比熱の問題に関して Einstein モデルは結晶中の各原子が独立に振動し、同一の振動数を有しているとする理論である。Einstein モデルを用いると、式(2-91)は次のように近似できる[61]。

$$k_B T_{\text{eff}} = \frac{1}{2} h \nu_E \coth\left(\frac{h \nu_E}{2 k_B T}\right) \quad (2-94)$$

ここで、 ν_E は Einstein 振動数であり、Debye 温度と以下の関係を持つ。

$$h \nu_E = \frac{3}{4} k_B \theta \quad (2-95)$$

つまり、Einstein モデルを用いると、実温度 T と実効温度 T_{eff} の関係は以下のようになる。

$$T_{\text{eff}} = \frac{3}{8} \theta \coth\left(\frac{3}{8} \theta / T\right) \quad (2-96)$$

Einstein モデルは Debye モデルに比べて単純なモデルであり、低温領域での比熱が実測値と一致しないなど、低温領域での格子振動のフォノンの取り扱いには正確性が欠ける。しかし、測定試料の温度が Debye 温度と比べて著しく低くない限りにおいては

Einstein モデルを用いた式(2-96)を用いても問題はない。

図 2.4 に一例として式(2-96)を用いて計算した Cu と Ta の温度 T と実効温度 T_{eff} の関係を示す。低温側では T と T_{eff} の間に大きな差が見られるが、温度 T が上昇するに従い、実効温度 T_{eff} は温度 T に漸近してくる。また、Debye 温度が低い方がより早く漸近している。

また、共鳴断面積の Doppler 効果による影響の一例として、図 2.5 に ^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴の捕獲断面積の温度による変化の計算例を示す。温度が 0 K、つまり Doppler 効果を考慮していない断面積は非常にシャープな形状をしていることがわかる。一方で、温度が増加するに従い、断面積は鈍された形状となり、幅が広がっていることがわかる。

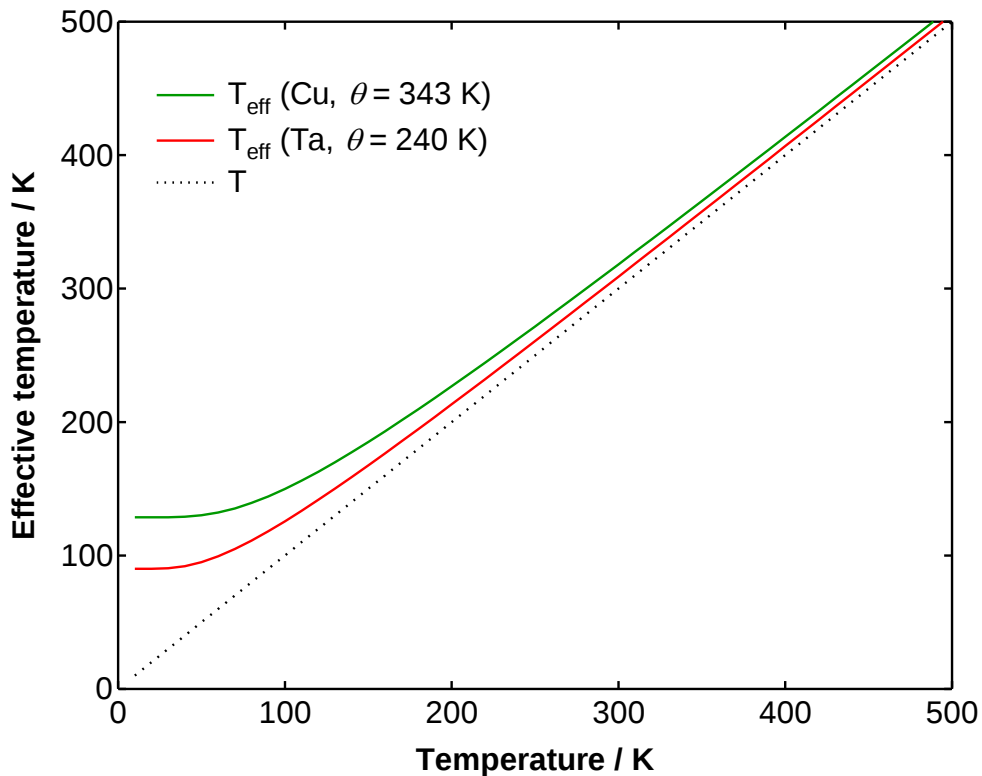


図 2.4 : Cu と Ta の実効温度の実温度に対する変化。Cu と Ta の Debye 温度はそれぞれ 343K と 240 K である[65]。破線は実温度を表す。

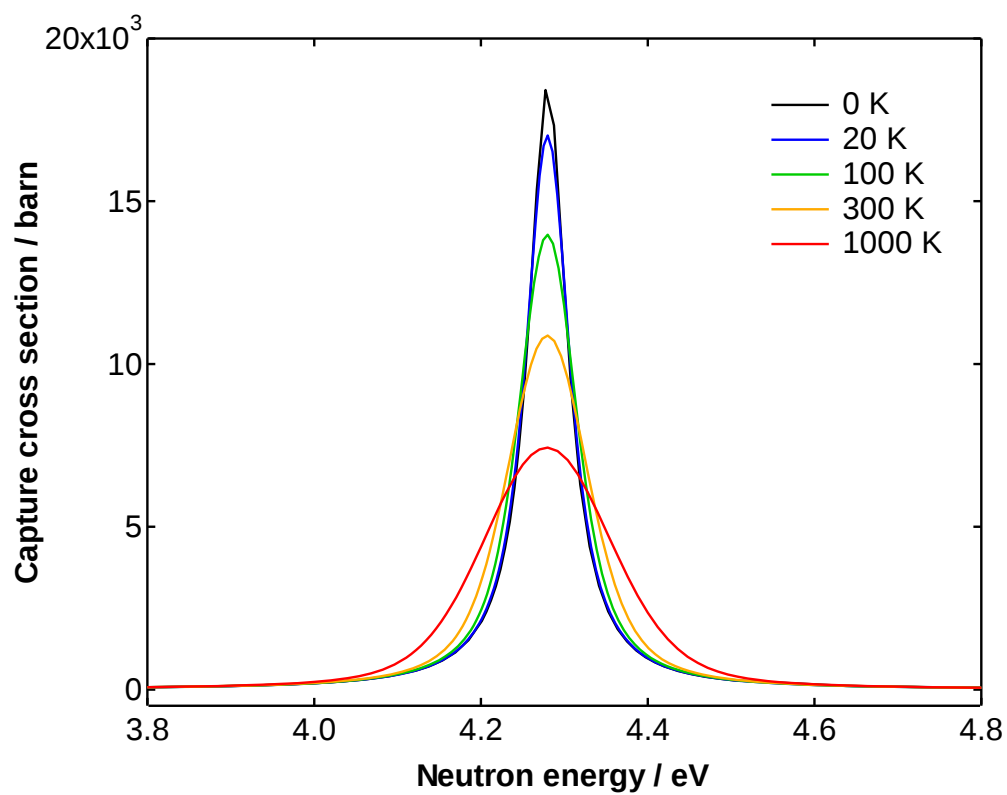


図 2.5 : ^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴に対する捕獲断面積の温度による変化の計算例。

2.6 第 2 章のまとめ

本章では、中性子と原子核の共鳴現象を説明する複合核モデル及び共鳴断面積の表式に用いられる R-Matrix 理論とその近似法について説明した。また、Doppler 効果による共鳴の広がりを書述するための理想ガスモデルについて説明し、その具体的な計算例を示した。

複合核過程及び複合核の崩壊を入射チャンネル及び放出チャンネルを用いて記述を行うのが R-Matrix 理論である。この R-Matrix 理論を用いることで共鳴断面積のパラメータ化が可能であり、共鳴解析において重要な理論である。R-Matrix の導出及び R-Matrix による共鳴断面積の表式を示した。また、数学的に厳密な R-Matrix に関する近似法である Multilevel Breit-Wigner 近似、Single Level Breit-Wigner 近似及び Reich-Moore 近似について説明し、この近似法における共鳴断面積の表式を行った。

Doppler 効果による共鳴断面積の広がりに関して、理想ガスモデルの説明を行い、一般的な共鳴断面積への適用及び Single Level Breit-Wigner 公式で表された断面積への応用について示した。また、理想ガスモデルにおいて用いられる実効温度と固体の温度の関係を Einstein モデル及び Debye モデルによって表し、Cu や Ta の実効温度の具体的な計算例及び温度による Ta の共鳴断面積の広がり の計算例を示した。

第3章 定量化のための解析システムの開発

第1章で説明したように、中性子透過率スペクトル中に現れる共鳴吸収ディップは中性子のパルス関数によってその形状が変化する。透過型 N-RAS を用いた原子数密度の定量化のため、正確なパルス関数を解析に取り入れる必要がある。つまり、使用する装置のパルス関数を求め、それを共鳴吸収ディップに畳み込む機能を有する解析コードに実装することが原子数密度定量化のための必要条件である。通常、波長の長い中性子に対しては回折を利用したパルス関数の測定が可能である。しかし、共鳴に用いるような波長の短い中性子に対しては回折を利用したパルス関数測定を行うことができない。したがって、本研究では、J-PARC の MLF の BL10「NOBORU」において透過型 N-RAS による原子数密度定量化を行うべく、まず、モンテカルロシミュレーション計算により NOBORU における熱外中性子の放出時間分布を求めた。その結果に対していくつかの関数を用いてフィッティングを行い、NOBORU のパルス関数を最もよく再現する関数を求めた。また、即発 γ 線型 N-RAS 実験を行い、測定した共鳴ピークからパルス関数のパラメータを変数としたフィッティングを行い、求めたパルス関数の妥当性を確認した。加えて、N-RAS 実験に用いられる装置である北海道大学 45 MeV 電子線形加速器施設の中性子源 HUNS について、NOBORU の場合と同様な解析を行ってパルス関数の決定を行った。最後に、NOBORU 及び HUNS のパルス関数を共鳴解析コード REFIT を改造して組み込むことで、共鳴吸収ディップの解析を可能にする解析システムを作成した。

3.1 減速材中の中性子の減速過程とパルス関数

3.1.1 減速過程[50]

パルス関数の定式化を行うにあたって、媒質（減速材）中での中性子の減速過程を考える。まず、レサジー（Lethargy）という概念を導入する。レサジー u は次のように定義される。

$$u = \ln \left(\frac{E_Q}{E} \right) \quad (3-1)$$

ここで、 E_Q は任意のエネルギーであり、多くの場合中性子源のスペクトルに現れる最大エネルギーを用いる。また、レサジー u 、時間 t における中性子束 $\Phi(u, t)$ とそのラプラス変換 $\bar{\Phi}(u, s)$ の関係は以下になる。

$$\bar{\Phi}(u, s) = \int_0^{\infty} \Phi(u, t) e^{-st} dt \quad (3-2)$$

$$\Phi(u, t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{\sigma-i\infty}^{\sigma+i\infty} \bar{\Phi}(u, s) e^{st} ds \quad (3-3)$$

ここでは簡単のため、水素の無限媒質中の中性子の減速過程について考える。ある1つの中性子源 ($u=0$) が存在する時、媒質中の中性子束 $\Phi(u)$ は

$$\Phi(u) = \left(\frac{\Sigma_s}{\Sigma_s + \Sigma_a} \right)_{u=0} e^{-\int_0^u \frac{\Sigma_a}{\Sigma_s + \Sigma_a} du'} + \frac{\delta(u)}{\Sigma_s + \Sigma_a} \quad (3-4)$$

で与えられる。ここで、 Σ_s は水素の巨視的散乱断面積、 Σ_a は巨視的吸収断面積である。この式に対してラプラス変換を行うと次のようになる。

$$\bar{\Phi}(u, s) = \frac{\Sigma_s + s/v_Q}{(\Sigma_s + s/v)^3} \Sigma_s + \frac{\delta(u)}{\Sigma_s + s/v_Q} \quad (3-5)$$

ここで、 Σ_s は一定であるという仮定を置いている。また、 v_Q は中性子源における中性子の速度であり ($u=0$)、 v はレサジー u を有する中性子の速度である。つまり、

$$v = v_Q e^{-u/2} \quad (3-6)$$

である。式(3-5)のラプラス逆変換は

$$\Phi(u, t) = \frac{v}{2} (\Sigma_s v t)^2 \left[1 - \frac{v}{v_Q} + \frac{2}{\Sigma_s v_Q t} \right] e^{-\Sigma_s v t} + v_Q \delta(u) e^{-\Sigma_s v_Q t} \quad (3-7)$$

となる。この式は水素の無限媒質中においてレサジー u の中性子がどのような時間分布を有しているかということを表している。式(3-7)の第2項は衝突していない中性子による寄与である。ここでは式(3-7)の第1項について考える。 $u=0$ という前提から、小さいエネルギーの中性子に対しては $v \ll v_Q$ となる。また、ここで $\Sigma_s v_Q t \gg 1$ である。さらに、 $\Phi(v, t) = \frac{2}{v} \Phi(u, t)$ という関係を導入すると、式(3-7)の第1項目は

$$\Phi_{As}(v, t) = (\Sigma_s v t)^2 e^{-\Sigma_s v t} \quad (3-8)$$

となる。この式はある時間 t における中性子の速度分布、もしくはある速度 v を有する中性子の時間分布を表すものである。後者はパルス関数の意味するところである。式(3-8)を用いて計算したいくつかの速度における中性子の時間分布を図3.1に示す。このようにして、いくつかの仮定を置いているが、パルス関数を計算することが可能である。

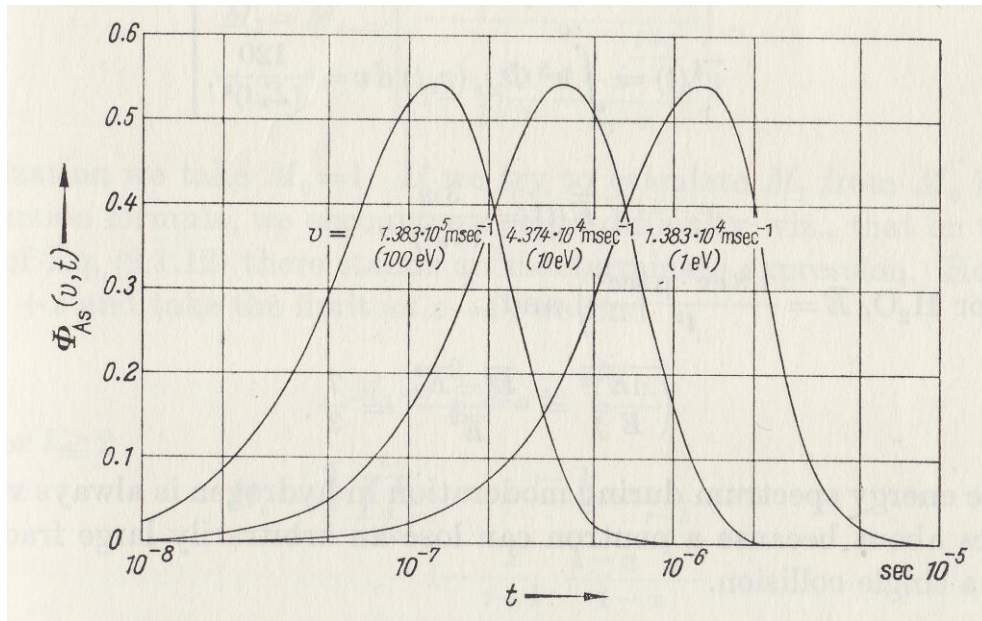


図 3.1 : いくつかの速度における中性子の時間分布[50]。

3.1.2 パルス関数の種類

パルス中性子源におけるパルス関数は、減速材の構成物質や温度または形状、そして反射体の構成物質などによって変わってくるため、施設によって様々な関数が用いられている。この項では、フィッティングに先立って代表的なものについてまとめる。

3.1.2.1 共鳴解析に用いられるパルス関数

共鳴解析（N-RAS または核データ測定）に利用されるパルス中性子源のパルス関数についてまとめる。

(a) Ikeda-Carpenter 関数

Ikeda と Carpenter はアルゴンヌ国立研究所の中性子施設 IPNS（Intense Pulsed Neutron Source）の室温ポリエチレン減速材からの中性子放出時間分布の測定とパルスフィット用の関数の導出を行った[66]。室温ポリエチレン減速材からの中性子放出時間分布は自由度 6 の χ^2 分布を用いて表すことができる。

$$\phi(v, t) = \frac{\Sigma v}{2} (\Sigma v t)^2 \exp(-\Sigma v t) \quad (t > 0) \quad (3-9)$$

ここで、 Σ は減速材の中性子微視的散乱断面積、 v は中性子の速度を表す。この式は式(3-8)と同じである。この式によって、中性子放出時間分布のピーク部分を表すことができる。さらに、分布の減衰部分を考慮すると、

$$\psi(v, t) = \int dt' \phi(v, t') \{ (1-R)\delta(t-t') + R\beta\theta(t-t')\exp[-\beta(t-t')] \} \quad (3-10)$$

となる。ここで、 θ は Heaviside 関数を表す ($\theta(x < 0) = 0$ 、 $\theta(x > 0) = 1$)。また、 R は第2項の面積の全体の面積に対する比であり、 β は減衰時間に関わる係数である。式(3-10)の第1項は **Slowing-down term**、第2項は **Storage term** と呼ばれる。**Slowing-down term** が意味するところは、減速材内で減速過程にある中性子が熱化する前に放出され、その中性子が形作る分布ということである。一方で、**Storage term** は熱化された後に放出された中性子が形作る分布という意味である。式(3-10)は次のように展開される。

$$\psi(v, t) = (1-R)\psi_{\text{Slowing-down}}(v, t) + R\psi_{\text{Storage}}(v, t) \quad (3-11)$$

$$\psi_{\text{Slowing-down}}(v, t) = \frac{\alpha}{2} (\alpha t)^2 e^{-\alpha t} \quad (3-12)$$

$$\psi_{\text{Storage}}(v, t) = \frac{2\alpha^2\beta}{(\alpha-\beta)^3} \left\{ e^{-\beta t} - e^{-\alpha t} \left[1 + (\alpha-\beta)t + \frac{1}{2}(\alpha-\beta)^2 t^2 \right] \right\} \quad (3-13)$$

ここで、 $\alpha = v\Sigma$ である。また、通常は飛行距離やトリガー時間の補正のために時間 t を t_0 だけシフトさせる。

式(3-9)もしくは式(3-11)を用いて、様々な施設のパルス中性子源におけるパルス関数の再現が成功している。例えば、KEK のパルス中性子源 KENS (KEK Neutron Source) の水減速材のパルス関数は Ikeda-Carpenter 関数を用いて再現されている[67]。

(b) Funk の χ^2 分布

Funk と Lynn は Los Alamos Neutron Science Center (LANSCE) の核破砕中性子源のパルス関数の導出を行った[68]。このパルス関数は2つの χ^2 分布 $f_n(t)$ の足し合わせで表される。

$$p(t) = wf_1(t) + (1-w)f_2(t) \quad (3-14)$$

$$f_n(t) = \left[\frac{(t-t_n)^{(\nu-2)/2}}{\Gamma(\nu/2)} \tau^{\nu/2} \right] \exp\left[-\frac{t-t_n}{\tau_n}\right] \quad (t \geq t_n),$$

$$f_n(t) = 0 \quad (t < t_n) \quad (3-15)$$

ここで、 t_n と τ_n は $E^{1/2}$ に反比例する変数である。これらのパラメータ (t_n 、 τ_n 、 ν_n 、 w) は ^{238}U の共鳴へのフィッティングによって決定されている。また、 $\Gamma(\nu/2)$ はガンマ関数である。

このパルス関数を用いて、Lynn ら[68]は LANSCE において共鳴ディップの Doppler 拡がりの解析から Pu-Ga 合金中のフォノンスペクトルを求めている。また、Yuan らは Shock temperature の測定を行っている[69]。

(c) ガウス分布

一般的なガウス分布をパルス関数として用いる場合もある。Stone らは ISIS のビームライン PEARL のパルス関数が次の関数で表されるとしている⁴[15, 19]。

$$R(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(E - E_R)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (3-16)$$

ここで、 E_R は共鳴エネルギー、 σ^2 は分散である。Stone らはこのパルス関数を用いて共鳴吸収による温度測定を行っている。このパルス関数はエネルギー E の関数となっている。これはある時間 t に減速材から放出された中性子が持っているエネルギーの分布を表していることとなる。したがって、時間 t の関数 $R(t)$ で表した場合との違いは、エネルギーを固定して考えるか、時間を固定して考えるかという違いだけである。

(d) Günsing の式

ベルギーの IRMM の中性子施設 GELINA の専用のパルス関数として、Günsing の式[40, 70]がある。この式は Ikeda-Carpenter 関数と似ており、 χ^2 分布に似た式に減衰項を足した形式で書かれる。

$$R(t) = A_0 \left[\frac{(t + \tau)^2}{2! \Lambda^3} e^{-(t+\tau)/\Lambda} \right] + A_1 \left[A_2 e^{-(A_3(t+\tau))} + A_4 e^{-(A_5(t+\tau))} \right] X(t) \quad (3-17)$$

ここで、 Λ 、 τ 、 A_n はエネルギーに依存したパラメータであり、Flaska らによって求められている[40, 71]。また、 $X(t)$ は減衰項が必要であれば 1、必要でなければ 0 になる。また、この関数は CERN の n_TOF において、アップグレード前の期間 (Phase1 : 2001~2004 年) における共鳴解析にも利用されていた[72]。

3.1.2.2 共鳴解析以外に用いられるパルス関数

中性子回折など共鳴解析以外の用途に使用されるパルス関数がいくつかあげられる。一般的にこれらの関数を共鳴解析に用いることはほとんどない。しかし、次にあげる 2 つの関数は物理モデルに基づいて作られた関数というわけではなく、パルス関数特有の非対称な分布を再現するために作られた関数である。したがって、共鳴領域の中性子のパルス関数を表すのにも有効である可能性があるためここでまとめる。

(a) 擬 Voigt 関数

Voigt 関数はガウス関数とローレンツ関数を畳み込んだ関数であり、中性子回折デー

⁴ Stone らの論文[15]では式(3-16)の $\exp$ の肩の分子の自乗が消えている (つまり、 $(E - E_R)^2$ ではなく、 $(E - E_R)$ となっている)。しかし、普通、ガウス分布は式(3-16)の形式で書かれるものであり、また、Stone らの論文[15]を引用した論文[73]では式(3-16)の形式が書かれていたため、本論文ではこの形式を載せている。

タのフィッティングに利用される。擬 Voigt 関数は Voigt 関数の簡易版とでもいうべき関数であり、ガウス関数とローレンツ関数の畳み込みを行わずに適当な比率で足し合わせるという操作を行う。つまり、式で表せば、

$$F(t) = (1-R) \frac{1}{1+(t/\beta)^2} + R \exp \left[-\left(\frac{t}{\sigma} \right)^2 \right] \quad (3-18)$$

となる。ここで、 β と α はそれぞれローレンツ関数とガウス関数の幅を表す。また、 R は2つの関数の比率である。ガウス関数とローレンツ関数は対称な関数であるため、その足し合わせである擬 Voigt 関数も対称な関数となる。一般的に、パルス関数は非対称の形状をしているため、ピークの前後で異なるパラメータを用いることで、フィッティングを行う。

(b) Cole-Windsor 関数

Cole-Windsor 関数[74]は中性子粉末回折データの解析に用いられる関数である。基本的にはガウス分布と指数関数の組み合わせであり、パルス関数を時間的に3つの領域に分けて表現する。本研究では Cole-Windsor 関数を KENS の粉末回折計 HRP 用に改良した関数[75]を用いている。これは異なるパラメータを有する2つの Cole-Windsor 関数を任意の比率で足し合わせたもので、次のように表される。

$$F(t) = C[(1-R)F_1(t) + RF_2(t)] \quad (3-19a)$$

$$t < t_0, \quad F_1(t) = F_2(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta t}{\sigma_1} \right)^2 \right] \quad (3-19b)$$

$$t_0 < t < t_0 + \gamma_1 \sigma_2^2, \quad F_1(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta t}{\sigma_2} \right)^2 \right] \quad (3-19c)$$

$$t_0 < t < t_0 + \gamma_2 \sigma_2^2, \quad F_2(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta t}{\sigma_2} \right)^2 \right] \quad (3-19d)$$

$$t_0 + \gamma_1 \sigma_2^2 < t, \quad F_1(t) = \exp \left[\frac{(\gamma_1 \sigma_2)^2}{2} - \gamma_1 \Delta t \right] \quad (3-19e)$$

$$t_0 + \gamma_2 \sigma_2^2 < t, \quad F_2(t) = \exp \left[\frac{(\gamma_2 \sigma_2)^2}{2} - \gamma_2 \Delta t \right] \quad (3-19f)$$

ここで、 $\Delta t = t - t_0$ と定義する。つまり、 t_0 はピークの位置に対応するパラメータである。また、 C はパルス関数の強度、 R は2つの関数の比率を表し、 $\sigma_{1,2}$ はガウス関数の

幅、 $\gamma_{1,2}$ は減衰に関するパラメータである。式(3-19b)はパルス立ち上がり表現する。式(3-19c, 19d)はピークの形状を現しており、式(3-19e, 19f)は減衰の形状を現しているが、より実際のパルスの形状に合わせるために 2 つの異なるパラメータを持つ関数を足し合わせている。このことに関する足し合わせ比が R となる。

3.2 シミュレーションによる NOBORU のパルス関数の計算

共鳴が起こるエネルギー領域よりも低い領域におけるパルス関数は、回折と TOF 法を利用して測定される。しかし、1 eV 以上の領域になると中性子の波長が非常に短くなるため、回折を用いてパルス関数を測定することは不可能である。共鳴領域におけるパルス関数は測定した共鳴ピークから共鳴断面積をデコンボリューションすることによって求められる（ただし、実際には厳密な意味でのデコンボリューションではなく、パルス関数のパラメータを可変パラメータとして測定した共鳴ピークに対してフィッティングを行うことでパルス関数のパラメータを求めるということである）。つまり、実験によりパルス関数を求める前にパルス関数を仮定しなければならない。本研究ではまず、モンテカルロシミュレーションにより BONORU における熱外中性子領域 (1 eV ~ 10 keV) のパルス関数を求めることとし、JAEA の原田正英氏から計算データの提供を受けた。以下、原田氏が行ったシミュレーション計算について説明する。

3.2.1 モンテカルロシミュレーションコード

NOBORU のパルス関数の計算には、モンテカルロシミュレーションコードとして 20 MeV 以上のエネルギー領域では PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) [76, 77]を、20 MeV 以下のエネルギー領域では MCNP (A General Monte Carlo N-Particle Transport Code) [78]を用いている。それぞれのシミュレーションコードの概要について説明する。

(a) PHITS

PHITS は日本原子力研究所（現日本原子力研究開発機構）が開発した、幅広いエネルギーを持つ様々な放射線を扱うことのできる汎用の粒子・重イオン輸送計算コードである。PHITS はその前身である高エネルギー核反応モデル組み込み核子中間子輸送コード NMTC/JAM に重イオンの輸送計算機能を組み込んだものである[77]。PHITS を用いることで、任意の 3 次元体系における粒子の挙動をモンテカルロ法を用いてシミュレーションすることができ、計算できる物理量としては粒子フルエンスや発熱量、核反応生成粒子などがある。また、扱える粒子のエネルギー範囲は μeV から TeV に及ぶ広範囲な領域をカバーしており、注目しているエネルギー領域や粒子の種類に合わせて様々な物理モデルを使用することが可能である。図 3.2 に PHITS に組み込まれている物理モデルを

示す。中性子に着目すると、20 MeV 以下のエネルギーでは物理モデルではなく、評価済み核データライブラリを利用している。これは、20 MeV 以下の中性子と物質との相互作用は非常に複雑であるため、物理モデルを用いて再現することがほぼ不可能であるためである。したがって、後述する MCNP コードにおける計算に関しても、このエネルギー領域においては核データライブラリを利用して計算を行っている。また、200 GeV までの範囲では、高エネルギー核子同士の衝突に関して、JAM (Jet AA Microscopic Transport) モデル[79]と呼ばれる核反応モデルを使用している。20 MeV 以上の領域では、核内カスケードモデル INCL (Intra-Nuclear Cascade of Liège) [80]を用いている。

PHITS の応用範囲は幅広く、加速器中性子源の設計のみならず、宇宙分野や医療の分野にまで及ぶ。PHITS が最も大きな役割を果たした仕事の一つとして MLF の中性子源設計が挙げられるであろう (PHITS 開発の経緯は J-PARC の建設と非常に密接に関係している)。

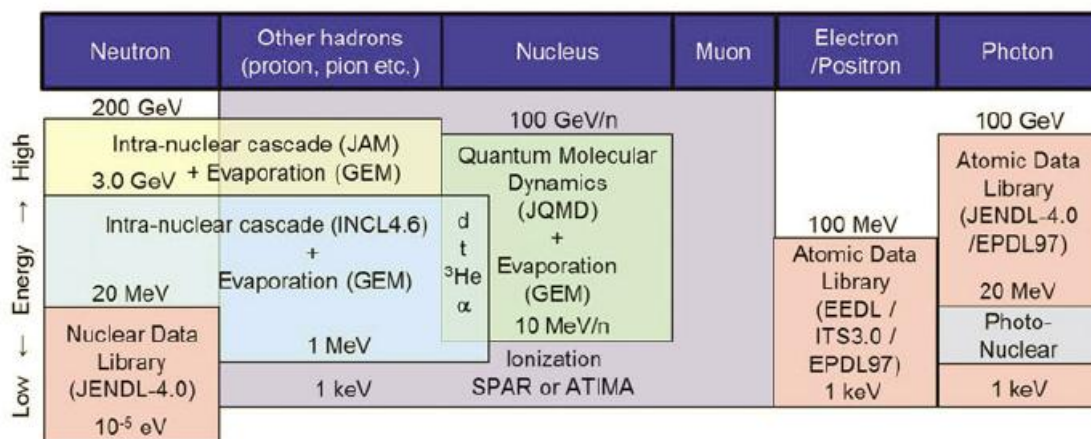


図 3.2 : PHITS に組み込まれている物理モデル[76]。ここで挙げられている物理モデルは PHITS2.52 において推奨されているモデルである。薄い赤色で示された範囲では物理モデルではなく評価済み核データライブラリを利用して計算を行う。

(b) MCNP

MCNP は Los Alamos National Laboratory で開発されたモンテカルロ法による汎用の粒子輸送計算コードである。NOBORU のパルス関数の計算には MCNP4C を使用しており、中性子や光子、電子の輸送に加え、臨界計算を行うことが可能である。MCNP も PHITS と同様に 3 次元体系における粒子の挙動をシミュレーションし、物理量を計算する計算コードであるが、MCNP には点タリー (Point detector) が使用できるという特長がある。

点タリーとは、分散低減法 (Variance reduction technique) の一種で、非アナログモンテカルロ法を用いている。アナログモンテカルロ法では、ソースで生成した粒子が様々な相互作用を経て体系内で吸収により消滅するか、体系外に飛び出るまで計算が続くが、

その間にタリーまでたどり着いた粒子のみがカウントされる。しかし、体系が巨大であったり複雑であったりしてタリーまでたどり着く粒子が極端に少ない場合には、得られる物理量の分散（誤差）が大きくなってしまう。この分散を減らすにはシミュレーションの試行回数を増やせばよいが、現実的な計算時間で結果が得られない場合もある。そういった場合に分散低減法を用いる。点タリーは物理量を得たい面に半径の無い点状のタリーを置き、相互作用点からの粒子フラックスの寄与を計算する方法である。点タリーによるモンテカルロ計算手順は次のようになる。

1. 相互作用点（もしくはソースの点）において擬粒子 (pseudo-particle) を発生させる。
2. 擬粒子が点タリーまで衝突をせずにたどり着く確率を計算する。
3. 相互作用点から通常通りのモンテカルロ計算を再開する。
4. 粒子が相互作用を起こしたら 1.の手順から繰り返す。

つまり、相互作用のたびにタリー位置における得たい物理量の計算を行うことができるということである。また、真の粒子（擬粒子に対しての呼び名）がたとえタリーにたどり着かなくとも物理量の計算を行うことができる。

また、その他の分散低減法として、DXTRAN 法や Russian roulette 法などがある。DXTRAN は点タリーと似た方法で、タリーしたい領域に DXTRAN 球を置き、擬粒子をその球の表面まで移動させてモンテカルロ計算を行う手法である。つまり、DXTRAN 球の半径が 0 の場合、点タリーと DXTRAN 法は等価である。また、Russian roulette 法は、結果に殆んど影響しない領域に飛んできた粒子を任意の確率で“殺す”ことで、計算時間を短縮する方法である。次項で説明するが、パルス関数の計算に用いる体系は非常に大きく、かつ複雑である。そのため、現実的な計算時間で結果を得るためには分散低減法の使用が不可欠である。本研究では分散低減法として一般的な点タリーを用いることとした。

3.2.2 シミュレーションモデル

図 3.3 に JSNS のシミュレーションモデルを示す。このモデルは原田氏らのグループによって作成されたものである。中性子発生ターゲット (Target) の上下に 3 種類の減速材 (Moderator) が配置されており、その周りを反射体 (Reflector) が取り囲んでいる。また、それらはさらに放射線遮蔽体 (Shield) で覆われており、その中を陽子輸送用のビームラインと減速した中性子を各分光器に分けるための 23 本の中性子ビームラインが通っている。シミュレーションモデルではこれらの基本的な構成要素に加えて、ターゲットや減速材の多層構造や冷却チャンネルなど可能な限り正確に再現している。つまり、このシミュレーションモデルは非常に大きな体系 (10 m 以上) というだけではなく、複雑な形状・構造を持った体系である。

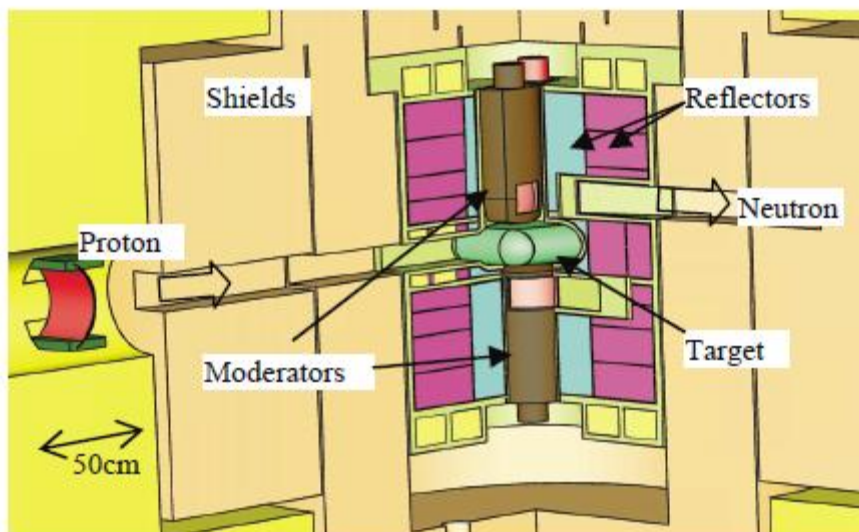


図 3.3 : JSNS のシミュレーションモデル[81]。

次に、これらの構成要素に使用されている主な物質について説明する。JSNS のターゲット材料として液体水銀を用いている。これは 3 GeV の陽子ビームによる発熱を取り除くため、常に液体水銀を循環させるという方式をとっているためである。減速材は結合型減速材 (CM : Coupled moderator)、非結合型減速材 (DM : Decoupled moderator)、ポイズン型減速材 (PM : Poisoned moderator) の 3 種類があり、何れも減速材材料は超臨界水素 (100 %パラ水素) である。100 %パラ水素を用いているのは、低エネルギー領域におけるパラ水素の断面積がオルソ水素よりも 2 桁近く低いためである[82]。DM と PM のデカップラー (Decoupler) として、AIC 合金 (Ag-In-Cd) が用いられており、デカップリングエネルギーは約 1 eV である。また、PM の中性子毒物は 1.25 mm 厚のカドミウムである。CM の前置減速材 (Premoderator) は軽水を用いている。BL10 はこのうち、DM を望んだ配置をとっている。反射体として、内側はベリリウム、外側は鉄を用いている。また、遮蔽体は鋼鉄である。計算に用いたこれらの情報の詳細については文献[81]を参照されたい。

先述したように、20 MeV 以下の領域では中性子と物質との相互作用を考慮するために核データライブラリを利用する。このシミュレーションモデルでは日本の核データライブラリである JENDL-3.2[83, 84]を用いている。また、パラ水素の熱中性子散乱則 $S(\alpha, \beta)$ は MacFrlane[82]が評価した値を用いている。

実際にターゲットに照射される陽子ビームは時間的に拡がりを持っており、加速器の運転条件に依存してその構造は変化する。中性子のパルス関数は陽子パルスによってその幅や形状が変化ため、こちらも加速器の運転条件に依存する。しかし、J-PARC の加速器は年々アップグレードを重ねているため、運転条件はマシンタイムによって変わっ

てくる可能性がある。したがって、全ての運転条件に対してパルス関数を計算し、適切な関数を求めるのは非現実的である。そのため、運転条件に依らない汎用的なパルス関数を求めるため、入射陽子パルスは時間的にデルタ関数としている（陽子のパルス幅が0秒として扱っている）。陽子パルスの構造を考慮したパルス関数を再現するためには、この計算で求めるパルス関数に陽子パルスの構造を畳み込むことで実現される。

3.2.3 シミュレーション結果

シミュレーションではタリーを減速材から10 mの位置に設置している。これは減速材の表面にタリーを設置した場合、減速材以外の場所（主に反射体）から飛来する中性子をも検出してしまい、正しいパルス関数を求めることができないからである。この計算に用いたMCNPは、10 m位置での中性子の飛行時間を減速材表面における放出時間に焼き直すための改造が施されている。

モンテカルロシミュレーションによって求めたNOBORUのパルス関数を図3.4に示す。ここで中性子の強度はピークの値を1として規格化している。立ち上がりやピークトップの形状は全てのエネルギー領域においてそれほど変化が無いように見える。一方で、先にも述べたように、立ち下がり部分の形状はエネルギーが高くなるに従い段々と広がっている様子がわかる。また、代表点として中性子エネルギーが1, 10, 100 eVと1, 10 keVの結果を図3.5に示す。エネルギーが増加するに従って、ピーク強度が減少し、パルス幅が狭くなっていく様子がわかる。また、高エネルギーでは遅い時間までテールを引いている中性子の割合が多くなっている。

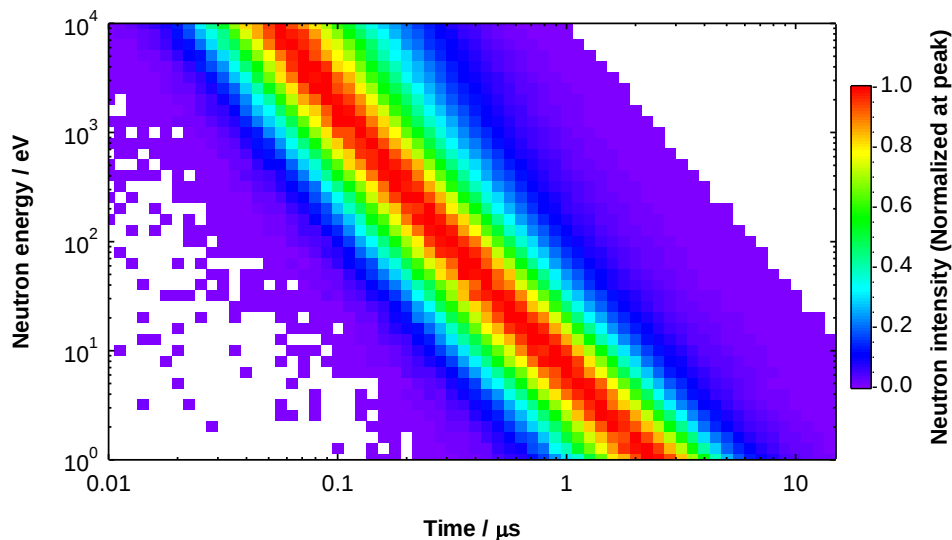


図 3.4 : NOBORU の全中性子エネルギーにおけるパルス関数。

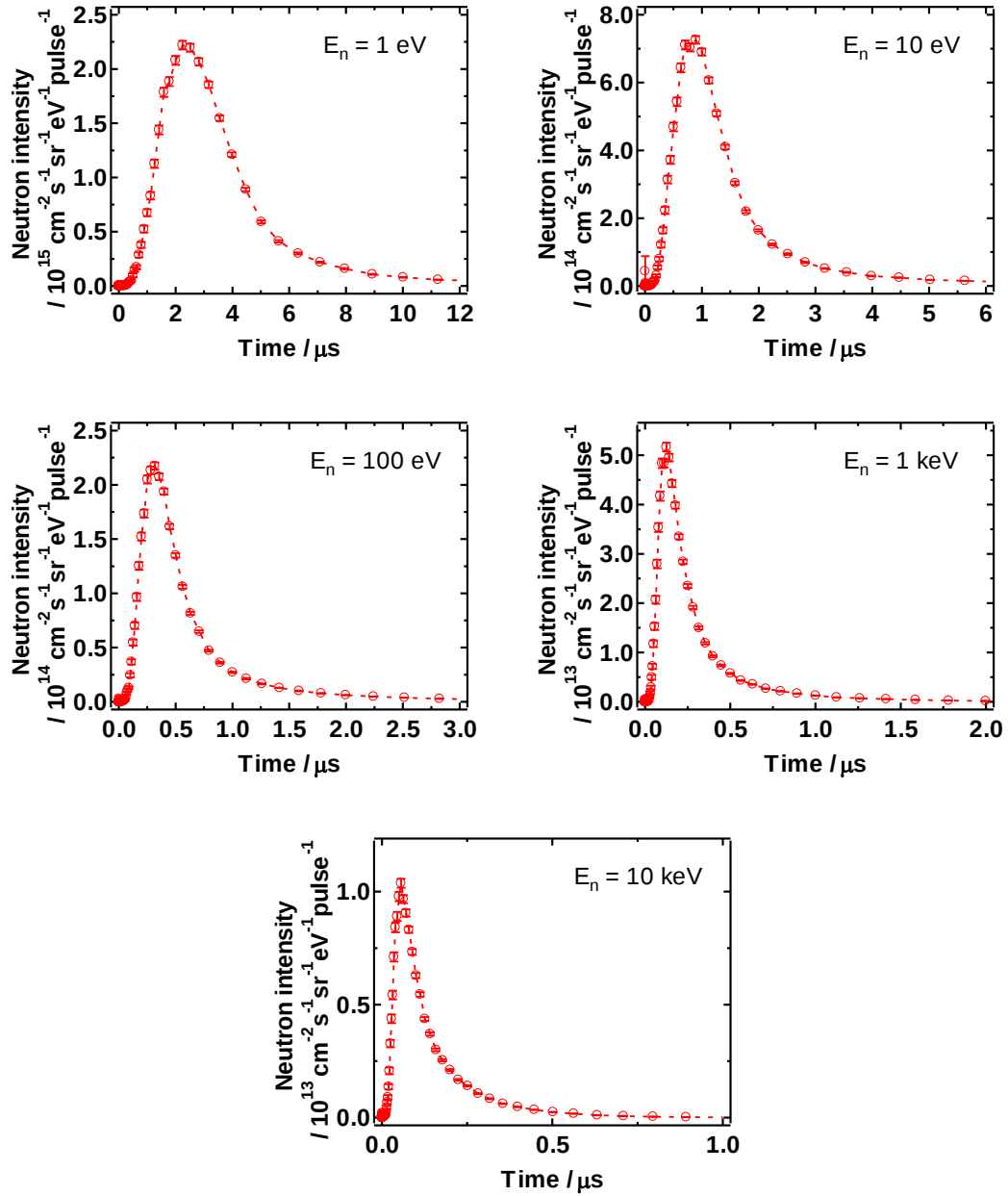


図 3.5 : モンテカルロシミュレーションによって求められた NOBORU のパルス関数[85]。

3.2.4 既存関数を用いたフィッティング

3.1.2 において、パルス関数を再現するための関数についてまとめた。3.1.2.1 であげた共鳴解析に用いられている関数のうち、本研究では代表的な関数として Ikeda-Carpenter 関数をパルス関数のフィッティングに用いる。Funk の関数や Gunsing の関数はそれぞれ特定の施設の中性子源に専用に作られた関数であり、かつ、基本的には χ^2 分布に基づいた式であるため比較は行わなかった。また、ガウス関数のみでは非対称の分布を再現できないため、これも比較を行っていない。3.1.2.2 であげた共鳴解析以外の用途で用いられている関数については、パルス関数の形状をよく再現できる可能性があるためフィッティングを行った。本研究では Levenberg-Marquardt 法と呼ばれる非線形最小二乗法によるフィッティングを行っている。

3.2.4.1 Ikeda-Carpenter 関数によるフィッティング

Storage term を考慮した Ikeda-Carpenter 関数として式(3-11 ~ 13)を用いた。ここでは、 α 、 β 、 t_0 に加え規格化定数 C をフィッティングにおけるパラメータとした。図 3.6 に中性子エネルギー (E_n) が 1, 100 eV, 10 keV のパルス関数に対するフィッティング結果を示す。ここで、Residual (残差) は以下のように定義している。

$$\text{Residual} = \frac{\text{Simulation} - \text{Fit}}{\text{Uncertainty}} \quad (3-20)$$

ここで、Uncertainty はモンテカルロシミュレーションにおける統計誤差である。各エネルギーにおいてシミュレーションによるパルス関数を大まかには再現している。しかし、ピーク付近において過小評価している。また、Slowing-down term に代わり Storage term が支配的になり始める領域において、シミュレーション結果のほうがより滑らかに変化している。

フィッティングにおける χ^2 値 (χ^2 の絶対値を自由度で割った値) は $E_n = 1, 100 \text{ eV}, 10 \text{ keV}$ に対してそれぞれ、9.707、12.47、4.816 であった。 $E_n = 100 \text{ eV}$ の場合のみ、フィッティングの合い方の目安となる 10 を超えている。

3.2.4.2 擬 Voigt 関数によるフィッティング

擬 Voigt 関数の場合も t_0 だけ時間をずらしてフィッティングを行っている。図 3.7 に中性子エネルギーが 1, 100 eV, 10 keV のパルス関数に対するフィッティング結果を示す。ピークの位置が僅かにずれている様子がわかる。また、特に高エネルギーのパルス関数に対して、その減衰の様子を十分に再現し切れていない。

χ^2 値は $E_n = 1, 100 \text{ eV}, 10 \text{ keV}$ に対してそれぞれ、20.96、14.48、78.40 であり、Ikeda-Carpenter 関数に比べうまく再現できないことがわかった。

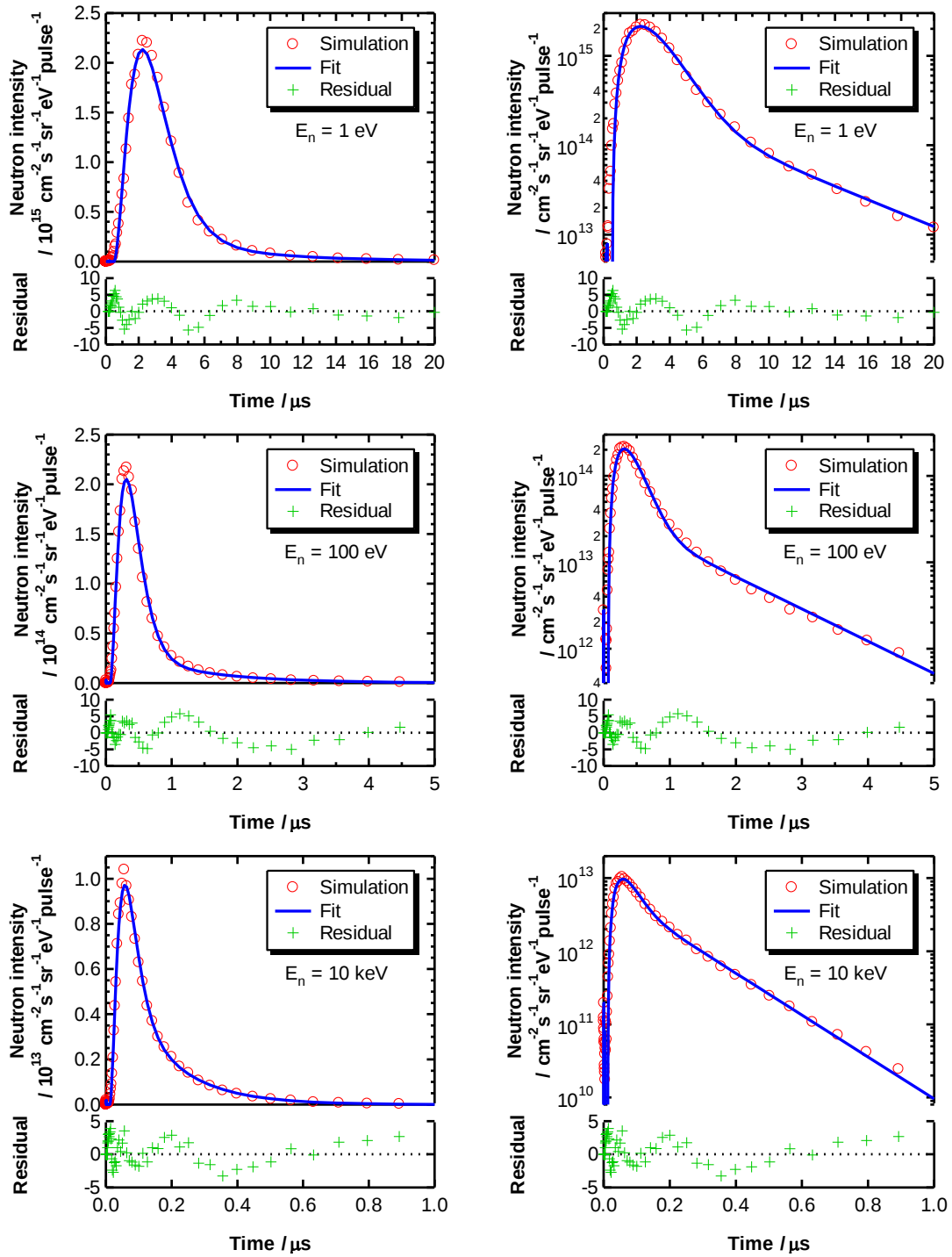


図 3.6 : Ikeda-Carpenter 関数による NOBORU のパルス関数へのフィッティング (左: 両線形、右: 片対数表示) [85]。中性子エネルギーは上から 1 eV, 100 eV, 10 keV である。

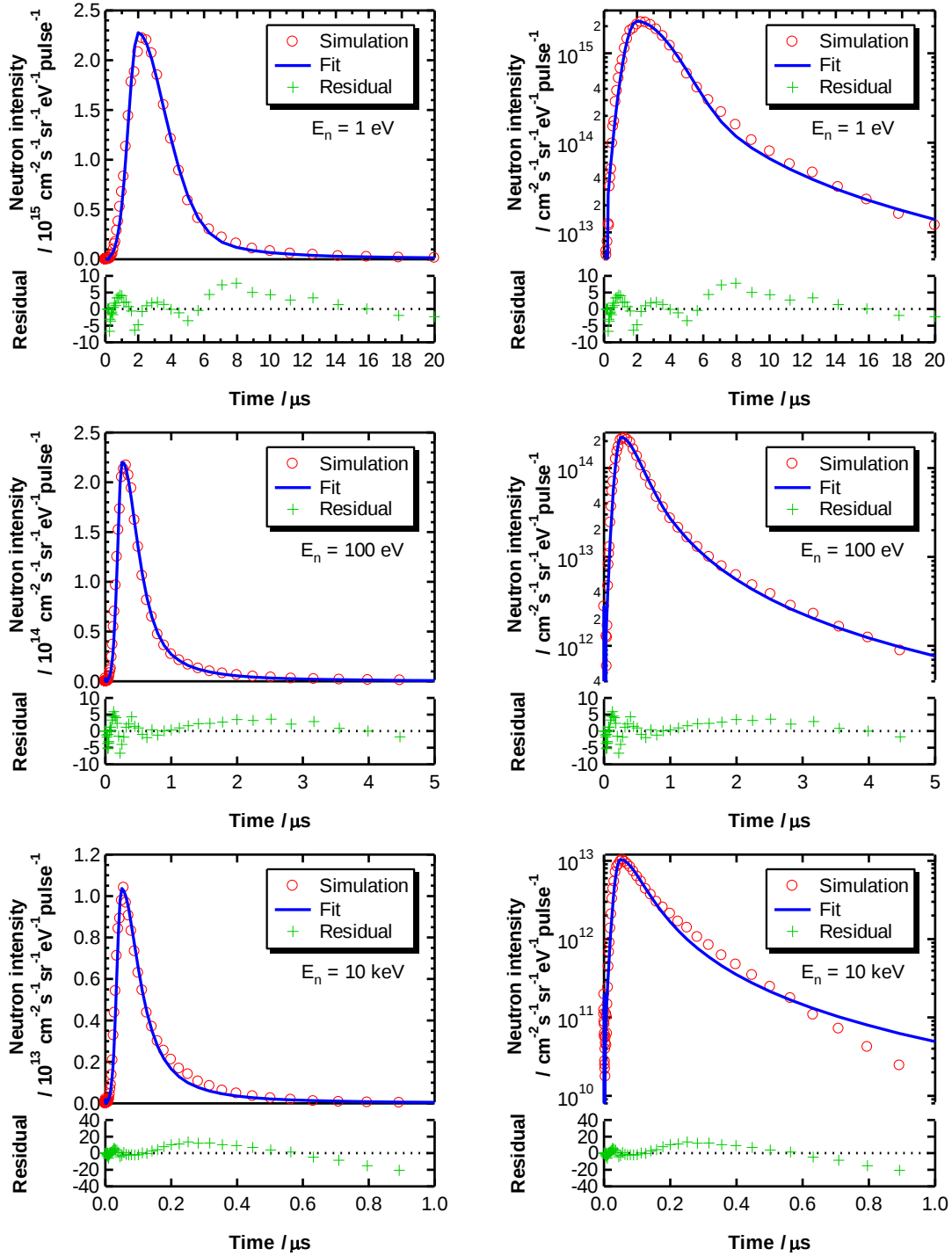


図 3.7 : 擬 Voigt 関数による NOBORU のパルス関数へのフィッティング (左 : 両線形、右 : 片対数表示) [85]。中性子エネルギーは上から 1 eV, 100 eV, 10 keV である。

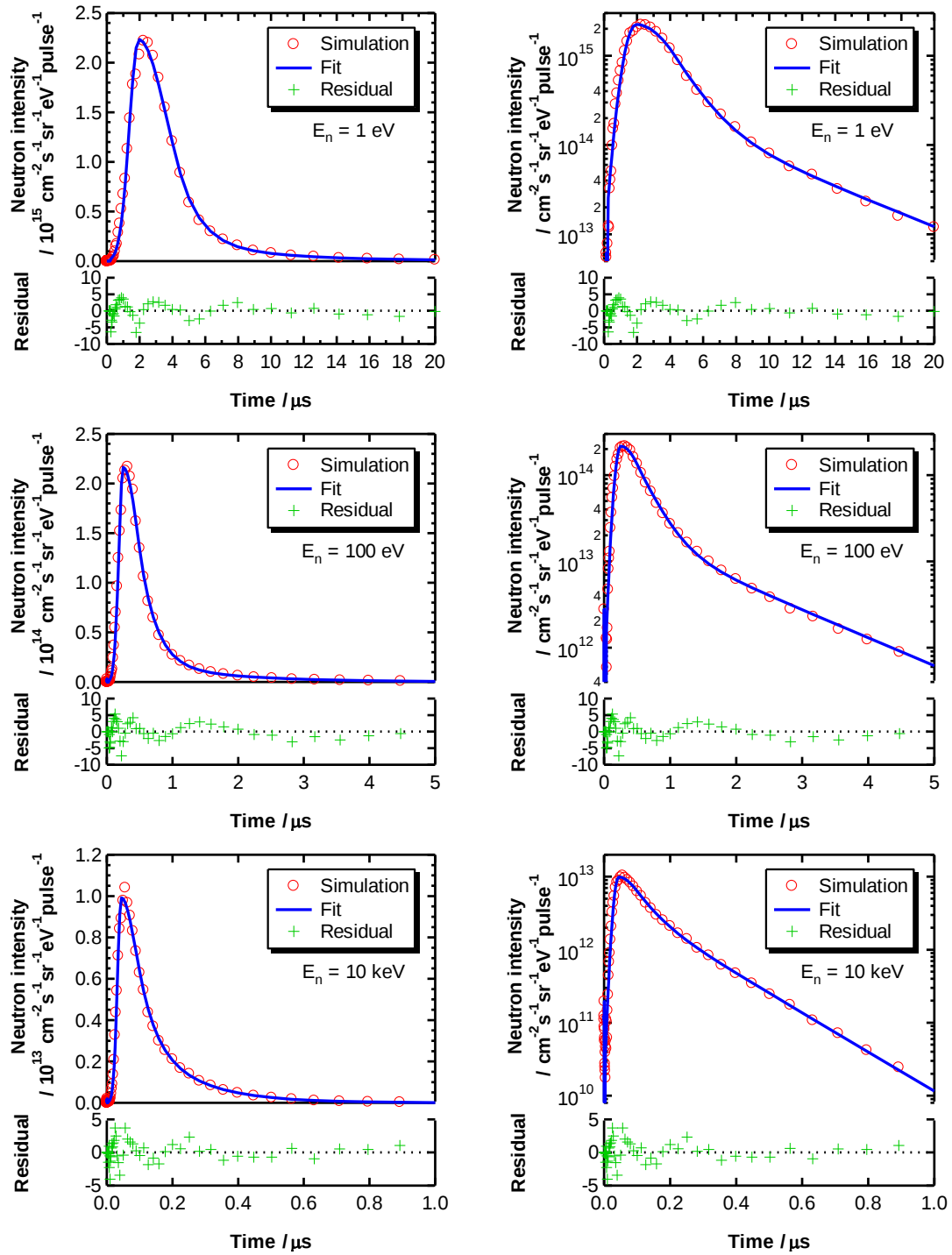


図 3.8 : Cole-Windsor 関数による NOBORU のパルス関数へのフィッティング (左 : 両線形、右 : 片対数表示) [85]。中性子エネルギーは上から 1, 100 eV, 10 keV である。

3.2.4.3 Cole-Windsor 関数によるフィッティング

最後に Cole-Windsor 関数によるフィッティングを行う。フィッティングパラメータは式(3-19)に示されている $\alpha_{1,2}$ 、 $\gamma_{1,2}$ 、 t_0 、 R そして C である。図 3.8 に中性子エネルギーが 1, 100 eV, 10 keV のパルス関数に対するフィッティング結果を示す。Ikeda-Carpenter 関数、擬 Voigt 関数に比べ非常によくフィッティングできていることがわかる。

χ^2 値は $E_n = 1, 100 \text{ eV}, 10 \text{ keV}$ に対してそれぞれ、6.530、8.489、3.447 であり、何れの場合も 10 を下回っている。以上のことから、NOBORU のパルス関数を再現するためには Cole-Windsor 関数が最も適していることがわかった。

3.2.5 パルス関数のパラメータのエネルギー依存性

3 つ関数を用いてフィッティングを行い比較したところ、NOBORU のパルス関数を表す関数として Cole-Windsor 関数が最も適していることがわかった。しかしながら、この手順ではある特定の中性子エネルギーにおけるパルス関数しか再現することができない。したがって、任意のエネルギーでパルス関数を再現するために、エネルギーに関して内挿（もしくは外挿）を行う必要がある。具体的には、Cole-Windsor 関数のフィッティングパラメータのエネルギー依存性を調べ、エネルギーに対して滑らかに変化し、容易に内挿が可能であるかということの確認を行った。

図 3.9 に Cole-Windsor 関数の各パラメータのエネルギー依存性を示す。各パラメータともエネルギーに対して滑らかに変化していることがわかる。 t_0 や $\sigma_{1,2}$ はエネルギーが増加すると減少しており、これは中性子のエネルギーが高くなると短い時間で減速材から放出されるという現象を反映している。また、対照的に $\gamma_{1,2}$ や R はエネルギーとともに増加している。これはパルス関数のテールを引いている部分の割合が大きくなる現象を反映している。

各パラメータに対するフィッティング曲線を図 3.9 に併せて示している。フィッティングに用いた式は以下ようになる。

$$t_0 = 2.27 \times 10^{-2} + 2.03 E_n^{-0.460} \quad (3-21a)$$

$$\sigma_1 = 6.80 \times 10^{-3} + 0.658 E_n^{-0.468} \quad (3-21b)$$

$$\sigma_2 = 3.15 \times 10^{-2} + 1.71 E_n^{-0.476} \quad (3-21c)$$

$$\gamma_1 = 2.95 \times 10^{-2} + 0.905 E_n^{0.343} \quad (3-21d)$$

$$\gamma_2 = 6.78 \times 10^{-2} + 9.77 \times 10^{-2} E_n^{0.447} \quad (3-21e)$$

$$R = 0.404 - 0.290 \exp(-2.78 \times 10^{-4} E_n) \quad (3-21f)$$

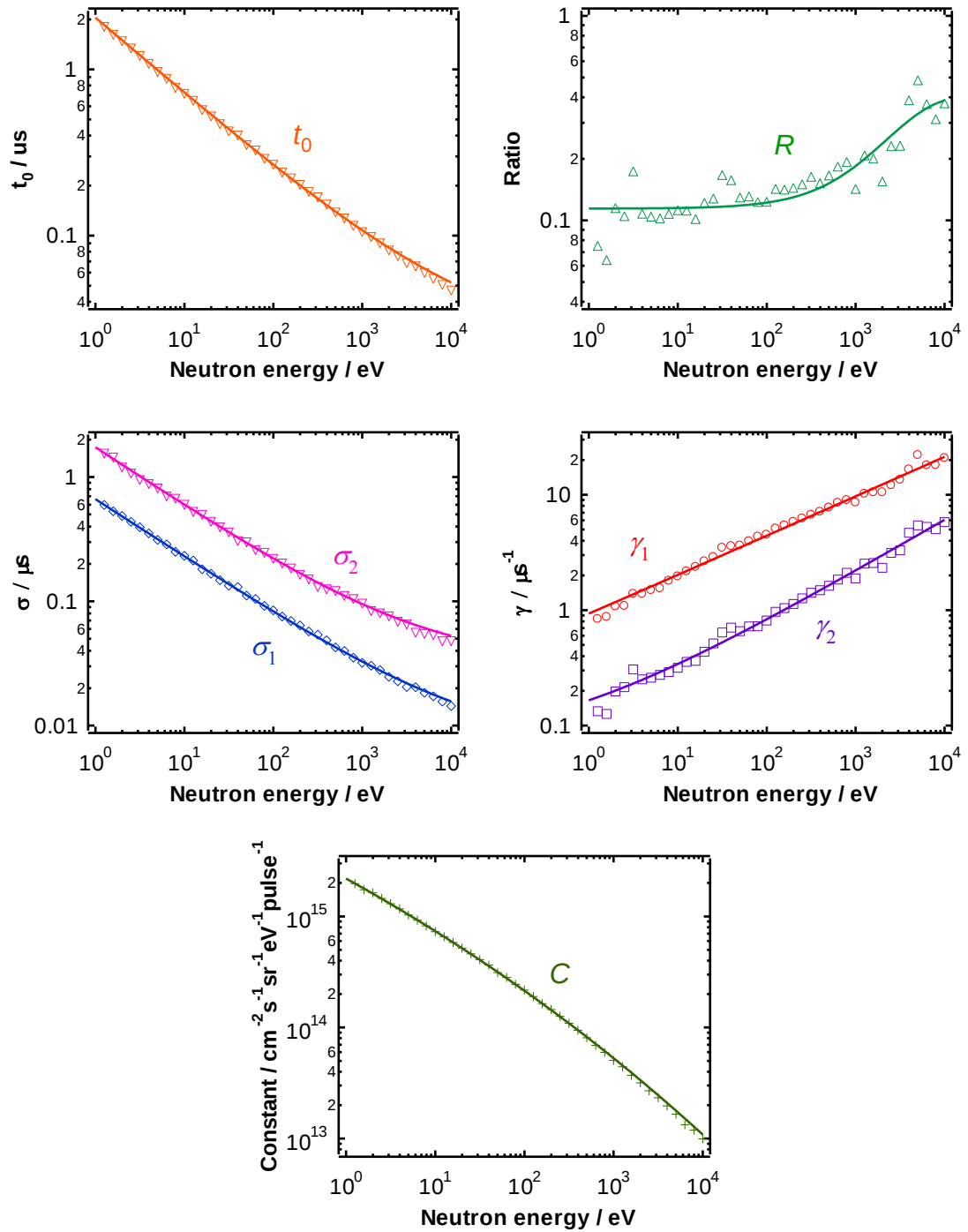


図 3.9 : NOBORU における Cole-Windsor 関数の各パラメータのエネルギー依存性[85]。実線はフィッティング曲線を表す。

$$C = 8.03 \times 10^{18} \exp(-8.21 E_n^{0.0542}) \quad (3-21g)$$

つまり、Cole-Windsor 関数の各パラメータは中性子エネルギー E_n の関数として表すことができる。これにより、容易に内挿を行うことができ、Cole-Windsor 関数で NOBORU のパルス関数を任意のエネルギーで再現することが可能となった。

3.3 即発 γ 線測定による妥当性確認

シミュレーション計算により NOBORU のパルス関数が Cole-Windsor 関数を用いることで任意のエネルギーで再現できることがわかった。しかしながら、これはあくまでもシミュレーションでしか確かめられておらず、実際にパルス関数を測定し計算結果の妥当性を確認する必要がある。エネルギーの低い（波長の長い）中性子のパルス関数を測定するには回折を利用すればよいが、共鳴を起こすような短波長の中性子では回折が起こらない。そのため、本研究では回折ではなく、測定した共鳴ピークからパルス関数の情報を引き出すことで、実験によるパルス関数の妥当性の確認を行った。具体的には、NOBORU において即発 γ 線型 N-RAS によりいくつかの共鳴ピークを測定し、その共鳴ピークに対して共鳴断面積とパルス関数を畳み込んだ関数を用いてフィッティングを行った。この時、パルス関数のパラメータをフィッティングパラメータとし、シミュレーション計算から求めたパラメータのエネルギー依存性と比較を行うことで評価を行った。また、本研究ではパルス関数測定に対して透過型 N-RAS ではなく、即発 γ 線型 N-RAS によって共鳴ピークを測定している。これは、即発 γ 線型の方が透過型に比べて散乱中性子などのバックグラウンドの除去が容易だからである。

フィッティングに用いる関数は共鳴断面積とパルス関数を畳み込んだものであるが、ここでいうパルス関数は陽子パルスの構造を考慮したパルス関数である。つまり、フィッティングに用いる関数は「①陽子のパルス幅が 0 と仮定した場合のパルス関数」と「②陽子パルスの構造」を畳み込んだものにさらに「③共鳴断面積」を畳み込んだものとなっている。このうち、①はシミュレーション計算から求めた Cole-Windsor 関数である。また、③は簡単のため第 2 章で説明した SLBW による共鳴断面積の式を用いている。共鳴ピークを正確に再現するためには、②の陽子パルス構造そのものについても再現する必要がある、その方法については次項で説明する。

MLF において、通常の加速器運転条件は陽子パルスがダブルバンチ構造を持っている「ダブルバンチ運転」で行われている。ダブルバンチ運転では 1 周期の中で 600 ns の間隔で 2 つの陽子パルスが発生することから、TOF 測定における共鳴の幅がおよそ 1 μ s 以下の領域ではこのダブルバンチの影響による誤差が大きくなることが考えられる。2013 年 3 月に陽子パルスが 1 周期に 1 パルスだけ発生する「シングルバンチ運転」での実験機会を得た。シングルバンチ運転ではダブルバンチ運転よりも高エネルギー共鳴

に対する解析における誤差を低減できることが期待される。また、共鳴ピーク同士のオーバーラップがシングルバンチ運転における測定の方が少なくなるため、解析対象となる共鳴ピークの数が増えることになる。したがって、本研究では通常のダブルバンチ運転におけるパルス関数測定に加えて、シングルバンチ運転における測定も行った。

3.3.1 陽子パルスの時間構造

J-PARC の RCS (3 GeV シンクロトロン) で加速された陽子は 3NBT (3 GeV 陽子輸送ライン) を通って MLF まで導かれ、水銀ターゲットに衝突し中性子を発生する。3NBT には陽子ビームの強度やプロファイルをモニターする機器が設置されており、常に監視を行っている。陽子パルスの時間構造はこのうち、陽子ビームの強度をモニターする CT (Current Transformer) から得ることができる。CT はコイル状のモニターで、コイル内を荷電粒子である陽子が通過する際に誘導される誘導起電力の測定を行っている。図 3.10 に CT で測定された陽子ビーム強度の時間構造の一例を示す。このデータは 2011 年 12 月 22 日のダブルバンチ運転 (ビームパワー 300 kW) において測定されたものである。黄色い線が陽子ビームに起因した起電力を表しており、半値幅が 90 ~ 100 ns 程度の 2 つのパルスが 600 ns の間隔で測定されていることが確認できる。この画像データを数値データに変換し、フィッティングを行うことで陽子パルスの時間構造の再現を試みた。ここでは、2013 年 3 月のシングルバンチ運転 (ビームパワー 120 kW) と通常のダブルバンチ運転 (ビームパワー 300 kW) における陽子パルスの解析について述べる。

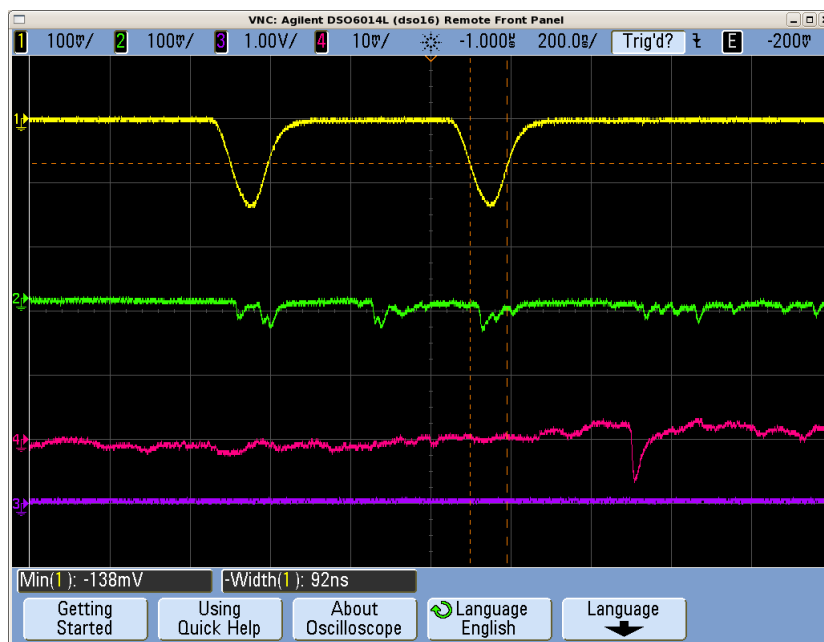


図 3.10 : 3NBT の CT で測定された陽子ビーム強度の時間構造 (2011 年 12 月 22 日、ダブルバンチ 300 kW 運転)。黄色い線が陽子ビームに起因する起電力を表している。

(a) シングルバンチ運転時の陽子パルス

まずはシングルバンチ運転時の陽子パルスの波形のフィッティングについて述べる。このシングルバンチ運転が実施されたのは2013年3月であり、ビームパワーは120 kWであった。この期間における通常のダブルバンチ運転でのビームパワーは300 kWであり、シングルバンチ運転では単純におおよそ半分の出力となっている。図3.11にCTによって得られた陽子パルスの波形とそれに対するフィッティングの結果を示す。陽子パルスの強度はベースラインを0として上下に反転し、ピーク値を1として規格化している。ここではフィッティング関数としてガウス関数を用いている。CTによる測定値は立ち上がり（500～600 ns付近）に比べ立ち下がり（700～800 ns付近）が緩やかになっている。実際の陽子パルスはほぼ左右対称であると考えられるが、CTの減衰時間などに起因して測定値は非対称な形状をしていると考えられる。そのため、フィッティングには左右対称なガウス分布を用いた。また、フィッティング関数のFWHM（Full Width Half Maximum）は154.7 nsであった。

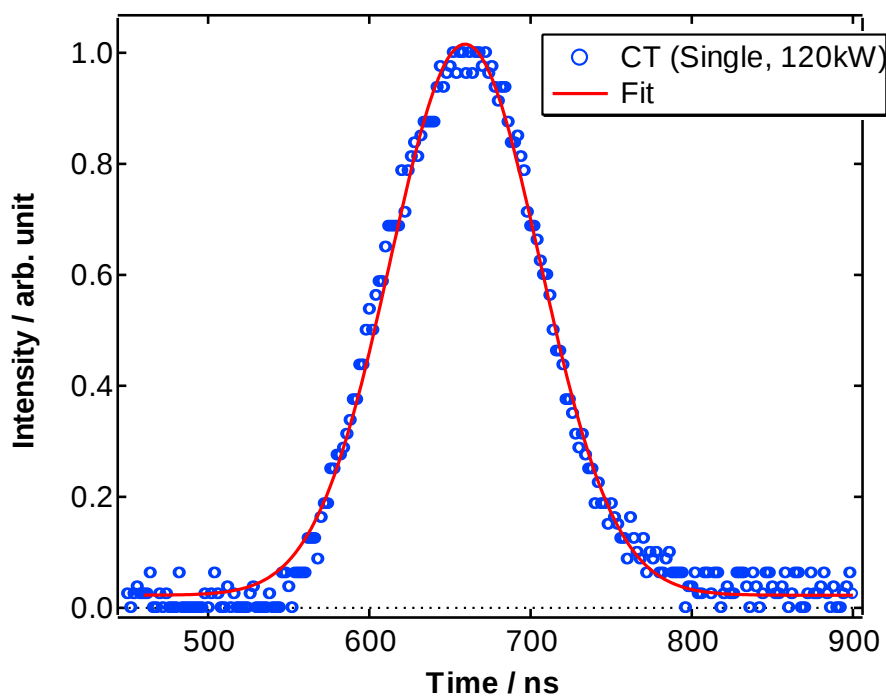


図 3.11：シングルバンチ運転時（ビームパワー120 kW）の陽子パルス波形に対するフィッティング。

(b) ダブルバンチ運転時の陽子パルス

ダブルバンチ運転の時も同様にガウス関数によるフィッティングを行った。ここで用いた陽子パルスのCTデータは2012年1月18日（ビームパワー300 kW）に測定された

ものである。図 3.12 に CT によって得られた陽子パルスの波形とそれに対するフィッティングの結果を示す。シングルバンチ運転の時の CT データと同様に立ち下がり部分でテールを引くような形状をしている。ここでは 2 つの波形に対してそれぞれフィッティングを行った。フィッティング関数の FWHM は 1 つ目のパルスが 130 ns で 2 つ目のパルスが 136 ns であった。また、それぞれのパルスのピークの間隔は 600 ns であった。ダブルバンチ運転とシングルバンチ運転の場合で陽子パルスの幅が異なっている。これは LINAC から RCS へ入射する陽子ビームの特性の違いによるものと考えられている。

シングルバンチ運転時とダブルバンチ運転時の陽子パルス波形はどちらもガウス関数で表すことが可能である。ここで求めた陽子パルスの幅とダブルバンチ運転におけるパルス同士の間隔を用いて陽子パルスの時間構造を再現し、後の解析に用いる。

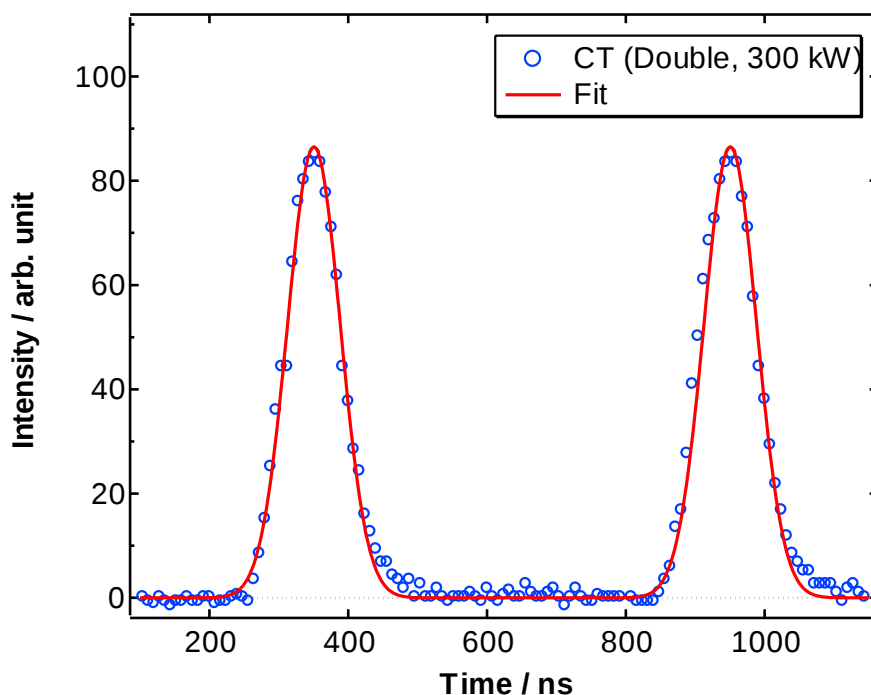


図 3.12 : ダブルバンチ運転時（ビームパワー300 kW）の陽子パルス波形に対するフィッティング[85]。

3.3.2 ダブルバンチ運転における実験と解析

3.3.2.1 実験概要

実験は2012年12月のダブルバンチ運転時に J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において行った。この時のビームパワーは 300 kW であった。本実験では γ 線フィルター及びフレームオーバーラップチョッパーを使用していない。ビーム条件について表 3.1 にまとめる。本実験では γ 線検出器としてプラスチックシンチレーション検出器を使用している。また、測定試料として Ta、Au、Cu を用いている。検出器及び試料の詳細については 3.3.2.2

及び 3.3.2.3 で述べる。

表 3.1：ダブルバンチ運転におけるパルス測定実験のビーム条件。

Experimental date	2012/12/5 - 6
Beam-line	J-PARC/MLF/BL10 NOBORU
Beam power	300 kW
Rotary Collimator	Open
Beam size	$2.1 \times 2.1 \text{ cm}^2$
Filters	Not in use
Frame-overlap chopper	Not in use

3.3.2.2 プラスチックシンチレーション検出器

γ 線の TOF スペクトル測定にはプラスチックシンチレーション検出器を用いた。図 3.13 に検出器の外観及び遮蔽の様子を示す。検出器の台形の先端が検出面となっており、そこに 3 つのプラスチックシンチレータ（BICRON BC-400）が入っている。また、これらのシンチレータはクロストークを防ぐため遮光されている。そこから放出された光が後ろの 3 本の光電子増倍管（HAMAMATSU H7195）で信号へと変換される。検出面以外からのバックグランド γ 線を遮るために検出器を鉛の遮蔽体で覆っている。さらに、写真では示していないが、中性子を遮蔽するために鉛遮蔽のさらに外側を B_4C 焼結板で覆っている。

飛行時間分析システムを図 3.14 に示す。Time analyzer (TA) は KEK の佐藤節夫氏によって設計された TA22 であり、KP-GATE を用いて加速器の T0 信号を検出している。また、USB2-VMEv2 を用いて分析用ソフトウェアのインストールされている PC へ USB ケーブルを経由して情報を送信する。

即発 γ 線とバックグランド γ 線を分離するために適切な高電圧を光電子増倍管へ与える必要がある。TA22 に内蔵されているアンプはアンプ出力 +2 V で飽和する。そのため、中性子の一般的な束縛エネルギーである 8 MeV の γ 線を検出した時にアンプ出力が +2 V となるように高電圧を調整した。調整には Co-60 標準線源を用いた。Co-60 のコンプトンエッジはおよそ 1 MeV であるので、この線源によるアンプ出力が +250 mV となるような高電圧をそれぞれの光電子増倍管に与えた。与えた高電圧の値はそれぞれ、ch1 が -1175 V、ch2 が -1180 V、ch3 が -1240 V である。

本実験では TOF の刻み時間を 40 ns とし、16000 ch (640 μs) まで測定を行った。



図 3.13：プラスチックシンチレーション検出器の外観（左）と検出器周りの遮蔽の様子（右）。ここで示している遮蔽は γ 線に対する鉛遮蔽のみである。

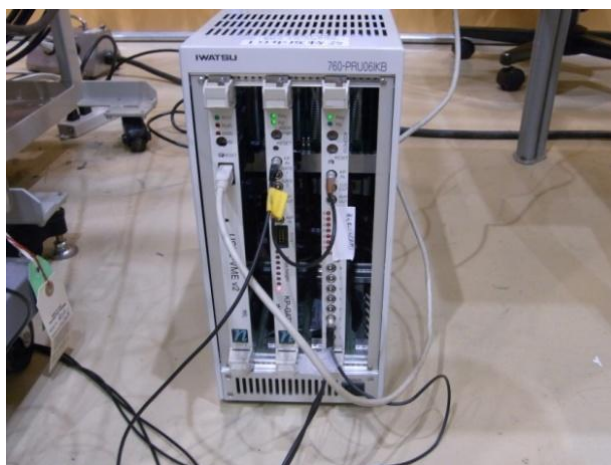


図 3.14：プラスチックシンチレーション検出器用の飛行時間分析システム。TA22（右のボード）、KP-GATE（真中のボード）、USB2-VMev2（左のボード）で構成されている。

3.3.2.3 試料

試料として Ta、Au、Cu を用いた。Ta は共鳴測定によく用いられている試料であり、また共鳴エネルギーも数 eV から始まり広い範囲に分布しているため、低いエネルギーのパルス関数の確認に用いた。Au は共鳴測定の標準試料として用いられることが多く、こちらは第一共鳴の 4.89 eV 共鳴を除くと数 10 eV から数 100 eV の間に分離した共鳴を持つため、謂わば中エネルギーパルス関数測定用の試料である。Cu は第一共鳴が 230 eV であり、そこから数 keV まで分離した共鳴が並ぶ。そのため、高エネルギーのパルス関数の確認に用いた。

統計量を稼ぐためにある程度試料の厚さがあった方が良い。一方で、試料が厚過ぎると自己遮蔽効果や多重散乱の効果によって共鳴ピークの形状が変化してしまう。したがって、本実験では厚さを調整できるように薄い試料を重ね合わせることにした。用いた

試料の厚さを表 3.2 にまとめる。また、試料の大きさは $2.5 \times 2.5 \text{ cm}^2$ とし、中性子ビームがすべて試料に当たるようにした。

表 3.2 : パルス関数測定に用いた試料と厚さ。

Sample	Thickness [mm]	Number of sample	Total thickness [mm]
Ta	0.007	4	0.028
Au	0.04	4	0.16
Cu	1	5	5

3.3.2.4 試料及び検出器のセットアップ

図 3.15 に試料と検出器のセットアップの概略図を、図 3.16 に写真を示す。試料は薄い Al 板にカプトンテープで張り付けることで固定している。この試料を貼りつけた Al 板はビーム出口の B_4C スリットのフレームから 750 mm の位置にセットしている。この位置は減速材からの距離、つまり飛行距離は約 13.5 m である。検出器は中性子ビームライン軸から外れて設置される必要があるため、試料の横に置く形となっている。また、試料の中心と検出面の距離は 110 mm であった。

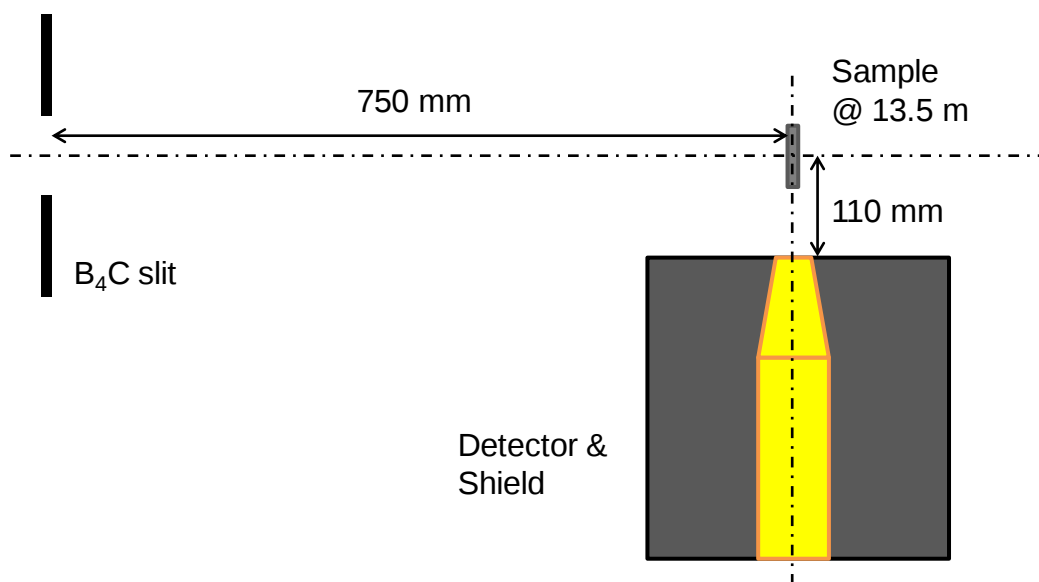


図 3.15 : ダブルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの概略図。

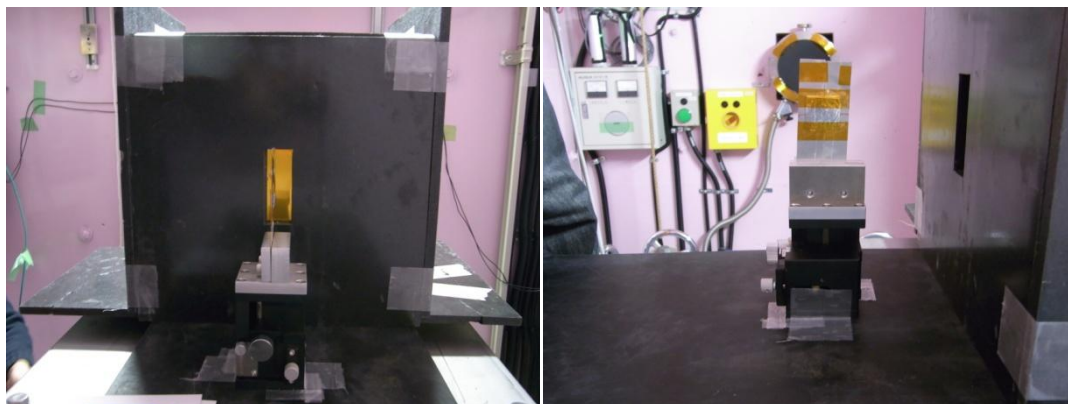


図 3.16: ダブルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの様子。右は試料及び検出器を横から見た様子であり、写真の右側がビームライン上流側である。左はビームライン上流側から試料を写した写真である。

3.3.2.5 測定された各試料の即発 γ 線スペクトル

3 種類の試料からの即発 γ 線の TOF スペクトルに加え、試料が無い状態における γ 線の TOF スペクトルの測定を行った。まず、図 3.17 に試料が無い状態における TOF スペクトルを示す。本実験で用いたプラスチックシンチレータは 3 本の光電子増倍管で構成されており、それぞれから得られた TOF スペクトルを 1ch、2ch、3ch として示した。なお、縦軸の値は加速器トリガー数で規格化している。図 3.18 から 20 に Ta 試料、Au 試料及び Cu 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトルを示す。これらのスペクトルは図 3.16 に示したスペクトルを指数関数でフィッティングしてバックグラウンド曲線を作成し、それぞれの試料における TOF スペクトルから差し引くことで、試料からの即発 γ 線のための TOF スペクトルを抽出している。

Ta の TOF スペクトル (図 3.18) を見ると、150 ~ 600 μs の間に孤立した共鳴がいくつか確認できる。また、Au の TOF スペクトル (図 3.19) は Ta に比べて高エネルギー側に孤立した共鳴が多いため、全体的にパルス関数の形状が反映されたピーク形状をしている。また、ダブルバンチの影響により共鳴ピークの先端付近が 2 つに割れている様子が確認できる。Cu の TOF スペクトル (図 3.20) に関して、特に 579 eV 共鳴 (42 μs 付近) と 230 eV 共鳴 (66 μs 付近) に顕著であるが、SLBW の式では表せられないコブがみられる。これは、Cu は比較的散乱断面積が大きく、試料も厚いため、強い共鳴では中性子の輸送現象によるスペクトルの変化があるためだと考えられる。つまり、共鳴エネルギーよりわずかに高いエネルギーを持つ中性子が試料によって偶然にも共鳴エネルギーまで減速された場合に、早いタイミングで即発 γ 線を放出するためにこのような

スペクトルのコブができるということである。

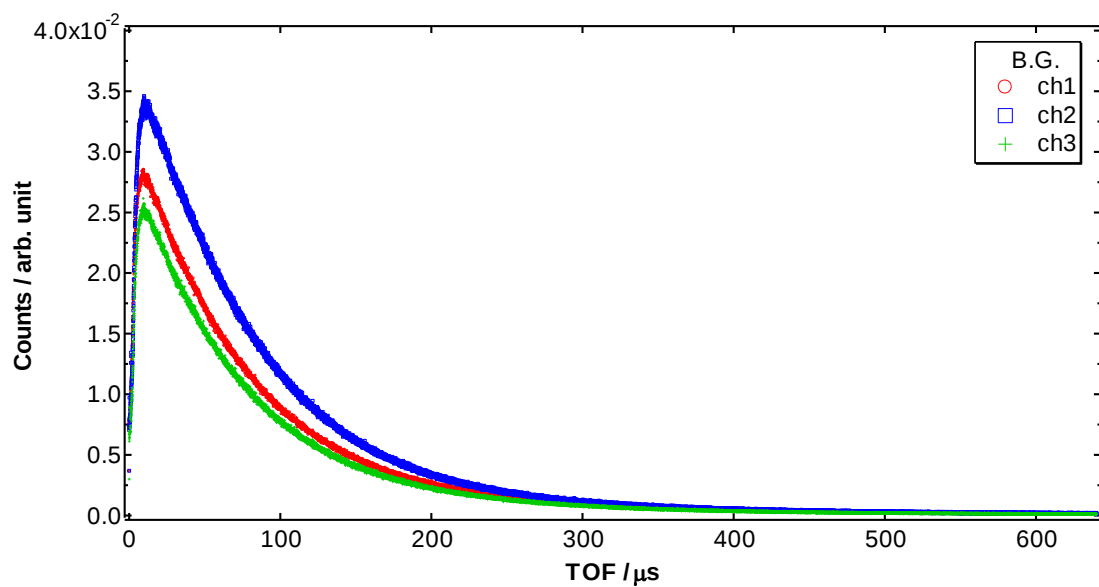


図 3.17：ダブルバンチ実験におけるバックグラウンド γ 線の TOF スペクトル。

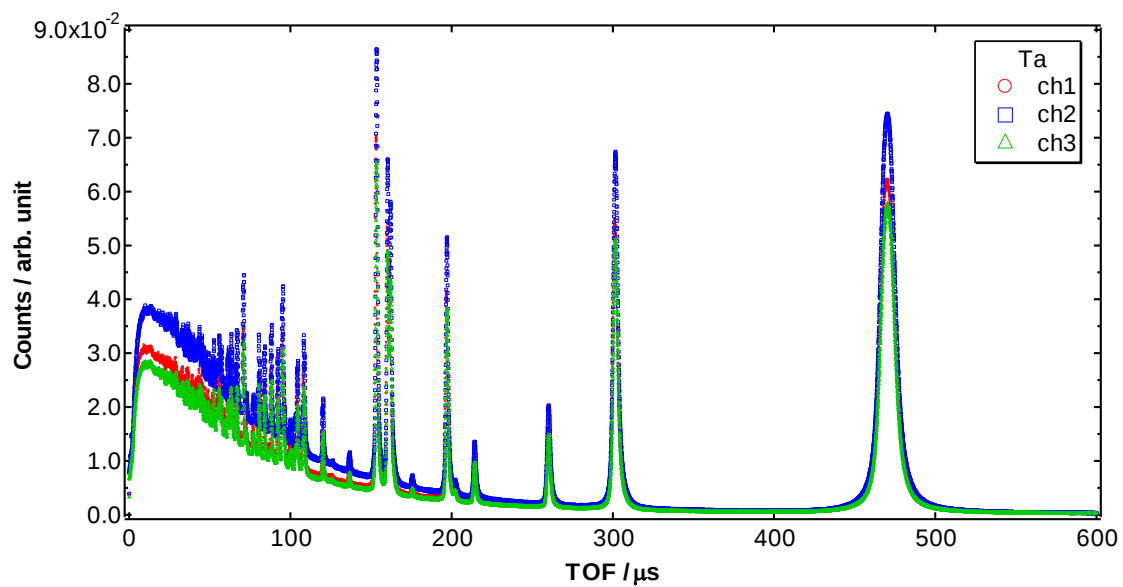


図 3.18：ダブルバンチ実験における Ta 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル。

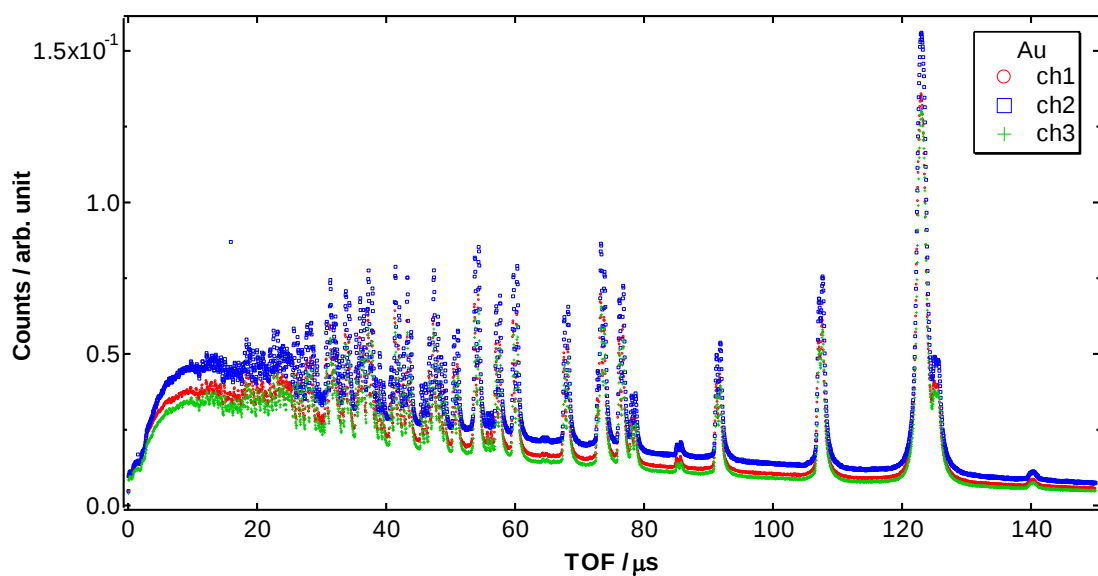


図 3.19：ダブルバンチ実験における Au 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル。

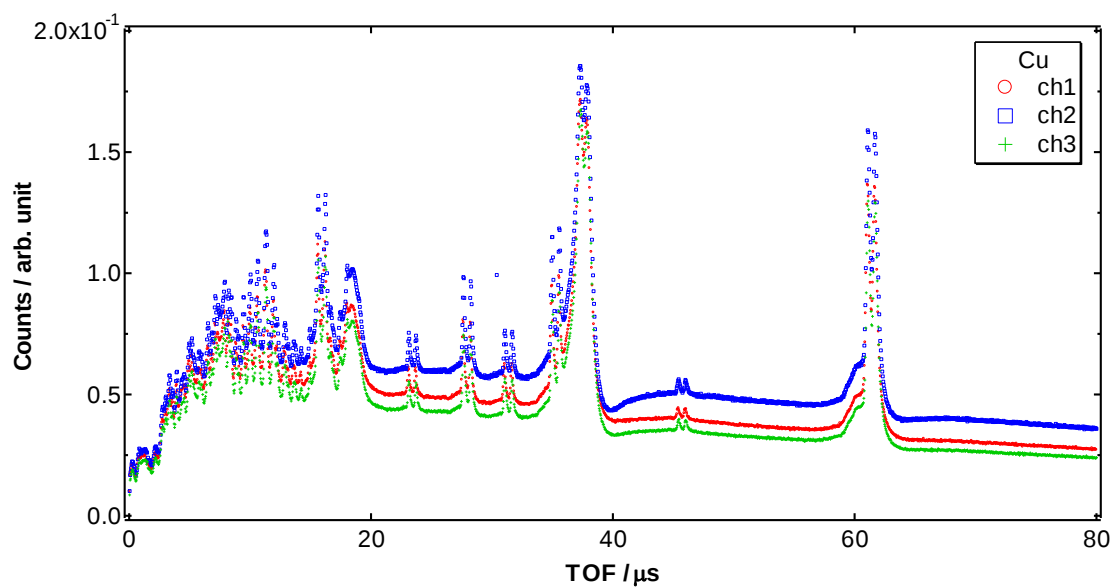


図 3.20：ダブルバンチ実験における Cu 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル。

3.3.2.6 解析

フィッティングに先立ち、中性子の飛行距離及び T0 信号の遅れ (delay) を評価する必要がある。MLF では加速器からビームが照射された時間 (つまり真の T0) と検出器へ送られる T0 との間に数 μs 程度の差異が生じる。中性子のエネルギーが keV に近い

領域では、この数 μs という差異は非常に大きい。また、中性子の飛行距離について考えると、減速材の表面からの距離が正確な飛行距離ではなく、減速材のある深さからの距離が実効的な中性子の飛行距離であると考えられる。

ある中性子のエネルギーを E [eV]、減速材から試料までの実効距離⁵を L [m]とした時、この中性子に起因する信号が検出器で検出される時間 t [μs]は式(1-4)と同様に次のように表される。

$$t = \frac{72.298L}{\sqrt{E}} + t_d \quad (3-22)$$

ここで、 t_d [μs]は T0 信号の遅れである。したがって、時間 t の中性子エネルギー E 依存性を調べることで飛行距離 L 及び TOF の遅れ t_d を求めることができる。Ta、Au 及び Cu の共鳴エネルギーに対して共鳴ピークの TOF 位置をプロットしたものを図 3.21 に示す。なお、共鳴ピークが 2 つに分離している場合は 1 つ目のピークにおける TOF の値をプロットしている。式(3-22)を用いてフィッティングした結果、 $L = 13.59 \text{ m}$ 、 $t_d = -3.94 \mu\text{s}$ であることがわかった (t_d が負の値になっているのは、加速器における T0 よりも早く信号を送るトリガーパルスを用いたからである)。ただし、実効的な飛行距離は中性子のエネルギーに依存するため、後の解析で微調整を行っている。

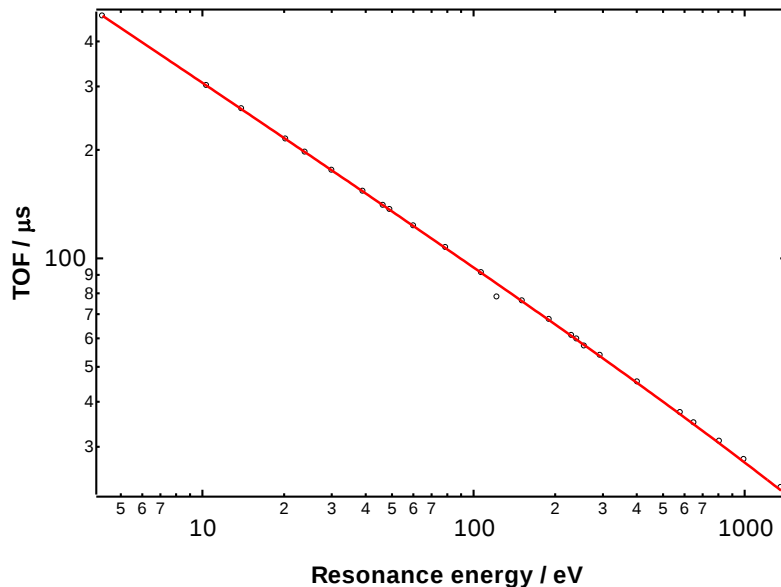


図 3.21 : Ta、Au、Cu の共鳴エネルギーと TOF の関係 (ダブルバンチ運転)。点は共鳴ピークのピーク位置、実線はフィッティング曲線を表す。

⁵ 即発 γ 線型 N-RAS の場合、試料中で中性子が共鳴吸収反応を起こした後光速の γ 線が検出器で検出されるため、試料と検出器の間の距離は TOF 法におけるエネルギー決定においては無視できる。

ここから、即発 γ 線スペクトルに対するフィッティングについて述べる。まずはフィッティングに用いる関数について述べる。式(1-6)は観測される共鳴吸収量を一般的な表式で表したものである。観測される共鳴吸収量 $I(t)$ をより具体的な形として表すと次のようになる[20]。

$$I(t) = \iint dE dt_0 \{1 - \exp[-N_d \sigma(E)]\} I_0(E; t_0) \delta\left(t - t_0 - \frac{L}{v_R}\right) \quad (3-23)$$

ここで、 N_d は共鳴吸収を起こす核種の面密度であり、 $\sigma(E)$ は共鳴吸収断面積である。したがって、指数関数を含む括弧の中は物質中で中性子が共鳴吸収を起こす確率である。また、 $I_0(E; t_0)$ はパルス関数を示しており、ここでは **Cole-Windsor** 関数である。デルタ関数の中の L は中性子の飛行距離を、 v_R は共鳴エネルギーにおける中性子の速度を示している。先述したとおり、共鳴吸収断面積の計算には **SLBW** 式を用いている。共鳴吸収断面積を計算するための共鳴パラメータ (E_0 , Γ , Γ_n , Γ_γ , I , J) は最新の評価済み核データライブラリ **JENDL-4.0**[10]を用いた。また、試料の温度は 300 K として計算を行っている。

次に、フィッティング対象となる実験データに関して説明を行う。図 3.17 から 20 に示すように実験では 3 つの ch で TOF スペクトルの測定を行ったが、そのうち最も統計量の多かった ch2 (3 つの内、中央の光電子増倍管) で得られたデータに対して解析を行った。これらの TOF スペクトルに対して、式(3-23)を用いてフィッティングを行うが、これらにはバックグラウンド曲線で補正しきれないポテンシャル散乱などに起因するベースラインが存在する。そのため、指数関数を用いてベースラインを再現している。

ここでは、2 段階に分けたフィッティングを行っている。まず、飛行距離や強度など実験に関するパラメータのみを振り、実験データに対してフィッティング関数が大まかに合うようにする。次に、実験に関するパラメータは固定し、パルス関数のパラメータのみを振ることで、パルス関数のパラメータの抽出を行った。ただし、**Cole-Windsor** 関数のパラメータの内、中性子の強度を表す C についてはフィッティングパラメータとして取り扱っていない。これは、パルス関数を畳み込んだ計算を行う際に通常はパルス関数の面積が 1 になるように規格化してしまうため、強度を表すパラメータ C は意味を成さなくなるためである。また、フィッティングには最小二乗法を用いている。図 3.22 から 24 にフィッティングの結果の例を示す。フィッティング関数はそれぞれの共鳴ピークを良く再現していることがわかる。これら一連の解析により抽出されたパルス関数のパラメータをシミュレーションにより求められたものと比較したものを図 3.25 に示す。実験から得られたパルス関数のパラメータの値は、シミュレーションから得られた値と誤差棒の範囲内でおおよそ一致している。

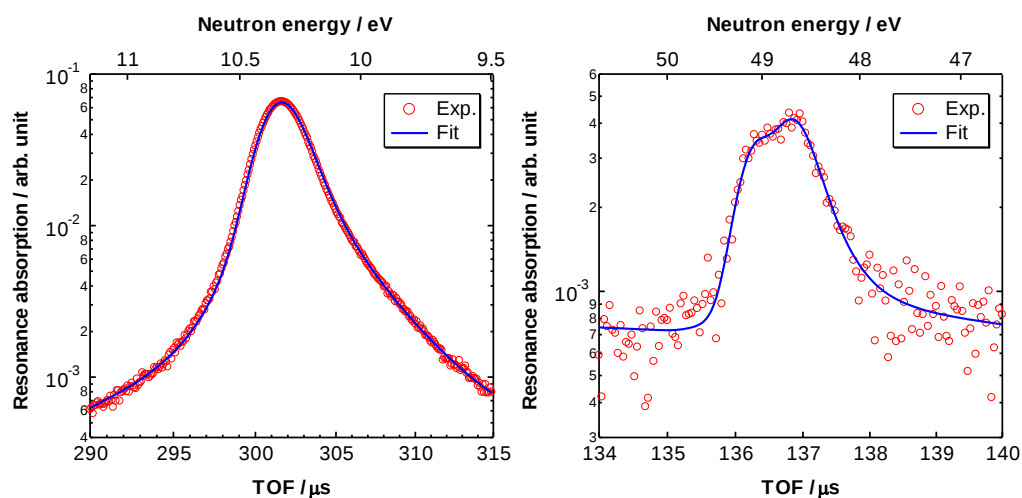


図 3.22 : Ta の共鳴ピークに対するフィッティング (ダブルバンチ運転)。左 : 10.36 eV 共鳴、右 : 49.13 eV 共鳴。

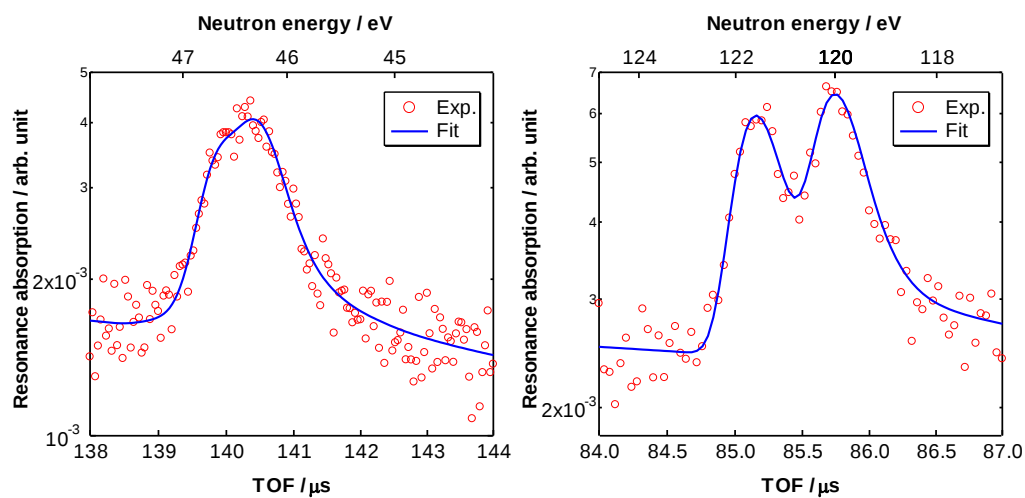


図 3.23 : Au の共鳴ピークに対するフィッティング (ダブルバンチ運転)。左 : 45.46 eV 共鳴、右 : 122.1 eV 共鳴。

第3章 定量化のための解析システムの開発

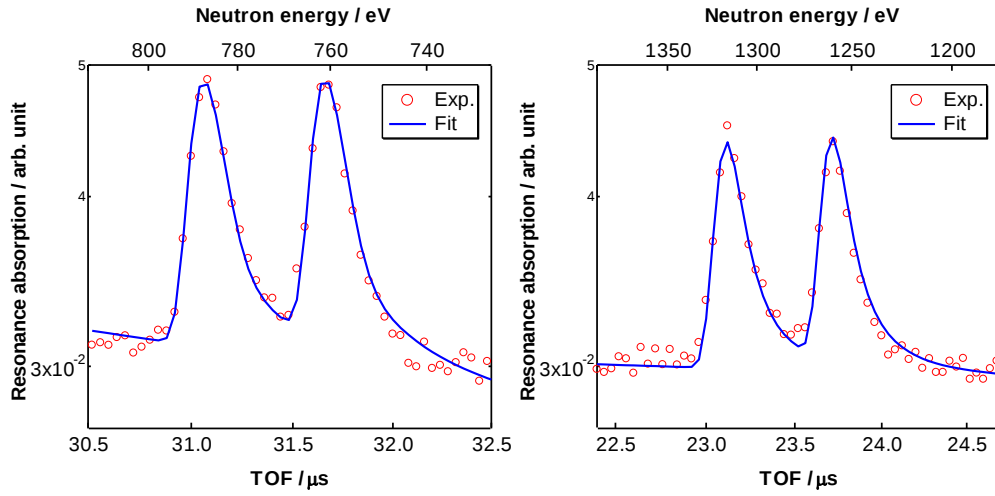


図 3.24 : Cu の共鳴ピークに対するフィッティング (ダブルバンチ運転)。左 : 807 eV 共鳴、右 : 1362 eV 共鳴。

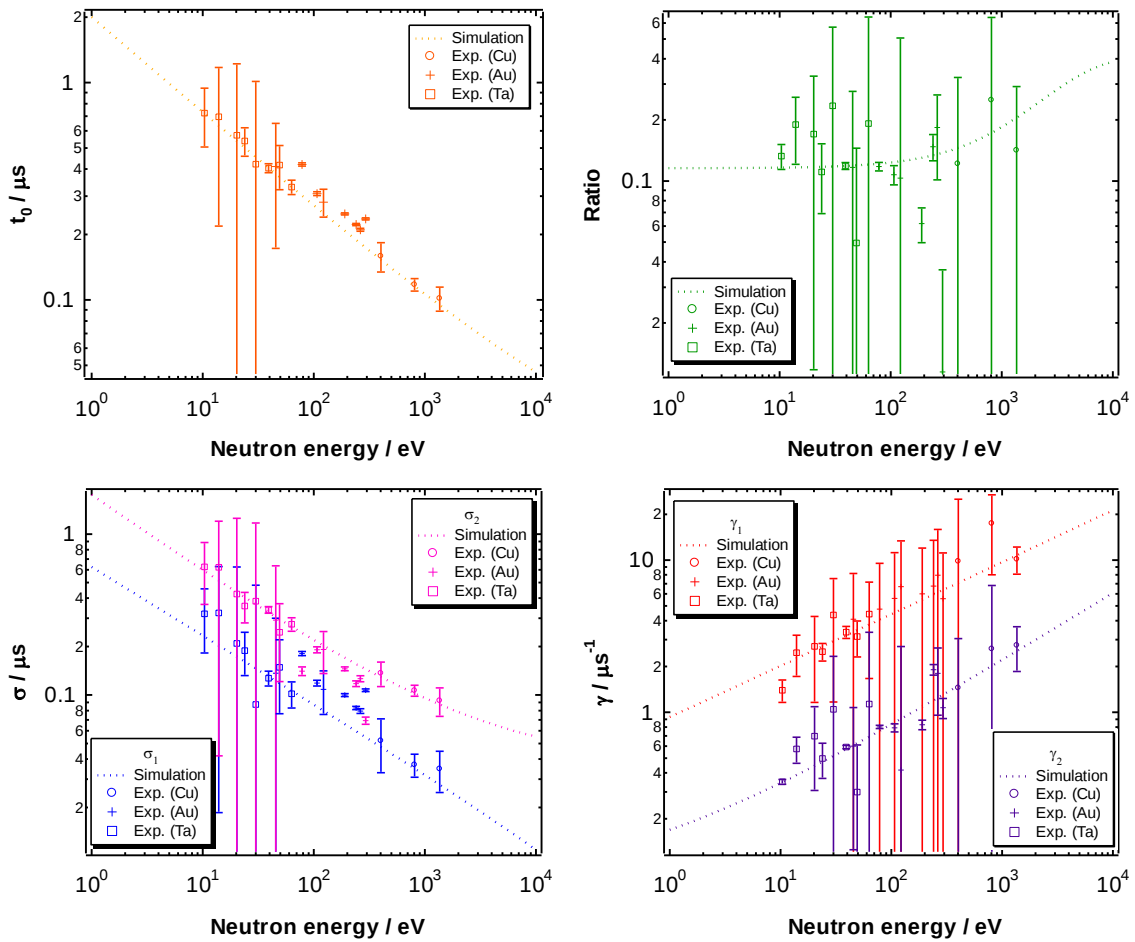


図 3.25: パルス関数のパラメータのシミュレーション値と実験値との比較 (ダブルバンチ運転)。

3.3.3 シングルバンチ運転における実験と解析

3.3.3.1 実験概要

実験は2013年3月のシングルバンチ運転時に J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において行った。この時のビームパワーは 120 kW であった。バックグランドとなる T0 におけるフラッシュガンマを低減するたに 25 mm 厚の Pb フィルターを用いている。フレームオーバーラップチョッパーは使用していない。ビーム条件について表 3.3 にまとめる。ダブルバンチ運転時の実験と同様に、本実験では γ 線検出器としてプラスチックシンチレーション検出器を用いた。また、測定試料として Ta、Au、Cu を用いている。検出器及び試料の詳細については 3.3.2.2 及び 3.3.2.3 で述べた通りである。

表 3.3：シングルバンチ運転におけるパルス測定実験のビーム条件。

Experimental date	2013/3/28 - 29
Beam-line	J-PARC/MLF/BL10 NOBORU
Beam power	120 kW
Rotary Collimator	Open
Beam size	$2.1 \times 2.1 \text{ cm}^2$
Filters	Pb (25 mm ^t)
Frame-overlap chopper	Not in use

3.3.3.2 試料及び検出器のセットアップ

基本的にはダブルバンチ運転時の実験と同じセットアップである。試料は薄い Al 板にカプトンテープで張り付けることで固定している。この試料を貼りつけた Al 板はビーム出口の B₄C スリットのフレームから 500 mm の位置にセットしている。この位置は減速材からの距離、つまり飛行距離は約 13.3 m である。検出器は中性子ビームライン軸から外れて設置される必要があるため、試料の横に置く形となっている。この時、ダブルバンチ運転時の実験からの改良点として、検出器を設置する角度の変更を行った。試料と検出面のなす角が 90° にすると、検出器へ入る γ 線のスペクトルは自己遮蔽効果により変化することが考えられる。したがって、検出面が試料となす角が 80° になるように設置した。また、試料の中心と検出面の距離は 105 mm であった。図 3.26 に試料と検出器のセットアップの概略図を、図 3.27 に写真を示す。

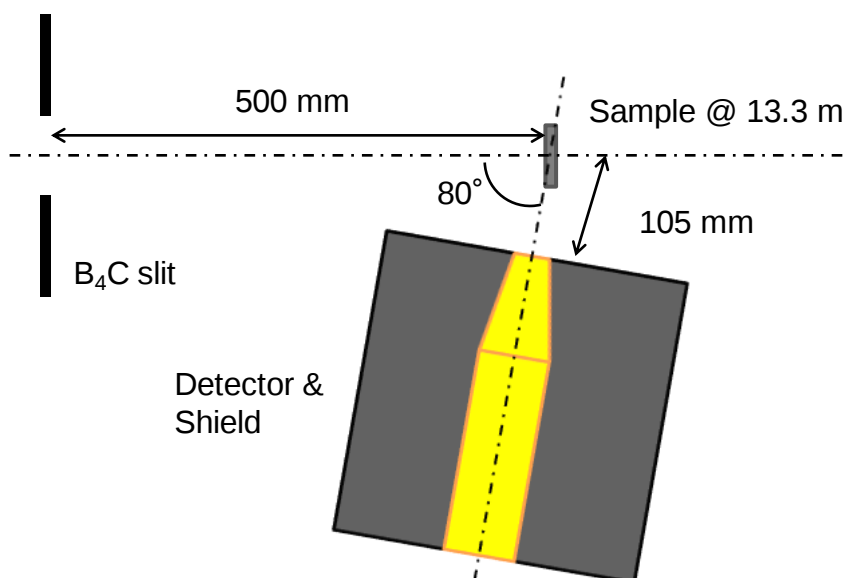


図 3.26 : シングルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの概略図。



図 3.27 : シングルバンチ実験における試料と検出器のセットアップの様子。右は試料及び検出器を上から見た様子であり、写真の右側に写っているのは B_4C スリットのフレームである。左はビームライン上流側から試料を写した写真である。

3.3.3.3 測定された各試料の即発 γ 線スペクトル

3 種類の試料からの即発 γ 線の TOF スペクトルに加え、試料が無い状態における γ 線の TOF スペクトルの測定を行った。まず、図 3.28 に試料が無い状態における TOF スペクトルを示す。本実験で用いたプラスチックシンチレータは 3 本の光電子増倍管で構成されており、それぞれから得られた TOF スペクトルを 1ch、2ch、3ch として示した。なお、縦軸の値は加速器トリガー数で規格化している。ダブルバンチ運転時の TOF スペクトルと同様に、フラッシュガンマの影響により全ての ch のスペクトルが TOF が 0 付近で 0 になっているが、立ち上がり方が異なっている。これは、本実験ではフラッシュガンマを抑えるためにビームライン上流側に Pb フィルターを挿入したためであると

考えられる。フラッシュガンマの影響を受けている領域を除き、指数関数的になだらかな減衰をしている。また、共鳴的なスペクトルの変化が見られないため、各試料における TOF スペクトル中に現れている共鳴ピークは試料由来の共鳴ということである。

図 3.29 から 31 に Ta 試料、Au 試料及び Cu 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトルを示す。これらのスペクトルは図 3.26 に示したスペクトルを指数関数でフィッティングしてバックグラウンド曲線を作成し、それぞれの試料における TOF スペクトルから差し引くことで、試料からの即発 γ 線のための TOF スペクトルを抽出している。

シングルバンチ運転では 1 周期に 1 つの陽子パルスしか発生しないため、ダブルバンチ運転時の実験結果のようにピークが 2 つに分離することはない。そのため、1 つ 1 つの共鳴ピークの幅が狭くなるため、共鳴ピーク同士のオーバーラップが減少していることが確認できる。それ以外の傾向に関しては、ダブルバンチ運転の場合と同じである。

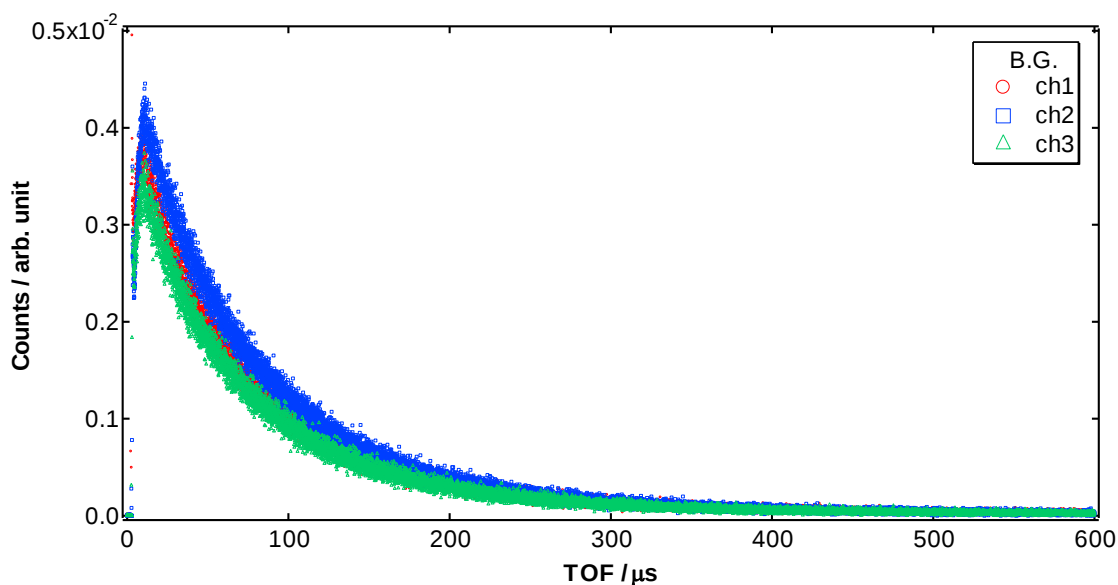


図 3.28 : シングルバンチ実験におけるバックグラウンド γ 線の TOF スペクトル。

第3章 定量化のための解析システムの開発

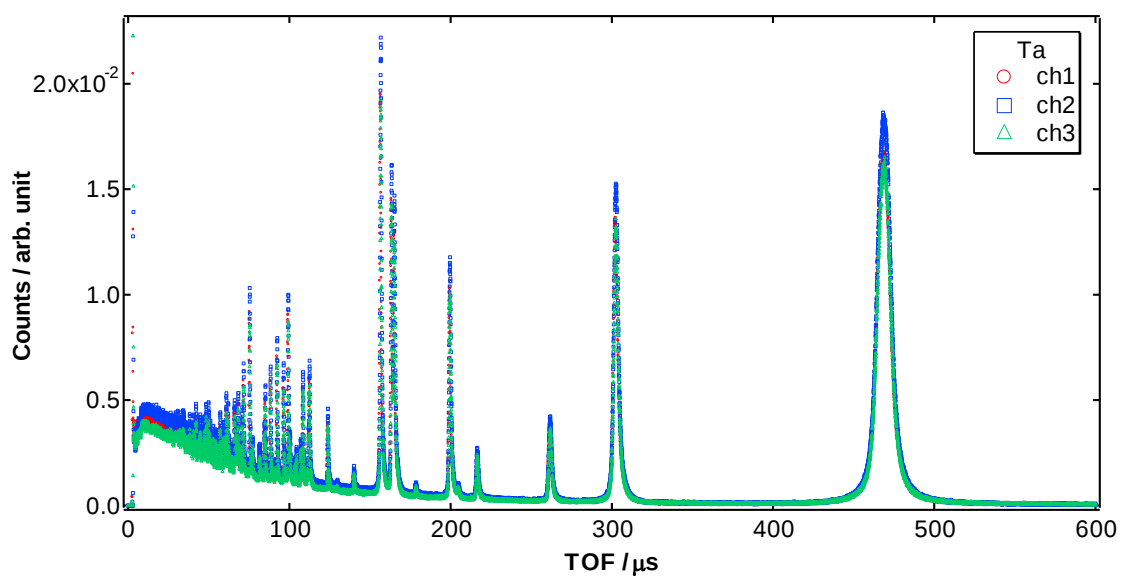


図 3.29 : シングルバンチ実験における Ta 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル。

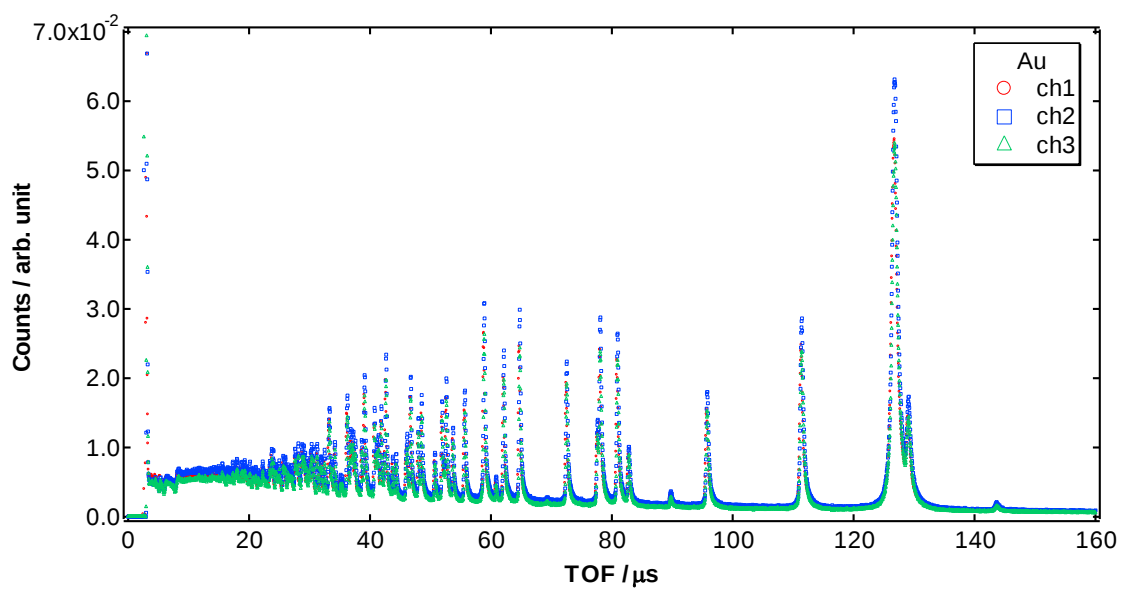


図 3.30 : シングルバンチ実験における Au 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル。

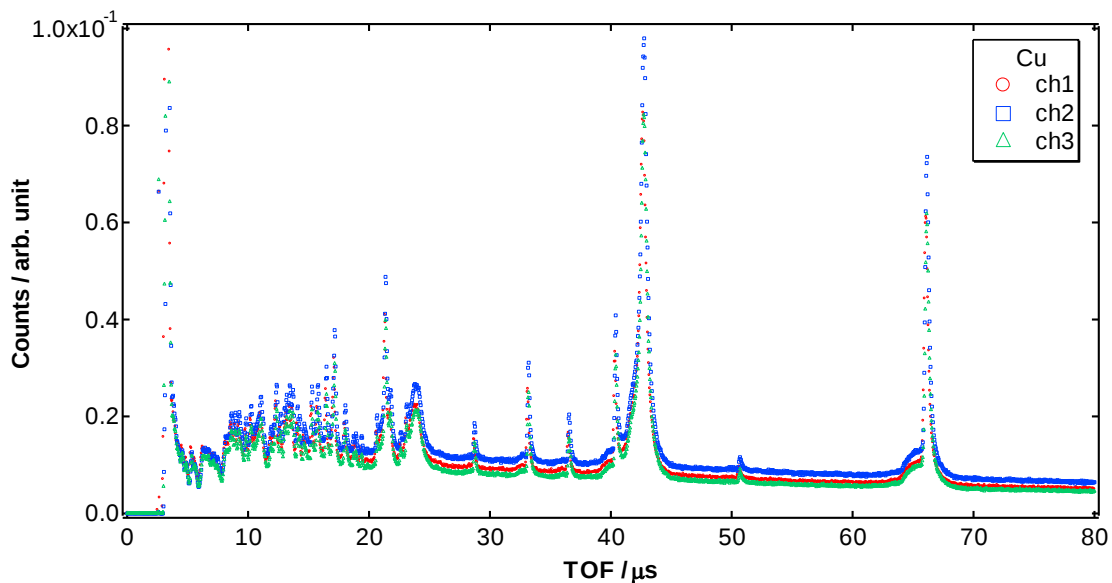


図 3.31 : シングランバチ実験における Cu 試料からの即発 γ 線の TOF スペクトル。

3.3.3.4 解析

解析の手順はダブルランバチ実験の場合と同様である。

まず、飛行距離と TOF の遅れを調べるために、共鳴エネルギーと TOF との関係を調べた (図 3.32)。式(3-22)を用いたフィッティングにより、 $L = 13.36$ m、 $t_d = 2.39$ μ s であることがわかった。

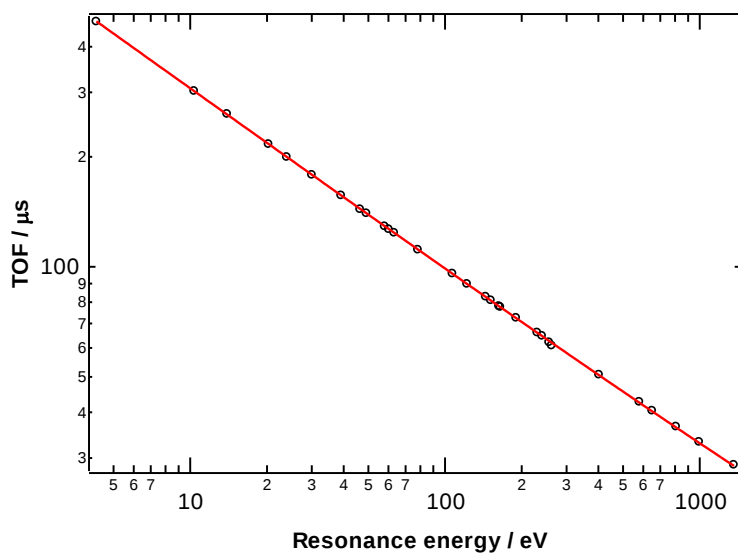


図 3.32 : Ta、Au、Cu の共鳴エネルギーと TOF の関係 (シングランバチ運転)。点は共鳴ピークのピーク位置、実線はフィッティング曲線を表す。

次に、式(3-23)を用いて各試料における共鳴ピークに対してフィッティングを行った結果を図 3.33 から 35 に示す。フィッティング関数はそれぞれの共鳴ピークを良く再現していることがわかる。これら一連の解析により抽出されたパルス関数のパラメータをシミュレーションにより求められたものと比較したものを図 3.36 に示す。実験から得られたパルス関数のパラメータの値は、シミュレーションから得られた値と誤差棒の範囲内でおおよそ一致している。つまり、ダブルバンチ実験と同様にシミュレーション計算で得られたパルス関数の妥当性を実験によって確認することができた。

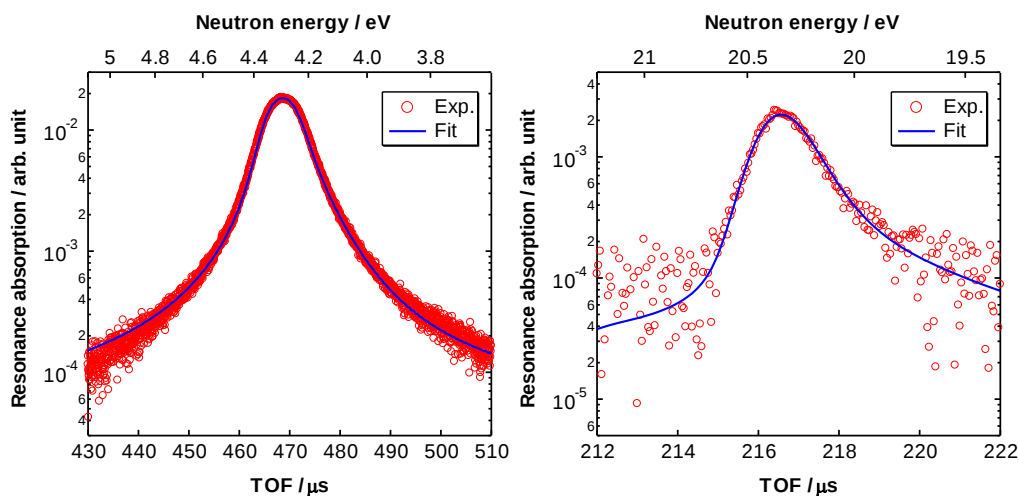


図 3.33 : Ta の共鳴ピークに対するフィッティング (シングルバンチ運転)。左 : 4.28 eV 共鳴、右 : 20.29 eV 共鳴。

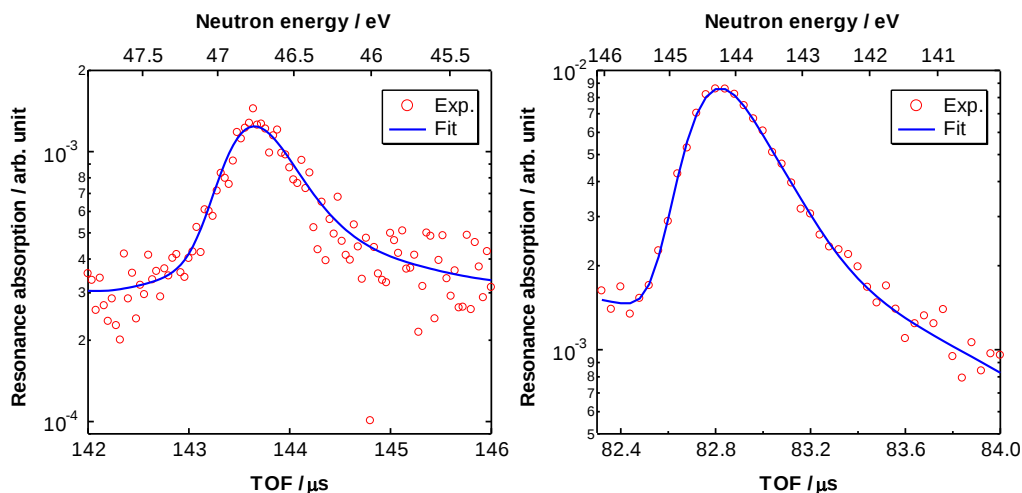


図 3.34 : Au の共鳴ピークに対するフィッティング (シングルバンチ運転)。左 : 45.46 eV 共鳴、右 : 144.4 eV 共鳴。

第3章 定量化のための解析システムの開発

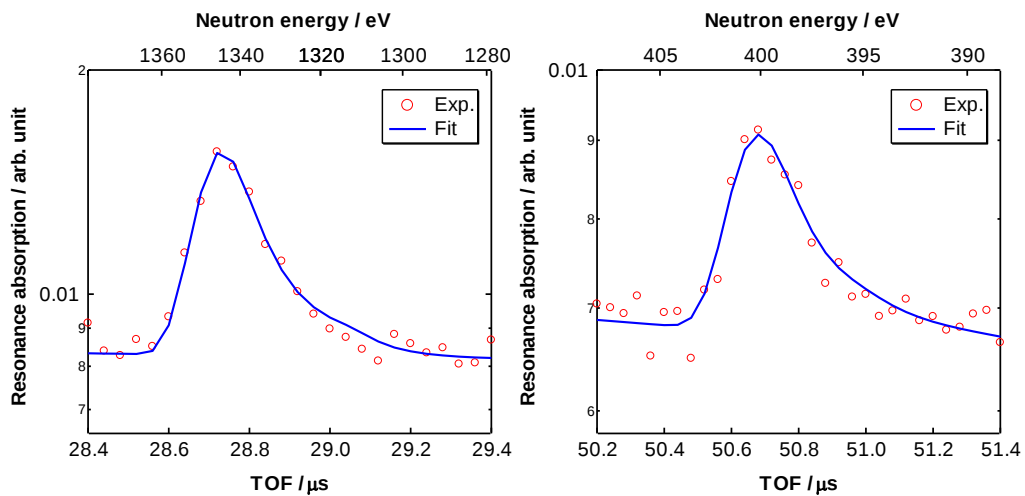


図 3.35 : Cu の共鳴ピークに対するフィッティング (シングルバンチ運転)。左 : 402 eV 共鳴、右 : 1362 eV 共鳴。

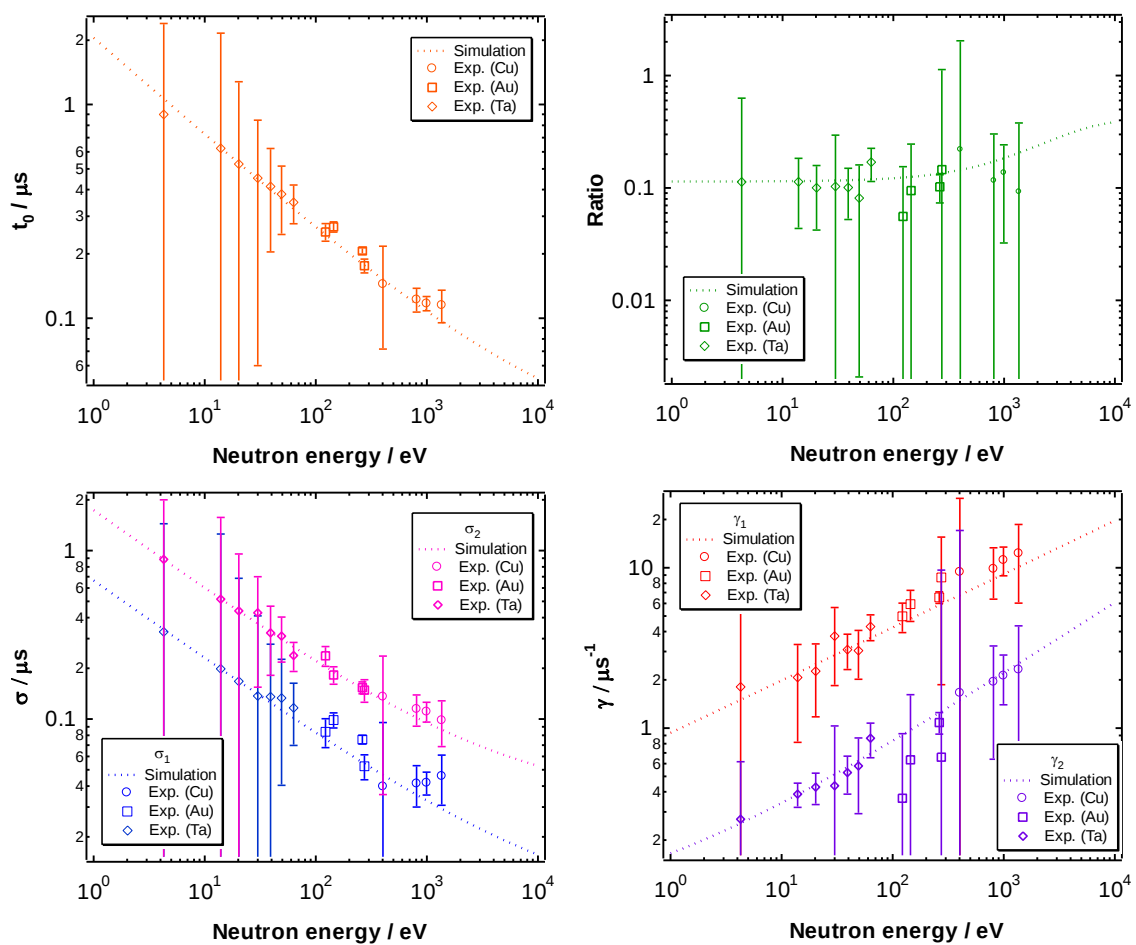


図 3.36: パルス関数のパラメータのシミュレーション値と実験値との比較 (シングルバンチ運転)。

3.3.4 NOBORU のパルス関数についてのまとめ

モンテカルロシミュレーション計算により、Cole-Windsor 関数によって NOBORU のパルス関数を 1 eV から 10 keV のエネルギー範囲で再現することが可能となった。また、ダブルバンチ実験及びシングルバンチ実験におけるパルス関数測定実験によって、シミュレーションで求めた NOBORU のパルス関数 (Cole-Windsor 関数) 及びそのパラメータのエネルギー依存性が妥当であるという確認を行った。つまり、モンテカルロシミュレーションによってパルス関数を求め、それを再現する最適な関数を求めるという手順によって、任意のエネルギーでパルス関数が再現可能ということである。

以上により、NOBORU における共鳴解析システムに組み込むパルス関数として Cole-Windsor 関数を用いることとする。また、3.2.5 で示したパラメータのエネルギー依存性を用いることで、エネルギー点の内挿及び外挿を行う。

3.4 シミュレーションによる HUNS 熱中性子源のパルス関数の計算

北海道大学の HUNS の熱中性子源 (以下、単に HUNS と呼ぶこととする) のパルス関数を NOBORU の場合と同様の手順で求めることとした。まず、モンテカルロシミュレーションによって HUNS のパルス関数の計算を行い、それを再現するために最適な関数を求めた。次に、エネルギー点の内挿及び外挿のために関数のパラメータのエネルギー依存性を調べ滑らかな関数で計算できることを確かめた (NOBORU の場合は実験により妥当性を確認したが、前節までの議論によりパルス関数導出におけるモンテカルロシミュレーション計算の妥当性が確認されたため、HUNS のパルス関数導出においては実験による妥当性確認を敢えて行うことはしない)。以下、HUNS のパルス関数の導出について説明を行う。

3.4.1 モンテカルロシミュレーションコード

HUNS のパルス関数の計算には MCNPX[86]を用いている。MCNPX は MCNP シリーズの拡張版であり、より高いエネルギーの中性子を扱うことができる。基本的な機能は 3.2.1 で説明したとおりである。NOBORU のパルス関数の計算とは異なり、PHITS は用いていない。これは、JSNS の水銀ターゲットに入射する陽子エネルギーが 3 GeV と非常に高エネルギーであるため発生する中性子も非常に高エネルギーになるのに対し、HUNS では蒸発中性子を利用しているため、扱う中性子のエネルギーが数 MeV のオーダーで留まるためである。そのため、全ての計算を MCNPX のみで行っている。

3.4.2 シミュレーションモデル

図 3.37 に HUNS のシミュレーションモデルを示す。この TMRA は平成 17 年度に製作されたものであり、北大ライナックのセンタービームラインに設置できる。中性子発生ターゲットは鉛である。このターゲットの周りを γ 線遮蔽用の鉛で覆っている。また、ターゲットには冷却パイプが接続されており、水を流すことで冷却を行っている。減速材には軽水を用いている。この軽水は 1mm 厚の Al 製の箱に封入されており、ターゲットと高さを合わせるためにマウントの上に設置してある。反射体は黒鉛を積み上げたものとなっている。JSNS のように大量の発熱を除熱する必要もないため反射体に冷却機構は取り付けられていない。この計算では、核データライブラリとして JENDL-4.0 を用いている。

実際の中性子発生反応は、約 33 MeV の電子ビームを鉛ターゲットに照射し、発生した制動放射線による光核反応 (γ, n) 反応) である。そのエネルギースペクトルは MCNPX のソースカードで再現することが可能であるため、今回の計算では電子ビームの輸送から計算を始めずに、中性子をソースとして計算を行っている。MCNPX における光核反応のエネルギースペクトル $\phi(E)$ は次の式で表される。

$$\phi(E) = CE \exp(-E/1.2895) \quad (3-24)$$

ここで、 C は定数である。この反応における中性子発生率は 1.6×10^{12} n/kW/s である[87]。また、NOBORU での計算と同様に電子線パルスの時間幅はシミュレーションでは考慮せずに、デルタ関数的に中性子を発生させている。

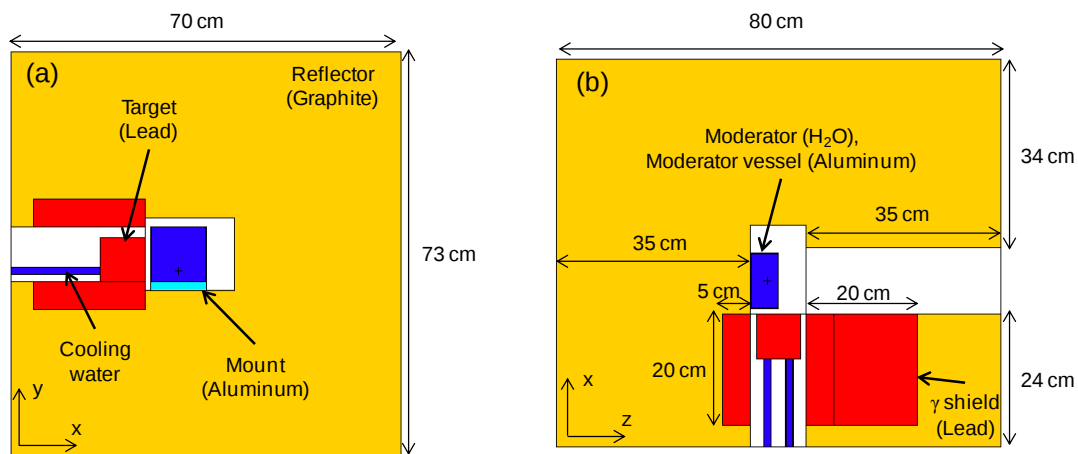


図 3.37: HUNS のシミュレーションモデル[88]。(a)は TMRA をビームライン下流側から見た図、(b)は TMRA を上から見た図となっている。

3.4.3 シミュレーション結果

NOBORU の計算と同様にタリーを減速材から十分離れた位置に設置している。この計算では 13.2 m の位置に設置しているが、これは HUNS における N-RAS 分光器の位置と一致している。この計算に用いた MCNPX にも飛行時間を焼き直す改造が施されており、その機能を利用してパルス関数の計算を行っている。

図 3.38 にモンテカルロシミュレーションにより求められた HUNS のパルス関数を示す。中性子の強度はピーク強度で規格化してある。図 3.4 に示す NOBORU の結果と同様に高エネルギー側ではテールを引くパルス形状となっており、崩壊性を示している。一方で、ピーク位置が NOBORU の場合よりも短い時間にシフトしている。これは、JSNS の減速材に比べて HUNS の減速材が小さいためである。また、代表点として中性子エネルギーが 1, 10, 100 eV と 1, 10 keV の結果を図 3.39 に示す。NOBORU のパルス関数と同様にエネルギーが高くなるにつれて幅が狭くなり、ピーク強度は減少している。

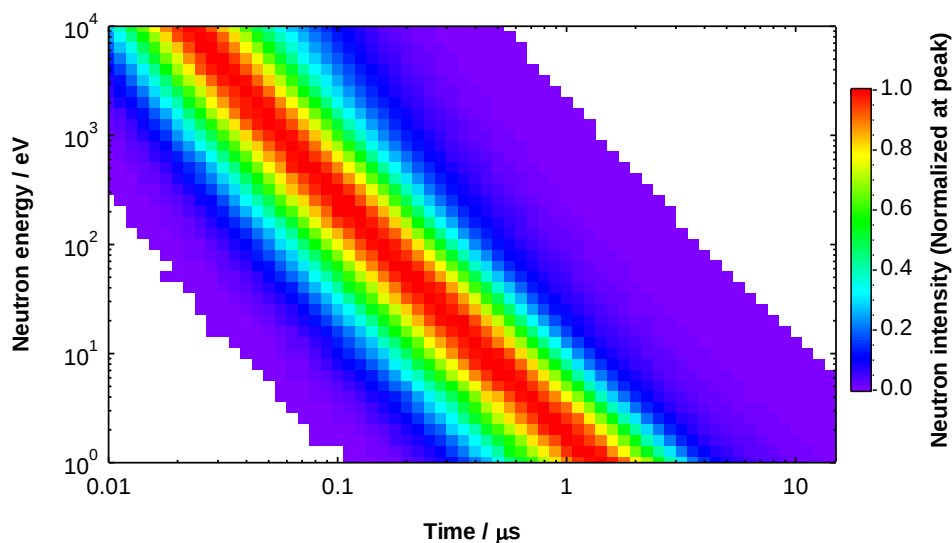


図 3.38 : HUNS の全中性子エネルギーにおけるパルス関数。

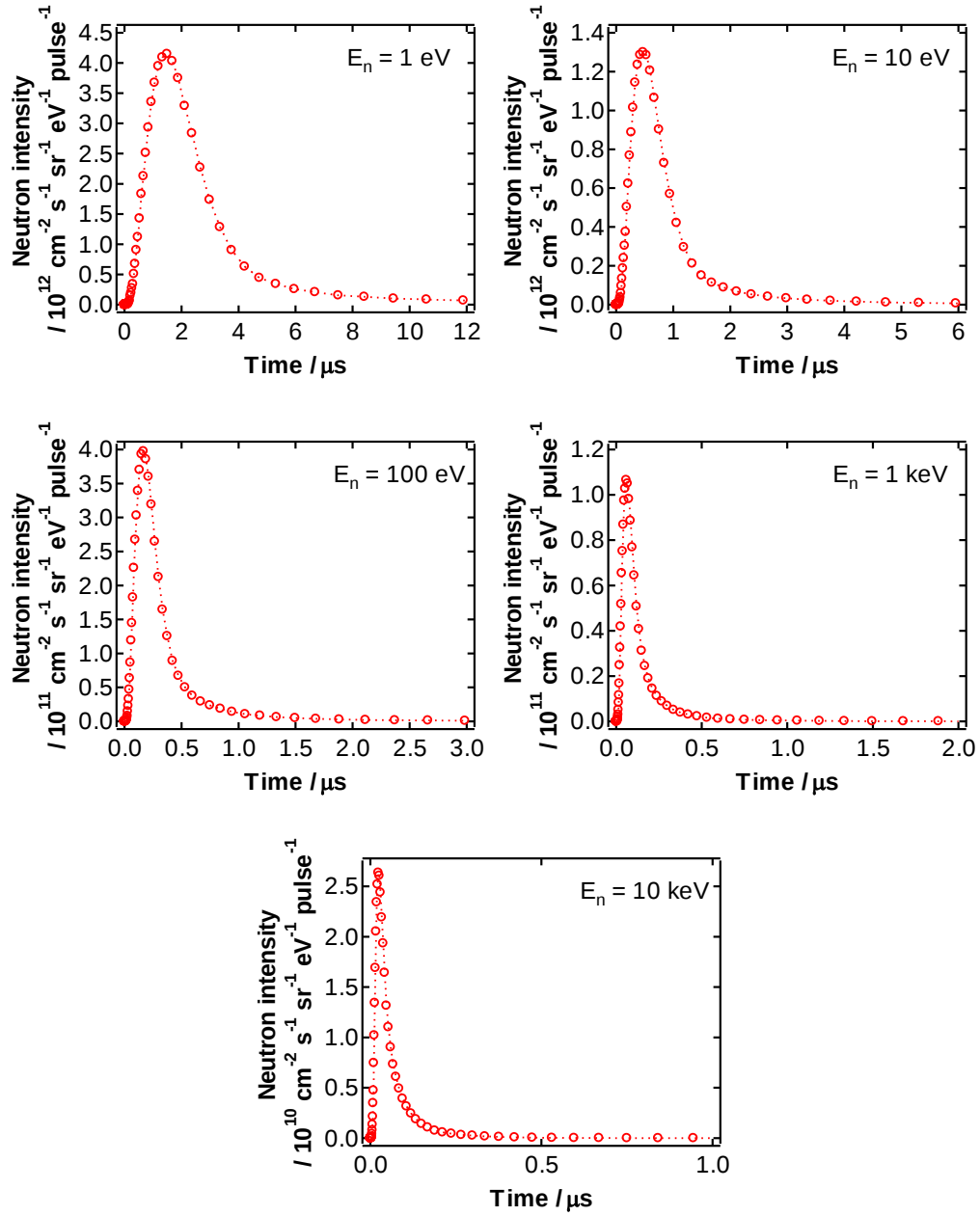


図 3.39 : モンテカルロシミュレーションによって求められた HUNS のパルス関数。中性子のエネルギーは 1, 10, 100 eV と 1, 10 keV である。

3.4.4 既存関数を用いたフィッティング

モンテカルロシミュレーションにより求めた HUNS のパルス関数に対し既存の関数を用いたフィッティングを行う。ここでは、NOBORU の場合と同様の理由で Ikeda-Carpenter 関数と Cole-Windsor 関数の比較を行った。ただし、擬 Voigt 関数に関しては HUNS のパルス関数を再現できなかったため、ここでは省略する。

3.4.4.1 Ikeda-Carpenter 関数によるフィッティング

Storage term を考慮した Ikeda-Carpenter 関数として式(3-11 ~ 13)を用いた。ここでは、 α 、 β 、 t_0 に加え規格化定数 C をフィッティングにおけるパラメータとしている。図 3.40 に中性子エネルギー (E_n) が 1, 100 eV, 10 keV のパルス関数に対するフィッティング結果を示す。ここで、Residual (残差) は式(3-20)で定義した通りである。

ピーク付近の形状、つまり Slowing-down 項に関しては十分に形状を再現している。しかし、減衰部分、つまり Storage 項に関してはうまく再現できていないことがわかった。また、 χ^2 値を自由度で割った値は $E_n = 1, 100 \text{ eV}, 10 \text{ keV}$ に対してそれぞれ 16.79、44.09、68.47 であった。

3.4.4.2 Cole-Windsor 関数によるフィッティング

次に、Cole-Windsor 関数によるフィッティングを行う。フィッティングパラメータは式(3-19)に示されている $\alpha_{1,2}$ 、 $\gamma_{1,2}$ 、 t_0 、 R そして C である。図 3.41 に中性子エネルギーが 1, 100 eV, 10 keV のパルス関数に対するフィッティング結果を示す。

実験値との差は 1 eV 及び 100 eV の場合には Ikeda-Carpenter 関数とあまり大きな差は見られない。高エネルギーの場合において、Cole-Windsor 関数の方がシミュレーション結果を良く再現していることがわかった。また、 χ^2 値を自由度で割った値は $E_n = 1, 100 \text{ eV}, 10 \text{ keV}$ に対してそれぞれ 315.02、69.50、38.71 であった。全体的な傾向としては両者ともあまり差が無いように見えるが、 χ^2 値で比較すると $E_n = 10 \text{ keV}$ の場合を除いて Ikeda-Carpenter 関数の方が適合していると言える。これは、Cole-Windsor 関数の方がパルスの立ち上がり部分をうまく再現できていないためであると考えられる。しかし、ピークの立ち上がり部分はピークのトップ部分に比べ 2 桁以上は強度が低いため、共鳴ピークに対してはあまり重要ではない。加えて、Ikeda-Carpenter 関数では高エネルギーのパルス関数の再現に不適合であることが判明したので、HUNS のパルス関数として Cole-Windsor 関数を採用することとした。

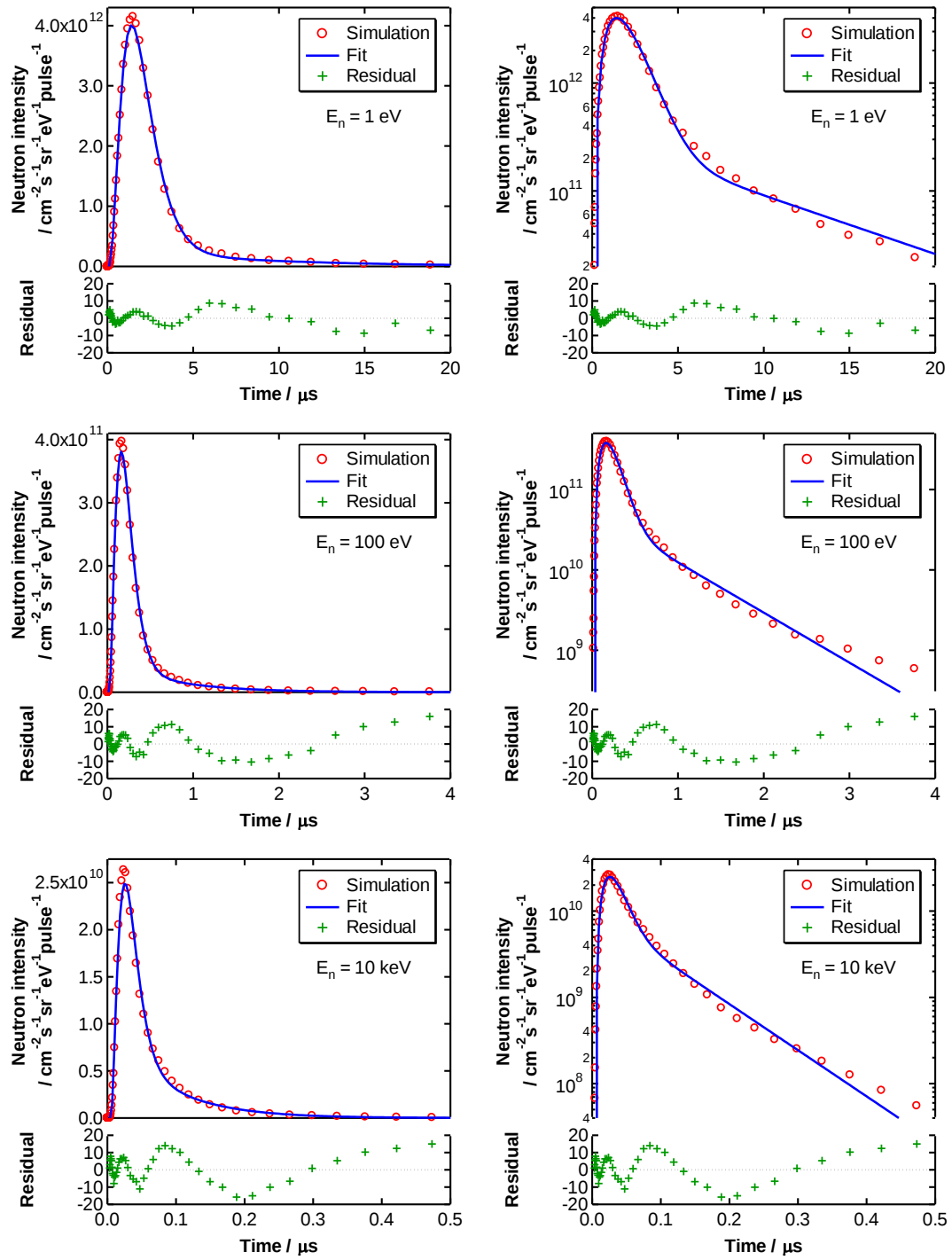


図 3.40 : Ikeda-Carpenter 関数による HUNS のパルス関数へのフィッティング (左 : 両線形、右 : 片対数表示) [88]。中性子エネルギーは上から 1 eV, 100 eV, 10 keV である。

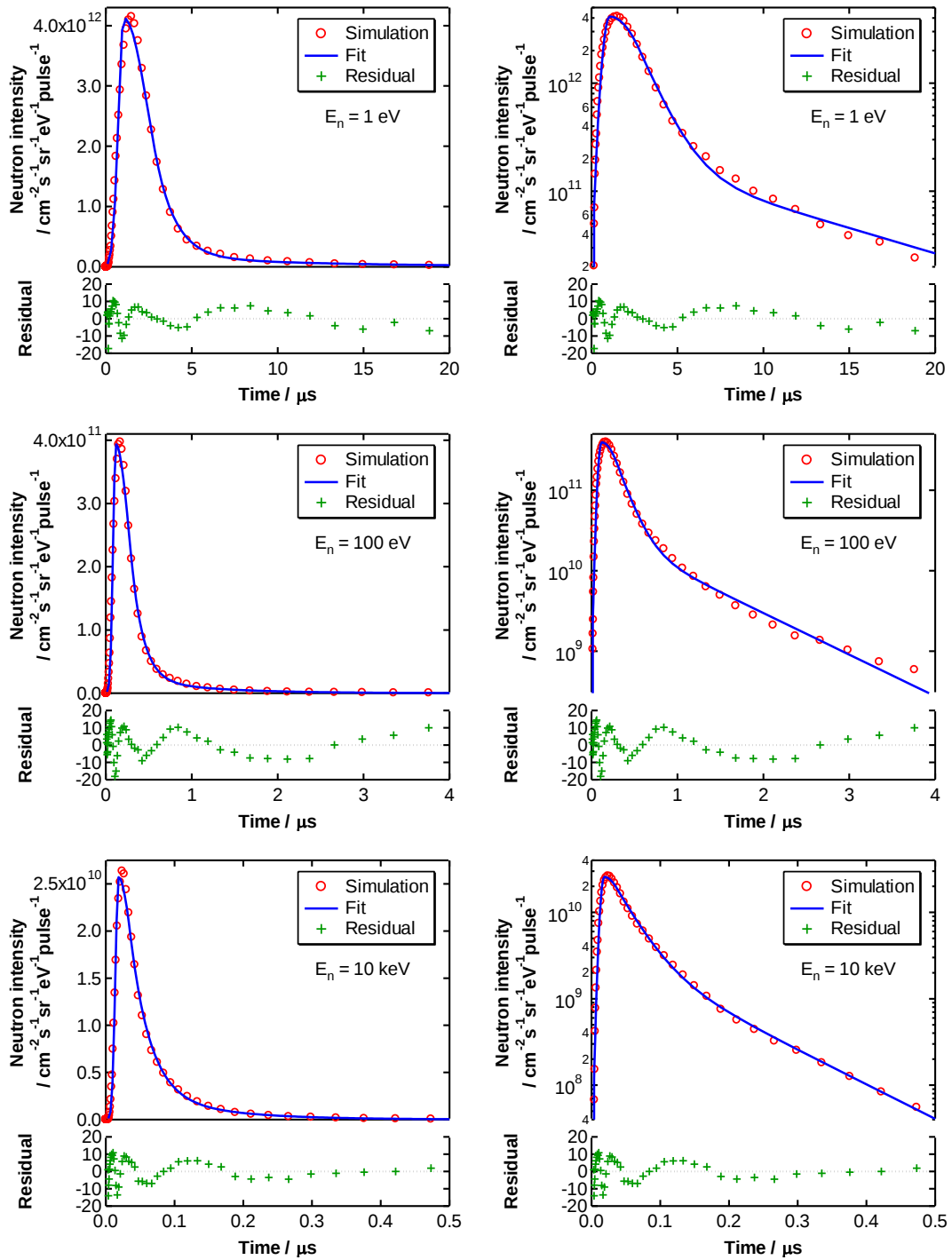


図 3.41 : Cole-Windsor 関数による HUNS のパルス関数へのフィッティング (左 : 両線形、右 : 片対数表示) [88]。中性子エネルギーは上から 1 eV, 100 eV, 10 keV である。

3.4.5 パルス関数のパラメータのエネルギー依存性

HUNS のパルス関数を任意のエネルギーで再現するために、Cole-Windsor 関数のパラメータのエネルギー依存性を調べた。図 3.42 に各パラメータのエネルギー依存性を示す。何れのパラメータもエネルギーに対して滑らかに変化することがわかった。

各パラメータに対するフィッティング曲線を図 3.42 に併せて示している。フィッティングに用いた式は以下ようになる。

$$t_0 = 5.55 \times 10^{-3} + 0.910 E_n^{-0.461} \quad (3-25a)$$

$$\sigma_1 = 1.05 \times 10^{-3} + 0.226 E_n^{-0.452} \quad (3-25b)$$

$$\sigma_2 = 8.68 \times 10^{-3} + 1.45 E_n^{-0.489} \quad (3-25c)$$

$$\gamma_1 = -0.988 + 1.81 E_n^{0.326} \quad (3-25d)$$

$$\gamma_2 = -4.96 \times 10^{-2} + 0.164 E_n^{0.434} \quad (3-25e)$$

$$R = 5.60 \times 10^{-2} + 1.40 \times 10^{-3} E_n^{0.409} \quad (3-25f)$$

$$C = -1.25 \times 10^{10} + 4.30 \times 10^{12} E_n^{-0.519} \quad (3-25g)$$

NOBORU のパルス関数と同様に Cole-Windsor 関数を用いて HUNS のパルス関数を任意のエネルギーで再現することが可能となった。

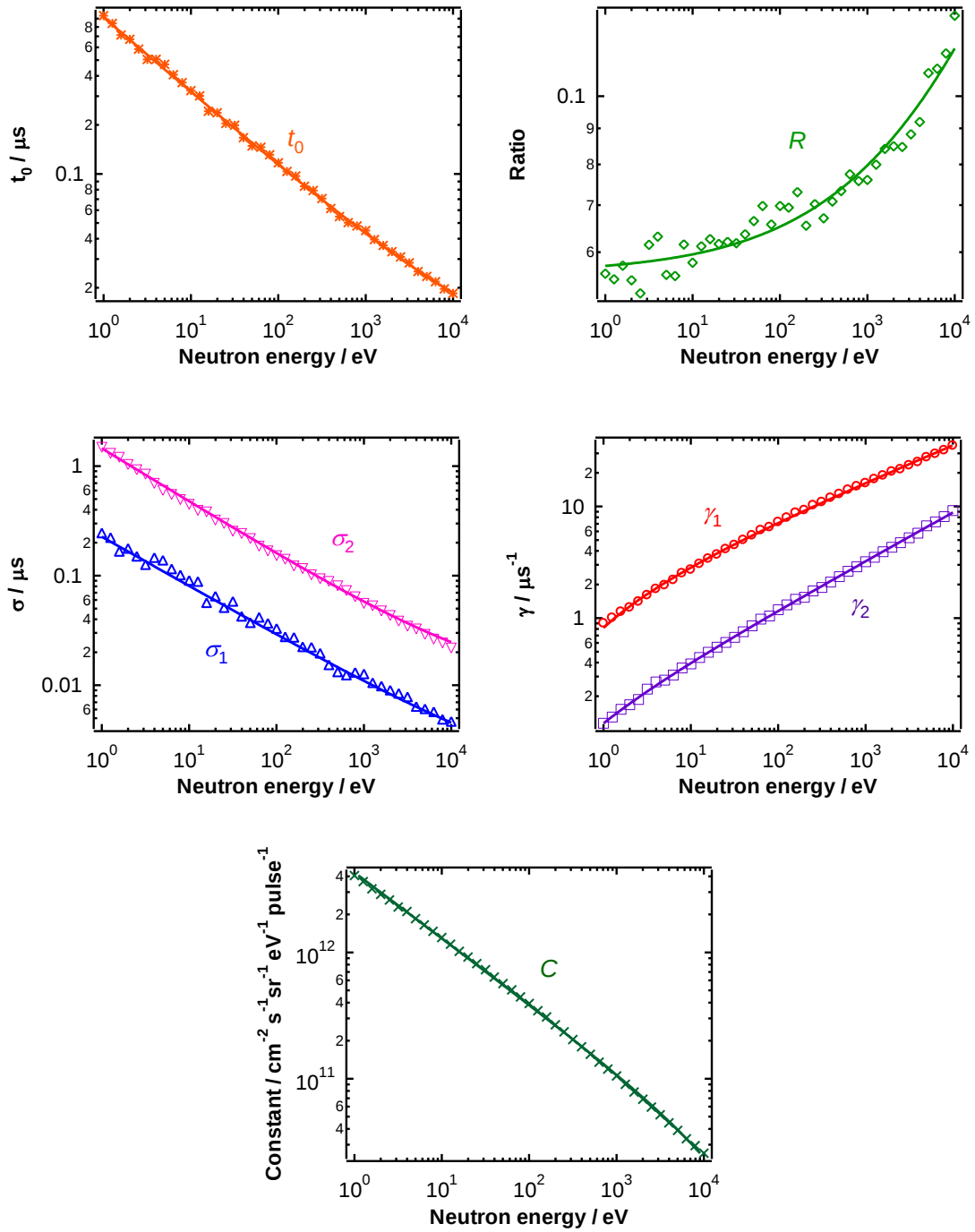


図 3.42 : HUNS における Cole-Windsor 関数の各パラメータのエネルギー依存性[88]。実線はフィッティング曲線を表す。

3.5 REFIT へのパルス関数の組み込み

NOBORU 及び HUNS のパルス関数として Cole-Windsor 関数が最適であることがわかった。NOBORU や HUNS における共鳴吸収スペクトルを計算するためには、共鳴吸収断面積とパルス関数（加速器からの荷電粒子のパルスを含む）を畳み込む機能を有する解析コードが必要となる。SAMMY ではダブルバンチによる効果を再現することができない。したがって、本研究では本研究では共鳴解析コード REFIT に対し Cole-Windsor 関数を組み込むことでこれを可能にした。

3.5.1 Cole-Windsor 関数の組み込み

REFIT では GELINA 専用のパルス関数（式(3-17)に示した Gunsing の式）を計算できるようになっている。本研究ではこの計算を行うサブルーチンを流用することで Cole-Windsor 関数を計算できるようにした。Gunsing の式に関するサブルーチンには FIXDT と TMODR の 2 つがある。FIXDT はパルス関数のパラメータを計算するためのサブルーチンである。Gunsing の式のパラメータはエネルギーの関数になっており、ここに式(3-21)及び(3-25)に示すパラメータを書き加えることで Cole-Windsor 関数のパラメータを計算するようにした。また、TMODR は Gunsing の式そのものを計算するサブルーチンである。これも同様に、式(3-19)に示す Cole-Windsor 関数に書き換えた。

このようにして、式自体の書き換えはできるが、パルス関数を計算する際の時間の刻み幅及びどの時間領域まで計算するのかを決定しなくてはならない。時間の刻み幅が粗ければ角ばったパルス関数となってしまう、時間領域が短過ぎればパルス関数のテールの部分が途中で打ち切られてしまう形状となってしまう。時間の刻み幅に関しては、Gunsing の式と Cole-Windsor 関数でパルスの幅にそれほど大きな差が無いことから、同じ刻み幅を採用した。Gunsing の式を用いる場合、時間の刻み幅は Gunsing の式のパラメータを基に計算しているため、この部分をそのまま利用した。パルス関数の時間領域は Cole-Windsor 関数のパラメータである γ_2 を利用して決定している。 γ_2 はエネルギーに比例して増加するパラメータであり時間に逆比例するため、これの逆数を取り、15 倍している。ただし、この 15 倍という数字に物理的な根拠ではなく、問題が無いような十分な時間をとったということである。

3.5.2 ダブルバンチの再現

ダブルバンチの再現は REFIT のオリジナルの機能で再現することができる。ここで、ダブルバンチの再現と書いているが、実際にはダブルバンチのみならず、任意の形状のパルスを再現することが可能である。REFIT では PULSE_SHAPE サブルーチンを利用してターゲットへ入射する荷電粒子のパルスを再現することができる。PULSE_SHAPE は表形式で与えられた時間と強度のデータを読み取り、入射パルス形状として取り扱う

サブルーチンである。したがって、ダブルバンチの構造を表形式の外部データとして REFIT に与えてやればよい。本研究の NOBORU に関する解析では、3.3.1 で示したような陽子パルスの形状を表形式データとして REFIT に与えている。データ点数は 65 点までと制限されているが、入射パルスの形状として複雑なものはあまり考えられず、このデータ点数でもダブルバンチの再現は十分可能であるため問題ではない。

3.5.3 デモンストレーション計算

デモンストレーションとして、NOBORU 用もしくは HUNS 用のパルス関数を組み込んだ REFIT を用いて共鳴スペクトルの計算を行った。

3.5.3.1 NOBORU における共鳴スペクトルの計算例

NOBORU における共鳴スペクトルの例として、2 つの観点から Ta の共鳴スペクトルの計算を行った。

まずは、パルス関数の影響を見るために、断面積から計算した透過率とそれにパルス関数を畳み込んだ透過率の比較を図 3.43 に示す。ここで、Intrinsic resonance は断面積から計算した透過率を表し、Single pulse 及び Double pulse はシングルバンチ運転及びダブルバンチ運転時のパルス関数を考慮した透過率を示している。また、Ta の厚さは 100 μm である。上の図は低エネルギーの共鳴について示しているが、シングルバンチの場合とダブルバンチの場合とで大きな差は見られない。一方、下の図は比較的高いエネルギーの共鳴について示しているが、この領域ではダブルバンチの影響により 1 つの共鳴ピークが 2 つに分離しかけている様子が確認できる。また、シングルバンチにおける共鳴ピークも Intrinsic な共鳴に比べてパルスの影響を大きく受けてより左右非対称な形状になっていることがわかる。

次に、異なる厚さの Ta による透過率の変化をしてみる。図 3.44 は厚さが 1、10、100 μm 及び 1、10 mm の Ta の透過率スペクトルを示す。なお、このスペクトルはダブルバンチ運転において得られるものである。厚さが増すごとに透過率が減少してゆく様子が確認できる。また、厚さが 1 mm 及び 10 mm の場合の 4.28 eV 共鳴において透過率がほぼ 0 になっており、共鳴ディップの底の部分が潰れたような形状を再現できていることがわかる。

REFIT により、NOBORU において得られる共鳴スペクトルの計算を行うことが可能となった。これにより、NOBORU では 100 eV 前後からダブルバンチの影響が表れてくることがわかった。

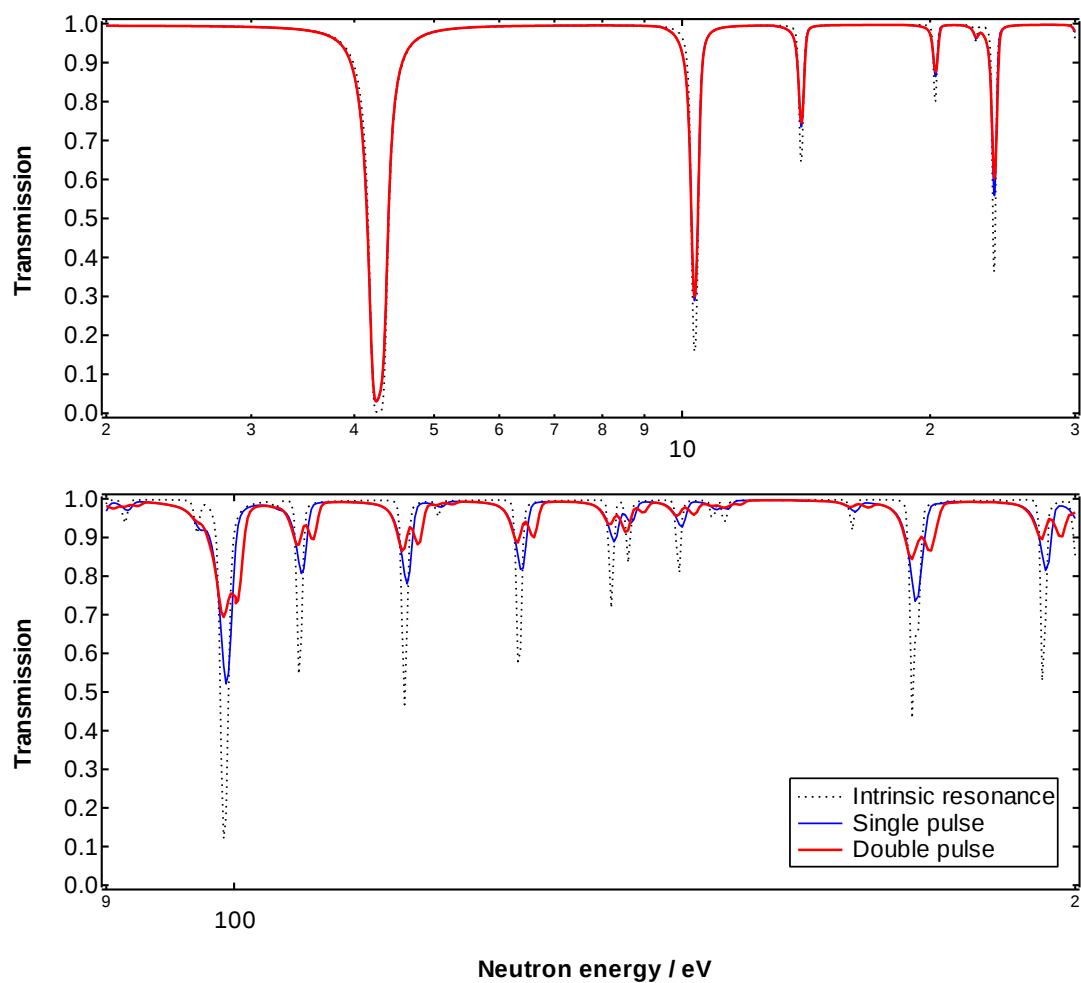


図 3.43：断面積から計算した透過率と NOBORU における Ta の透過率の比較[85]。

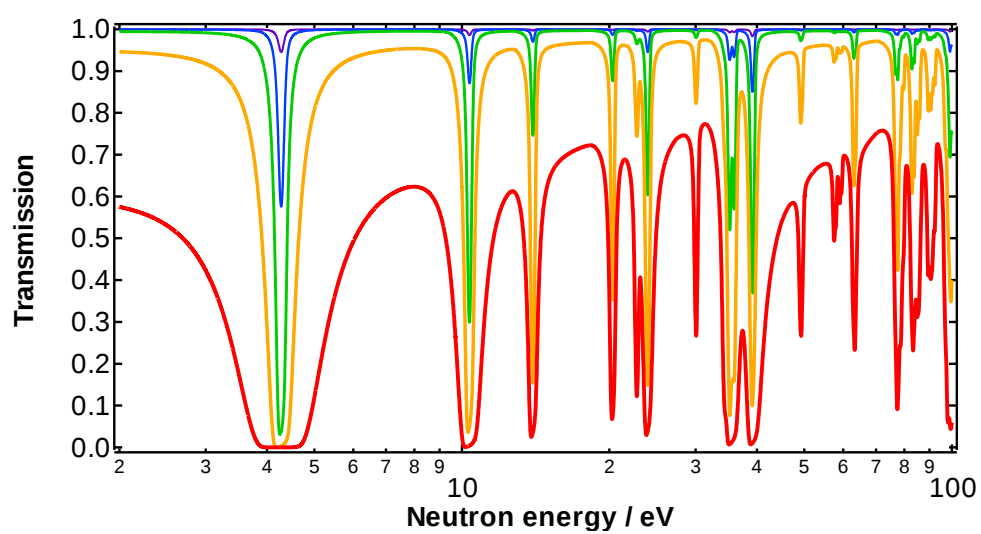


図 3.44：厚さの異なる Ta による透過率スペクトル（厚さ 1、10、100 μm 及び 1、10 mm） [85]。

3.5.3.2 HUNS における共鳴スペクトルの計算例

HUNS における例として、Ta、Au、Cu の共鳴スペクトルの計算を行った。これらの核種を選択した理由はパルス関数測定実験における理由と同じである。HUNS では加速器の運転条件をユーザの実験目的に応じて変更することが可能である。表 3.4 に HUNS の電子線形加速器の性能を示す。この中で共鳴スペクトルを測定する際に最も重要になってくるのは電子線パルス幅である。これが広ければそれだけ中性子パルスの幅も広くなり、共鳴ピークの解析が困難になる可能性があるからである。HUNS では加速器パワーが低いことから、一般的な中性子実験においては統計を稼ぐために電子線パルス幅を $3\text{ }\mu\text{s}$ にすることが多い。今回行う計算では、最もパルス幅の短い 10 ns の場合と、最大の $3\text{ }\mu\text{s}$ 、またその間の $1\text{ }\mu\text{s}$ の場合について共鳴スペクトルを計算した。それぞれのパルスの形状についての説明を加えておく。パルス幅 10 ns のモードでは、パルスはガウス関数の形状をしている。そのため、計算においては電子パルスの形状を半値幅が 10 ns のガウス分布としている。一方で、パルス幅 $3\text{ }\mu\text{s}$ 及び $1\text{ }\mu\text{s}$ のモードでは様子が異なり、矩形波の形状となる。これはパルス幅を持たせるために、シャープなパルスを連続して発生させているからである（図 3.45）。実際には、図 3.45(b)に示すようにパルスはフラットにはならず、元々のパルス形状のピークによる凹凸が生じる。しかし、その凹凸は無視できるほど小さいため、フラットな矩形波として再現している。なお、これらの計算では HUNS の N-RAS 分光器の位置である、減速材から 13.2 m を飛行距離として計算している。

表 3.4 : HUNS の電子線形加速器の性能[88]。

Maximum energy	45 MeV
Maximum current	140 μA
Electron pulse width	$0.01 \sim 3\text{ }\mu\text{s}$
Repetition	single, $10 \sim 200\text{ pps}$

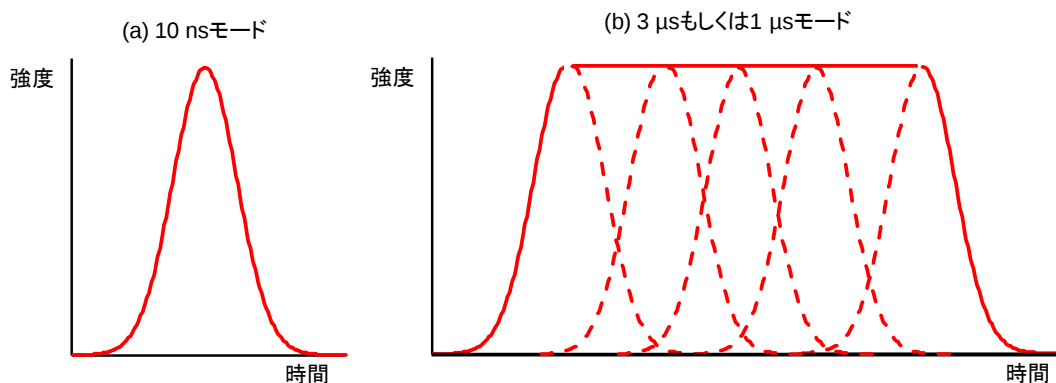


図 3.45 : HUNS の電子線形加速器の電子線パルス幅の概念図。

図 3.46 に各パルス幅における Ta の共鳴スペクトルを示す。図 3.43 の場合と同様に Intrinsic は断面積から計算した透過率スペクトルを示している。ここで、Ta の厚さは 100 μm である。10.36 eV 共鳴に関しては、パルス幅 3 μs の場合でも共鳴ピークの形を保っている。しかし、20 eV 以上の領域では矩形パルスの影響により元々の共鳴断面積の形状が失われつつある。一方で、パルス幅 1 μs の場合は矩形パルスの影響はさほど見られない。次に、図 3.47 に Au の共鳴スペクトルを示す。ここで、Au の厚さは 100 μm である。パルス幅 3 μs の場合、より矩形パルスの影響が大きくなり、100 eV を超えた領域において数 μs の間に複数の共鳴が存在するともはや分離ができない状態となってしまう。また、100 eV を超えるとパルス幅 1 μs の場合でも矩形パルスの影響が表れ始めている。最後に Cu の共鳴スペクトルを図 3.48 に示す。ここで、Cu の厚さは 1 mm である。このエネルギー領域ではパルス幅 10 ns の場合のみが共鳴の形状を維持している。

以上のことから、HUNS ではパルス幅 3 μs の運転モードでは測定可能な共鳴のエネルギーの上限は 10 eV 程度であることがわかった。パルス幅 1 μs の運転モードであれば数 10 eV の共鳴ピークの測定が可能である。パルス幅 10 ns であれば keV オーダーの共鳴が測定可能となるが、加速器パワーが低いためにその運転モードで実験を行うのは現実的ではない。したがって、HUNS において数 100 eV 以上の共鳴の測定を行うには、減速材やビームラインの大幅な変更が必要である（例えば、試料を減速材の近くに設置して大面積の検出器で大きな立体角をカバーするなど）。

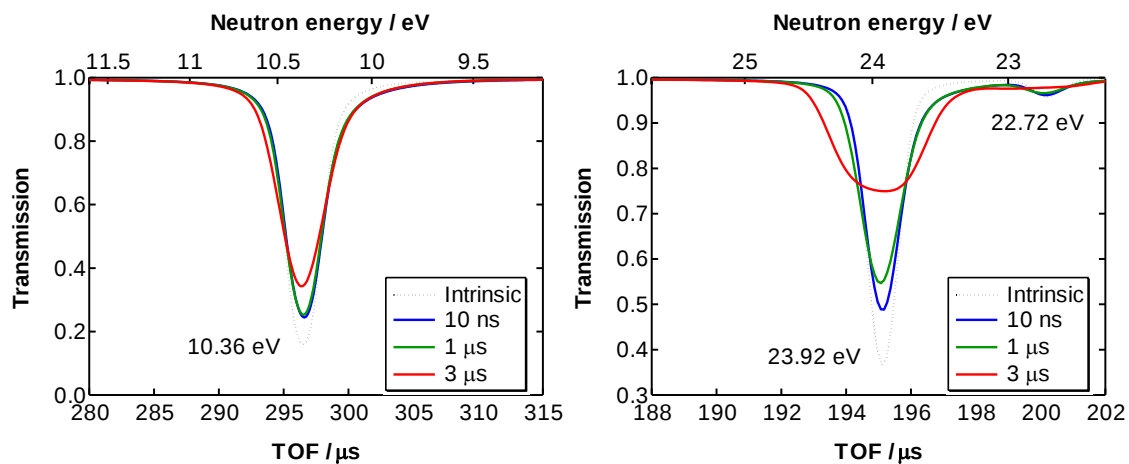


図 3.46 : 各パルス幅における HUNS における Ta による透過率スペクトル[88]。

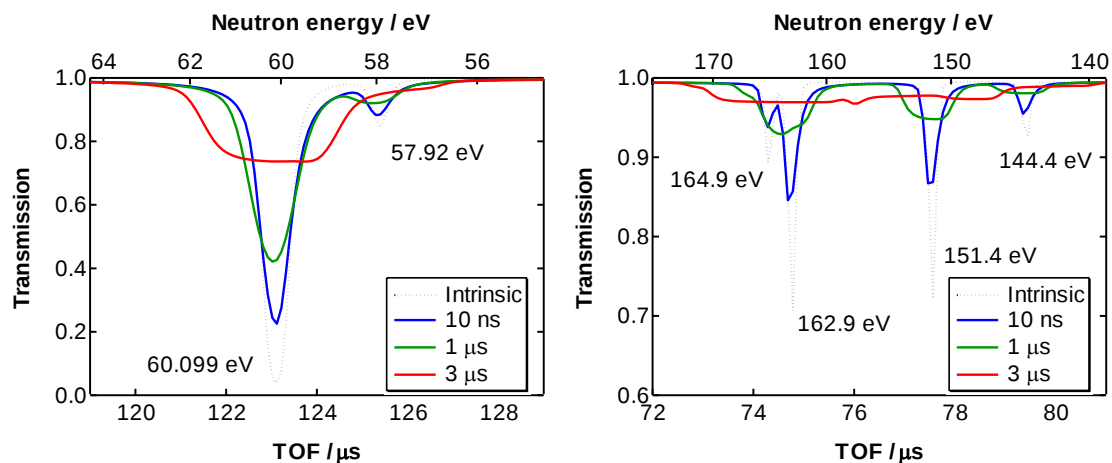


図 3.47 : 各パルス幅における HUNS における Au による透過率スペクトル[88]。

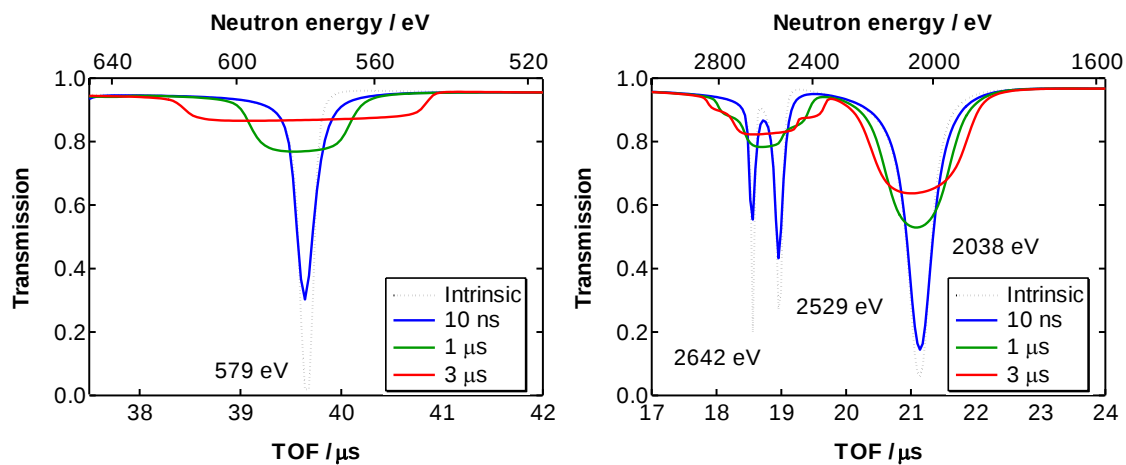


図 3.48 : 各パルス幅における HUNS における Cu による透過率スペクトル[88]。

3.6 第3章のまとめ

本章では、透過型 N-RAS を用いた定量的な原子数密度測定のための最初の段階として、解析システムの開発について述べた。この解析システムは共鳴解析コード REFIT をベースに作成されており、NOBORU や HUNS における共鳴スペクトルの解析が可能となっている。特に、J-PARC の加速器に特有のダブルバンチによる影響を計算することを可能としており、パルス関数を考慮した NOBORU の共鳴スペクトルの計算を行ったのは初めての試みである。

解析システムの開発にあたり、まずは NOBORU のパルス関数を再現するために、モンテカルロシミュレーションにより熱外中性子のパルス関数の計算を行った。シミュレーションコードとして MCNP 及び PHITS を使い、評価済み核データライブラリとして JENDL-3.2 を用いている。このシミュレーション計算により、NOBORU の 1 eV ~ 10 keV の範囲におけるパルス関数が求められた。このパルス関数をパラメータ化し、任意のエネルギーで再現するために、いくつかの既存関数を用いたフィッティングを行った。その結果、Cole-Windsor 関数を用いることで最も NOBORU のパルス関数をよく再現できることが明らかとなった。次に、パラメータのエネルギー依存性を調べることで、内挿もしくは外挿による任意のエネルギーでのパルス関数の再現を可能とした。

モンテカルロシミュレーションにより求めたパルス関数の妥当性を確認するため、パルス関数の測定実験を行った。熱外中性子の領域では回折を利用してパルス関数を測定することは不可能であるため、本研究では即発 γ 線型 N-RAS により得られた共鳴ピークからフィッティングによりパルス関数のパラメータを抽出し、シミュレーションによる結果と比較することで妥当性の確認を行った。即発 γ 線型 N-RAS は J-PARC の通常のダブルバンチ運転に加えて、より高精度の測定が期待できるシングルバンチ運転時に NOBORU において行っている。幅広いエネルギー範囲における共鳴ピークを測定するため、試料として Ta、Au、Cu を使い、検出器はプラスチックシンチレータを用いた。ダブルバンチ運転時及びシングルバンチ運転時の実験により求められたパルス関数のパラメータと、シミュレーションにより求められたパラメータのエネルギー依存性を比較したところ、どちらの実験においてもその傾向が誤差の範囲でおおよそ一致していることが確認できた。

本研究では NOBORU のパルス関数に加えて、HUNS のパルス関数もシミュレーションにより求めた。NOBORU の場合と同様に、モンテカルロシミュレーションにより HUNS の熱外中性子のパルス関数を計算し、いくつかの既存の関数を用いてフィッティングを行った。HUNS のパルス関数は NOBORU と同様に Cole-Windsor 関数で再現できることが明らかとなった。

このようにして求めたパルス関数を REFIT コードに組み込むことで、NOBORU 及び HUNS のパルス関数を畳み込んだ共鳴スペクトルの計算を行うことを試みた。REFIT に

は Ikeda-Carpenter 関数や IRMM 専用の Gunsing 関数が元々実装されているが、本研究では、Gunsing 関数及びそのパラメータを計算するサブルーチンである TMODR と FIXDT を書き換えることにより、REFIT での Cole-Windsor 関数の計算を可能にした。また、J-PARC 加速器の陽子パルスのダブルバンチ構造を再現するため、ビームモニターの 1 つである CT のデータからダブルバンチ構造を取得し、これを REFIT の PULSE_SHAPE サブルーチンを利用して外部データとして取り込むことで再現できるようにした。Cole-Windsor 関数を実装した REFIT コードに加えて、陽子パルスの時間構造を表現する外部データを含めて解析システムである。この解析システムを用いることで、透過型 N-RAS による共鳴スペクトルの計算のみならず、即発 γ 線型 N-RAS における共鳴スペクトルの計算も可能である。

こうして開発した解析システムを用いて、いくつかのデモンストレーション計算を行った。まずは、NOBORU におけるパルス関数の Ta の共鳴スペクトルに対する影響を示す計算を行った。この計算により、NOBORU において 100 eV 前後からダブルバンチの影響による共鳴ピークの分離が現れることがわかった。また、Ta 試料の厚さによる共鳴スペクトルの変化に関する計算を行った。この計算により、本研究で開発した解析システムを用いて試料厚さ（試料密度）に対応した透過率の現象を再現できていることを確認した。次に、HUNS における共鳴スペクトルの計算を行った。HUNS では強度を稼ぐために、電子線形加速器は電子パルスの幅が 3 μs の矩形波のモードで通常運転される。共鳴スペクトルの測定に対してはこの幅は非常に広く、10 eV 程度のエネルギーが上限であることがわかった。また、電子パルスの幅を 1 μs のモードにすると数 10 eV の共鳴を測定することが可能である。

第4章 核種定量化手法の検証実験

専用のパルス関数を導入することにより、REFIT を用いて NOBORU における共鳴スペクトル解析が可能となった。本章では開発した解析システムによる原子数密度分析の定量性を評価するために行った透過型 N-RAS 実験とその結果について述べる。まず、定量解析を行うための実験手法である、試料と検出器間距離を離れた測定について述べる。その手法を用いて実際に NOBORU においていくつかの共鳴試料に対し透過型 N-RAS 実験を行って共鳴スペクトルを測定し、測定された共鳴ディップに対して開発した解析システムを用いてスペクトルフィッティングを行うことで原子数密度を分析する。これらの実験及び解析により、本研究で開発した手法により原子数密度分析の定量化が可能であるということを実証する。また、共鳴エネルギーや試料厚さといった要素が定量性に与える影響の評価を行った。加えて、定量解析を行うための手法の1つである Black Resonance を利用した散乱中性子などに起因するバックグラウンドの評価についてもその有用性について評価を行った。

4.1 試料と検出器を離れた測定

物質に中性子が照射されると様々な反応が起こる。共鳴を起こすエネルギー範囲では吸収と散乱を考える。吸収反応が起きた場合、入射してきた中性子は原子核に取り込まれて消滅する。一方、中性子が散乱された場合はどのような種類の散乱であれ反応後に（見掛け上）入射中性子は消滅しない。中性子の透過率測定では、標的核と反応を起こさずに透過した中性子を測定する。言い換えれば、標的核と反応を起こした全ての中性子は検出されないという前提で透過率は計算される。しかしながら、試料に散乱された中性子はあらゆる方向に飛んでゆくために、一部の散乱中性子は検出器に到達し計数されてしまう。つまり、見かけの透過率が上昇してしまい、原子数密度が過小評価されてしまうということである。

この影響を現象させるには検出器から試料を見た時の立体角を小さくさせればよい。最も単純で有効な方法としては、試料と検出器を離して透過率測定を行うことである。図 4.1 は試料と検出器の距離が近い場合を、図 4.2 は遠い場合の模式図を表している。試料が検出器に近過ぎる場合、試料から前方方向へ散乱された中性子はそのほとんどが検出器に到達する。一方で、試料が検出器から離れている場合は散乱中性子が検出器へ到達する確率が減少する。核データ測定の分野において透過率測定を実施する場合、このようにして試料と検出器を十分に離して測定を行う。検出器へ到達する全ての中性子が試料を透過し、なおかつ試料で散乱された中性子が検出器へ到達しないような体系を good geometry と呼ぶ[45]。例えば、GELINA の 4 番ビームラインでは試料を減速材から

23.78 m、検出器を 49.34 m に設置して透過率測定を行っている[89]。しかしながら、NOBORU では図 1.7 を見てわかるように実験エリアが限られているため、GELINA が有する専用ビームラインのように試料を飛行距離の半分の位置に設置することはできない。また、イメージング測定を考えると、試料が検出器から離れ過ぎていると鮮明な画像が得られなくなるという問題がある。そのため、本研究では現実的な実験体系を構築するため、モンテカルロシミュレーションを用いて散乱中性子の透過率に対する影響の試料-検出器間距離依存性を調べた。

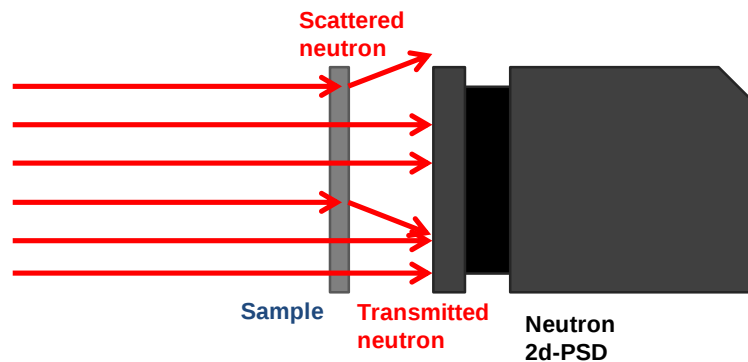


図 4.1：試料と検出器の距離が近い場合における試料からの散乱中性子の影響。

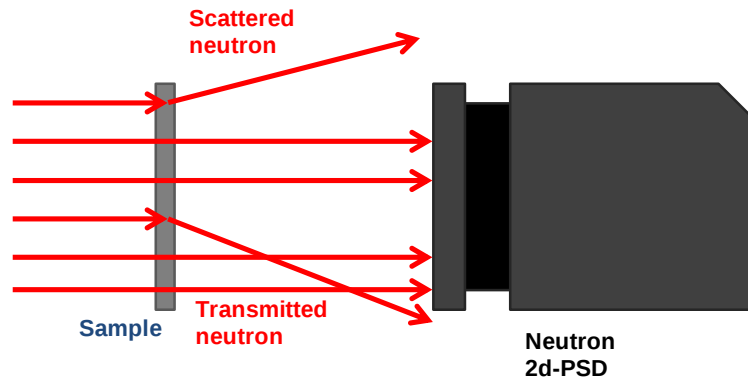


図 4.2：試料と検出器の距離が遠い場合における試料からの散乱中性子の影響。

4.2 散乱の影響が無視できる試料に対する密度分析

本研究で開発した解析システムによる原子数密度分析の定量性を評価するために、まずは散乱中性子の影響が無視できる試料として薄い箔状の Ta を選び、中性子透過測定を行った。本節では、NOBORU において行った透過実験と、REFIT による解析・密度分析について述べる。

4.2.1 実験

4.2.1.1 実験概要

実験は2012年6月にJ-PARC/MLF/BL10 NOBORUにおいて行った。この時のJ-PARC陽子加速器はダブルバンチ運転であり、そのビームパワーは200 kWであった。本実験では γ 線フィルター及びフレームオーバーラップチョッパーを使用していない。フレームオーバーラップを防ぐ目的で検出器の上流側にCd板を設置している。検出器の数え落としを防ぐ目的でロータリーコリメータ「小」を使用している。ビーム条件について表4.1にまとめる。検出器はGas Electron Multiplier (GEM) 検出器を使用している。検出器及び試料の詳細については4.2.1.2 及び4.2.1.3 で述べる。

表 4.1 : Ta 箔の原子数密度分析実験のビーム条件。

Experimental date	2012/6/2 - 3
Beam-line	J-PARC/MLF/BL10 NOBORU
Beam power	200 kW
Rotary Collimator	Small
Beam size	$10 \times 10 \text{ cm}^2$
Filters	Not in use
Frame-overlap chopper	Not in use

4.2.1.2 GEM 検出器

本実験を始めとして、本研究においてはGEM検出器を用いて中性子透過率測定実験を行っている。GEMによる放射線検出の原理はCERNのSauli[90]によって考案され、本研究で用いている検出器はKEKの宇野彰二教授らのグループにより開発されたもの[91]である。

中性子用のGEM検出器ではホウ素を中性子コンバータとして利用している。ホウ素が中性子を吸収すると以下の反応が起こる。



この反応により生成した α 粒子がチェンバー内のガスを電離し、微細な孔の空いたGEMホイルを用いて信号を増幅する。図4.3にGEMホイルによるガス増幅の原理を示す。GEMホイルは50 μm 厚ポリイミドの両面に5 μm 厚の銅がコーティングされたもので、これに多数の微細な孔（径70 μm 、140 μm ピッチ）が開けてある[91, 92]。この銅は電極として作用し、高電圧を印加することで微細な孔の内部で強力な電場が生じるため電子増幅が起こる。

図4.4にGEMチェンバーの内部の構成を示す。入射した中性子はホウ素コーティングされたアルミニウム (B-Al) 及びGEMホイル (B-GEM) によって α 粒子に変換される。 α 粒子はチェンバー内のガスを電離して電子を生成し、これをB-GEMが増幅する。

読み出し基盤までの間には更なるガス増幅のため、ホウ素コーティングされていない GEM ホイル (Normal GEM) を挿入している。増幅された電子の移動による電磁誘導を読み出し基盤 (Readout Board) で検出し、最終的にはこれが信号となる。この読み出し部分に X-Y 方向に直行したストリップ電極や電極パットを用いることで中性子の位置情報の取得が可能となる。このような微細加工技術を用いた放射線検出器を MPGD (Micro-Pattern Gaseous Detector) と呼ぶ。

本研究で用いた GEM 検出器の読み出し用エレクトロニクスは一枚のボードに実装されている。ボードのサイズを小さくするため、アナログ信号の処理に ASIC (Application Specific Integrated Circuit) が、デジタル信号処理用に FPGA (Field Programmable) が基盤に組み込まれている。ASIC において、ASD (Amp-Sharper-Discriminator) により検出された信号の増幅・成形・弁別が行われデジタル化される。このデジタル化された信号が FPGA に送られ、時間の同期や 2 次元の位置データを封入したパケットを生成し、TCP/IP プロトコルを利用してイーサネットケーブルを通じて PC にデータが送られる。

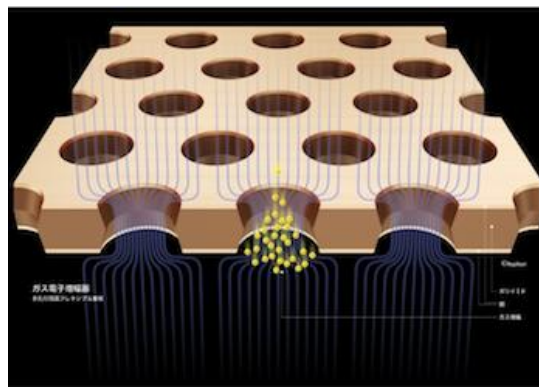


図 4.3 : GEM ホイルによるガス増幅の原理[93]。

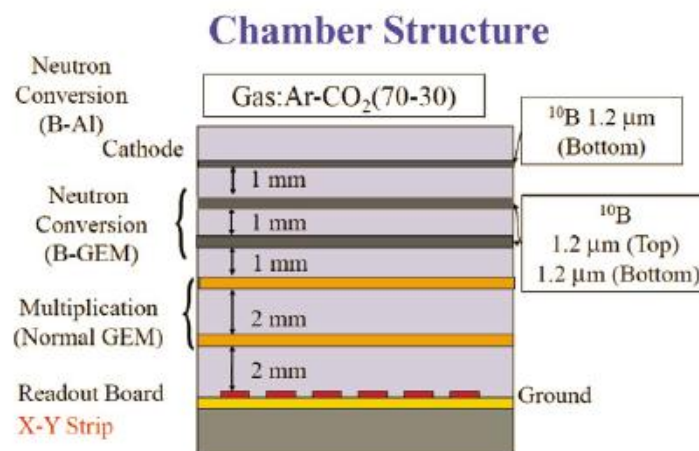


図 4.4 : GEM チェンバー内部の構成図[91]。

第4章 核種密度定量化手法の検証実験

本実験で用いられた GEM 検出器の諸元を表 4.2 にまとめる。この GEM 検出器の読み出し回路には 8 個の ASIC (FE2009[94]) が実装されており、それぞれの FE2009 は 32 個の ASD を有している。つまり、 $8 \times 32 = 256\text{ch}$ の信号を扱うことが可能であり、X 方向・Y 方向でそれぞれ 128 本のストリップ電極を用いることで 128×128 の位置情報を得ることができる。表 4.2 で示した位置分解能はこのストリップのピッチ間隔の長さであり、また、時間分解能は ASD の動作周波数から算出した値であるため、実際の分解能はこれらの値よりも落ちている。また、検出器の外観を図 4.5 に示す。中央の箱がチェンバーであり、チェンバーの上に読み出し用回路が取り付けられている。

表 4.2 : GEM 検出器の諸元。

B-GEM	$3 \times 0.6 \mu\text{m-thick } ^{10}\text{B coated on both sides}$ $2 \times 0.8 \mu\text{m-thick } ^{10}\text{B coated on both sides}$
Normal GEM	2 foils
B-Al	$1 \times 2 \mu\text{m-thick } ^{10}\text{B coated on single side}$
Gas	Ar-CO ₂ (70:30)
Detection area	$10 \times 10 \text{ cm}^2$
Spatial resolution	0.8 mm (pitch of strips)
Time resolution	10 ns (frequency of ASD)
Efficiency	40 % @ $\lambda_n = 0.4 \text{ nm}$ [95]
Maximum counting rate	3.65 MHz [96]



図 4.5 : GEM 検出器の外観。

4.2.1.3 試料

本実験で用いた Ta 箔の厚さは $10\ \mu\text{m}$ 厚で $10\times 10\ \text{cm}^2$ のサイズを持つ。原子数密度を扱う際には面密度（単位：atoms/barn）の概念を用いると便利である。面密度 d_A [atoms/barn]、断面積 σ [barn] の試料の透過率は次のように求められる。

$$Tr = \exp(-d_A \cdot \sigma) \quad (4-2)$$

また、この面密度は次のように計算される。

$$d_A = \frac{t \cdot d \cdot N_A}{A} \times 10^{-24} \quad (4-3)$$

ここで、 t は試料の厚さ[cm]、 d は体積密度[g/cm³]、 N_A はアボガドロ数[atoms/mol]、 A は質量数[g/mol]である。また、atoms/barn を at/b と略す表記法もある。この試料の面密度は 5.48×10^{-5} atoms/barn であった。表 4.3 に Ta 箔の諸元を示す。

表 4.3 : Ta 箔の諸元。

Thickness [μm]	10
Area density [atoms/barn]	5.48×10^{-5}
Size [cm^2]	10×10
Isotopes	^{181}Ta (100%)

4.2.1.4 試料と検出器のセットアップ

図 4.6 に試料と検出器のセットアップの概略図を、図 4.7 に写真を示す。試料は Al 板に張り付け、その Al 板を検出器の直前に置いている。検出器の検出面の中心とビームラインの中心が一致するように検出器とセットした。また、減速材からの飛行距離は 14.19 m であった。

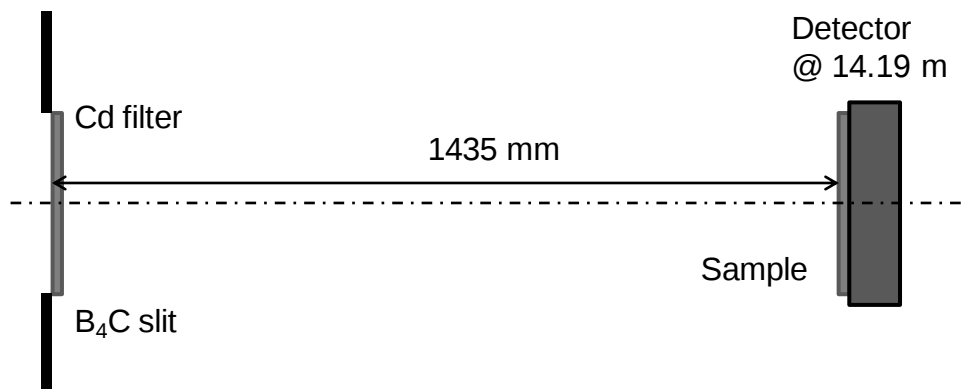


図 4.6 : Ta 試料と GEM 検出器のセットアップの概略図。

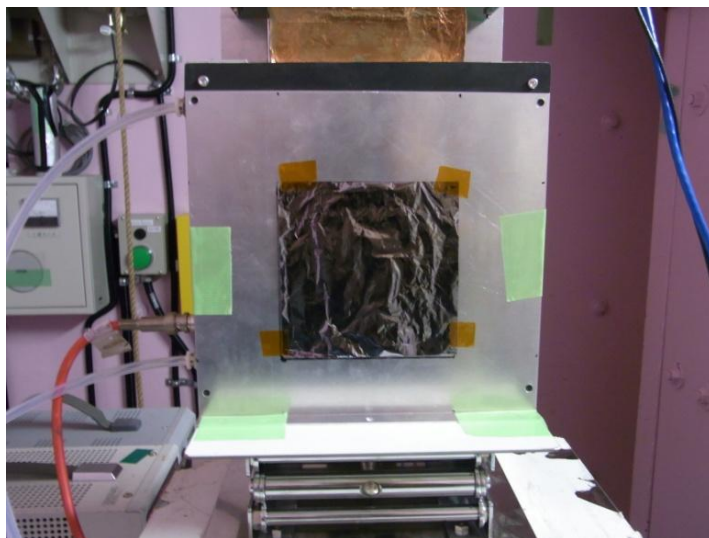


図 4.7 : Ta 試料と GEM 検出器のセットアップの様子。画像中央の箱が Ta 箔である。

4.2.2 解析

4.2.2.1 測定された透過率スペクトル

透過率はビームライン上に試料がある場合に検出された中性子数と試料が無い場合（ダイレクト）に検出された中性子数との比である。試料がある場合の中性子のカウント数を $C_{in}(tof)$ 、規格化定数を N_{in} とし、試料がない場合のカウント数を $C_{out}(tof)$ 、規格化定数を N_{out} とすると、透過率スペクトルは

$$Tr(tof) = \frac{C_{in}(tof)/N_{in}}{C_{out}(tof)/N_{out}} \quad (4-4)$$

となる。規格化の方法としては、測定時間や総トリガー数、陽子もしくは中性子ビーム強度の積算値を用いる方法がある。中性子の強度は陽子ビームの強度に比例するため、本実験では陽子ビームの積分強度で規格化を行った。

Ta 箔の透過率スペクトルを図 4.8 に示す。TOF のビン幅は 150 ns で測定を行っている。また、この透過率は試料全体にわたる平均値である。 ^{181}Ta の複数の共鳴が観測されている。この内、4.28 eV 共鳴と 10.36 eV 共鳴による共鳴ディップが比較的深いため、これらの共鳴を用いて原子数密度分析を行った。

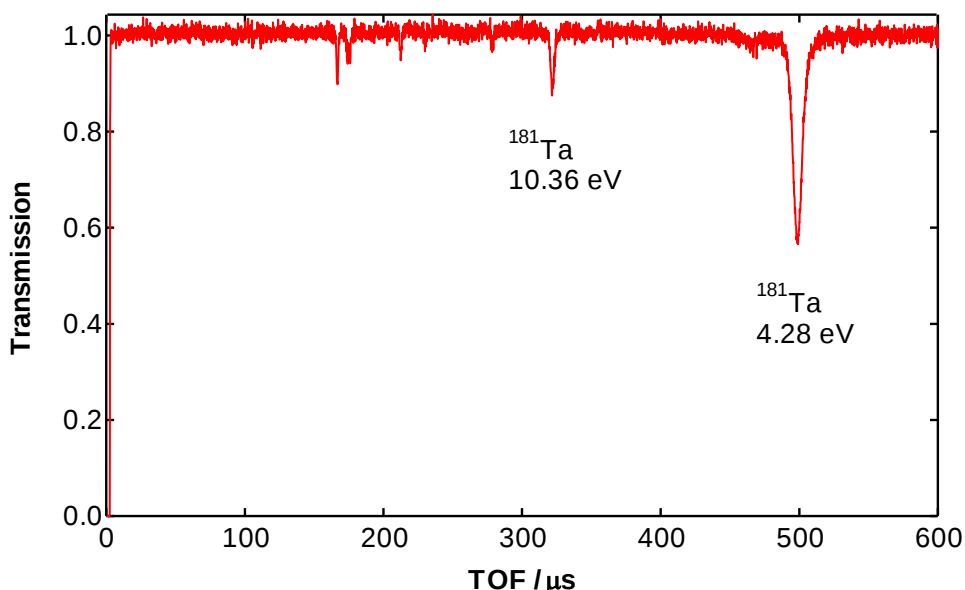


図 4.8 : Ta 箔の透過率スペクトル。

4.2.2.2 REFIT によるフィッティング

REFIT において、原子数密度を決定するパラメータは Sample Thickness 及び Isotopic Abundance である。Sample Thickness の単位は atoms/barn であり、Isotopic Abundance は割合であるから無次元量である。この 2 つのパラメータを掛けた値が核種の面密度となる。本実験では Isotopic Abundance は天然存在比の値を参照して固定値とし、Sample Thickness をフィッティングパラメータとしてスペクトルフィッティングを行うことで原子数密度分析を行った。

共鳴パラメータは JENDL-4.0 の値を用いている。また、Doppler 広がりには理想ガスモデルを利用して計算している。実効温度は式(2-96)を用いて計算した。Ta の Debye 温度は 240 K であり[65]、試料温度は 300 K として計算した。また、陽子ビームのダブルバンチの影響を考慮するため、第 3 章で説明したように CT による測定データを利用してダブルバンチのプロファイルを作成し、REFIT による計算に組み込んでいる。

図 4.9 と 4.10 に ^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴と 10.36 eV 共鳴に対するフィッティングの結果を示す。図中の Residual は以下の式で表される。

$$\text{Residual} = \frac{\text{Measured} - \text{Fit}}{\text{Error}} \quad (4-5)$$

ここで、“Measured”は測定した透過率、“Fit”は REFIT によるフィッティングカーブ、“Error”は測定に関する統計誤差である。それぞれの共鳴ディップに対し、その形状を REFIT がよく再現できている。Ta の原子数密度は 4.28 eV 共鳴に対するフィッティングから $(5.44 \pm 0.13) \times 10^{-5}$ atoms/barn、10.36 eV 共鳴に対するフィッティングから $(5.53 \pm 0.14) \times 10^{-5}$ atoms/barn と求められた。実際の Ta 箔の密度は 5.48×10^{-5} atoms/barn であ

り、Ta 箔に対する原子数密度分析は誤差 1%以内で行うことができています。

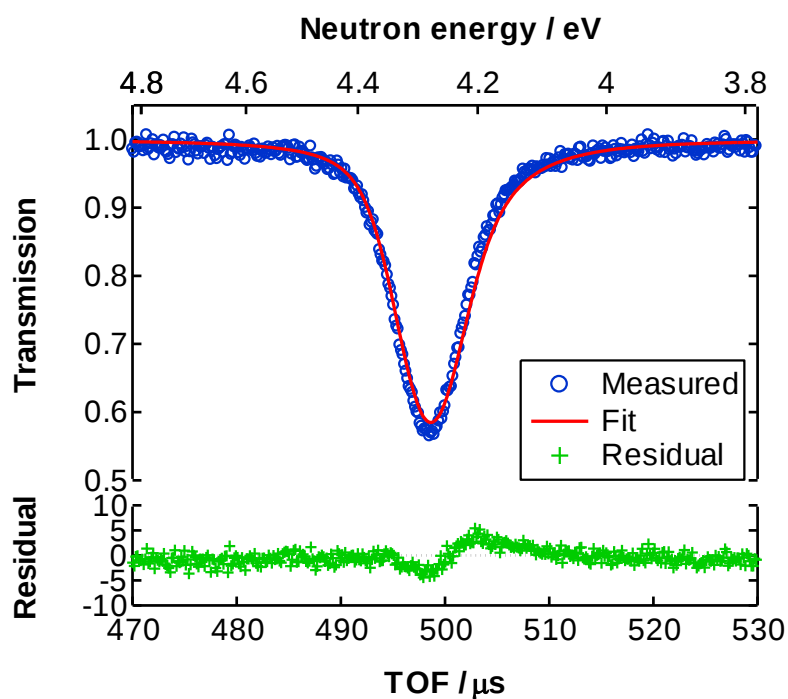


図 4.9 : ^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴に対するフィッティング。

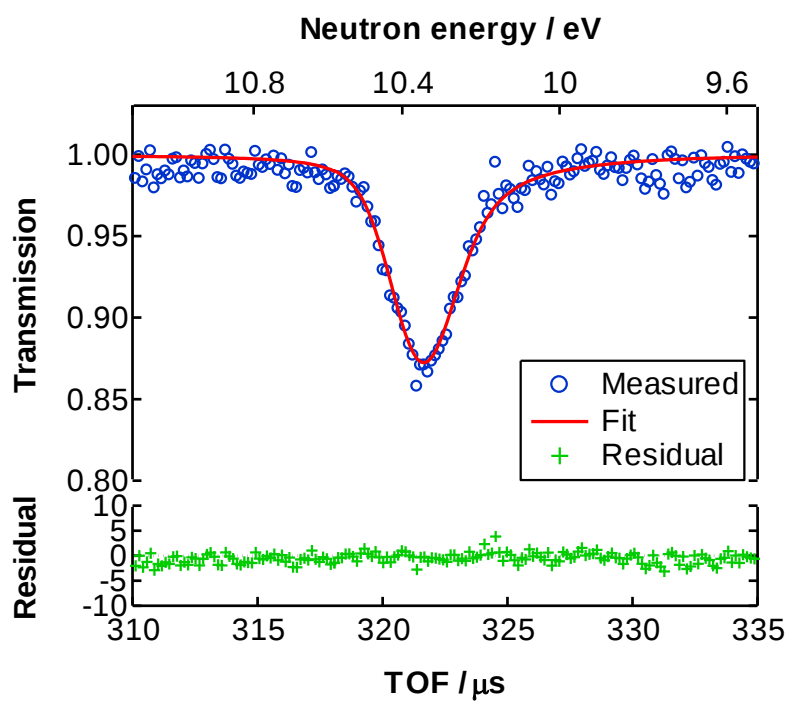


図 4.10 : ^{181}Ta の 10.36 eV 共鳴に対するフィッティング。

4.2.2.3 Ta 箔の原子数密度分析結果に関する考察

表 4.4 にフィッティングによって求められた Ta 箔の原子数密度を示す。表 4.4 には Doppler 広がりやパルス関数の共鳴ディップへの影響を考察するために各要素による幅の広がりも載せている。 Δ_{Γ} は自然幅 Γ のみで計算された共鳴ディップの半値幅、 Δ_D はこれに Doppler 広がり を考慮した場合の半値幅、 $\Delta_{R,single}$ 及び $\Delta_{R,double}$ はシングルバンチ及びダブルバンチにおけるパルス関数をさらに考慮した半値幅を表している。どちらの共鳴に関しても Δ_D が共鳴ディップの幅の内 80 ~ 90% を占めている。また、このエネルギー領域ではダブルバンチの影響が少ないため、 $\Delta_{R,double}$ は $\Delta_{R,single}$ に比べてほとんど増加していない。したがって、このエネルギー領域ではパルス関数の影響は小さく、自然幅や Doppler 効果による影響が支配的であることがわかる。つまり、共鳴パラメータの誤差や試料の温度に関する誤差が解析において求められた密度の誤差の主な原因として考えられる。

表 4.4 : フィッティングにより求められた Ta 箔の原子数密度[85]。

Sample	10 μm thick Ta foil	
Area density	5.48	
[$\times 10^{-5}$ atoms/barn]		
Resonance energy [eV]	4.28	10.36
Isotope	181	181
Natural abundance [%]	100	100
Expected Δ_{Γ} [eV]	0.0733	0.0776
($\Delta_{\Gamma}/\Delta_{R,single}$)	(50.58%)	(37.02%)
Expected Δ_D [eV]	0.133	0.178
($\Delta_D/\Delta_{R,single}$)	(91.68%)	(84.66%)
Expected $\Delta_{R,single}$ [eV]	0.145	0.210
Expected $\Delta_{R,double}$ [eV]	0.146	0.217
($\Delta_{R,double}/\Delta_{R,single}$)	(100.50%)	(103.62%)
Estimated area density		
[$\times 10^{-5}$ atoms/barn]		
Estimated density		
Actual density	0.993 ± 0.023	1.009 ± 0.025

4.3 散乱の影響がある場合の密度分析

Ta 箔に対する原子数密度分析では、4.28 eV と 10.36 eV 共鳴という比較的低いエネルギーの共鳴を利用して誤差 1%程度で面密度を求めることができた。これよりも高いエネルギー（数 keV まで）の共鳴を利用した原子数密度分析の精度を確かめるため、Ag 及び Cu の板に対して透過型 N-RAS 実験を行った。数 eV の共鳴に比べて数 100 eV 程度の共鳴断面積は小さい場合が多いため、本実験では mm オーダーの厚さの板状の試料を用いることとした。また、それに伴い、試料からの散乱中性子による影響が顕著になると考え、試料と検出器を離れた測定を行うこととした。本節では試料と検出器距離に関するシミュレーション計算及び実験と解析結果について述べる。

4.3.1 シミュレーションによる試料位置の決定

実験体系を決定するため、モンテカルロシミュレーション計算を用いて試料からの散乱中性子による透過率への影響を調べた。シミュレーションの内容及び結果について述べ、散乱中性子の影響に関する議論を行う。

4.3.1.1 シミュレーション計算の概要

シミュレーションコードとして PHITS コードを用いた。また、使用した核データは JENDL-4.0 である。計算体系は BL10 のビームダクト及びロータリーコリメータ、ビーム成形用の B₄C スリットのみを再現した単純な体系とした。モンテカルロ計算は陽子からではなく中性子から始めており、パルス関数に関しては考慮していない。また、中性子のエネルギースペクトルは J-PARC の HP にて公開されている計算値[97]を用いている。試料は 1 mm 厚の Ag 及び Cu であり、タリー（現実では検出器に相当）からの距離を変化させて各位置における中性子フラックスの計算を求めた。なお、NOBORU において試料と検出器は最大で 1.5 m 程度しか離して設置することができない。そのため、この範囲内におけるリーズナブルな距離を求めることとなる。

4.3.1.2 シミュレーション結果

シミュレーションによって求めた 1 mm 厚 Ag の中性子フラックスの試料位置による変化を図 4.11 に示す。試料と検出器間の距離が離れるほどフラックスが下がり、一定以上離すとほぼ変化が無くなることがわかる。Ag 板に対するシミュレーションでは試料と検出器間の距離を 20 cm 以上離せばフラックスの変化が無くなることがわかった。1 mm 厚 Cu に関する結果も同様に図 4.12 に示す。こちらの場合も試料と検出器間の距離を 20 cm 以上離せば中性子フラックスの変化がほとんどなくなることがわかった。どちらの場合においても距離が 0 cm もしくは 1 cm の場合、共鳴ディップが観測されなくなっている。これは、共鳴散乱により散乱された中性子がほとんどタリーで検出されて

しまうからである。つまり、共鳴吸収で中性子は減るが、散乱されてきた中性子はその分を穴埋めしてしまうためである。

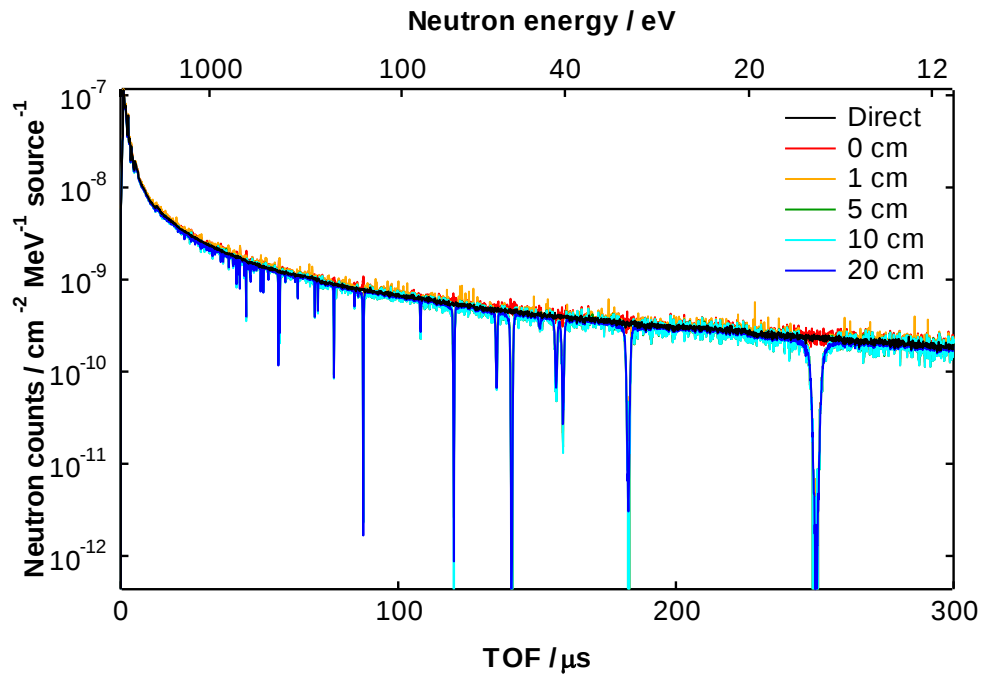


図 4.11：1 mm 厚 Ag を透過した中性子フラックスの試料位置による変化。凡例は試料と検出器との距離を示す。

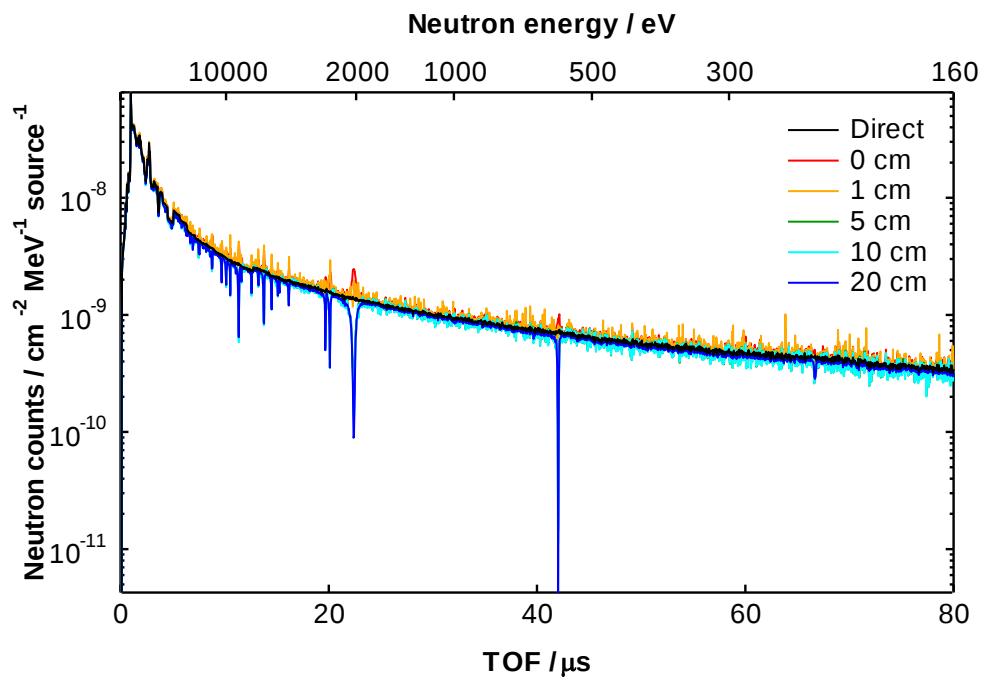


図 4.12：1 mm 厚 Cu を透過した中性子フラックスの試料位置による変化。凡例は試料と検出器との距離を示す。

4.3.1.3 散乱中性子の影響に関する考察

4.3.1.2において求められた結果から散乱中性子の影響を考察する。断面積から計算した透過率がほとんど0になるような共鳴に関して考える。このような共鳴が起こる TOF では中性子がほとんど透過せず、中性子のカウント数がほぼ0になるはずである。したがって、このような TOF においてカウント数があるということは散乱中性子が混入しているということである。Ag に関しては 16.3 eV 共鳴（透過率： 5.04×10^{-5} ）、51.56 eV 共鳴（ 4.58×10^{-8} ）、133.9 eV 共鳴（ 3.46×10^{-8} ）などが該当する。例えば、16.3 eV 共鳴に関して考えると、試料位置が 20 cm の場合、入射中性子のカウント数が $2.31 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1} \text{ source}^{-1}$ であるのに対し、試料を透過した中性子のカウント数は $8.68 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1} \text{ source}^{-1}$ である。透過率を考えると、透過中性子数は $1.17 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1} \text{ source}^{-1}$ となるはずである。つまり、この理論的な透過中性子数とシミュレーションによって求められた透過中性子数の差である $8.56 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1} \text{ source}^{-1}$ が散乱中性子のカウント数となる。この散乱中性子数のカウント数は入射中性子数に対して 0.37% の大きさであり、これが散乱中性子による影響の度合いであると考えることができる。Ag 及び Cu のその他の共鳴についてまとめた結果を表 4.5 に示す。試料位置が 20 cm の場合、散乱中性子の影響はおおよそ 1% 以下であることがわかった。

次に、原子数密度に対する散乱中性子の影響について考える。今、散乱中性子以外の要因によるバックグラウンドが無いと仮定すれば、試料に入射した中性子のカウント数を C_{inc} 、試料を透過した中性子のカウント数を C_{trans} 、散乱中性子によるカウント数を C_{scat} とすると、透過率は

$$Tr = \frac{C_{\text{trans}} + C_{\text{scat}}}{C_{\text{inc}}} \quad (4-6)$$

となる。透過率と核種の面密度 $d [\text{atoms/barn}]$ の関係は、断面積 $\sigma [\text{barn}]$ とすると、

$$Tr = \exp(-\sigma d) \quad (4-7)$$

であり、これを変形すると、

$$\sigma d = \ln(-Tr) = \ln\left(-\frac{C_{\text{trans}} + C_{\text{scat}}}{C_{\text{inc}}}\right) \quad (4-8)$$

となる。この関係を用いて散乱中性子 C_{scat} の原子数密度 d に対する影響を評価する。原子数密度の透過率に対する依存性を図 4.13 に示す。先ほどの議論より散乱中性子の影響がある場合を $C_{\text{scat}} = 0.5\%$ としている。また、散乱中性子の影響のない場合 ($C_{\text{scat}} = 0\%$) における原子数密度との比も併せて示す。散乱中性子による影響がある場合、原子数密度は過小評価されるが、透過率が低い場合や逆に高い場合にはそれが顕著になる。また、散乱の影響が 0.5% の場合には 1.5% 程度原子数密度が過小評価されることがわかった。したがって、この条件で実験を行った場合、散乱中性子の影響により原子数密度が 1.5% 程度は過小評価されるということである。

表 4.5 : 入射中性子に対する散乱中性子の影響。入射中性子数及び透過中性子数の単位は $\text{cm}^{-2}\text{MeV}^{-1}\text{source}^{-1}$ である。

Resonance energy [eV]	16.3 (Ag)	51.56 (Ag)	133.9 (Ag)	579 (Cu)
Theoretical transmission	5.04×10^{-5}	4.58×10^{-8}	3.46×10^{-8}	1.86×10^{-5}
Incident neutrons	2.31×10^{-10}	4.50×10^{-10}	7.73×10^{-10}	7.08×10^{-10}
Transmitted neutrons	8.68×10^{-13}	6.52×10^{-13}	1.66×10^{-12}	4.26×10^{-12}
Ratio of scattered neutron [%]	0.370	0.145	0.215	0.600

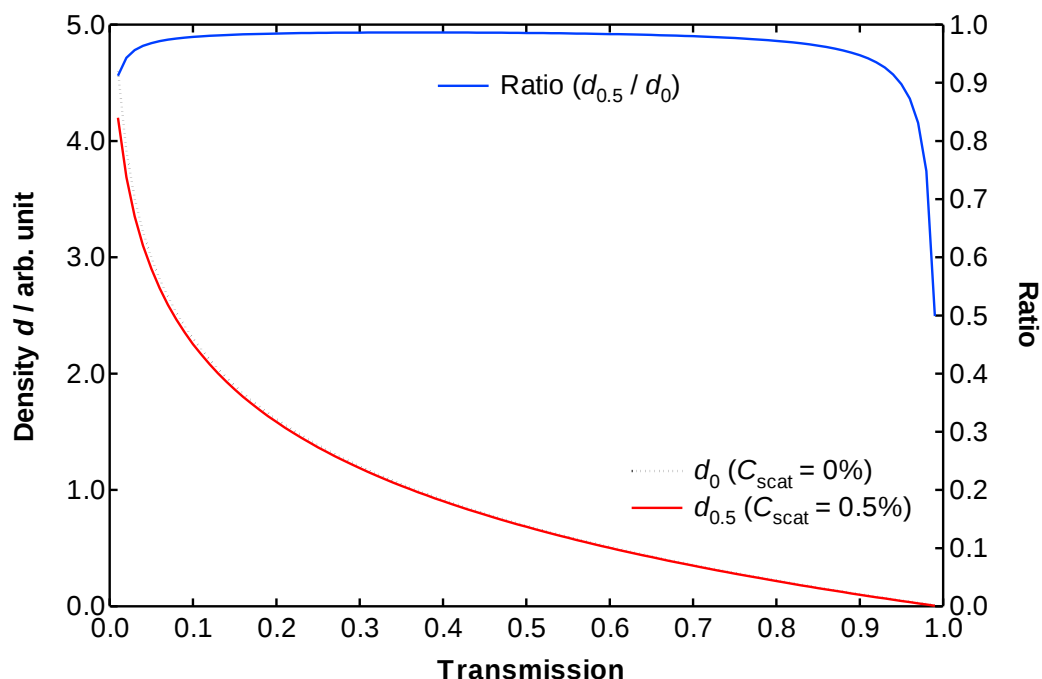


図 4.13 : 推量された原子数密度の透過率依存性。破線は散乱の影響が無い場合の原子数密度、赤線は散乱の影響が 0.5% 有る場合の原子数密度を、青線はそれらの比を示す。

4.3.2 実験

4.3.2.1 実験概要

実験は 2013 年 5 月に J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において行った。この時のビームパワーは 300 kW であった。本実験では γ 線フィルター及びフレームオーバーラップチョッパーを使用していない。フレームオーバーラップを防ぐ目的で検出器の上流側に Cd 板を設置している。検出器の数え落としを防ぐ目的でロータリーコリメータ「小」を使用している。ビーム条件について表 4.6 にまとめる。検出器は Ta 箔に関する実験の時と同様に GEM 検出器を使用しているが、チェンバー構成が異なる。検出器及び試料の詳細については 4.3.2.2 及び 4.3.2.3 で述べる。

表 4.6 : Ag 板及び Cu 板の原子数密度分析実験のビーム条件。

Experimental date	2013/5/11 – 15
Beam-line	J-PARC/MLF/BL10 NOBORU
Beam power	300 kW
Rotary Collimator	Small
Beam size	$3 \times 3 \text{ cm}^2$
Filters	Not in use
Frame-overlap chopper	Not in use

4.3.2.2 GEM 検出器

本実験で用いた GEM 検出器は 2012 年の Ta 箔測定において用いたものとチェンバー内部の構成が異なる。Ta 箔測定において使用されたチェンバーでは B-GEM を 5 枚 (0.6 μm 厚ホウ素を両面に塗布した GEM ホイル 3 枚、0.8 μm 厚のものを 2 枚) 使用していたが、本実験では B-GEM は 2 枚 (0.8 μm 厚のもの) 使用したものである。その他の構成は基本的には変わらない。

4.3.2.3 試料

本実験で用いた Ag 板の厚さは 1 mm 及び 2 mm であり、Cu 板の厚さは 1, 1.5, 2, 3, 5 mm であった。表 4.7 に Ag 板諸元を、表 4.8 に Cu 板の諸元を示す。それぞれの試料は機械加工により精密に切り出されており、かなり厳密に密度を求められるようになっている。

表 4.7 : Ag 板の諸元。

Thickness [mm]	1	2
Area density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	5.81	11.7
Size [cm^2]	4.8 $\times$ 4.8	
Isotopes	^{107}Ag (51.839%), ^{109}Ag (48.161%)	

表 4.8 : Cu 板の諸元。

Thickness [mm]	1	1.5	2	3	5
Area density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	8.41	12.6	16.8	25.3	42.1
Size [cm^2]	4.8 $\times$ 4.8				
Isotopes	^{63}Cu (69.15%), ^{65}Cu (30.85%)				

4.3.2.4 試料と検出器のセットアップ

図 4.14 に試料と検出器のセットアップの概略図を、図 4.15 に写真を示す。試料は Al 製の試料ホルダーで固定し、シミュレーションにより求めた検出器との距離 20 cm の位置にセットした。また、検出器の検出面の中心とビームラインの中心が一致するように検出器とセットしている。この実験では、減速材からの飛行距離は 13.99 m であった。

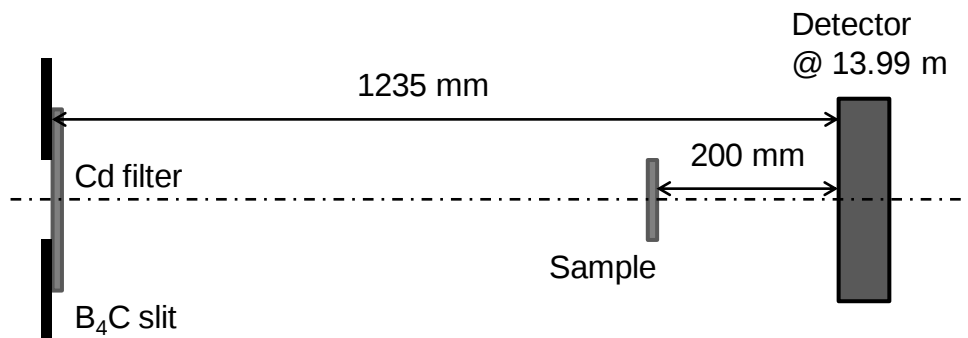


図 4.14 : Cu 板試料と GEM 検出器のセットアップの概略図。



図 4.15 : Cu 板試料と GEM 検出器のセットアップの様子。Ag 板も同様にセットした。

4.3.3 解析

まずは、Ag 板及び Cu 板の 1 mm の厚さのものについて REFIT による解析を行い、Ta 箔による共鳴よりも高いエネルギー領域における共鳴に対する解析について評価を行った。その後、複数の厚さの試料について解析を行い、厚さによる定量性への影響を調べた。

4.3.3.1 測定された透過率スペクトル

本実験においても Ta 箔測定の場合と同様に式(4-4)を用いて透過率の計算を行い、規格化には陽子ビーム強度の積分値を用いた。図 4.16 に Ag 板の透過率スペクトルを示す。TOF のビン幅は 100 ns である。 ^{107}Ag 及び ^{109}Ag による共鳴ピークが確認できる。第 3 章で示したように、100 eV 前後からダブルバンチによる共鳴ディップの分離が確認できるはずである。図 4.17 に 1 mm 厚 Ag 試料の透過率における 71 eV 共鳴及び 133.9 eV 共鳴の拡大図を示す。71 eV 共鳴による共鳴ディップは分離していないが、一方で 133.9 eV 共鳴によるディップはダブルバンチの影響によりディップの先端付近が 2 つに分離している。Ag 板に関しては 16.3 eV 共鳴、30.6 eV 共鳴、71 eV 共鳴、133.9 eV 共鳴に対してフィッティングを行うこととした。

図 4.18 に Cu 板の透過率スペクトルを示す。TOF のビン幅は 40 ns である。 ^{63}Cu 及び ^{65}Cu による共鳴ピークが確認できる。Cu 板の場合も同様に 1 mm 厚試料の透過率における図 4.19 に 230 eV 共鳴及び 579 eV 共鳴の拡大図を示す。どちらの共鳴ディップも Ag の 133.9 eV 共鳴によるディップよりもはっきりと 2 つに分離していることが確認できる。Cu 板に関しては 230 eV 共鳴、579 eV 共鳴、2038 eV 共鳴に対してフィッティングを行うこととした。

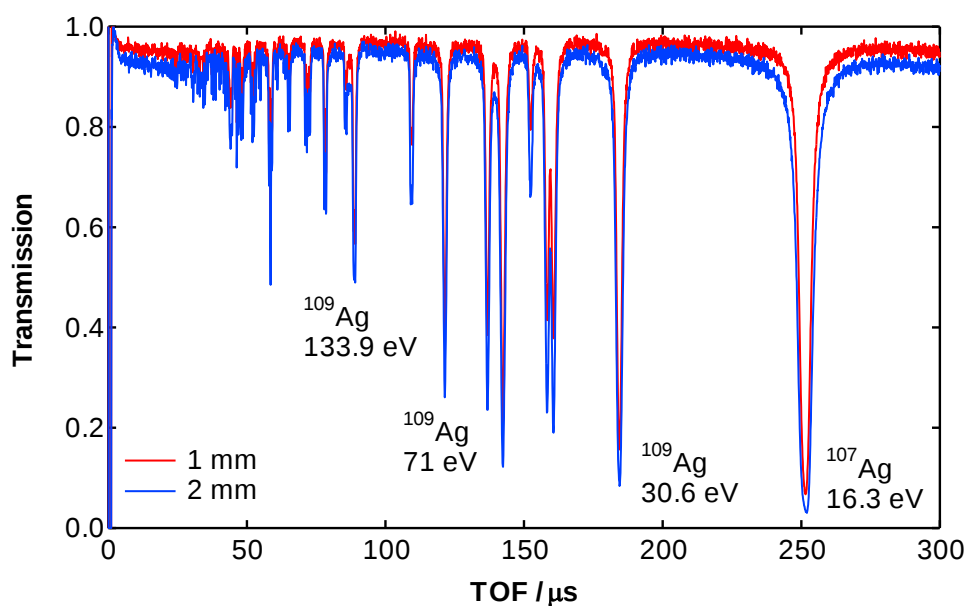


図 4.16 : Ag 板の透過率スペクトル。

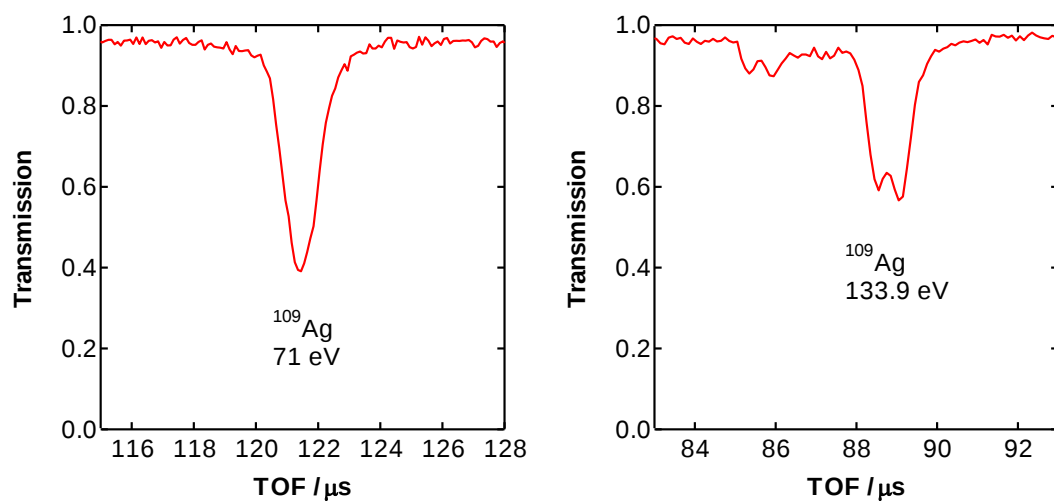


図 4.17 : 1mm 厚 Ag 板の透過率スペクトルにおける 71 eV 共鳴と 133.9 eV 共鳴の拡大図。

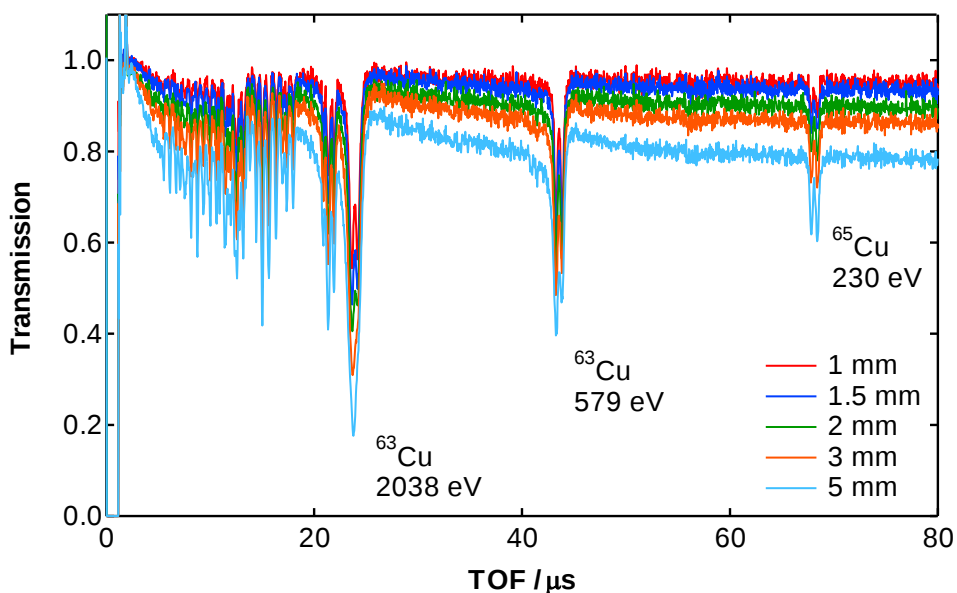


図 4.18 : Cu 板の透過率スペクトル。

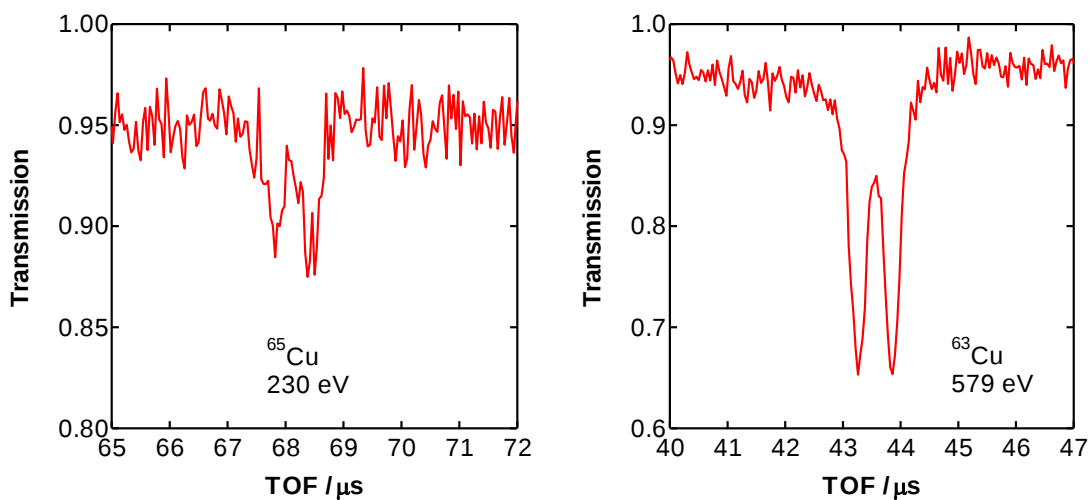


図 4.19 : 1mm 厚 Cu 板の透過率スペクトルにおける 230 eV 共鳴と 579 eV 共鳴の拡大図。

4.3.3.2 REFIT による 1 mm 厚試料に対するフィッティング

まずは 1 mm 厚の Ag 板及び Cu 板に対する解析結果について示す。Ta 箔に対するフィッティングの時と同様に Isotopic Abundance を固定し、Sample Thickness をフィッティングパラメータとしてスペクトルフィッティングを行った。Ag の共鳴パラメータは JENDL-4.0 の値を用いている。Cu の共鳴パラメータについては後述する。また、Doppler 広がり理想ガスモデルを利用して計算している。実効温度は式(2-96)を用いて計算した。Ag の Debye 温度は 225 K、Cu は 343 K であり[65]、それぞれの試料温度は 300 K として計算した。また、陽子ビームのダブルバンチの影響を考慮するため、第 3 章で説

明したように CT による測定データを利用してダブルバンチのプロファイルを作成し、REFIT による計算に組み込んでいる。

まず、Ag 板の解析結果について述べる。図 4.20～24 に Ag の 16.3 eV 共鳴、30.6 eV 共鳴、71 eV 共鳴、133.9 eV 共鳴に対するフィッティングの結果を示す。16.3 eV 共鳴や 30.6 eV のように強い共鳴に関してはディップの先端付近において残差が大きくなっている。厚い（言い換えると断面積と密度を掛けた値が大きい）試料では中性子輸送に起因する中性子の減速が無視できなくなっていると考えられる。REFIT では透過率の計算に関して、中性子輸送計算を考慮した計算は行うことができないため、強い共鳴において差が大きくなったと考えられる。一方で、71 eV 共鳴や分離が表れている 133.9 eV 共鳴に対しては良い一致を見せている。これらのフィッティングから得られた原子数密度はそれぞれ、16.3 eV 共鳴で $(5.53 \pm 0.13) \times 10^{-3}$ atoms/barn、30.6 eV 共鳴で $(5.83 \pm 0.17) \times 10^{-3}$ atoms/barn、71 eV 共鳴で $(5.83 \pm 0.09) \times 10^{-3}$ atoms/barn、133.9 eV 共鳴で $(5.54 \pm 0.10) \times 10^{-3}$ atoms/barn であった。実際の原子数密度は 5.81×10^{-3} atoms/barn であるため、30.6 eV 共鳴や 71 eV 共鳴に関しては 1% 以内の誤差で原子数密度を求めることができている。16.3 eV 共鳴に関して 5% ほど過小評価しているのは、16.3 eV 共鳴の透過率が 0.1 以下であり、4.3.1.3 に記したようにこのような透過率が低い条件では散乱中性子の影響が非常に大きいからである。また、133.9 eV 共鳴に関しても 5% ほど原子数密度を過小評価している。この理由はダブルバンチ構造の揺らぎによるものであると考えられるが、その詳細な議論については後ほど行う。

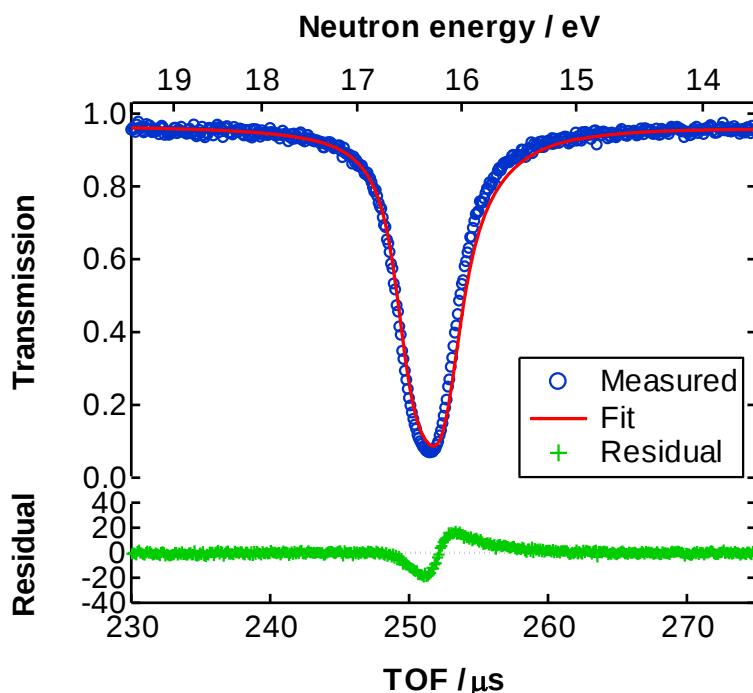


図 4.20 : ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング。

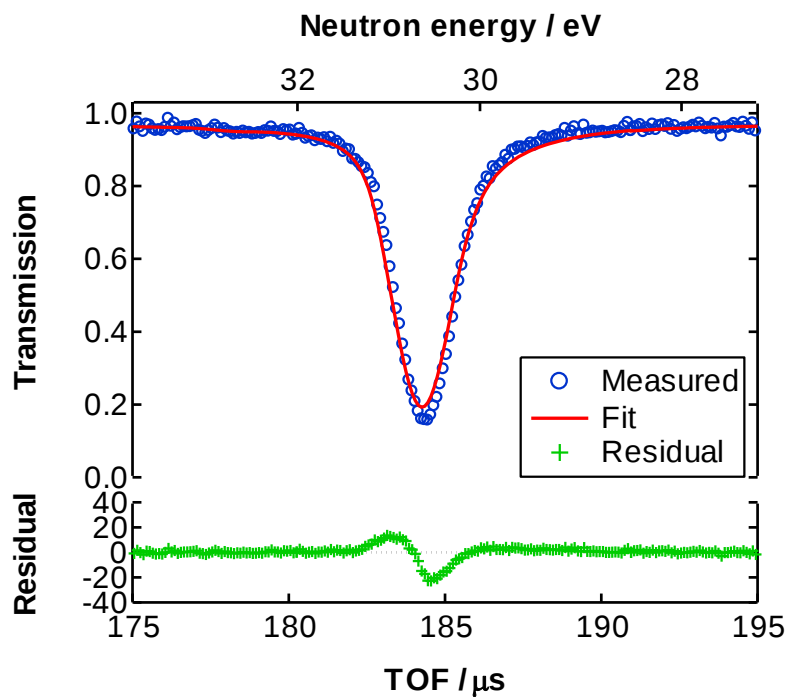


図 4.21 : ^{109}Ag の 30.6 eV 共鳴に対するフィッティング。

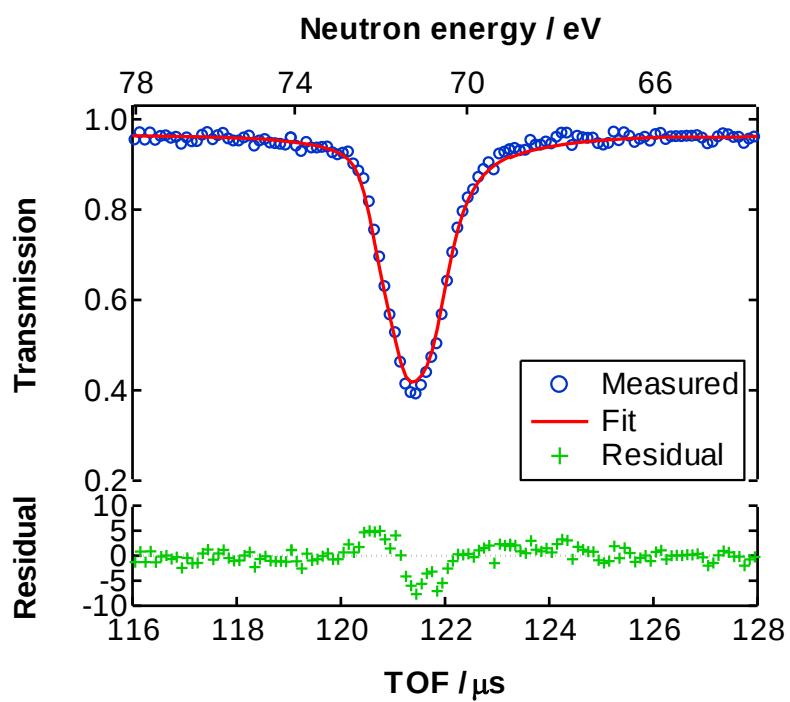


図 4.22 : ^{109}Ag の 71 eV 共鳴に対するフィッティング。

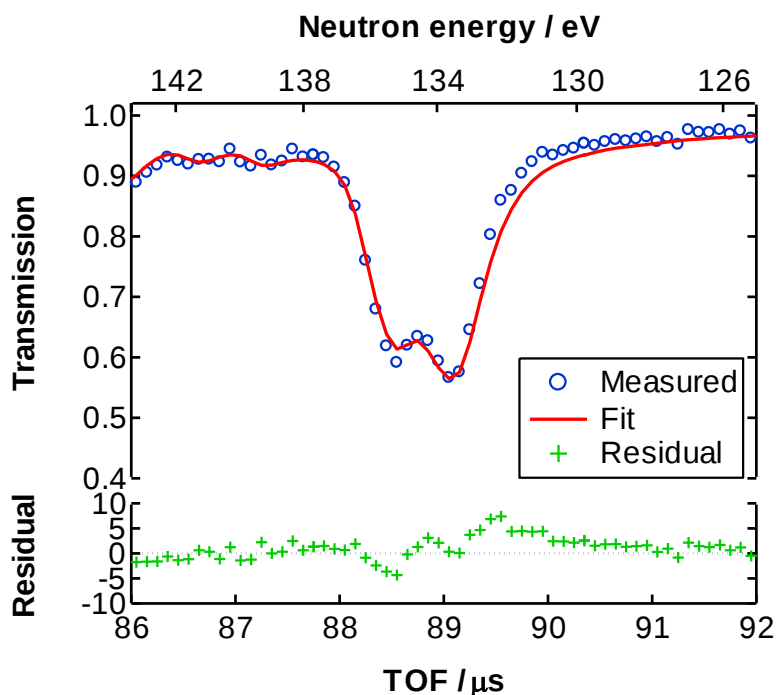


図 4.23 : ^{109}Ag の 133.9 eV 共鳴に対するフィッティング。

次に、Cu の解析結果について述べる。Cu の共鳴パラメータに関しては不確かな部分が多く、Mughabghab [98] のデータや Oak Ridge National Laboratory (ORNL) のデータ [99] など推奨されている値を用いても透過率の測定データと不一致を示すことがわかっている[100]。Mughabghab のデータは過去のデータ (Weigmann と Winter [101]、Julien ら[102]、Alvas ら[103]、Pandey と Garg [104]) に基づいたものである。一方の ORNL のデータは ENDF/B-VII に収録予定である。図 4.24 に JENDL-4.0 及び Weigmann の共鳴パラメータを用いて 1 mm 厚 Cu の透過率を計算した結果を示す。Weigmann の共鳴パラメータの内、 ^{63}Cu の 579 eV 共鳴、2038 eV 共鳴、2640 eV 共鳴、 ^{65}Cu の 230 eV 共鳴、2529 eV 共鳴の値を使用し、他の準位の共鳴については JENDL-4.0 と同じにしてある。表 4.9 に JENDL-4.0 の共鳴パラメータと本研究で使った共鳴パラメータについてまとめたものを示す。2 つの計算値を比較すると、579 eV 共鳴において大きな違いがみられ、Weigmann の値の方がより実験値に近いということがわかる。そのため、本研究においては Cu の共鳴パラメータとして Weigmann の値を用いることとした。

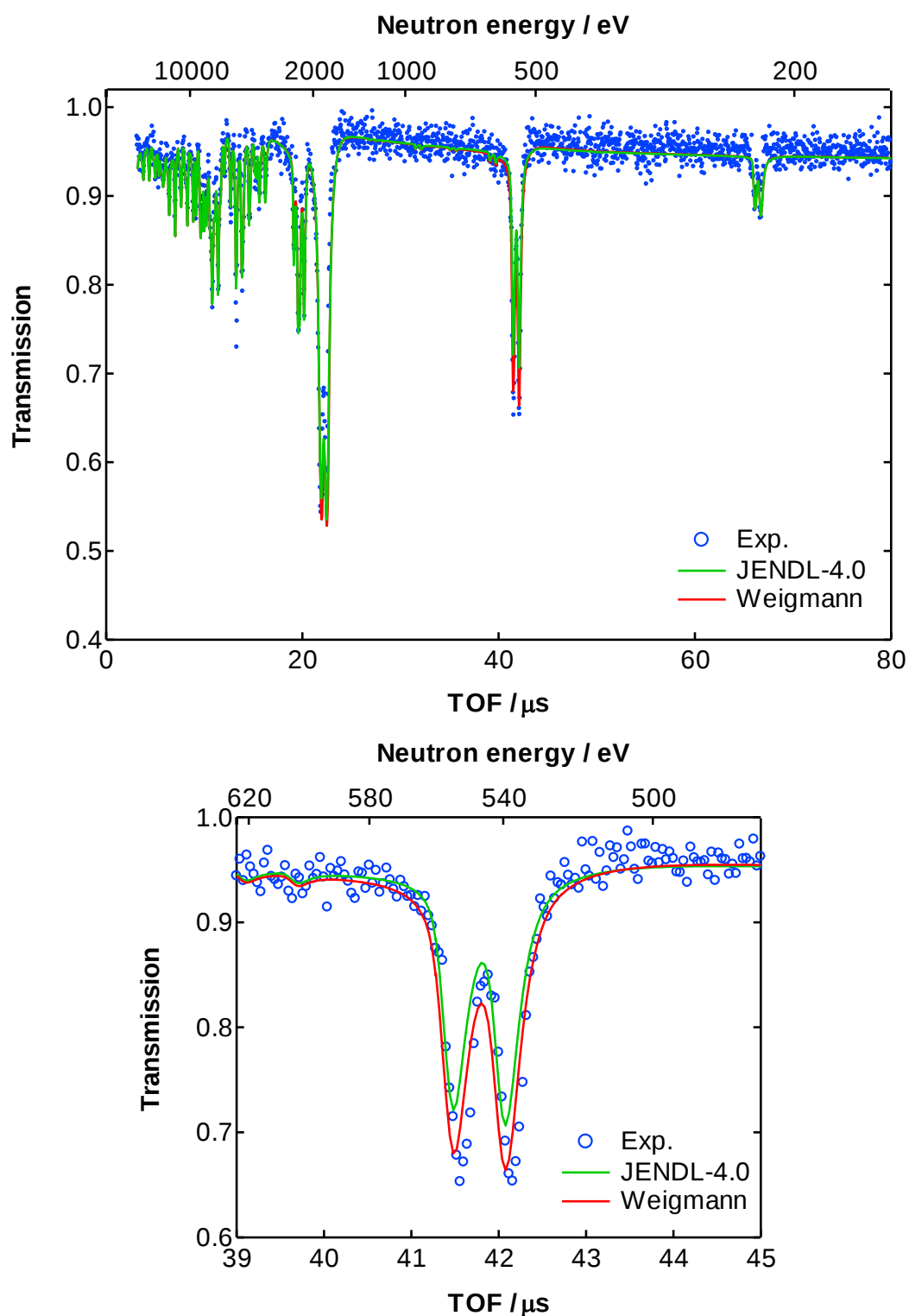
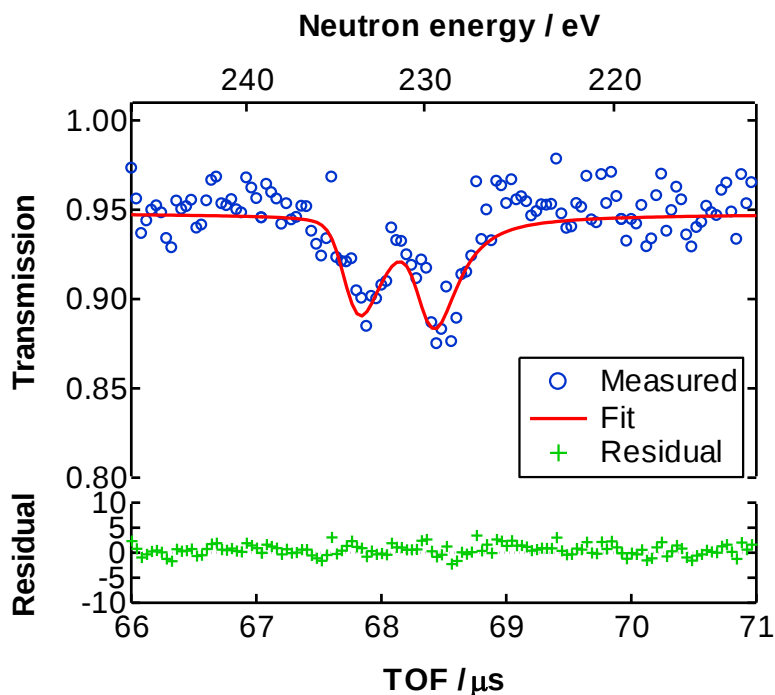


図 4.24: JENDL-4.0 及び Weigmann の共鳴パラメータを用いて計算した Cu の透過率。下図は ^{63}Cu の 579 eV 共鳴付近の拡大図。

表 4.9 : Cu の JENDL-4.0 の共鳴パラメータと本研究で使した共鳴パラメータ。

Isotope	E_R [eV]	JENDL-4.0 [10]		This work	
		Γ_n [eV]	Γ_γ [eV]	Γ_n [eV]	Γ_γ [eV]
^{65}Cu	230	0.01776	0.245	0.0178	0.24
^{63}Cu	579	0.59	0.485	0.86	0.485
^{63}Cu	2038	42.6666	0.5	43.5	0.57
^{65}Cu	2529	17.6	0.36	16.8	0.36
^{63}Cu	2642	5.28	0.58	4.5	0.58

図 4.25～27 に Cu の 230 eV 共鳴、579 eV 共鳴、2038 eV 共鳴に対するフィッティングの結果を示す。230 eV 共鳴と 579 eV 共鳴に関してはその形状を再現できている。しかし、2038 eV 共鳴に関してはフィッティングカーブが実験データより幅が広がっている。これは核データの不確実性によるものであると考えられる。これらのフィッティングから得られた原子数密度はそれぞれ、230 eV 共鳴で $(8.05 \pm 0.29) \times 10^{-3}$ atoms/barn、579 eV 共鳴で $(8.09 \pm 0.13) \times 10^{-3}$ atoms/barn、2038 eV 共鳴で $(7.77 \pm 0.14) \times 10^{-3}$ atoms/barn であった。実際の原子数密度は 8.41×10^{-3} atoms/barn であり、230 eV 共鳴と 579 eV 共鳴に対するフィッティングでは原子数密度を 5% 程度過小評価している。この過小評価の原因について、Ag 板に関する結果と共に次項で議論を行う。


図 4.25 : ^{65}Cu の 230 eV 共鳴に対するフィッティング。

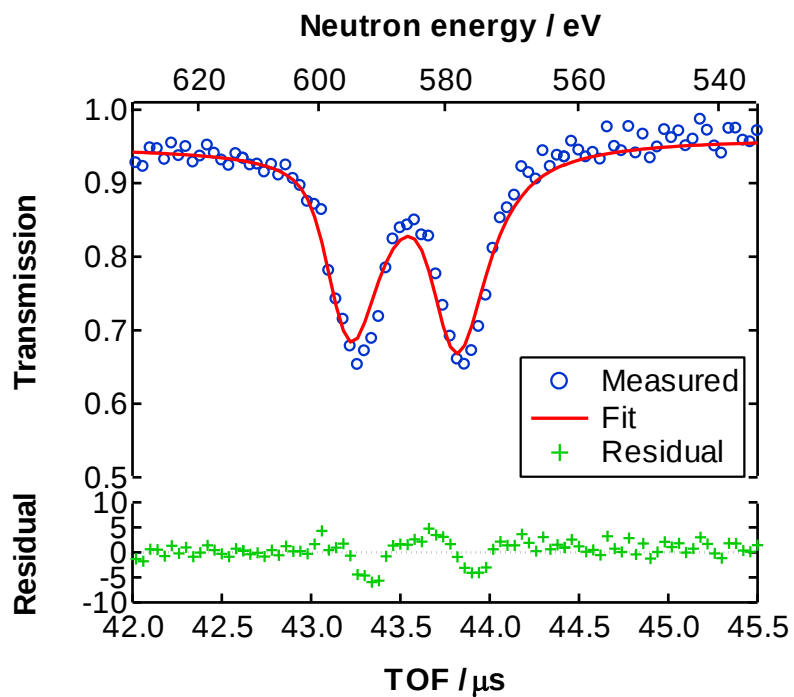


図 4.26 : ^{63}Cu の 579 eV 共鳴に対するフィッティング。

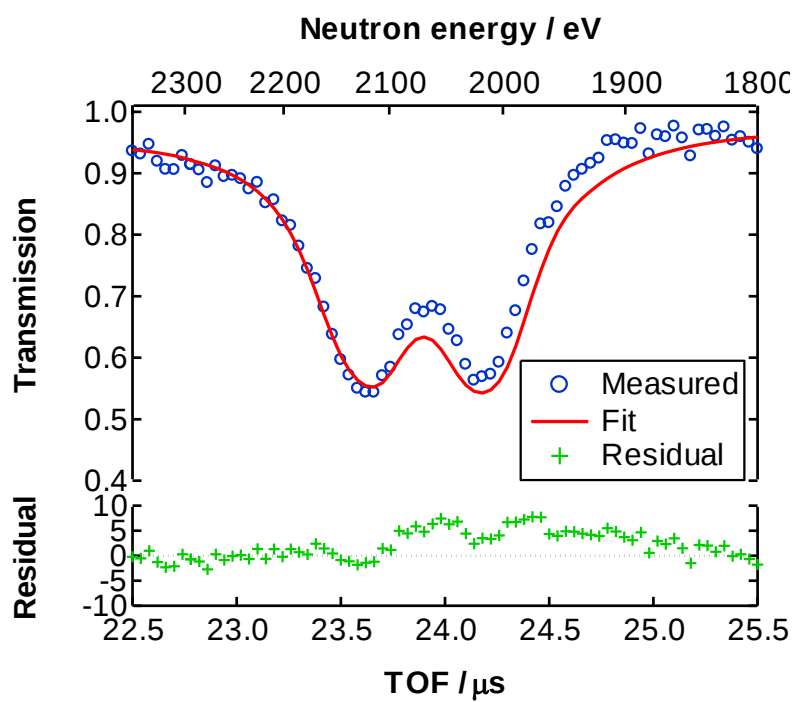


図 4.27 : ^{63}Cu の 2038 eV 共鳴に対するフィッティング。

4.3.3.3 Ag 板及び Cu 板の 1 mm 厚試料の原子数密度分析結果に関する考察

Ta 箔の結果に関する議論の場合と同様に、フィッティングによって求められた Ag 板の原子数密度を表 4.10 に、Cu 板のものを表 4.11 に示す。共鳴エネルギーが 100 eV 以下の領域では、(強い共鳴である Ag の 16.3 eV 共鳴を除いて) 原子数密度の推定値に関する誤差は 1%程度である。一方で、100 eV を超えるエネルギーになると、(共鳴パラメータに不確実さがある 2038 eV 共鳴を除いて) この誤差は 5%程度まで増加する。Ta 箔での結果も含めて考えると、共鳴エネルギーが 100 eV 以下では原子数密度は 1%以内の誤差で定量することが可能であり、100 eV を超えると誤差が 5%程度まで増加するということである。共鳴エネルギーに対して線形に誤差が増加しているわけではなく、100 eV を境に誤差が急に増加している。この誤差の増加の原因を明らかにするため、共鳴ディップに対する自然幅、Doppler 幅及びパルス関数の幅による寄与について考える。

表 4.10 : フィッティングにより求められた 1 mm 厚 Ag 板の原子数密度[85]。

Sample		1 mm thick Ag plate			
Area density		5.81			
[$\times 10^{-3}$ atoms/barn]					
Resonance energy [eV]	16.3	30.6	71	133.9	
Isotope	107	109	109	109	
Natural abundance [%]	51.839	48.161	48.161	48.161	
Expected Δ_{Γ} [eV]	0.523	0.491	0.660	1.12	
($\Delta_{\Gamma}/\Delta_{R,single}$)	(78.81%)	(65.05%)	(54.98%)	(54.06%)	
Expected Δ_D [eV]	0.616	0.665	0.964	1.53	
($\Delta_D/\Delta_{R,single}$)	(92.75%)	(88.08 %)	(80.31 %)	(73.63 %)	
Expected $\Delta_{R,single}$ [eV]	0.664	0.755	1.20	2.08	
Expected $\Delta_{R,double}$ [eV]	0.674	0.800	1.67	3.79	
($\Delta_{R,double}/\Delta_{R,single}$)	(101.43%)	(105.95%)	(139.06%)	(182.20%)	
Estimated area density					
[$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	5.53 $\pm$ 0.13	5.83 $\pm$ 0.17	5.83 $\pm$ 0.09	5.54 $\pm$ 0.10	
Estimated density					
Actual density	0.951 $\pm$ 0.022	1.003 $\pm$ 0.028	1.003 $\pm$ 0.016	0.954 $\pm$ 0.017	

表 4.11：フィッティングにより求められた 1 mm 厚 Cu 板の原子数密度[85]。

Sample	1 mm thick Cu plate		
Area density	8.41		
[$\times 10^{-3}$ atoms/barn]			
Resonance energy [eV]	230	579	2038
Isotope	65	63	63
Natural abundance [%]	30.85	69.15	69.15
Expected Δ_{Γ} [eV]	0.545	5.27	82.6
($\Delta_{\Gamma}/\Delta_{R,single}$)	(20.15%)	(51.86%)	(78.28%)
Expected Δ_D [eV]	1.31	5.90	89.0
($\Delta_D/\Delta_{R,single}$)	(48.29%)	(58.03 %)	(84.42 %)
Expected $\Delta_{R,single}$ [eV]	2.71	10.2	105
Expected $\Delta_{R,double}$ [eV]	6.80	26.9	218
($\Delta_{R,double}/\Delta_{R,single}$)	(251.29%)	(265.04%)	(206.39%)
Estimated area density			
[$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	8.05 $\pm$ 0.29	8.09 $\pm$ 0.13	7.77 $\pm$ 0.14
Estimated density			
Actual density	0.956 $\pm$ 0.035	0.961 $\pm$ 0.015	0.924 $\pm$ 0.017

共鳴エネルギーが 100 eV を超えてから、共鳴ディップの幅に対する Δ_{Γ} 及び Δ_D の割合が減少している。言い換えれば、パルス関数による幅の広がりが増加していき、ダブルバンチの影響が大きくなる 100 eV 以上のエネルギーではパルス関数に関する誤差が分析結果に関する誤差に対して強く影響するようになる。つまり、この誤差はパルス関数に関係する要素によってもたらされている可能性がある。パルス関数そのもの、つまりはモンテカルロシミュレーションで求めたパルス関数及びそのパラメータが実際の値と大きくずれているとすると、共鳴エネルギーに対して誤差は線形で増加・減少すると考える方が自然である。したがって、100 eV を境に誤差が急に増加するのは、CT で測定しているダブルバンチの誤差が原因であると考えられる。誤差が増大するメカニズムは以下のように説明される。Ag 板や Cu 板に対するフィッティング結果をみると、ダブルバンチによって 2 つに分離している共鳴ディップの内、2 つ目の共鳴（TOF の遅い方）のディップに関して計算値の方が測定値に比べて深めになっていることがわかる。これは、1 つ目の共鳴ディップ（TOF の早い方）の裾の部分が実際よりも長くなっているため、2 つ目の共鳴ディップがその影響で深くなってしまっているためである。特に、ダブルバンチで共鳴ディップが分離している場合は、この裾の効果が 2 つ目のディップの先端に作用するため、より過小評価が起こる方向に作用する。

Ag の 30.6 eV 共鳴及び 71 eV 共鳴に対するフィッティングから求められた原子数密度

は実際の原子数密度を 0.3%ほど過大評価している。試料からの散乱線や検出器の電気的なノイズなどは密度を過小評価させる方向にのみ作用するため、過大評価してしまう原因としては規格化における誤差や核データの誤差、統計的な誤差によるものが考えられる。統計的な誤差による過大評価のメカニズムは以下のように説明できる。透過型 N-RAS では、共鳴を外れた領域、言い換えるとベースラインの統計誤差が大きくなる。密度をパラメータとしてフィッティングを行う場合、フィッティング関数がこの統計の悪いベースラインに「引っ張られ」てしまう可能性がある。

4.3.3.4 複数の厚さの試料に対するフィッティング

1 mm 厚試料の場合と同様に、Ag 板及び Cu 板の各厚さにおける透過率スペクトルから原子数密度を求めた。ただし、 ^{63}Cu の 2038 eV 共鳴に関しては共鳴パラメータの誤差が大きいと考えられることから、フィッティングは行わなかった。表 4.12 及び 13 にそれぞれの求められた原子数密度についてまとめたものを示す。それぞれの表には 1 mm 厚試料における結果も併せて載せている。厚さが異なる試料においても、共鳴エネルギーが 100 eV 以下の場合には 1%以内の誤差で原子数密度を定量化できている。ただし、2 mm 厚 Ag の 30.6 eV 共鳴に関しては透過率が 0.1 を下回るようになったので、散乱中性子による影響が増大して誤差が 1%よりも大きくなっている。一方で、100 eV 以上の場合には密度を過小評価しており、特に Cu の結果に関しては 10%前後過小評価している場合がある。100 eV を超えて誤差が大きくなる主な原因は先にも述べたようにダブルバンチの誤差である。

これまでの Ta 箔、Ag 板、Cu 板に対する原子数密度分析の結果をまとめる。図 4.28 に実際の密度と求めた密度の比を用いた共鳴エネルギーに対してプロットしたものを示す。共鳴エネルギー100 eV 以下では、Ag の 16.3 eV 共鳴のような強い共鳴を除いて、誤差 1%程度で原子数密度の定量化に成功している。共鳴ディップの幅を構成する要素（自然幅、Doppler 幅、パルス関数の幅）に関する議論から、このエネルギー領域では主に核データ（共鳴パラメータ）や温度の誤差がフィッティングで求めた密度の誤差に反映されるということがわかっている。一方で、100 eV 以上では誤差が増大している。同様に幅に関する議論から、この誤差の増大はダブルバンチの誤差が支配的であると考えられる。

以上、Ta 箔のような薄い試料に対する透過率測定及び Ag 板のような試料に対する距離を離れた透過率測定に関して、100 eV 以下の共鳴エネルギーに対するフィッティングから誤差 1%程度で原子数密度を求めることができた。また、100 eV を超える共鳴エネルギーに関してはダブルバンチプロファイルの誤差に起因して、求められた原子数密度の誤差が増大することが判明した。

第4章 核種密度定量化手法の検証実験

表 4.12 : フィッティングにより求められた各厚さの Ag 板の原子数密度。括弧内の値は実際の密度と求められた密度との比を表す。

Thickness [mm]		1	2
Area density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]		5.81	11.7
Estimated density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	16.3 eV	5.53 ± 0.13	11.2 ± 0.18
		(0.951 $\pm$ 0.022)	(0.961 $\pm$ 0.015)
	30.6 eV	5.83 ± 0.17	11.5 ± 0.10
		(1.003 $\pm$ 0.028)	(0.986 $\pm$ 0.009)
	71 eV	5.83 ± 0.09	11.6 ± 0.08
		(1.003 $\pm$ 0.016)	(0.996 $\pm$ 0.007)
	133.9 eV	5.54 ± 0.10	10.7 ± 0.18
		(0.954 $\pm$ 0.017)	(0.922 $\pm$ 0.015)

表 4.13 : フィッティングにより求められた各厚さの Cu 板の原子数密度。括弧内の値は実際の密度と求められた密度との比を表す。

Thickness [mm]		1	1.5	2
Area density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]		8.41	12.6	16.8
Estimated density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	230 eV	8.05 ± 0.29	10.9 ± 0.27	15.4 ± 0.21
		(0.957 ± 0.035)	(0.861 ± 0.022)	(0.915 ± 0.013)
	579 eV	8.09 ± 0.13	10.7 ± 0.14	15.5 ± 0.14
		(0.961 ± 0.015)	(0.850 ± 0.010)	(0.922 ± 0.008)
Thickness [mm]		3	5	
Area density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]		25.3	42.1	
Estimated density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	230 eV	22.0 ± 0.40	37.8 ± 0.50	
		(0.871 ± 0.016)	(0.897 ± 0.012)	
	579 eV	23.2 ± 0.20	37.4 ± 1.61	
		(0.916 ± 0.008)	(0.888 ± 0.038)	

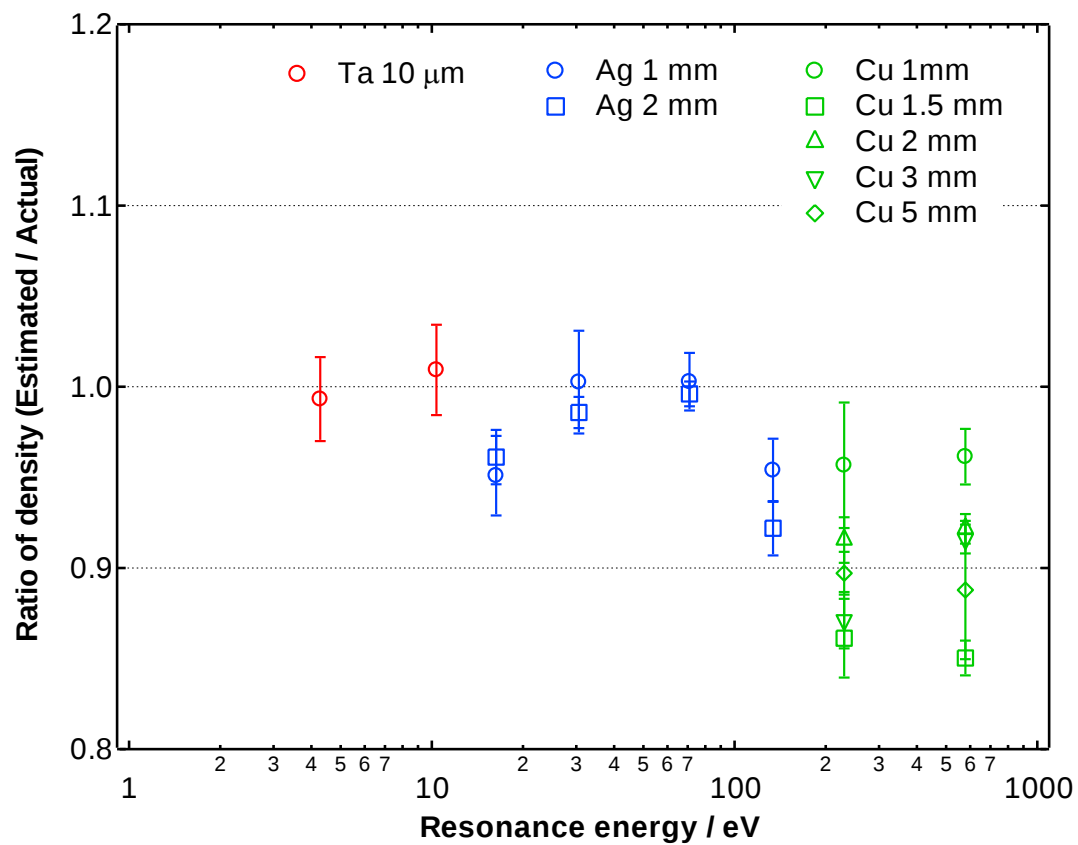


図 4.28：原子数密度の定量性の共鳴エネルギー依存性。

4.4 Black Resonance の適用によるバックグラウンド評価

ここまで、試料と検出器の距離を離れた透過率測定を行い、原子数密度分析の定量性の評価を行った。さらに定量性を上げるにはバックグラウンドの評価が不可欠であり、その手法として Black Resonance (以下 BR) 法がある。NOBORU では BR を用いたバックグラウンド評価を行ったことはない。また、本来は GELINA や J-PARC/MLF/BL04 ANNRI のような Good geometry を有する装置において使用されているものであり、NOBORU のように Good geometry を構築できない装置における効果は未知数である。本研究ではイメージングに対する BR 法の効果の検証のため、NOBORU において BR によるバックグラウンド測定及び Ag 板と Cu 板の原子数密度分析への適用を試みた。

4.4.1 Black Resonance を利用したバックグラウンド評価の原理

試料と検出器がどれだけ離れていようともその両者が 1 本のビームライン上になっている限りは散乱中性子が検出器に到達する確率は 0 にはならない。また、 γ 線に有感な検出器を用いた場合、試料から飛来する γ 線と中性子の区別ができないため見掛けの透過率が増加する。したがって、より高精度の測定を行うためには散乱中性子や γ 線といったバックグラウンド成分の評価を行い、透過率の補正を行う必要がある。

このようなバックグラウンドに対する評価方法として Black Resonance (BR) を用いた手法がある。BR とは透過率がほとんど 0 となるような共鳴である。この BR をビームライン上に設置して中性子スペクトルを測定することで、BR となる TOF (もしくはエネルギー) 点でのバックグラウンドレベルを評価することが可能である。つまりは、中性子がほとんど飛んでこないような TOF 点において検出器が計数しているとすれば、その計数は減速材から直接飛んできたものではなく試料から散乱された中性子もしくは γ 線に起因すると考える。複数の BR を測定することでバックグラウンド曲線を作成し、透過率の補正に用いる。図 4.29 に BR によるバックグラウンド測定の一例を示す。複数の BR によって広いエネルギー範囲におけるバックグラウンドレベルを測定し、それらを内挿することでバックグラウンド曲線を作成する。BR に用いられる元素として Cd、Ag、Mo、Co、Bi、Al、W、Na、S などが挙げられる[39]。透過率測定において、BR によるバックグラウンド測定は試料有り無し両方の条件に対して行われる。BR を用いない時のカウント数を $C_{in}(t)$ 、 $C_{out}(t)$ (添え字の in は試料が設置されている条件を、out は試料が設置されていない条件を表す) とし、BR によって作成されたバックグラウンド曲線を $B_{in}(t)$ 、 $B_{out}(t)$ とすると、補正された透過率 Tr_{exp} は以下のように表される。

$$Tr_{exp} = \frac{C_{in}(t) - B_{in}(t)}{C_{out}(t) - B_{out}(t)} \quad (4-9)$$

すなわち、透過率測定では 1 つの条件に対して計 4 回の測定が必要ということである。このようにしてバックグラウンドを評価し、透過率を補正することでより高精度な解析が

可能となる。

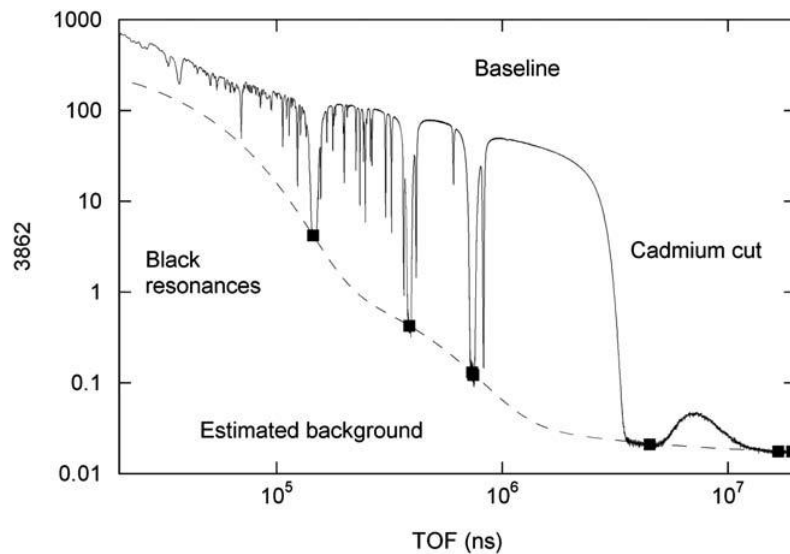


図 4.29 : ISIS の INES で測定された BR スペクトル[39]。BR フィルターとして Cd、Ag、W、Co、Bi を用いている。8 mm 厚の Cu 試料と BR フィルターを透過したスペクトルである。黒点は BR によるバックグラウンドレベルを、破線はバックグラウンドレベルを内挿して求めたバックグラウンド曲線である。

4.4.2 BR フィルター

BR 測定を行うためによく用いられている核種のうち、本実験では Mn (^{55}Mn : 340.7875 eV)、W (^{186}W : 18.83 eV)、Ta (^{181}Ta : 4.28 eV)、Cd (^{113}Cd : 0.1787 eV) を用いた。ただし、Mn は単体ではなく、Mn を含む合金であるマンガニンを用いた。このマンガニンの成分は Mn 12%、Cu 86%、Ni 2%である。それぞれの核種は透過率がほぼ 0 になるような厚さにして使用する。表 4.14 にそれぞれの核種の厚さを示す。また、図 4.30 に NOBORU で使用した場合の BR フィルターの透過率の計算値を示す。

表 4.14 : BR フィルターに用いた核種と厚さ。

Nuclide	^{55}M (in Manganin)	^{186}W	^{181}Ta	^{113}Cd
Energy [eV]	340.7875	18.83	4.28	0.1787
Thickness [mm]	6	0.7	0.149	0.25

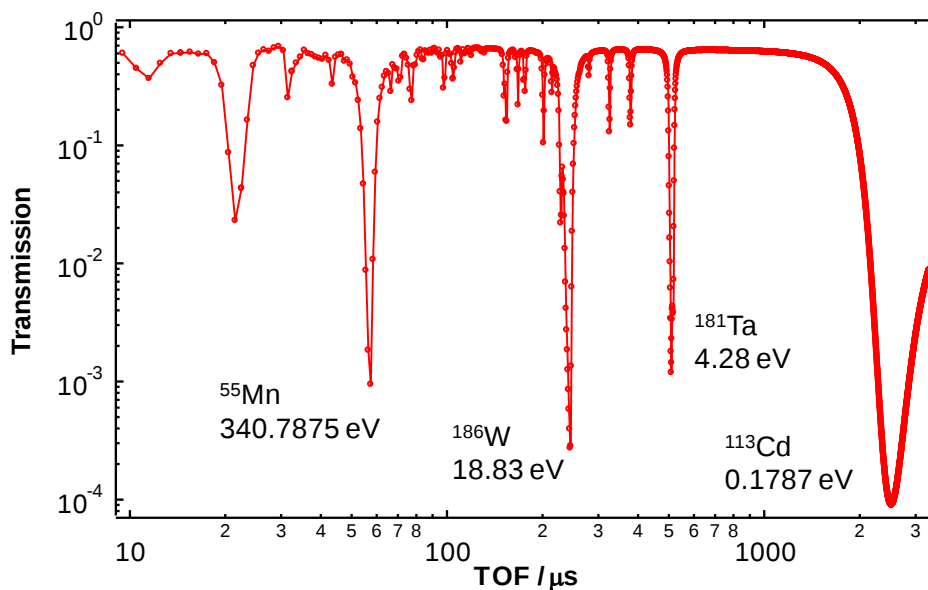


図 4.30 : BR フィルターの透過率の計算値。

4.4.3 実験

4.4.3.1 実験概要

実験は 2014 年 5 月に J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において行った。この時のビームパワーは 300 kW であった。本実験では γ 線フィルター及びフレームオーバーラップチョッパーを使用していない。これまでの実験ではフレームオーバーラップを防ぐ目的でビーム出口に Cd 板を設置していたが、本実験では BR フィルターに Cd を使用することから 3 mm 厚ボロンゴムを使用した。検出器の数え落としを防ぐ目的でロータリーコリメータ「小」を使用している。ビーム条件について表 4.15 にまとめる。検出器はこれまでと同様に GEM 検出器を使用している。検出器及び試料の詳細については 4.3.2.2 及び 4.3.2.3 で述べる。

表 4.15 : BR によるバックグラウンド実験のビーム条件。

Experimental date	2013/5/22 – 26
Beam-line	J-PARC/MLF/BL10 NOBORU
Beam power	300 kW
Rotary Collimator	Small
Beam size	$10 \times 10 \text{ cm}^2$
Filters	Not in use
Frame-overlap chopper	Not in use

4.4.3.2 GEM 検出器

本実験で用いた GEM 検出器は 2012 年及び 2013 年の実験で使用されたものとは異なる。これまで用いられていた GEM 検出器は読み出し基盤で使用されていた ASIC の不具合により、一部のストリップが使用できない状態であった。本実験で用いたのは正常に動作する ASIC を選別して読み出し基盤に取り付けた改良型である。チェンバーの構成は、B-GEM は 2 枚 ($0.8\ \mu\text{m}$ 厚のもの)、Normal GEM は 2 枚である。図 4.31 に改良された GEM 検出器の外観を示す。

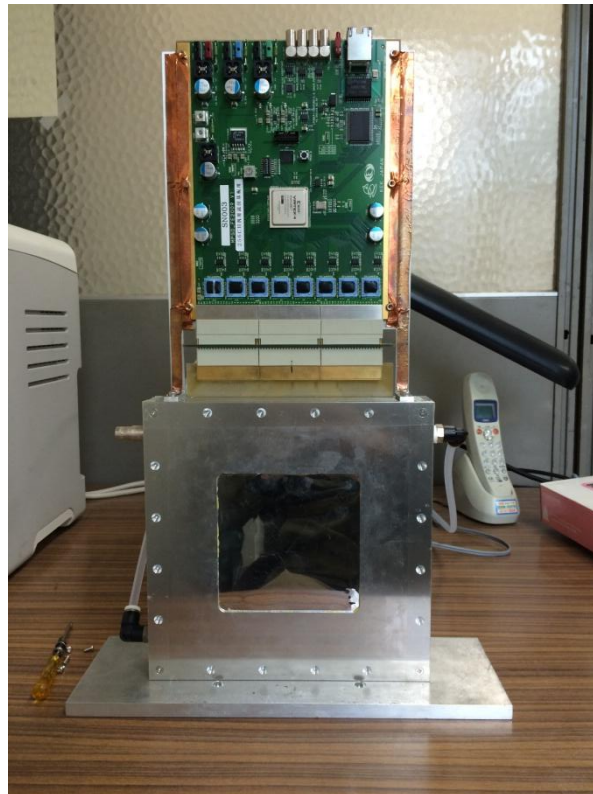


図 4.31：改良された GEM 検出器の外観。

4.4.3.3 試料

本実験では BR によるバックグラウンド測定に加えて、原子数密度分析への適用も試みる。試料は 2013 年の Ag 板及び Cu 板に対する原子数密度分析実験に使用したのと同じ 1 mm 厚 Ag 板と 1 mm 厚 Cu 板を選んだ。それぞれの詳細は表 4.7 及び 4.8 に示されている。

4.4.3.4 試料、BR フィルター及び検出器のセットアップ

図 4.32 に試料と BR フィルター、検出器のセットアップの概略図を、図 4.33 に写真を示す。試料は Al 製の試料ホルダーで固定し、検出器との距離 53 cm の位置にセット

した。BR フィルターはビーム出口のすぐ下流側に設置している。また、検出器の検出面の中心、BR フィルターの中心、ビームラインの中心が一致するように検出器とセットしている。この実験では、減速材からの飛行距離は 14.5 m であった。

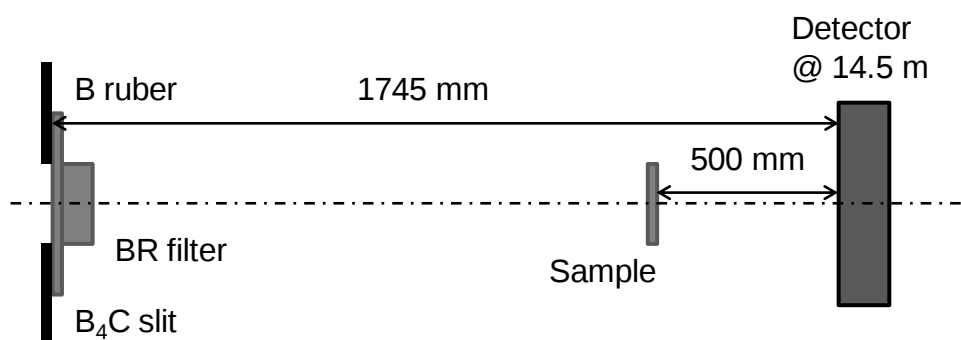


図 4.32 : 試料、BR フィルター及び検出器のセットアップの概略図。

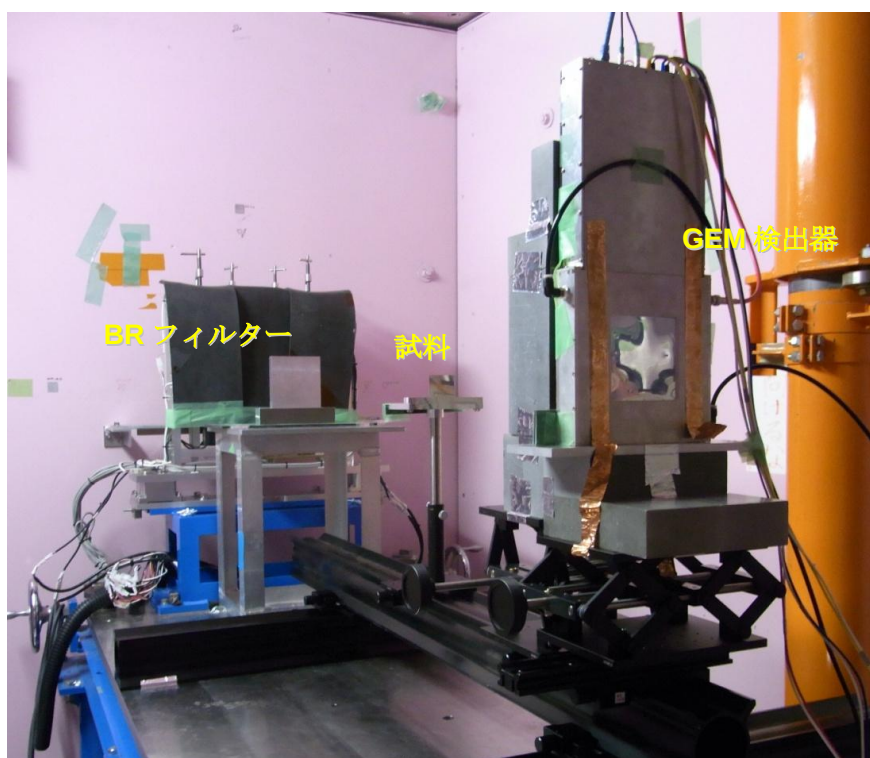


図 4.33 : 試料、BR フィルター及び検出器のセットアップの様子。

4.4.4 解析

4.4.4.1 BR フィルターの透過スペクトル

まず、BR フィルターを透過した中性子スペクトルの測定を行い、バックグラウンドの評価を行う。4.1.2 で説明したように、BR による透過率の補正を行うためには試料がある状態と無い状態におけるバックグラウンドの測定を行う必要がある。つまり、本実験では BR フィルターのみを置いた状態、BR フィルターに加えて Ag 板及び Cu 板を置いた状態における中性子スペクトルの測定を行った。図 4.34 に各条件における中性子スペクトルを示す。規格化は陽子ビーム強度の積分値で行った。Mn、W 及び Ta の共鳴ディップ測定では TOF のビン幅は $1\ \mu\text{s}$ で測定を行い、Cd に対しては $10\ \mu\text{s}$ で測定している。

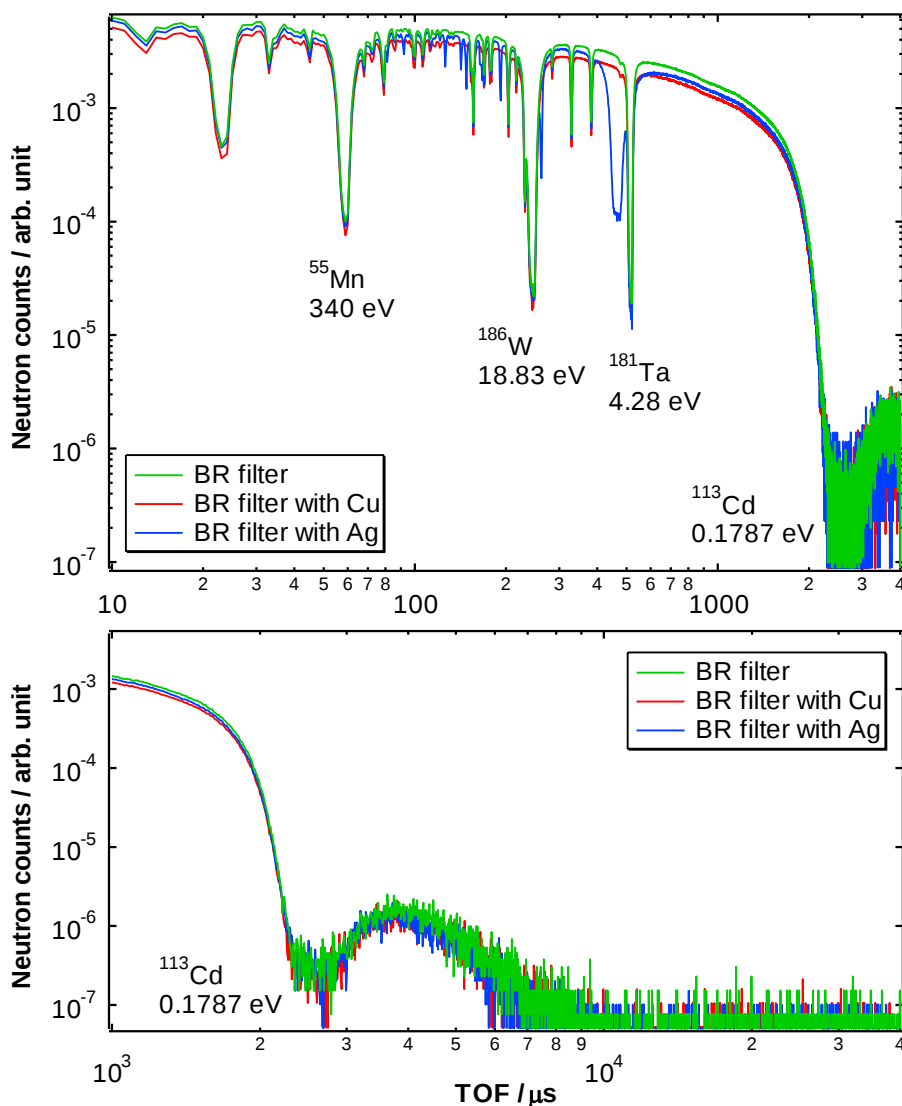


図 4.34 : BR フィルターを透過した中性子スペクトル。

何れの共鳴も計算では BR 点において透過率が 0.1%を下回るようになっているが、測定結果は透過率が 1%程度である。また、エネルギーが高いほどバックグラウンドレベルが高い傾向となっている。

各共鳴ディップの先端を曲線で繋ぎ、バックグラウンド曲線を作成する。本研究では以下に示す指数関数をフィッティング曲線として使用した。

$$B(tof) = y_0 + A \exp(-\lambda \cdot tof) \quad (4-10)$$

ここで、 y_0 、 A 及び λ はフィッティングパラメータとして扱っている。図 4.35 にバックグラウンド曲線を示す。Ta の 4.28 eV 共鳴の前後で異なるフィッティング関数のパラメータを使用している。表 4.16 にバックグラウンド曲線のパラメータを示す。

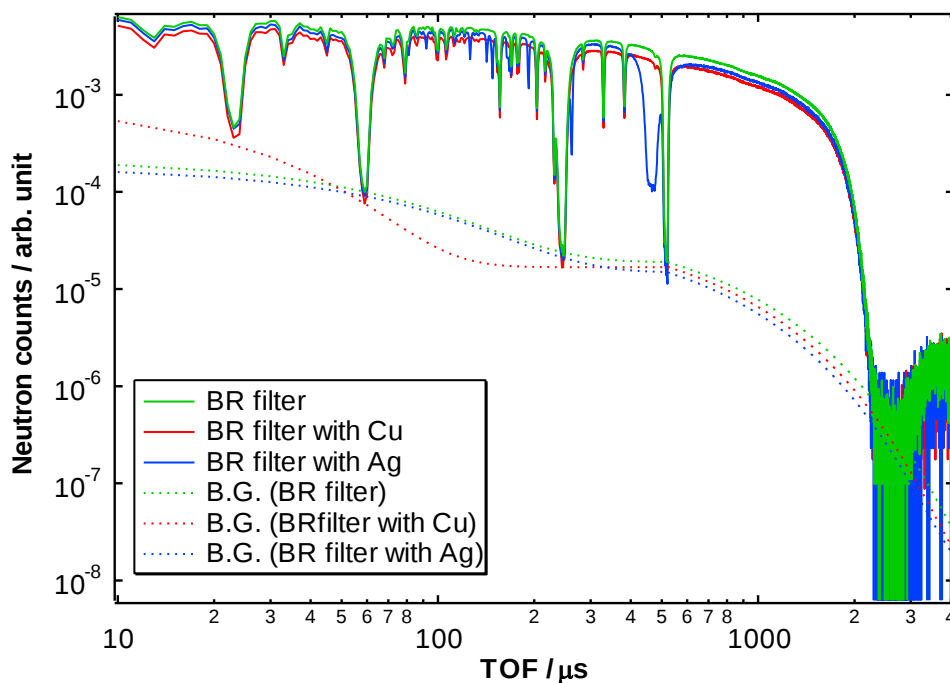


図 4.35 : BR フィルターを透過した中性子スペクトルから求めたバックグラウンド曲線。

表 4.16 : バックグラウンド曲線のパラメータ。

Parameters		BR filter	BR filter with Cu	BR filter with Ag
below 4.28 eV of Ta	y_0	1.89×10^{-5}	1.68×10^{-5}	1.48×10^{-5}
	A	1.98×10^{-4}	8.08×10^{-4}	1.67×10^{-4}
	λ	1.50×10^{-2}	4.44×10^{-2}	1.34×10^{-2}
above 4.28 eV of Ta	y_0	7.53×10^{-9}	6.27×10^{-9}	8.48×10^{-9}
	A	4.99×10^{-5}	4.77×10^{-5}	4.36×10^{-5}
	λ	1.86×10^{-3}	1.99×10^{-3}	2.06×10^{-3}

4.4.4.2 Ag 板及び Cu 板の透過スペクトル

図 4.36 に 1 mm 厚 Ag 板の透過中性子スペクトルと 4.4.3.1 で求めたバックグランド曲線を併せて示す。TOF のビン幅は 150 ns であり、カウント数の規格化は陽子ビームの積分値で行っている。試料がある場合及びない場合の透過スペクトルに比べて、バックグランドレベルは約 1% 程度である。式(4-9)に従って透過率の補正を行った。図 4.37 に補正前後の透過率スペクトルと REFIT で計算した理論的な透過率スペクトルを示す。460 μ s 付近の 5.19 eV 共鳴では理論値との大きな差がみられる。4.3.1.3 における議論では、透過率が 0 に近い場合、試料からの散乱中性子の混入による影響が顕著になることを述べた。つまり、5.19 eV 共鳴における透過率の増加は、各共鳴エネルギーにおける散乱中性子の影響を BR では評価できない可能性を示唆している。共鳴エネルギーにおける散乱中性子の数と共鳴と離れたエネルギーにおける散乱中性子の数が大きく異なる場合、散乱中性子に起因するバックグランドはエネルギーに対して滑らかに変化しないため、バックグランドを評価することは困難である。NOBORU のような good geometry を構築できない環境では BR の適用によって、透過率がほぼ 0 になるような共鳴スペクトルの補正は困難であると考えられる。

同様に、図 4.38 に 1 mm 厚 Cu 板の透過中性子スペクトルとバックグランド曲線を併せて示す。TOF のビン幅は 40 ns である。高エネルギーにおいて検出器の感度に時間変化が見られたことから、この場合はカウント数の規格化に陽子ビーム強度を用いずに、検出面のうち試料を見ていない領域のカウント数を用いて試料ありのスペクトルと試料なしのスペクトルの規格化を行った。また、バックグランド曲線との規格化を行うために、陽子ビーム強度を用いて規格化を行った Ag 板測定における試料無しの透過スペクトルの強度に、本測定の試料無しの透過スペクトルの強度が合うように調整した。バックグランドレベルは数%程度である。また、試料の有無によってバックグランド曲線の大小が逆転しているのは、この領域が BR を外挿した領域であるため、誤差が大きいためであると考えられる。図 4.39 に補正前後の透過率スペクトルと REFIT で計算した理論的な透過率スペクトルを示す。TOF が 30 μ s 以下の領域において、補正前後の透過率の差が大きくなっている。これは先に述べたバックグランド曲線の誤差が大きいと考えられる。また、ベースラインが理論値と測定値ではずれがあり、これは規格化の誤差によるものであると考えられる。

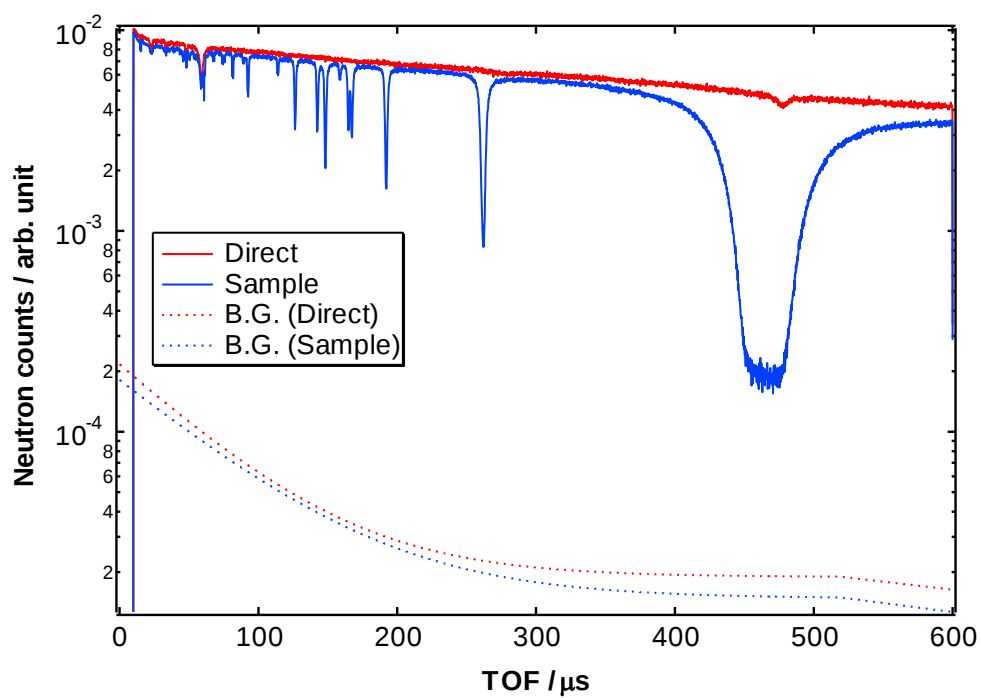


図 4.36 : 1 mm 厚 Ag 板の透過中性子スペクトルとバックグランド曲線。

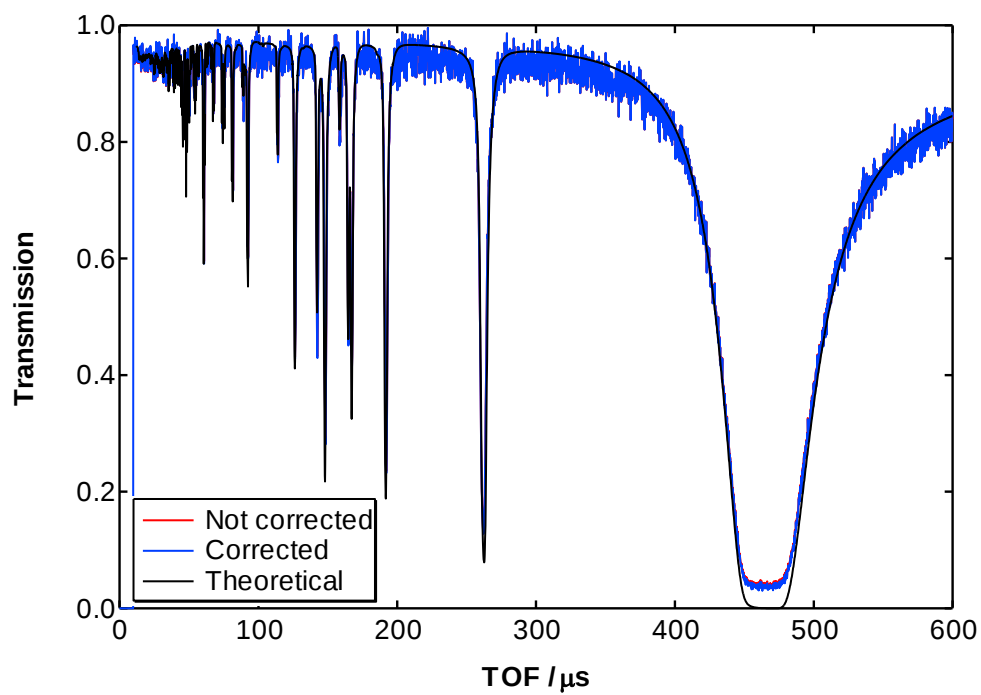


図 4.37 : 1 mm 厚 Ag 板の補正前後の透過率と理論値。

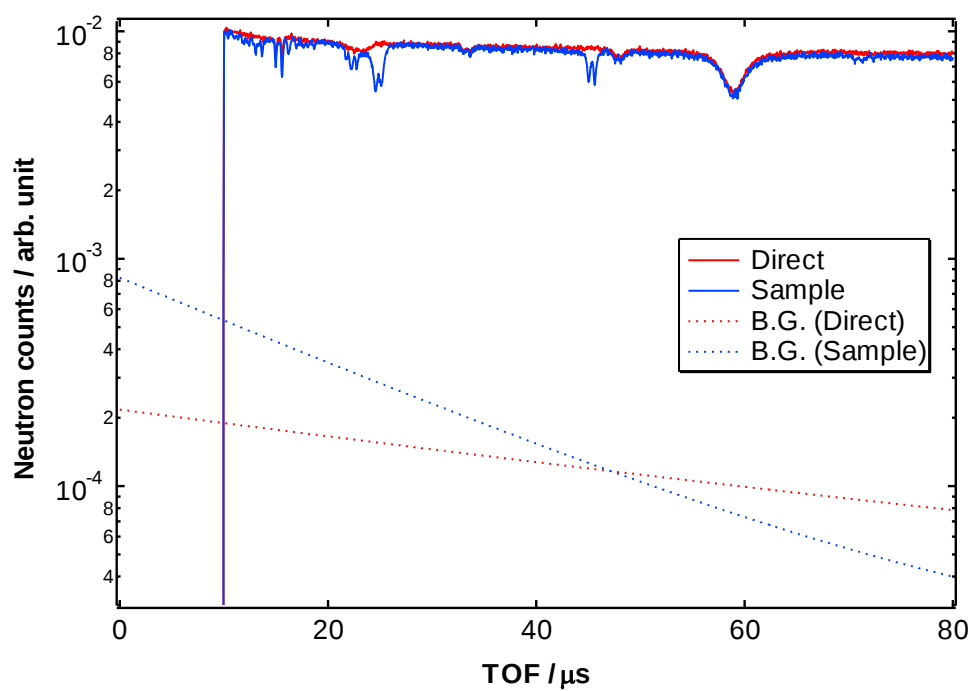


図 4.38 : 1 mm 厚 Cu 板の透過中性子スペクトルとバックグラウンド曲線。

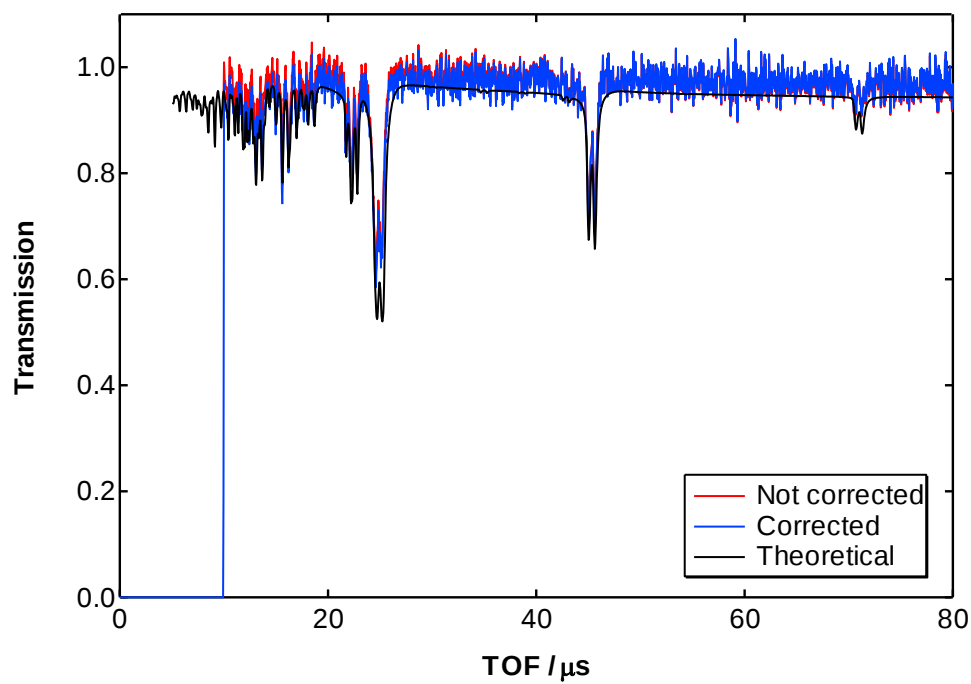


図 4.39 : 1 mm 厚 Cu 板の補正前後の透過率と理論値。

4.4.4.3 補正された透過率に対するフィッティング

補正した透過率に対して REFIT を用いてフィッティングを行った。なお、透過率が 0.1 を下回るような共鳴ディップに関しては定量性が悪化することがわかっているため、透過率が 0.3 から 0.7 程度の共鳴ディップに対してフィッティングを行った。用いた共鳴パラメータは JENDL-4.0 の値を、Cu の一部の共鳴に関しては 4.3.3.2 で述べたとおり Weigmann の値を用いた。試料温度は 300 K として計算している。図 4.40 に補正した ^{109}Ag の 71 eV 共鳴、図 4.41 に ^{109}Ag の 133.9 eV 共鳴、図 4.42 に ^{63}Cu の 579 eV 共鳴に対するフィッティング結果を示す。フィッティングの結果求められた核種の面密度はそれぞれ、 ^{109}Ag の 71 eV 共鳴に対して $(5.76 \pm 0.15) \times 10^{-3}$ atoms/barn、 ^{109}Ag の 133.9 eV 共鳴に対して $(5.18 \pm 0.18) \times 10^{-3}$ atoms/barn、 ^{63}Cu の 579 eV 共鳴に対して $(5.47 \pm 0.76) \times 10^{-3}$ atoms/barn であった。表 4.17 に求められた核種の面密度を示す。表 4.17 には補正していない透過率に対するフィッティングによる結果も併せて示している。先の実験結果に比べて全般に定量性が悪化している。これは検出器の感度の時間変化に起因する規格化定数の誤差が原因である。Ag 板の結果に着目すると、補正した透過率により求めた原子数密度は補正していない場合に比べて 0.1 ~ 0.3% 増加している。また、Cu 板の結果に関しては補正した透過率に対する原子数密度が 2% 程度増加している。これらの値はフィッティングにおける誤差と同じ程度のオーダーである。つまり、本実験で用いた体系においては、BR を用いたバックグラウンド評価は原子数密度分析に対して有効でないことがわかった。

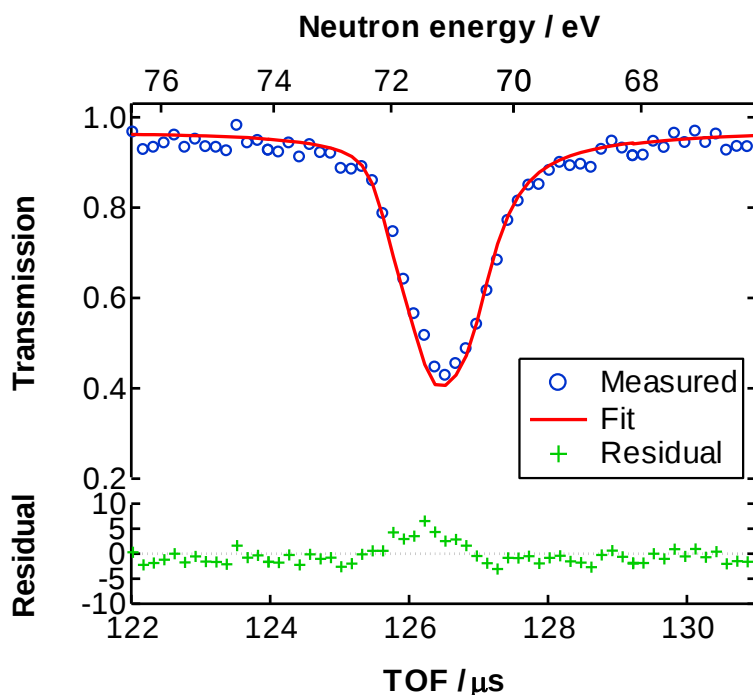


図 4.40 : 補正した ^{109}Ag の 71 eV 共鳴に対するフィッティング。

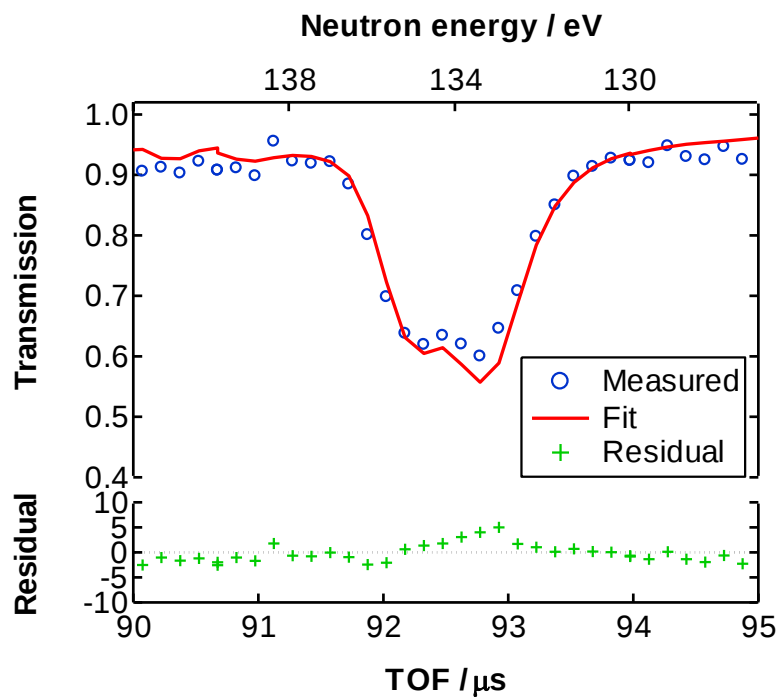


図 4.41：補正した ^{109}Ag の 133.9 eV 共鳴に対するフィッティング。

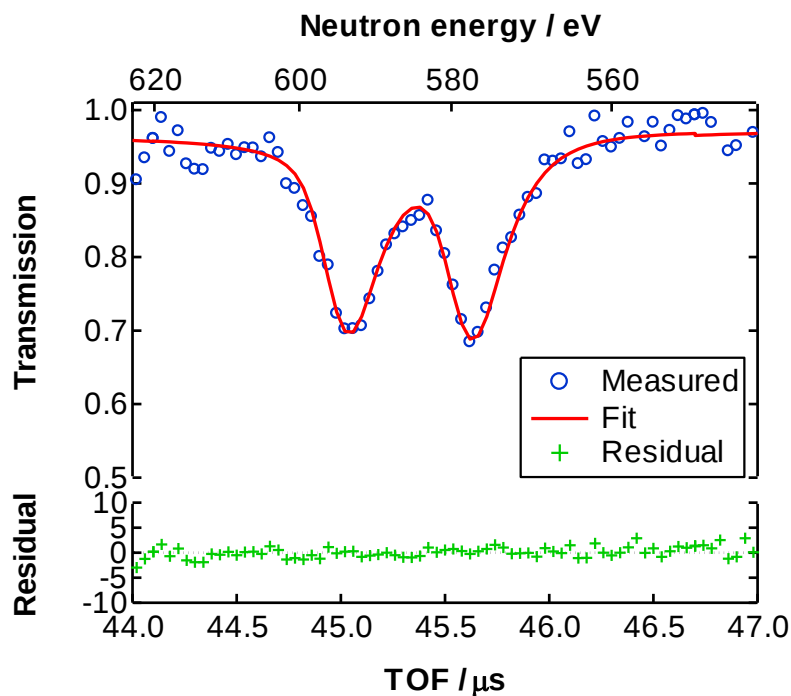


図 4.42：補正した ^{63}Cu の 579 eV 共鳴に対するフィッティング。

表 4.17：補正した透過率に対するフィッティングにより求められた Ag 板及び Cu 板の原子数密度。括弧内の値は実際の密度と求められた密度との比を表す。

Sample		1 mm-thick Ag		1 mm-thick Cu
Area density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]		5.81		8.41
Resonance energy [eV]		71	133.9	579
Estimated density [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	Correction	5.76 ± 0.15	5.18 ± 0.18	5.47 ± 0.76
		(0.991 ± 0.026)	(0.891 ± 0.031)	(0.650 ± 0.090)
	No correction	5.76 ± 0.16	5.16 ± 0.19	5.31 ± 0.15
		(0.990 ± 0.027)	(0.888 ± 0.033)	(0.631 ± 0.018)

4.5 第 4 章のまとめ

本章では、NOBORU において行った透過型 N-RAS 実験及び、第 3 章で説明した解析システムを用いて行った原子数密度分析について説明を行った。また、透過型 N-RAS 実験ではこれまで中性子イメージングの分野では取り入れていなかった実験手法を取り入れ、原子数密度分析における定量性の改善を試みた。それらの実験手法は試料と検出器を離して設置して試料からの散乱中性子の影響を低減する手法及び BR フィルターを用いてバックグラウンド評価を行う手法である。

まずは、NOBORU において 10 μm 厚の薄い Ta 箔に対する透過型 N-RAS 実験及び原子数密度分析を行った。薄い試料では試料からの散乱中性子の影響が少ないとして、この実験においては試料を離れた測定及び BR フィルターによるバックグラウンド評価は行っていない。この実験及びこれ以降の実験では GEM 検出器を用いている。測定された透過率に対して、共鳴パラメータとして JENDL-4.0 の値を用いて REFIT によるスペクトルフィッティングを行ったところ、 ^{181}Ta の 4.28 eV 共鳴及び 10.36 eV 共鳴に関して誤差 1%以内で核種の面密度を求めることができた。

次に、より高い共鳴エネルギーに対して原子数密度分析の定量性を評価するため、複数の厚さの Ag 板及び Cu 板に対する透過型 N-RAS 実験及び原子数密度分析を行った。この実験で用いた試料の厚さは mm オーダーであるため、試料からの散乱中性子の影響が大きいことが予想される。そのため、この実験に対しては試料の距離を離れた実験を適用することとし、実験に先立ってモンテカルロシミュレーションを用いて最適な試料位置の決定を行った。この計算によって、試料と検出器の距離を 20 cm 離せば散乱中性子の影響の距離による変化がそれ以上見られなくなることがわかった。また、この体系においては入射中性子に対する散乱中性子の割合は 0.5%前後であり、透過率から推定される原子数密度に対する影響としては透過率 50%の場合には約 1.5%である。シミュレーション計算から決定した体系において透過型 N-RAS 実験を行い、REFIT による原

子数密度分析を行った。Ag に関しては共鳴パラメータとして JENDL-4.0 の値を用いて、Cu に関しては Weigmann の値を用いている。解析の結果、共鳴エネルギーが 100 eV 以下の場合には Ta の場合と同様に強い共鳴を除けば誤差 1%程度で密度を求めることができた。一方で、100 eV 以上のエネルギーの共鳴ディップに対する解析においては、誤差が 5%以上に増加することがわかった。100 eV 以上のエネルギー領域では陽子ビームのダブルバンチ構造が共鳴ディップに対して現れ始めている。また、このエネルギー領域においては、共鳴ディップの幅を構成する成分としてパルス関数の寄与が支配的であり、共鳴の自然幅や Doppler 幅の寄与は大きくない。つまり、100 eV 以上の領域で誤差が増大した原因としては陽子パルスの幅の誤差が支配的であると考えられる。

NOBORU における透過型 N-RAS 測定によって、薄い試料の場合、もしくは試料距離を離れた場合、共鳴エネルギーが 100 eV 以下では誤差 1%程度で原子数密度を定量することに成功した。共鳴エネルギーが 100 eV 以上では陽子ビームのダブルバンチ構造の誤差の影響で原子数密度による誤差が 5%以上に増加することがわかった。

試料からの散乱中性子によるバックグランド評価を行い密度分析の定量性を改善させるため、BR を利用した測定による透過率補正を試みた。BR フィルター用の核種として、本研究では Mn (マンガンに含まれる)、W、Ta 及び Cd を使用している。この BR フィルターを用いて、NOBORU においてバックグランド測定を行い、1 mm 厚の Ag 及び Cu の透過率補正を試みた。BR フィルターを透過した中性子のスペクトルにおいて、BR 点における中性子カウント数はベースラインのカウント数と比較して 1%程度であることがわかった。つまり、バックグランドレベルは約 1%ということである。複数の BR 点を曲線で繋ぎ、バックグランド曲線を作成した。このバックグランド曲線を用いて Ag 及び Cu の透過率の補正を行った。1 mm 厚の Ag 試料の 5.19 eV 共鳴は BR であるが、補正後の共鳴ディップの透過率はほぼ 0 にはならなかった。つまり、NOBORU のような good geometry を構築できない体系では強い共鳴に関する散乱中性子の評価はできないということがわかった。また、補正をした透過率と補正をしていない透過率に対する共鳴ディップへのフィッティングから原子数密度を求めたところ、Ag に対しては 0.1~0.3%、Cu に対しては 2%程度原子数密度の定量性が改善された。しかし、これらの値はフィッティングによる誤差の範囲内であり、本実験に対しては定量化の精度向上に対して BR 法の効果があるということとは言えない。

第5章 原子数密度イメージングへの応用

本章では、第4章で評価した解析システム及び実験手法を実際にイメージング実験に適用した結果について述べる。NOBORUにおいて、複数の核種を含んだ鉛フリーはんだを用いたイメージング用試料に対して2次元検出器による透過型N-RAS測定を行う。本研究以前のイメージング実験においては試料を検出器に付けた状態で透過測定を行っていたが、これまでに評価したように定量的な原子数密度測定のためには試料の距離を離れた測定が必要である。ここでの実験では、第4章で説明したように試料を検出器から離して測定を行い、原子数密度の定量化を試みた。また、測定した位置ごとの透過率スペクトルに対し解析システムによるフィッティングを行うことで、試料に含まれる核種の量を求めてマッピングを行う。これにより、本研究で開発・評価した解析システム・測定手法の透過型N-RASによる定量的なイメージングへの有用性を示す。

5.1 BL10 における鉛フリーはんだの組成イメージング

原子数密度分布のイメージングに求められるのは、複数の核種を含む試料の中にどの核種がどの割合で含まれているのか、その情報を位置ごとに定量することである。本研究で開発した解析システム・実験手法のイメージングに対する有用性を示すために、複数の核種を含む鉛フリーはんだを測定試料として選定した。用意した鉛フリーはんだ試料の詳細と透過型N-RASイメージング実験について説明する。

5.1.1 鉛フリーはんだのイメージング試料

いわゆる一般的なはんだは鉛とスズの合金であり、主に電子回路の基板に電子部品を搭載するために用いられている。しかし、鉛は人体に対して有害であり、環境への悪影響も懸念されるため、鉛を使用しない鉛フリーはんだが開発されている。はんだは（ブレッドボードなどを除く）全ての電子回路に用いられており、はんだに対するN-RASイメージングが可能となれば、将来的にはそれらを搭載した製品に対しての温度イメージングなども実施できると考えられる。本実験に用いた鉛フリーはんだは主成分がスズであり、銀と銅を含んでいる。その組成比はSn96.5-Ag3-Cu0.5 (%)である。また、形状は線状であり直径は0.8 mmである。このままではイメージング用のテスト試料として適した形状とは言えないので、このはんだをアルミフレームにコイル状にできるだけ隙間なく巻きつけることで面積を持たせた。また、位置によって巻き数を変えることで実効的な厚さを変化させ、イメージング試料として意味を持たせた。図5.1に鉛フリーはんだを用いたイメージング試料の写真を示す。向かって左側（図中の赤い括弧で示した領域）の巻き数を3巻（4.8 mm 厚）とし、右側（図中の青い括弧で示した領域）の巻

き数を2巻(3.2 mm厚)としてある。

ここで、はんだによって作られた面の実効的な厚さについて考える。はんだは断面が円形であるから、その直径が即ち試料の厚さとはならない。直径が0.8 mmの円の断面積は $(0.4^2 \times \text{円周率})$ であるから、つまり 0.50 mm^2 である。したがって、実効厚さは $0.50/0.8 = 0.628 \text{ mm}$ となる。ゆえに、試料の左側の実効厚さは2.51 mm、右側は3.77 mmとなる。表5.1に試料に含まれる核種とその組成及び面密度を示す。ここで示している面密度は上記の実効厚さを基に導出した値である。ただし、これらの密度ははんだが隙間なく巻かれていると仮定した場合の値である。はんだは手作業で巻いているため、実際の実効厚さはこれよりも薄く、つまりそれぞれの核種の面密度も少なくなることに注意する必要がある。また、はんだは柔らかいために細長く伸びる可能性がある。

表 5.1：鉛フリーはんだ試料に含まれる核種組成及び面密度。

Element	Isotope	N. A. [%]	Ratio	Area density [atoms/barn]	
				3.2 mm	4.8 mm
Sn (96.5%)	112	0.97	0.00936	8.79×10^{-5}	1.32×10^{-4}
	114	0.66	0.00637	5.98×10^{-5}	8.97×10^{-5}
	115	0.34	0.00328	3.08×10^{-5}	4.62×10^{-5}
	116	14.54	0.14031	1.32×10^{-3}	1.98×10^{-3}
	117	7.68	0.07411	6.96×10^{-4}	1.04×10^{-3}
	118	24.22	0.23372	2.19×10^{-3}	3.29×10^{-3}
	119	8.59	0.08289	7.78×10^{-4}	1.17×10^{-3}
	120	32.58	0.31440	2.95×10^{-3}	4.43×10^{-3}
	122	4.63	0.04468	4.19×10^{-4}	6.29×10^{-4}
	124	5.79	0.05587	5.24×10^{-4}	7.87×10^{-4}
Ag (3%)	107	51.839	0.01555	2.29×10^{-4}	3.43×10^{-4}
	109	48.161	0.01445	2.13×10^{-4}	3.19×10^{-4}
Cu (0.5%)	63	69.15	0.00346	7.36×10^{-5}	1.10×10^{-4}
	65	30.85	0.00154	3.28×10^{-5}	4.92×10^{-5}
Total				9.61×10^{-3}	1.44×10^{-2}

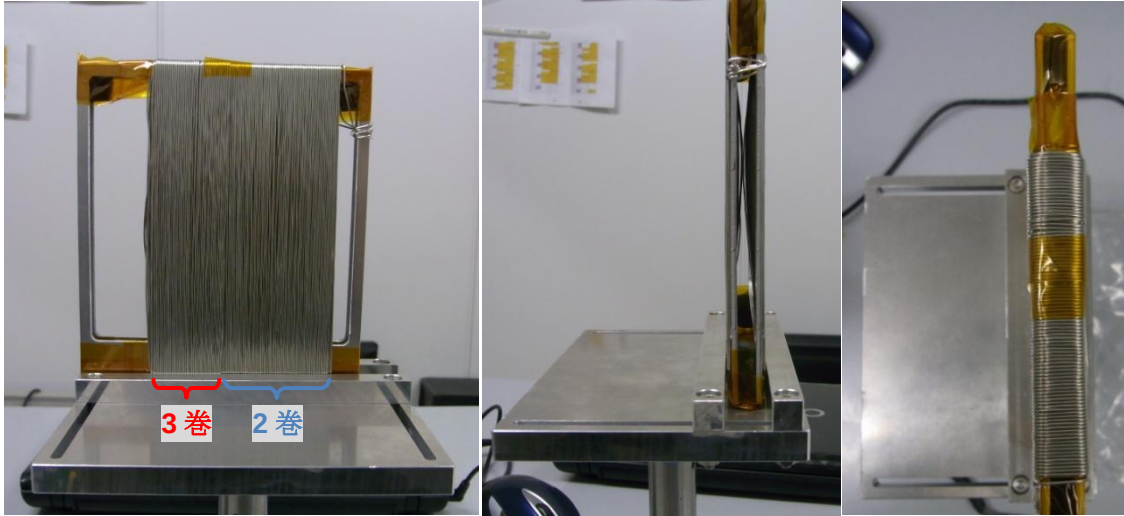


図 5.1：鉛フリーはんだのイメージング試料。左図は正面から、中央図は横から、右図は上から見た様子である。正面から見た写真において左の赤い括弧の領域（約 3 cm）が 3 巻（4.8 mm 厚）で、右の青い括弧の領域（約 4.5 cm）が 2 巻（3.2 mm 厚）である。

5.1.2 実験

5.1.2.1 実験概要

実験は 2014 年 5 月に J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において、第 4 章で説明した BR に関する実験と同じマシンタイムに行っている。ビーム条件や検出器に関しては 4.4.2 で説明した通りである。また、試料に関しては 5.5.1 にて説明した鉛フリーはんだを用いたイメージング用試料を用いている。

5.1.2.2 試料と検出器のセットアップ

図 5.2 にイメージング試料と検出器のセットアップの概略図を、図 5.3 に写真を示す。実験体系は 4.4.3.4 で説明した体系とほぼ同じであるが、イメージング試料は Al 製の試料ホルダーで固定し、検出器との距離 53 cm の位置にセットした。この時、この距離に起因する画像のボケについて考える。画像の不鮮明度 U_g は次の式で表される[105]。

$$U_g = \frac{l/(L/D)}{(1-l/L)} \quad (5-1)$$

ここで、 L はダイヤフラムから検出器までの距離、 D はダイヤフラムの開口寸法（つまりコリメータ径）、 l は試料と検出器間の距離である。本実験の場合、 $L = 650$ cm、 $D = 1$ cm、 $l = 53$ cm であり、画像の不鮮明さは 0.75 mm となる。この値は GEM 検出器の分解能とほぼ同じ大きさである。また、検出器の検出面の中心、BR フィルターの中心、ビームラインの中心が一致するように検出器とセットしている。検出器から見て試料の左

側が厚さ 4.8 mm の領域、右側が厚さ 3.2 mm の領域になっている。この実験では、減速材からの飛行距離は 14.5 m であった。

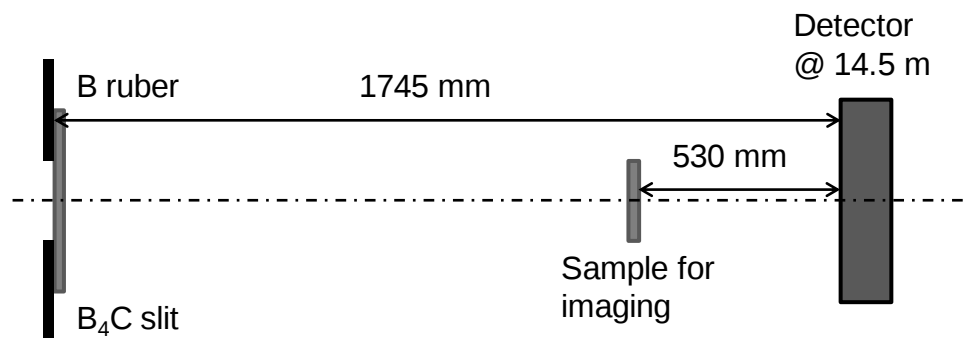


図 5.2 : イメージング試料と検出器のセットアップの概略図。



図 5.3 : イメージング試料と検出器のセットアップの様子。写真には第 4 章で説明した BR フィルターが写っているが、本章における解析では使用していない。

5.1.3 解析

5.1.3.1 透過画像

中性子の透過率をマッピングすることで、試料内の物質の密度差をイメージング（ラジオグラフィ）することが可能である。フィッティングによるピクセル毎の解析を行う前に、ラジオグラフィによってピクセルと試料の位置関係を把握しておく。

図 5.4 に試料のラジオグラフィ画像を示す。この画像は検出器から試料を見た状態になっている。ここで、TOF 0 ~ 600 μs の範囲のカウント数を積分している。これは中性子エネルギーに換算すると、おおよそ 3 eV 以上の領域である。x がおおよそ 30 ~ 70 の領域が試料厚さ 4.8 mm に対応しており、x がおおよそ 70 以上の領域が試料厚さ 3.2 mm に対応している。このラジオグラフィ画像は 3 eV 以上のエネルギー領域の透過率の平均値であるため、共鳴があるエネルギー領域と共鳴がないエネルギー領域のすべてを含んでいる。

共鳴のあるエネルギー領域のみを選択してラジオグラフィを行えば、よりコントラストの強い画像が取得できる。図 5.5 に Ag の 16.3 eV 共鳴付近のエネルギー領域における試料のラジオグラフィ画像を示す。TOF 258 ~ 267 μs の範囲のカウント数を積分している。積分を行う TOF の範囲が狭いため、統計が悪くピクセルごとの透過率のバラつきが大きい、図 5.4 よりもコントラストは強く出ている。

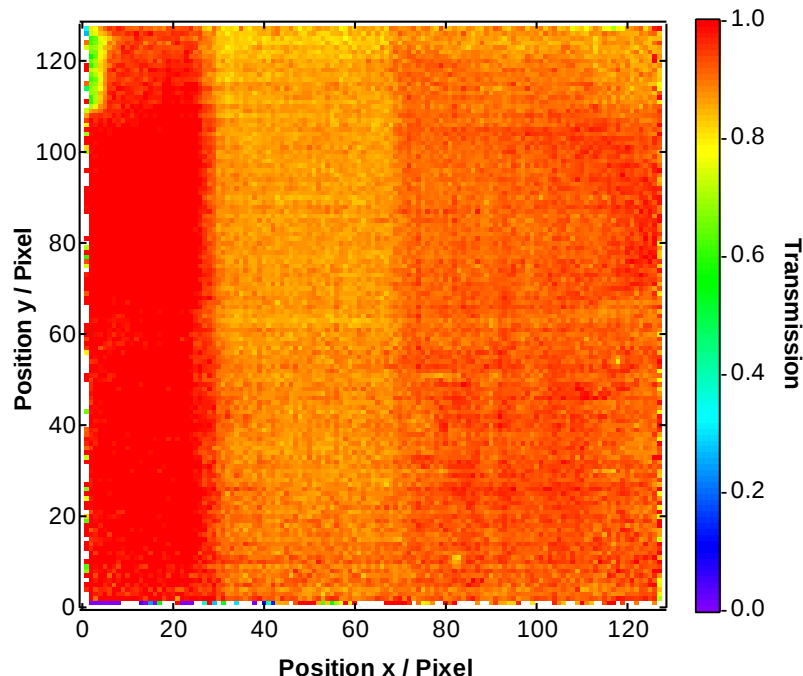


図 5.4 : 試料のラジオグラフィ（中性子エネルギー 3 eV 以上）。1 ピクセルのサイズは 0.8 mm である。

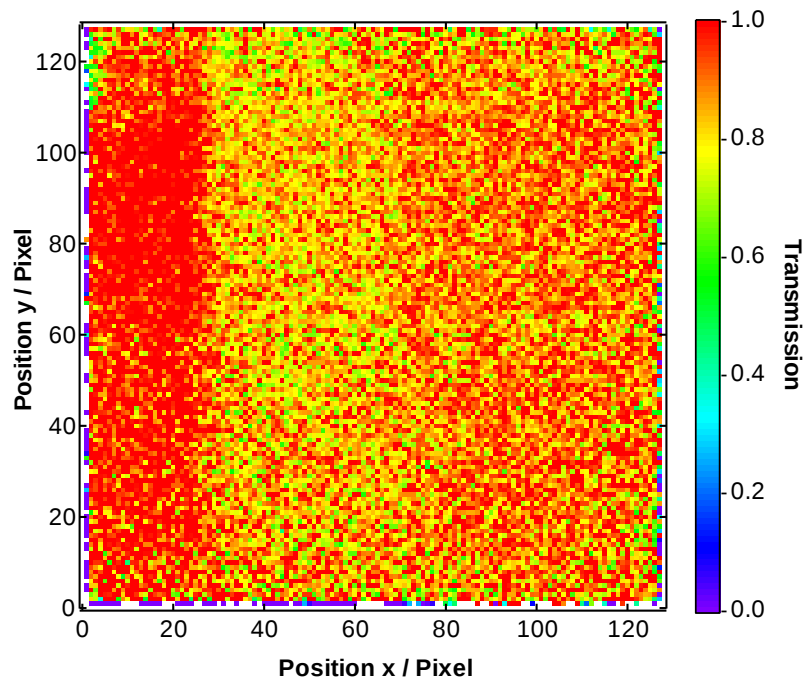


図 5.5 : 試料のラジオグラフィ (中性子エネルギー16.3 eV 付近)。1 ピクセルのサイズは 0.8 mm である。

また、図 5.4 及び 5.5 に示した透過率の分布を $y : 5 \sim 120$ の範囲で平均して位置 x に対してプロットしたものを図 5.6 に示す。この分布を見ても、 $x : 30 \sim 70$ の範囲では試料厚さが 4.8 mm であり、70 以上の領域では試料厚さは 3.2 mm であることがわかる。また、共鳴付近のエネルギー領域を選んでラジオグラフィを行った方が、コントラストが大きくなることも確認できる。試料が存在しないと思われる $x = 20$ 付近において透過率が 1 を超えているのは、試料からの散乱中性子によって試料がない領域において中性子カウント数が増加しているためである。

今後の解析においては、この位置情報を利用してピクセルごとの透過率スペクトルに対するフィッティングの初期値を決めていく。

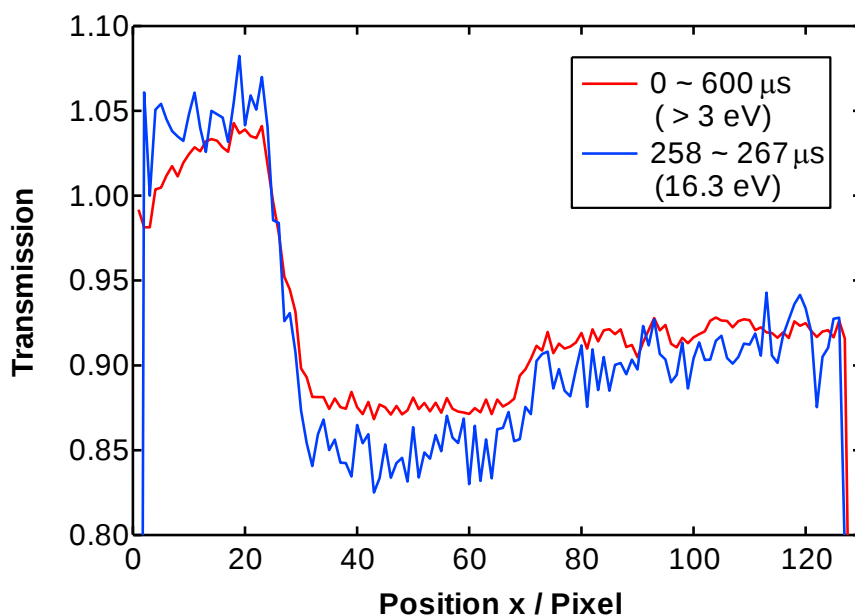


図 5.6 : 平均透過率の 1 次元分布。1 ピクセルのサイズは 0.8 mm

5.1.3.2 測定された透過率スペクトル

イメージングに先立って、広い試料範囲の透過率スペクトルの解析を行う。この試料では、試料厚さが 3.2 mm と 4.8 mm の 2 つの領域があるため、それぞれの透過率スペクトルを求めて解析を行い、その結果をピクセルごとのフィッティングに利用する。試料厚さ 4.8 mm の領域を図 5.4 及び 5.5 から $x: 35 \sim 65$ 、 $y: 10 \sim 115$ とし、試料厚さ 3.2 mm の領域を $x: 75 \sim 120$ 、 $y: 10 \sim 115$ として、その範囲における平均の透過率スペクトルを求めた。図 5.7 にそれぞれの透過率スペクトルを示す。ここで、規格化は陽子ビームの時間積分強度を用いて行っている。また、TOF のビン幅は 150 ns である。260 μs 付近の共鳴は ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴、460 μs 付近の共鳴は ^{109}Ag の 5.19 eV 共鳴である。それより高いエネルギーの共鳴が複数確認できる。これらの共鳴を見るために、図 5.8 に 200 μs までの拡大図を示す。図 5.8 には Sn 及び Ag による共鳴が出現する位置を示している。おおよそ 40 eV (TOF $\sim 170 \mu\text{s}$) 以上の領域において Sn の多数の共鳴が確認できている。Cu は含有量が少ないために共鳴ディップは確認できない。

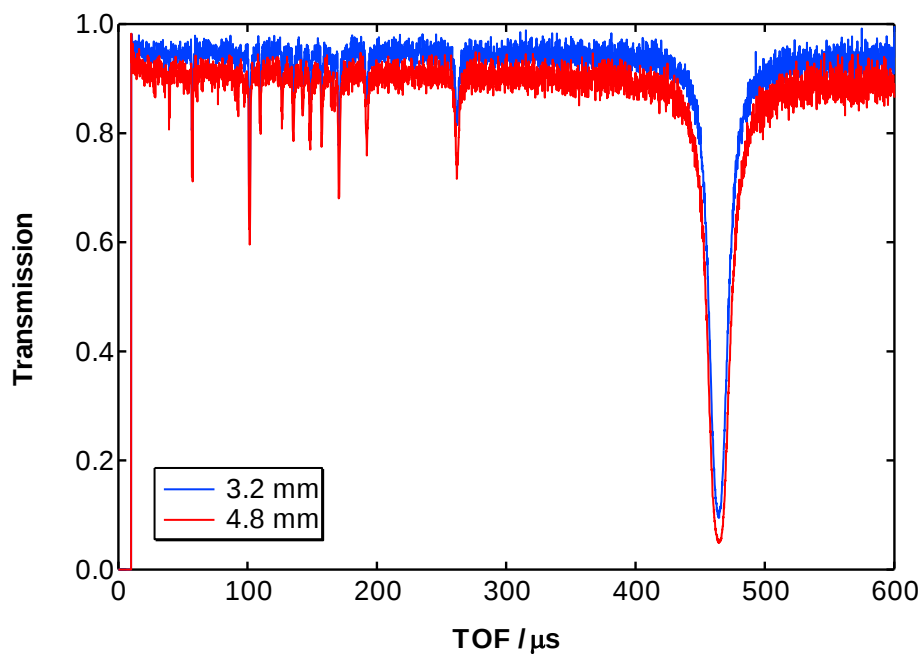


図 5.7 : 試料厚さが異なる領域における透過率スペクトル。

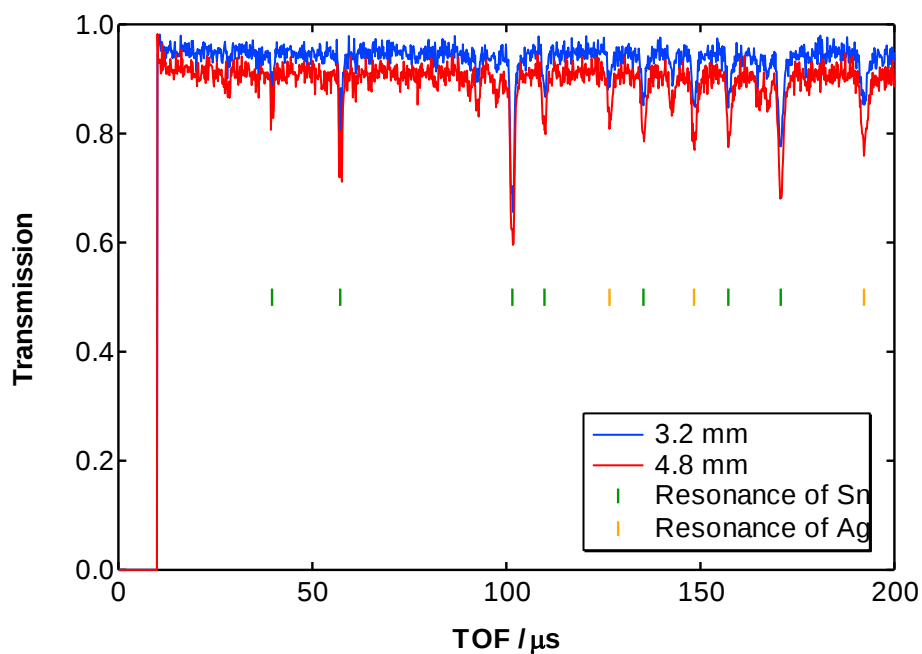


図 5.8 : 試料厚さが異なる領域における透過率スペクトルの拡大図。

5.1.3.3 REFIT によるフィッティング

観測された Ag 及び Sn の共鳴ディップに対して解析を行い、試料の面密度及び組成比を求める。共鳴パラメータとして、主に JENDL-4.0 の値を用いるが、第4章で説明したように Cu の一部の共鳴に関しては Weigmann の値を用いる。なお、Sn は同位体が多いが、現状ではそれらの正確な核データが揃っていない状態である。Sn の同位体の正確な核データを求めるために、現在 J-PARC/MLF/BL04 ANNRI において中性子捕獲断面積測定が行われている最中であり、いくつかの未知の共鳴も発見されている[106]。よって、REFIT で計算した Sn の共鳴ディップと測定された共鳴ディップが一致しないことが多いと考えられる。そのため、Sn の共鳴に対する解析に関しては、REFIT による計算値に近いものを選択してフィッティングを行っていく。

まず、 ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴及び ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対してフィッティングを行った。この時、試料温度は 300 K として計算している。また、試料は合金であるが、各元素の Debye 温度に関しては単体の場合と同じ値を用いている。Sn、Ag、Cu の Debye 温度はそれぞれ 200、225、343 K とした[65]。図 5.9 に試料厚さが 3.2 mm の場合の ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング結果を、図 5.10 に ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対するフィッティング結果を示す。 ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴から求められた ^{107}Ag の面密度は $(1.04 \pm 0.03) \times 10^{-4}$ atoms/barn であり、 ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴から求められた ^{118}Sn の面密度は $(1.41 \pm 0.06) \times 10^{-3}$ atoms/barn であった。試料厚さが 3.2 mm の場合、予想される ^{107}Ag の面密度は 2.29×10^{-4} atoms/barn であり、 ^{118}Sn の面密度は 2.19×10^{-3} atoms/barn であるから、それぞれ半分近い値である。また、図 5.11 に試料厚さが 4.8 mm の場合の ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング結果を、図 5.12 に ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対するフィッティング結果を示す。 ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴から求められた ^{107}Ag の面密度は $(1.51 \pm 0.03) \times 10^{-4}$ atoms/barn であり、 ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴から求められた ^{118}Sn の面密度は $(2.40 \pm 0.08) \times 10^{-3}$ atoms/barn であった。試料厚さが 4.8 mm の場合、予想される ^{107}Ag の面密度は 3.43×10^{-4} atoms/barn であり、 ^{118}Sn の面密度は 3.29×10^{-3} atoms/barn であるから、この場合もそれぞれ半分近い値である。

これら求めた原子数密度をまとめたものを表 5.2 に示す。5.1.1 で述べたように、はんだを巻いた際に生じる隙間及び伸びにより面密度は低下する。第4章で説明した Ag 板に対する原子数密度分析では、100 eV 以下のエネルギーの場合 1 mm 厚の Ag 板（面密度： 5.81×10^{-3} atoms/barn）を誤差 1%程度で定量できている。ここで求めた鉛フリーはんだに含まれる Ag の密度に関しても、おおよそ同じ程度の誤差で導出できていると考えられる。したがって、この解析で求めた面密度が実効的な面密度である。また、 ^{107}Ag と ^{118}Sn で誤差に違いがあるのは、 ^{118}Sn の共鳴パラメータにおける誤差が原因であると考えられる。

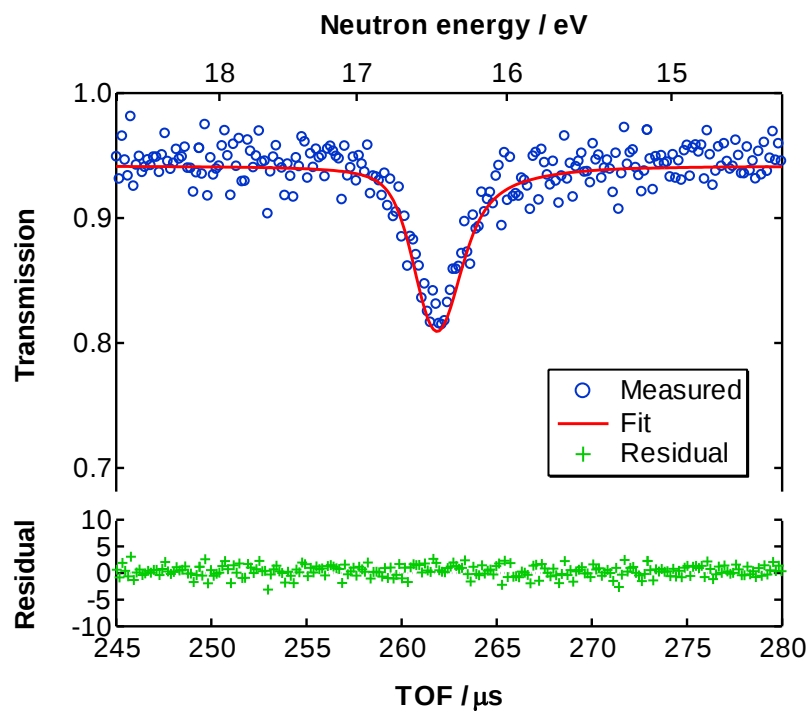


図 5.9 : ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング (試料厚さ 3.2 mm)。

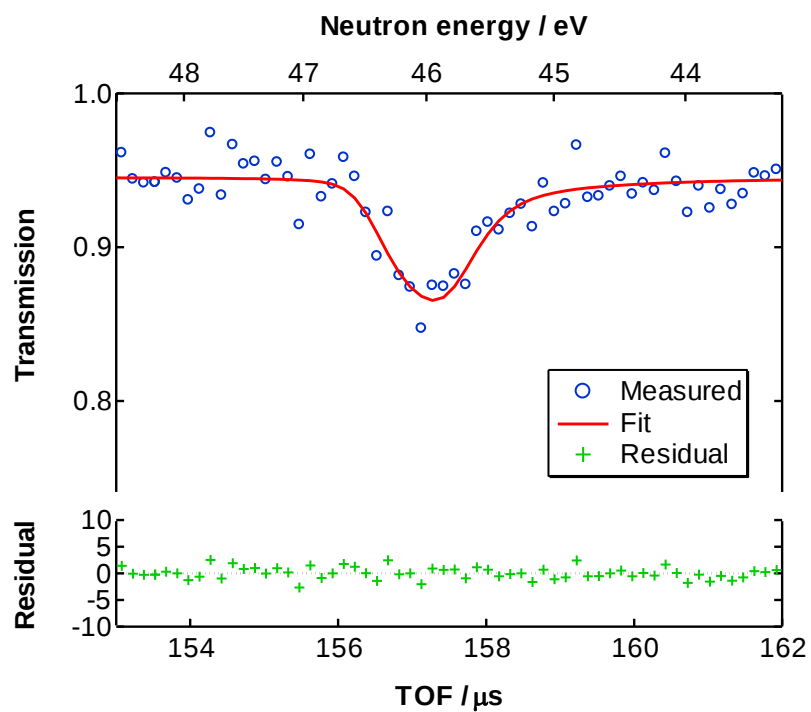


図 5.10 : ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対するフィッティング (試料厚さ 3.2 mm)。

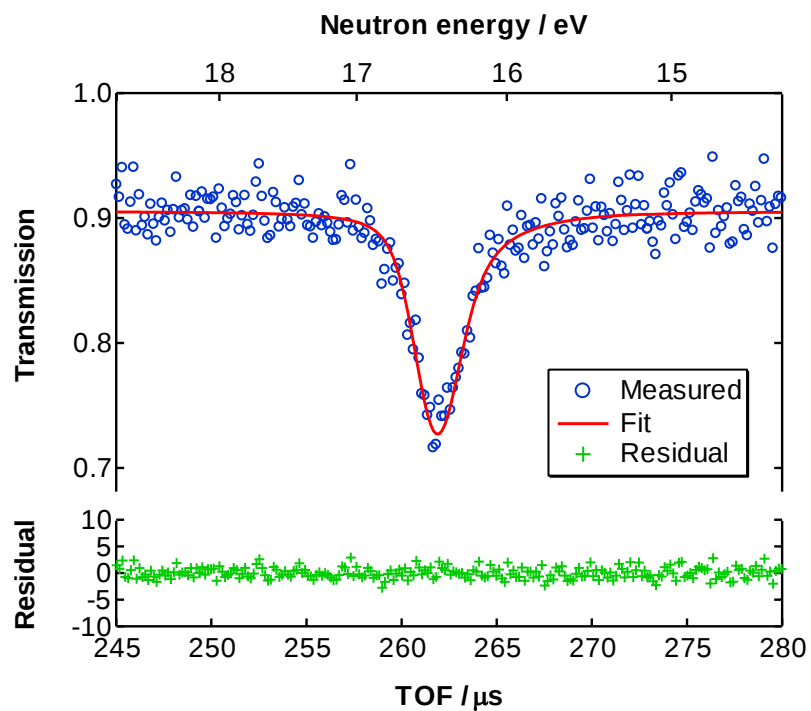


図 5.11 : ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴に対するフィッティング (試料厚さ 4.8 mm)。

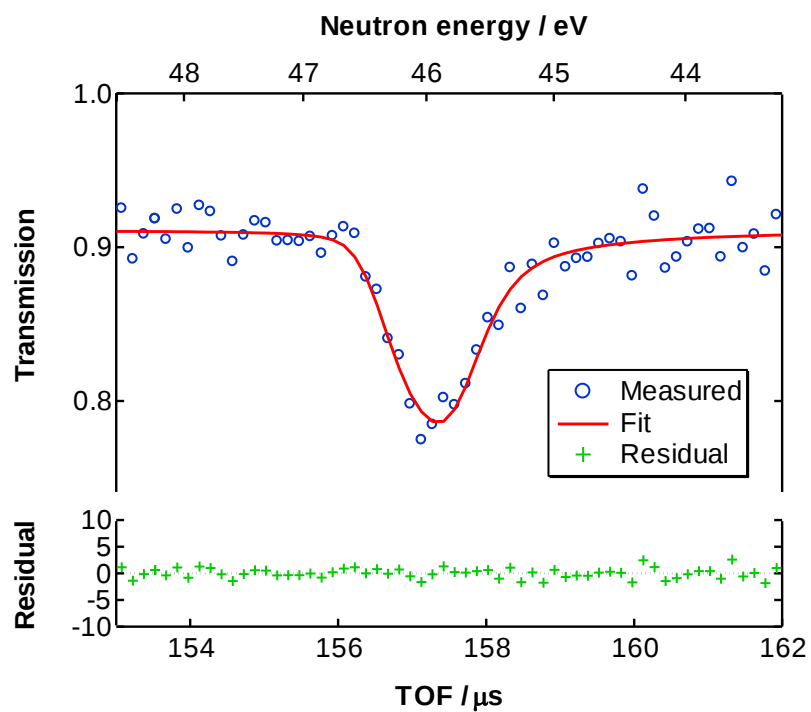


図 5.12 : ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴に対するフィッティング (試料厚さ 4.8 mm)。

表 5.2 : フィッティングにより求めた ^{107}Ag 及び ^{118}Sn の面密度。括弧内の値は予測される密度と求められた密度との比を表す。

Thickness [mm]	3.2	4.8
Expected area density of ^{107}Ag [$\times 10^{-4}$ atoms/barn]	2.29	3.43
Resonance energy [eV]	16.3	
Estimated area density of ^{107}Ag [$\times 10^{-4}$ atoms/barn]	1.04 ± 0.03 (0.45 ± 0.01)	1.51 ± 0.03 (0.44 ± 0.01)
Expected area density of ^{118}Sn [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	2.19	3.29
Resonance energy [eV]	45.75	
Estimated area density of ^{118}Sn [$\times 10^{-3}$ atoms/barn]	1.41 ± 0.06 (0.64 ± 0.03)	2.40 ± 0.08 (0.73 ± 0.02)

5.1.3.4 原子数密度イメージング

検出器の 픽セルごとの透過率スペクトルに対してフィッティングを行って原子数密度を求め、マッピングを行った。REFIT では試料の面密度に核種の組成比を掛けた値がその核種の面密度となる。ここでは、試料の面密度のパラメータは固定し、核種の組成比のパラメータをフィッティングパラメータとして扱っている。また、このフィッティングにおいて用いた共鳴パラメータや試料の温度は 5.1.3.3 で述べた通りである。ただし、1 픽セルでの統計量が少なかったため、 8×8 픽セルのカウント数を足し合わせて 1 픽セル分のデータとした。つまり、1 픽セルあたりの統計量は 64 倍に増加しているが、画像の分解能は $1/8$ に低下している。GEM 検出器の分解能は 0.8 mm であるから、このイメージングにおける 1 픽セルのサイズは 6.4 mm である。

図 5.13 に ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴を用いて求めた ^{107}Ag の面密度分布を示す。この画像は検出器から試料を見た状態となっている。ここで、x 方向の 1 픽セルから 3 픽セルまでは試料のセッティングや図 5.4 及び 5.5 に示したラジオグラフィの結果から、試料が写っていない領域であると判断しフィッティングは行っていない。求めた密度を $x: 2 \sim 15$ の範囲で積分してプロットしたものを図 5.14 に示す。また、同様に、図 5.15 に ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴を用いて求めた ^{118}Sn の面密度分布を、図 5.16 に密度の 1 次元分布を示す。それぞれの結果を見ると、 $x = 9$ 付近を境にして面密度が変化していることがわかる。図 5.4 及び 5.5 のラジオグラフィの結果では $x = 70$ 付近 (8 픽セルにまとめると $x = 8.75$) で密度が変化している様子が確認できており、フィッティングによるイメージングの結果と一致する。定量された密度に 픽セルごとの差があるのは、統計量が十分でないためである。また、外側の 픽セルにおいて密度がかなり多く見積もられている。検出面の外側の部分は中心部分に比べて印加電圧が低くなるため、ガス増幅が不十分であるために検出効率が下がる。そのため、外側の 픽セルは内側の 픽セルに比べて統計が悪く、その領域においてはうまくフィッティングが行われていないと考えられる。

各 픽セルの透過率スペクトルに対してスペクトルフィッティングを行うことで特定核種の面密度イメージングを行った。統計量の不足により 픽セルごとにばらつきがあり定量性は悪いものの、全体的な傾向としては密度差をイメージングすることができている。定量性を改善するためには、測定時間を延ばす、より検出効率・計数率の高い検出器で測定するなどして統計量を上げる必要がある。

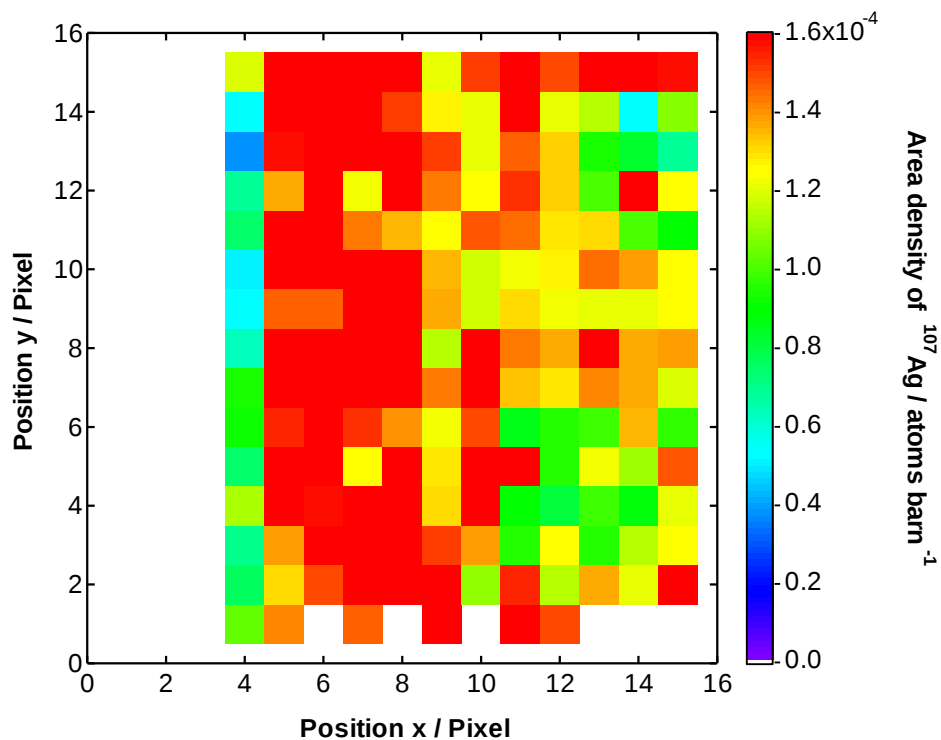


図 5.13 : ^{107}Ag の面密度分布。1 ピクセルのサイズは 6.4 mm である。

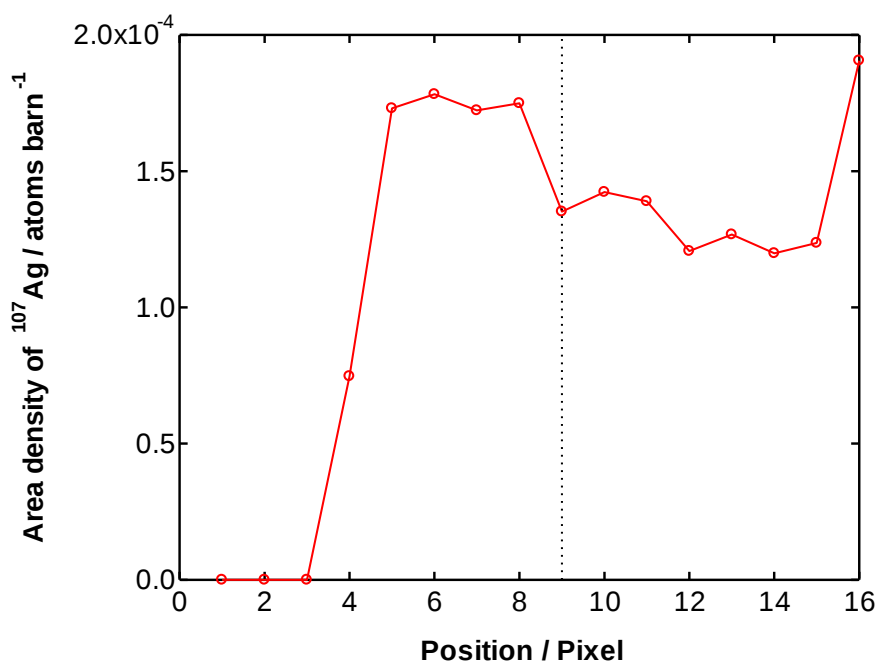


図 5.14 : ^{107}Ag の平均面密度の 1 次元分布。1 ピクセルのサイズは 6.4 mm である。

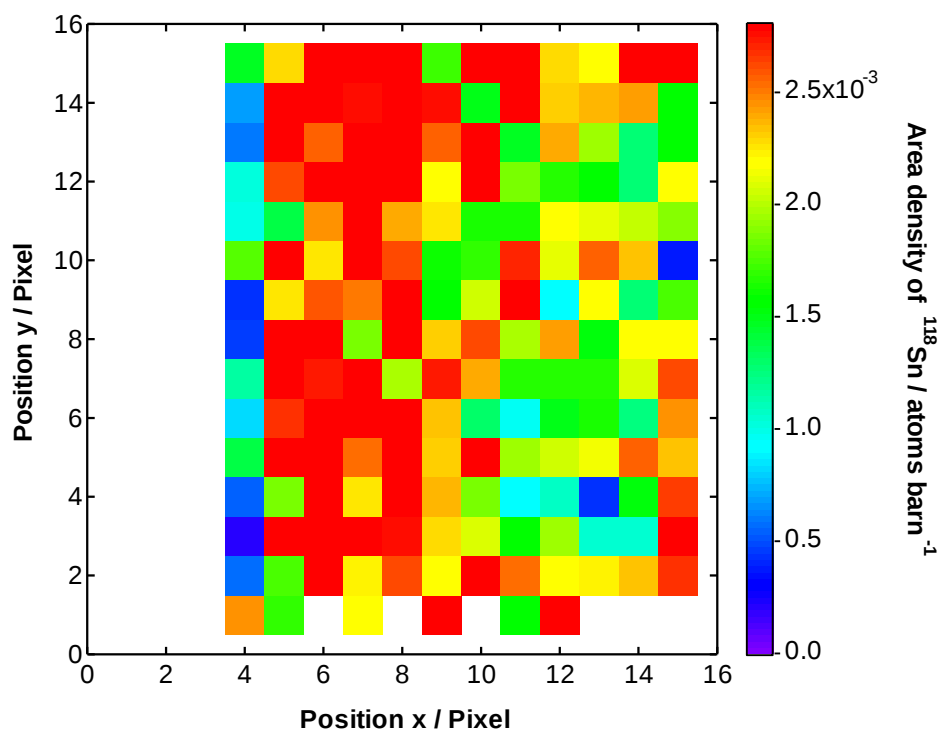


図 5.15 : ^{118}Sn の面密度分布。1 ピクセルのサイズは 6.4 mm である。

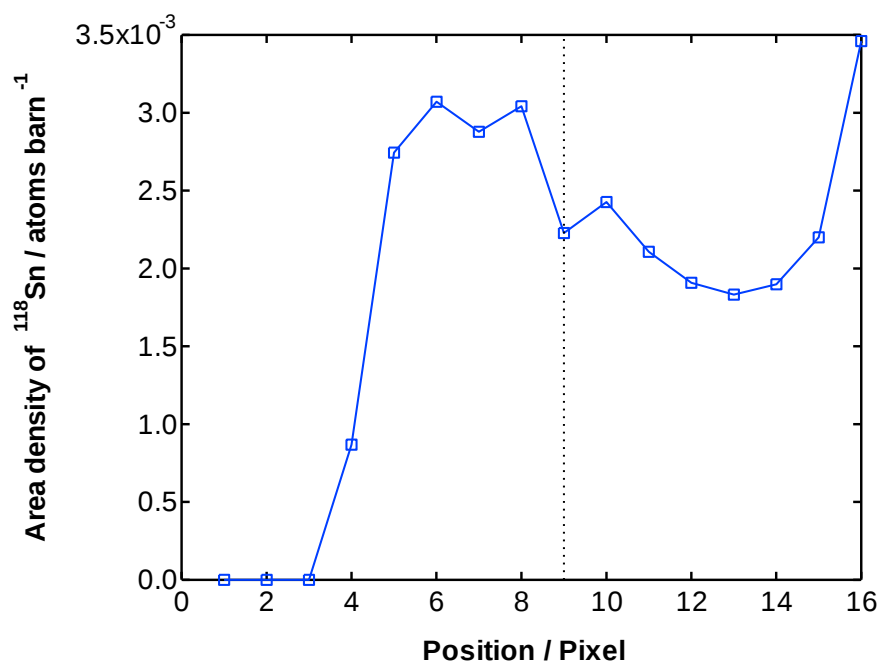


図 5.16 : ^{118}Sn の平均面密度の 1 次元分布。1 ピクセルのサイズは 6.4 mm である。

5.2 第5章のまとめ

原子数密度定量分析のために開発した解析システム及び実験手法を原子数密度イメージングへ適用し、その定量性を評価するために、J-PARC/MLF/BL10 NOBORUにおいて鉛フリーはんだに対して GEM 検出器を用いて透過型 N-RAS 実験を行った。解析システムを用いてピクセルごとの透過率スペクトルに対してフィッティングを行うことで原子数密度イメージングを行った。本実験で用いた鉛フリーはんだは銀、スズ及び銅を含む合金である。この鉛フリーはんだをアルミフレームにコイル状に巻きつけて試料とした。また、場所ごとに巻き数を変えることで実効厚さを変化させることで、イメージング用の試料としている。この実験では鉛フリーはんだの試料を検出器から 53 cm 離して測定することで散乱中性子による影響を低減している。

原子数密度イメージングを実施する手順としては、まず、検出器のピクセルと試料位置の相対関係を把握するためにラジオグラフィを行う。中性子エネルギー 3 eV 以上の領域における透過率のマッピング及び ^{107}Ag の 16.3 eV 共鳴付近の透過率のマッピングによりラジオグラフィ画像を取得し、検出器のピクセルと試料位置の相対関係を明らかにした。

各ピクセルにおける透過率スペクトルに対してフィッティングを行う前に、同じ試料厚さの領域における平均的な透過率スペクトルに対してフィッティングを行い、原子数密度を求める。 ^{107}Ag による 16.3 eV 共鳴と ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴による共鳴ディップに対してスペクトルフィッティングを行ったところ、それぞれの求められた原子数密度は予測される原子数密度に対して半分程度の値となった。これは鉛フリーはんだを巻く際にできる隙間及び伸びによって、予測される実効厚さよりも本来の実効厚さが薄くなったためである。

各ピクセルにおける透過率スペクトルに対してスペクトルフィッティングを行い、原子数密度イメージングを行った。この時、1 ピクセル分のカウント数では統計が少なかったため、 8×8 ピクセルをまとめて 1 つのピクセルとして扱っている。つまり、1 ピクセルにおける統計量は 64 倍に増えているが、画像の解像度は $1/8$ の 6.4 mm に低下している。先に解析した ^{107}Ag による 16.3 eV 共鳴と ^{118}Sn の 45.75 eV 共鳴を利用して各ピクセルにおける原子数密度分布を求めた。その結果、ピクセルごとに推定値にばらつきはあるものの、全体の傾向としては試料の実効厚さの違いをイメージングすることができた。より定量的なイメージングを行うためには、統計を上げた測定が必要である。

第6章 結論

中性子共鳴吸収分光法 **N-RAS** は共鳴現象を中性子の飛行時間法を用いて観測する手法であり、得られた共鳴スペクトルを解析することで物質内部の核種同定・密度分析・温度測定を非破壊・非接触で行うことが可能である。**N-RAS** は共鳴吸収時に発生する即発 γ 線を計数する即発 γ 線型 **N-RAS** と中性子の透過率測定を行う透過型 **N-RAS** がある。このうち、透過型 **N-RAS** は2次元画像検出器と組み合わせることで効率的に核種イメージングを行うことができる。他の原子数密度分析手法と比較し、大面積でバルク材内部のイメージングを行うことができることが透過型 **N-RAS** の優位性である。この透過型 **N-RAS** を利用した応用研究として考古学資料・文化財に含まれる元素のイメージングや核燃料や燃料デブリに含まれる核燃料物質の同定・定量、または各種工業製品に対する温度測定・イメージングなどがあり、透過型 **N-RAS** は様々な分野への応用が期待されている。そのような分野における需要に対し、**N-RAS** による非破壊・非接触のバルク材内部における核種・温度分布のイメージングを定量的に実施することができれば、各分野における研究の発展・飛躍に資することができる。**N-RAS** による核種定量イメージングのためには原子数密度の定量化が不可欠である。そのためには **N-RAS** により測定される共鳴スペクトルのスペクトルフィッティングによる解析が必要であるが、共鳴スペクトルは断面積から計算されるスペクトルに分解能関数の一種であるパルス関数が畳み込まれた形で観測される。イメージングを目的とした透過型 **N-RAS** に関するこれまでの研究では、このパルス関数を考慮した定量的な解析によるイメージングが行われていなかった。本研究では、中性子イメージングが実施可能な **J-PARC/MLF/BL10 NOBORU** や北海道大学 **HUNS** などのパルス中性子源において透過型 **N-RAS** による定量的な原子数密度分析を行うことができる解析手法・実験手法の開発を目的とした。この **N-RAS** を用いた核種定量分析手法の確立により、中性子イメージングの分野に対して貢献することができる。

第2章では、共鳴現象を説明する際に用いられる複合核モデルとその記述を行う **R-Matrix** 理論及び **Doppler** 効果のモデル化についてまとめた。**R-Matrix** 及びその近似法である **Reich-Moore** 近似は共鳴断面積の表式を行う方法として一般的に用いられており、共鳴解析においては非常に重要な理論である。また、原子核の熱運動に起因する **Doppler** 効果のモデルとして理想ガスモデルを紹介し、その具体的な表式及び計算例について示した。本研究ではこの第2章で示した **R-Matrix** の **Reich-Moore** 近似に基づく共鳴解析コードである **REFIT** を用いて透過型 **N-RAS** によって得られた共鳴スペクトルの解析を行っている。

第3章では、**J-PARC/MLF/BL10 NOBORU** 及び北海道大学 **45 MeV** 電子線形加速器の中性子源 **HUNS** において定量的な **N-RAS** 解析を実施するために、それぞれの施設のパ

パルス関数をモンテカルロシミュレーションで求めた結果及び、それらの共鳴解析コード REFIT への実装について述べた。NOBORU における 1 eV から 10 keV の範囲のパルス関数を MCNP 及び PHITS を用いたモンテカルロシミュレーションにより計算し、その計算値に対していくつかの既存の関数を用いてフィッティングを行い最適な関数を求めた。その結果、NOBORU のパルス関数を再現する関数として、Cole-Windsor 関数が最適であることがわかった。また、パルス関数のパラメータのエネルギー依存性を調べたところ、エネルギーに対して滑らかに変化するため、各パラメータはエネルギーを変数とした関数で記述できることがわかった。したがって、モンテカルロシミュレーション計算により、NOBORU の 1 eV から 10 keV の範囲のパルス関数を Cole-Windsor 関数を用いて任意のエネルギーで再現することが可能となった。これらの結果の妥当性を確認するため、NOBORU において即発 γ 線型 N-RAS 実験を行い、実験値から抽出されたパルス関数とシミュレーションの結果を比較した。この実験は J-PARC 加速器がダブルバンチ運転の時とシングルバンチ運転の時の両方で行ったが、どちらの実験においてもその傾向は誤差の範囲で一致していることが確認できた。HUNS のパルス関数についても同様にモンテカルロシミュレーションによるパルス関数の導出を行い、Cole-Windsor 関数を用いて任意のエネルギーでパルス関数を再現できるようになった。これらの結果により得られたパルス関数を REFIT コードのサブルーチンを改造することで実装し、NOBORU 及び HUNS で測定される共鳴スペクトルの計算を可能にした。また、REFIT のオリジナルの機能を利用することで、J-PARC 加速器に特有の陽子ビームのダブルバンチを考慮した共鳴スペクトルの計算を行うことを可能にした。なお、ここで開発した解析システムは即発 γ 線型 N-RAS に関する計算も可能である。デモンストレーション計算として、いくつか想定されるような試料についてその共鳴スペクトルの計算を行ったところ、NOBORU では 100 eV 前後のエネルギーからダブルバンチの影響により共鳴ピークが分離され始めることがわかった。また、HUNS における共鳴スペクトルの計算も行い、電子ビームのパルス幅に対する測定可能な共鳴エネルギーの上限に関する評価を行った。

第4章では、実験手法の改善及び第3章で説明した共鳴スペクトルの解析システムを利用した原子数密度分析について説明した。原子数密度定量評価のための実験手法の改善策として、散乱中性子の影響を低減するための試料と検出器の距離を離れた測定及び Black Resonance (BR) によるバックグラウンド評価の導入を検討した。まず、試料からの散乱が少ない場合として、10 μm 厚 Ta 箔に対する透過型 N-RAS 実験を NOBORU において行い、得られた共鳴ディップに対して REFIT による解析を行った。Ta の 4.28 eV 及び 10.36 eV 共鳴に対する解析の結果、原子数密度を誤差 1%程度で求めることに成功した。次に、試料からの散乱が無視できない場合として、1 mm 厚の Ag 板及び Cu 板を試料とした原子数密度分析について調べた。モンテカルロシミュレーションにより、試料と検出器の距離を変化させて透過率のシミュレーションを行い、20 cm 以上離せば試

料からの散乱中性子の影響に起因する透過率の変化が見られなくなることがわかった。シミュレーションで求めたこの体系で NOBORU において透過型 N-RAS 実験を行い、Ta と同様に原子数密度分析を行った。その結果、エネルギー100 eV 以下の共鳴に対するフィッティングでは、誤差 1%程度で原子数密度を求めることができた。一方、共鳴エネルギーが 100 eV 以上になると、誤差が 5%程度に増加した。これは陽子パルスのダブルバンチの誤差が原因であると考えられ、ダブルバンチによる共鳴ピークの分離が現れ始める 100 eV 以上でこの影響が顕著になるためである。また、より厚い Ag 板 (2 mm) と Cu 板 (1.5、2、3、5 mm) に対する原子数密度分析も同様にを行い、この場合も 100 eV を境に誤差が増加することを確認した。また、NOBORU で行うようなイメージング実験において、BR によるバックグランド評価及びそれによる透過率補正の有用性を調べた。BR フィルターとして Mn、W、Ta、Cd を使用した。この BR フィルターを用いてバックグランド測定を行い、1 mm 厚 Ag 板及び Cu 板の透過率補正を試みた。BR フィルターによるバックグランド測定から、バックグランド曲線を作成して透過率の補正を行った。補正した透過率に対し REFIT による解析を行ったところ、補正していない透過率に対する解析結果と比較して Ag 板に関しては 0.1 ~ 0.3%、Cu 板に関しては 2%程度原子数密度の定量性が改善した。しかし、これらの値はフィッティングによる誤差の範囲内であり、イメージングを目指した体系では BR による透過率補正は有用であるとは言えない。

第5章では、これまでに説明してきた解析システムや実験手法を実際に原子数密度イメージングに応用した結果について述べた。試料として複数の核種を含む鉛フリーはんだを選択し、それをアルミフレームに巻きつけて厚さの異なる領域を作り、それぞれの領域における特定核種の密度を透過型 N-RAS によるイメージングで再現することを試みた。透過型 N-RAS 実験を NOBORU において行い、解析システムによるスペクトルフィッティングに基づく原子数密度イメージングを実施した。原子数密度イメージングの手順として、まず、ラジオグラフィにより、試料位置と検出器のピクセルの対応関係を調べ、次に広い範囲における透過率に対するフィッティング、最後に、ピクセルごとのスペクトルに対するフィッティングを行って原子数密度のマッピングを行った。広い範囲における透過率に対するフィッティングでは、試料に含まれる Ag 及び Sn の原子数密度を求めたが、それぞれの原子数密度は想定される値よりも低く見積もられた。これは試料を巻く際に柔らかいはんだが伸びたために実効厚さが減少したためである。各ピクセルにおける透過率スペクトルに対してフィッティングを行い、Ag 及び Sn の原子数密度を求めてマッピングを行った。その結果、ピクセルごとにばらつきはあるものの、全体の傾向としては試料の実効厚さの違いをイメージングすることに成功した。

以上のように、透過型 N-RAS を用いた原子数密度・温度イメージングに向けた解析システムの開発を行い、また、定量化のための実験手法の開発・検討を行った。J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において、透過型 N-RAS によるスペクトルフィッティン

第 6 章 結論

グに基づいた原子数密度分析に成功した。また、本研究で開発した解析システム及び実験手法を原子数密度分布のイメージングに適用し、その可能性や課題を明らかにした。

付録 HUNS における核種・温度イメージング

透過型 N-RAS を用いれば試料中の原子数密度のイメージングのみならず、Doppler 幅の解析を利用した温度のイメージングも可能である。付録では、HUNS において行った原子数密度及び温度イメージングについて述べる。試料として二重円筒状の容器に酸化銀及び酸化インジウムの粉末を封入したものを用意し、HUNS において 2 次元画像検出器を用いた透過率測定を行った。また、試料の中心に挿入したヒーターで試料に温度勾配を与え、試料内部に温度分布が存在する状態についても透過率測定を行った。測定した共鳴ディップに対し REFIT を用いて解析して原子数密度分布及び温度分布を求め、さらに Computed Tomography により画像再構成を行った。また、測定結果に対するパルス関数の影響に関する考察を行った。

A.1 背景と目的

第 1 章で述べたように、透過型 N-RAS を用いて試料中の原子数密度のみならず温度のイメージングも可能である。過去に HUNS において行われた原子数密度・温度イメージング[4]では、試料内部の温度分布は取得できたものの、原子数密度の値は 1/3 に過小評価されてしまうという結果となった。この研究における問題点を以下に示す。

- ・ あらかじめ求められたパルス関数を用いずに、測定データに適合するようにパルス関数のパラメータを決めている。つまり、パルス幅による共鳴ディップの広がり Doppler 幅による広がりを区別して解析を行っていないことになるため、温度の絶対値が正しい値であるとはいえない。
- ・ 検出器として 64ch ^6Li グラスシンチレーション検出器[28]を用いているが、 γ 線感度が高いために共鳴吸収時の即発 γ 線を計数してしまう。そのため、見かけの透過率が増加してしまい、原子数密度を過小評価してしまう。
- ・ 試料と検出器の距離が近いために散乱中性子を計数してしまう。上記の問題と同様に、密度の過小評価に繋がる。

これらの問題点（特に 2 つ目と 3 つ目）が存在するため、原子数密度の過小評価が起きていると考えられる。また、温度分布に関しても第 3 章で説明した解析システムを用いて再評価する必要がある。

HUNS において定量的な原子数密度及び温度イメージングを実施するため、 γ 線に不感な GEM 検出器を用いて、試料と検出器の距離を離して透過率測定を行った。次に、本研究で開発した解析システムを用いて測定データを解析し、原子数密度分布及び温度分布を求めた。また、CT (Computed Tomography) による画像再構成を行った。

A.2 実験

A.2.1 実験概要

実験は2014年1月に北海道大学工学部 45 MeV 電子線形加速器施設 (以下北大 LINAC) のセンタービームラインに設置された熱中性子源 (以下 HUNS) において行った。表 A.1 に加速器の運転条件を示す。検出器は 4.4.3.2 で説明した GEM 検出器を用いた。試料の詳細は次項で示す。

表 A.1 : 原子数密度・温度イメージング実験における北大 LINAC の運転条件。

Experimental date	2014/1/20 - 24
Beam-line	Center
Acceleration energy	34 MeV
Beam current	35 μ A
Repetition	50 pps
Beam power	1 kW
Electron pulse width	3 μ s

A.2.2 試料

試料は Al 製の二重円筒状の容器に酸化銀 (Ag_2O)、酸化インジウム (In_2O_3) 及びアルミナ (Al_2O_3) の粉末を封入したものである。酸化銀に含まれる Ag 及び酸化インジウムに含まれる In が数 eV の共鳴を有しており、それらをインジケータとして利用する (^{109}Ag : 5.19 eV、 ^{115}In : 1.457 eV)。また、アルミナは数 eV のエネルギー領域で共鳴を持たないため、嵩を増すために用いている。図 A.1 に試料の概観及び断面図を示す。二重円筒の内側には酸化銀・酸化インジウム・アルミナを入れているが、外側には酸化インジウムとアルミナのみを入れている。また、内側と外側で共鳴核種の密度は変えてある。試料内部の原子数密度を表 A.2 に示す。これらの密度は過去の研究[4]に用いられたものと近い値を用いている。このような密度 (つまりは核種量) にした理由として S/N 比を向上させる目的があり、試料厚さが最も厚くなる位置において共鳴位置における透過率が 10% 近くになるような値である。

試料の中心に 0.25 mm 径のニクロム線ヒーターを挿入している。このヒーターを加熱することで試料に温度勾配を持たせる。ヒーターに電流を流して加熱をするため、試料の蓋とヒーターが接する箇所には絶縁材を挿入している。このヒーターを用いて試料を加熱するシステムについては後述する。

表 A.2 : 試料内部の原子数密度。

		Inner	Outer
Density of powder [g/cm ³]	In ₂ O ₃	19.0×10^{-3}	8.65×10^{-3}
	Ag ₂ O	48.7×10^{-3}	0
	Al ₂ O ₃	1.35	1.23
Density of nuclide [$\times 10^{19}$ atoms/cm ³]	¹¹⁵ In	7.88	3.59
	¹⁰⁹ Ag	12.2	0

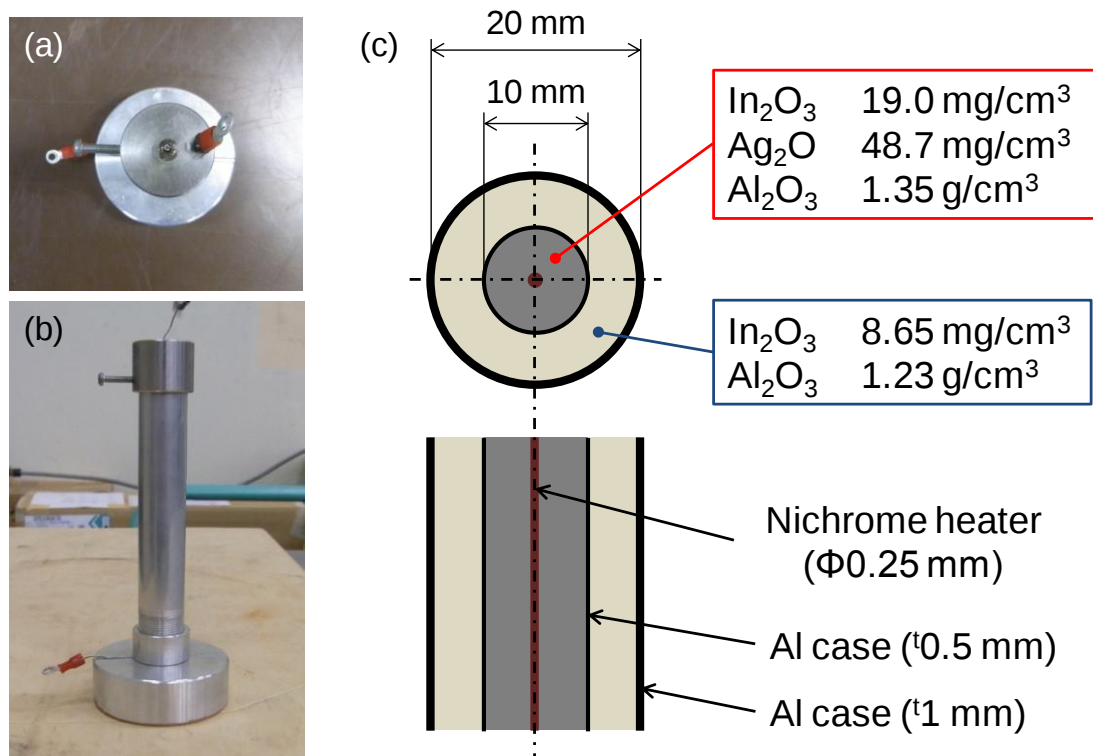


図 A.1 : 二重円筒試料の外観と断面図。(a) : 上から見た写真、(b) : 横から見た写真、(c) : 断面図。ヒーターの両端に電流を与えるための端子が付いている。

A.2.3 温度コントロールシステム

試料の中心に通したニクロム線ヒーターに電流を流すことで加熱し、試料内部に温度勾配を持たせている。本実験では直流電源をヒーターに接続し、一定の電流を流し続けることで試料温度を保った。また、ヒーター及び試料の外側に熱電対を付けて実験中の温度をモニタリングし続けた。図 A.2 に試料温度コントロールシステムの概要を示す。試料上部を覆っているのはガラスウールで、上部から熱が逃げるのを防ぐために用いている。また、試料中心部と外側の温度差を大きくするために、試料にクーラーで風を当

ている。ヒーターに流した電圧は 4 V で、測定中の平均温度は試料中心で 326.9 °C、試料の外側で 50.5 °Cであった。

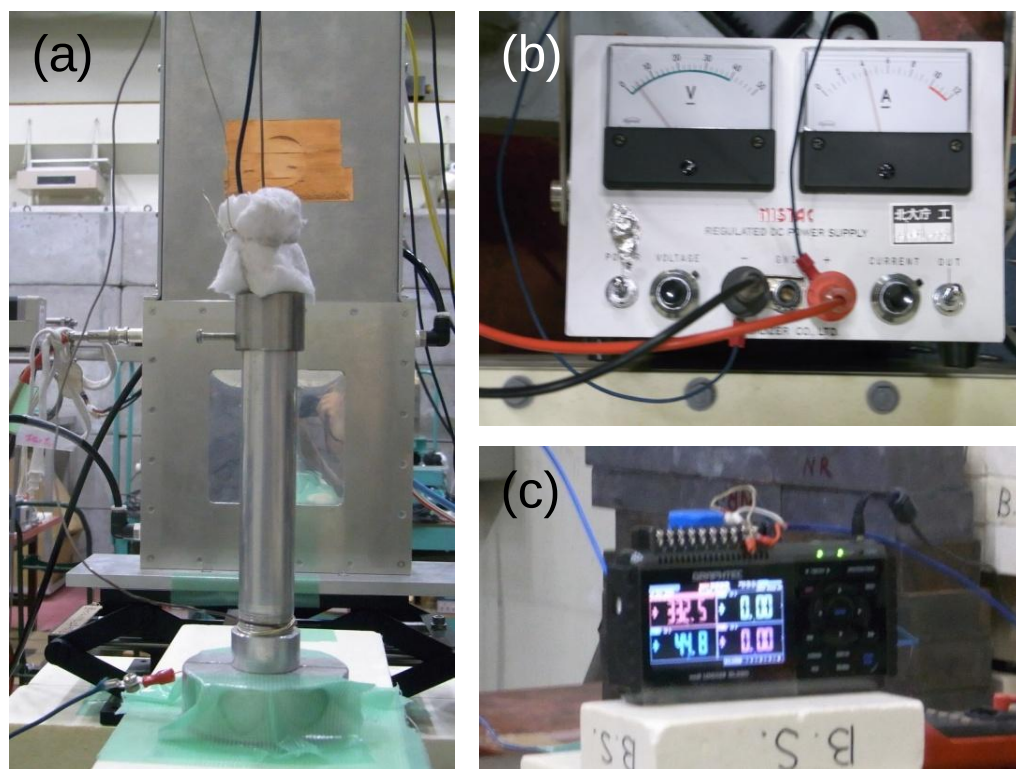


図 A.2: 試料温度コントロールシステムの概要。(a): ヒーター及び熱電対が付けられた試料、(b): 直流電源、(c): 温度用データロガー。

A.2.4 実験体系

図 A.3 に実験体系の概略図を、図 A.4 に試料周りの写真を示す。TMRA は 3.4 にて説明したものをを用いている。検出器は減速材から 7.25 m の位置に設置し、試料は検出器から 38 cm 離して設置した。飛行管は中性子の空気散乱による減衰を防ぐためにロータリーポンプで真空を引いている。飛行管出口はフレームオーバーラップを防ぐために Cd フィルターで覆っており、ビームコリメーションのために B₄C レジン及び鉛ブロックが置かれている。この B₄C レジンブロックは検出器の検出面積に合わせて 10 cm 角のビームが通るように積んである。試料は測定中に動かすことが可能なように CT ステージの上に載せている。

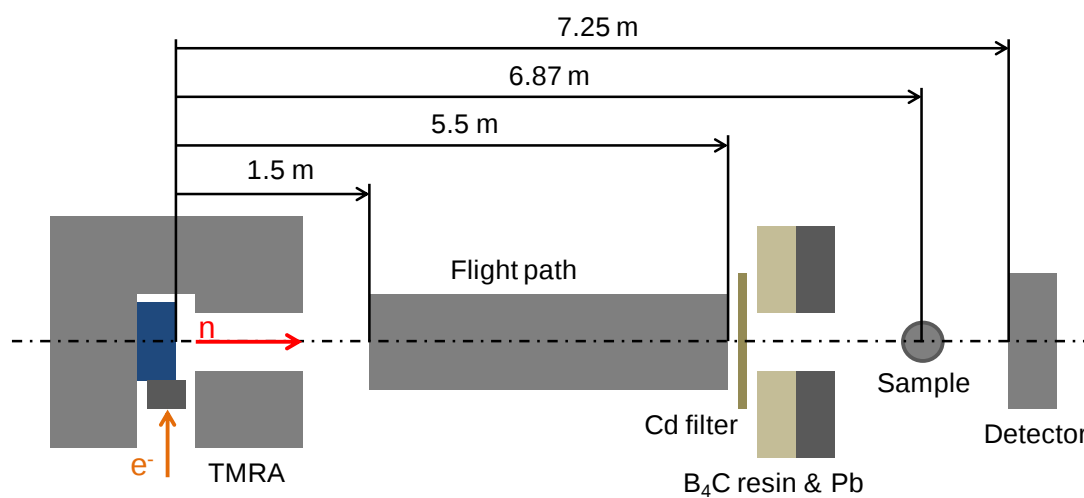


図 A.3 : HUNS における原子数密度・温度イメージング実験の実験体系。



図 A.4 : 二重円筒試料と検出器の写真。この写真は図 A.3 とビームの方向を揃えるために左右反転させている。

A.3 解析

A.3.1 ラジオグラフィ

試料の位置と検出器の 픽セルの対応を確認するため、まず共鳴領域におけるラジオグラフィを行った。図 A.5 に試料のラジオグラフィ画像を示す。このラジオグラフィ画像は ^{115}In の 1.457 eV 共鳴が含まれるエネルギー範囲 (1.2 ~ 1.8 eV) での透過率の平均値によるものである。このときヒーターには電流を流していない (試料に温度勾配が無い)。また、透過率を求める際の規格化はそれぞれの測定時間で行っている。x : 60 ~ 90 の辺りの透過率が低くなっており、ここが試料の写っている範囲である。また、この画像から y : 18 ~ 108 の領域に粉末が均一に入っていると判断した。つまり、この領域の範囲では同じ x 列に存在する 픽セル同士における透過率スペクトルは同じ値となる。本実験では、統計を稼ぐためにこの y の範囲の 픽セルを縦に一列分足して 1 つのスペクトルとした (つまり、1 つの透過率スペクトルは 91 픽セル分の統計量を有することになる)。

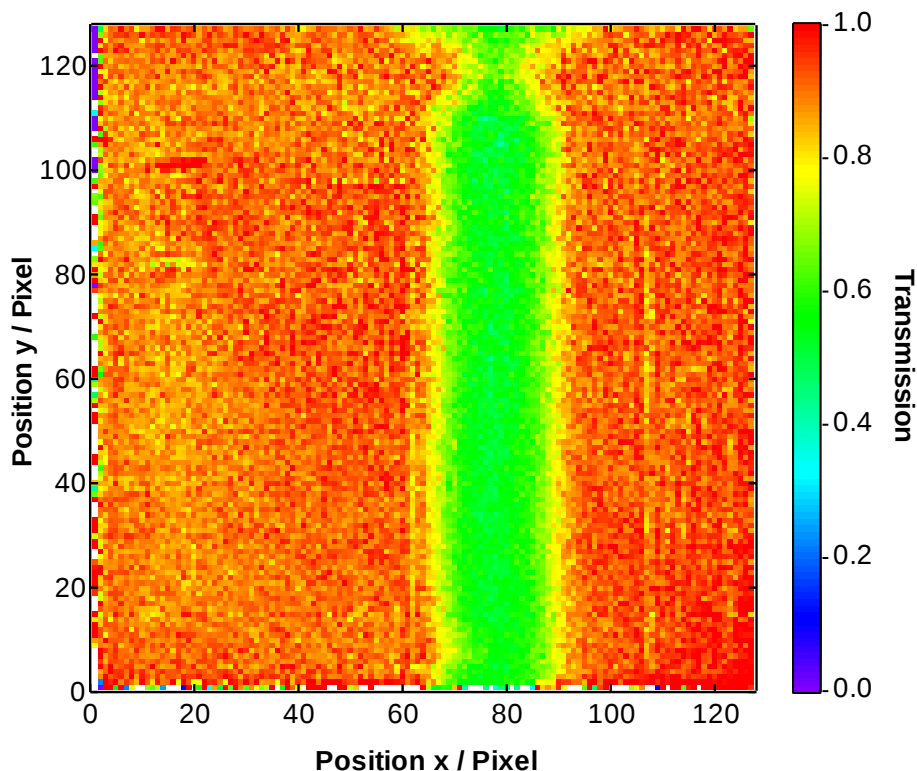


図 A.5 : 二重円筒試料のラジオグラフィ。

A.3.2 原子数密度分析

ラジオグラフィの結果から、試料の各位置における透過率スペクトルを求め、原子数密度分析及びイメージングを行った。なお、検出器の検出効率に変動が見られたため、透過率スペクトルを求める際の規格化は試料が無い領域（ $x: 8 \sim 48$, $y: 8 \sim 68$ ）におけるカウント数を用いている。

A.3.2.1 試料中心部分における原子数密度分析

まず、試料の中心部分における透過率スペクトルから ^{115}In 及び ^{109}Ag の原子数密度を求めた。 ^{115}In の 1.457 eV 共鳴及び ^{109}Ag の 5.19 eV 共鳴による共鳴ディップに対して REFIT によるフィッティングを行い、それぞれの原子数密度を求める。図 A.6 に透過率スペクトルとフィッティング曲線を示す。TOF のビン幅は 150 ns である。このとき、アルミナや酸化物に含まれる Al や O はこのエネルギー領域では共鳴を持たず、断面積がほぼ一定であるため、REFIT のパラメータである規格化のパラメータを用いてベースライン（共鳴の無い領域）を合わせている。また、試料厚さ（単位：atoms/barn）、それぞれの核種の組成比をフィッティングパラメータとして扱っている。共鳴パラメータは JENDL-4.0 の値を用いた。フィッティングの結果、求められた核種の面密度は ^{115}In が $(5.11 \pm 0.51) \times 10^{-5}$ atoms/barn、 ^{109}Ag は $(4.87 \pm 0.55) \times 10^{-5}$ atoms/barn であった。実際の面密度はそれぞれ ^{115}In が 9.97×10^{-5} atoms/barn、 ^{109}Ag が 11.0×10^{-5} atoms/barn である。解析により求められた密度は実際の密度のおおよそ 1/2 となった。

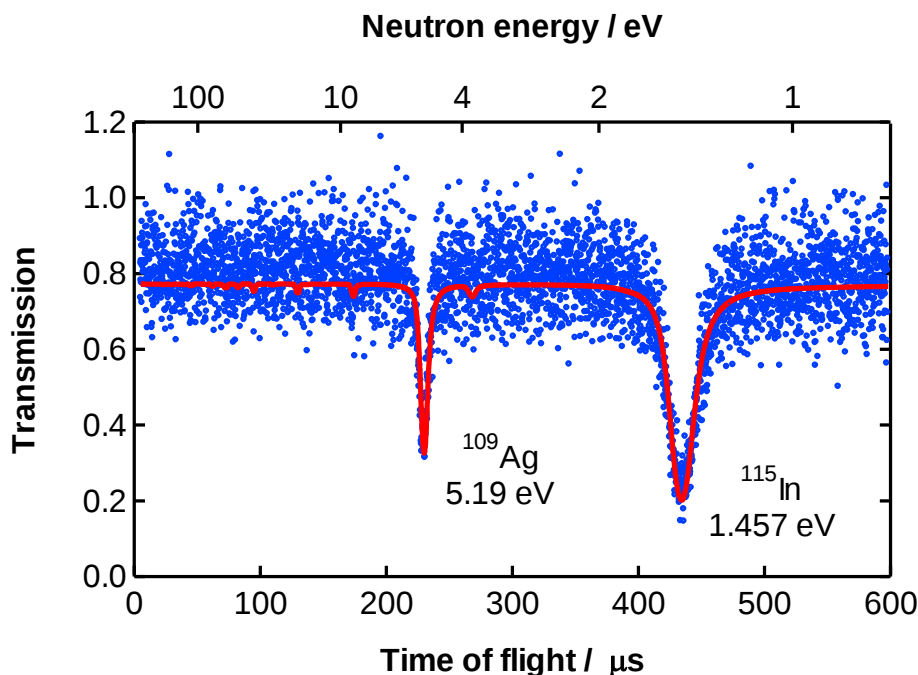


図 A.6 : 試料中心部分における透過率スペクトルとフィッティング曲線（試料：温度勾配なし）。

A.3.2.2 原子数密度イメージング

各位置における ^{115}In の核種の面密度を求め、プロットしたものを図 A.7 に示す。図 A.7 には、モンテカルロシミュレーションコード PHITS によって求めた透過率スペクトルに対する解析から求めた分布も併せて示している。また、これらの分布はスムージングをかけた結果である。シミュレーションによる結果は実際の密度の絶対値まで求められている。しかし、実験による結果では、分布の傾向はおおよそ再現できているが、絶対値が 1/2 程度まで過小評価されている。また、シミュレーションによる結果と実験による結果の双方において、試料が存在しない領域において密度が 0 ではないのはビーム平行度が低いことに起因する画像のボケであると考えられる。第 5 章でも述べた通り、画像の不鮮明度 U_g は次の式で表される[105]。

$$U_g = \frac{l/(L/D)}{(1-l/L)} \quad (\text{A-1})$$

ここで、 L はダイヤフラムから検出器までの距離、 D はダイヤフラムの開口寸法（つまりコリメータ径）、 l は試料と検出器間の距離である。本実験の場合、 $L = 725 \text{ cm}$ 、 $D = 10 \text{ cm}$ 、 $l = 38 \text{ cm}$ であり、画像の不鮮明さは 5.5 mm となる。 $\pm 12 \text{ mm}$ よりも外の領域に対しては統計量の問題でフィッティングを行っていないため、はっきりとは分らないが、試料の存在する領域よりも数 mm 外側まで分布が伸びている。この画像の「にじみ」及び全体的な分布の鈍りはビーム発散によるものと考えるのが妥当である。

透過法によって得られる密度情報とは、試料の透過方向に平均された密度、つまり面密度（原子数を面積で割った値）となる。核種の局所的な密度（原子数を体積で割った値）を求めるために、図 A.7 に示す密度分布を最尤推定-期待値最大化法 ML-EM (Maximum Likelihood-Expectation Maximization) によって再構成した。なお、本実験で使用した試料は点対称であるため、すべての方向からの投影データは等しい。そのため、投影方向を 16 方向とし、そのすべて方向に対して同じ投影データを用いて再構成を行った。図 A.8 に ^{115}In の原子数密度を画像再構成した結果を示す。なお、スムージングをかけた面密度分布に対して画像再構成を行っている。A.8 の左図は試料を上から見た様子となり、右図は $y = 0$ の面の断面図となる。面密度の分布と同様に、実験で求めた密度の絶対値は実際の値の 1/2 となり、ビーム発散によるボケによって鈍った密度分布となっている。

同様に、図 A.9 に ^{109}Ag の面密度分布を、図 A.10 に ^{109}Ag の原子数密度を画像再構成した結果を示す。この場合も面密度分布はスムージングをかけており、再構成もスムージングをかけた面密度分布に対して行っている。Ag の場合も In と同様に密度を過小評価している。また、ビーム発散による画像のボケが確認できる。

これらの過小評価の原因はいくつか考えられる。まずは、試料からの散乱中性子による見かけの透過率の増加がある。しかし、試料は検出器から離して設置しており、シミュレーションによる結果では大きな過小評価は起きていない。また、GEM 検出器は γ

線感度が低いために、試料からの即発 γ 線による影響もほとんどないと考えられる。核データの誤差による影響も原因として一般的には考えられるが、 ^{115}In だけではなく ^{109}Ag の場合にも密度が 1/2 程度に過小評価されている。また、第 4 章の結果などから Ag の核データが実際の値と大きく異なることは考えられない。そのため、核データの誤差が原因であるとは考えづらい。最後に、パルス関数の誤差が考えられる。このエネルギー領域ではパルス関数による共鳴ディップへの影響は小さいため、密度を 1/2 にまで減少するほどの効果があるかは分からないが、検討する余地がある。温度測定の結果についての議論と併せて、後ほどパルス関数の影響について議論してゆく。

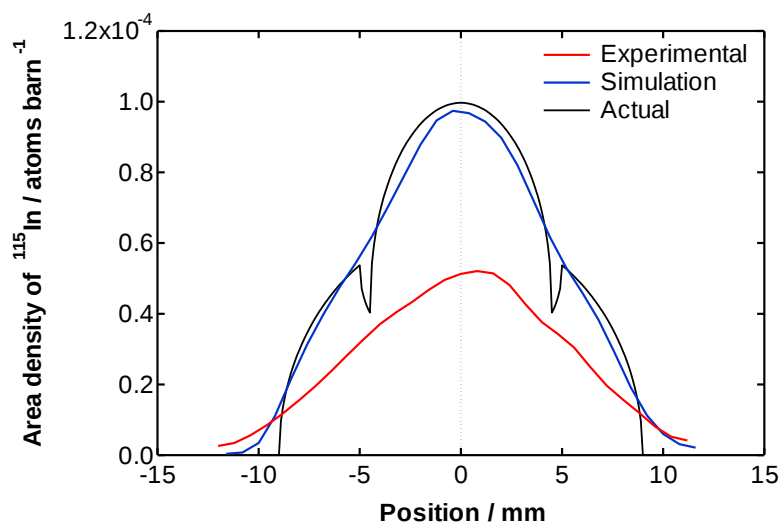


図 A.7 : ^{115}In の核種の面密度分布。

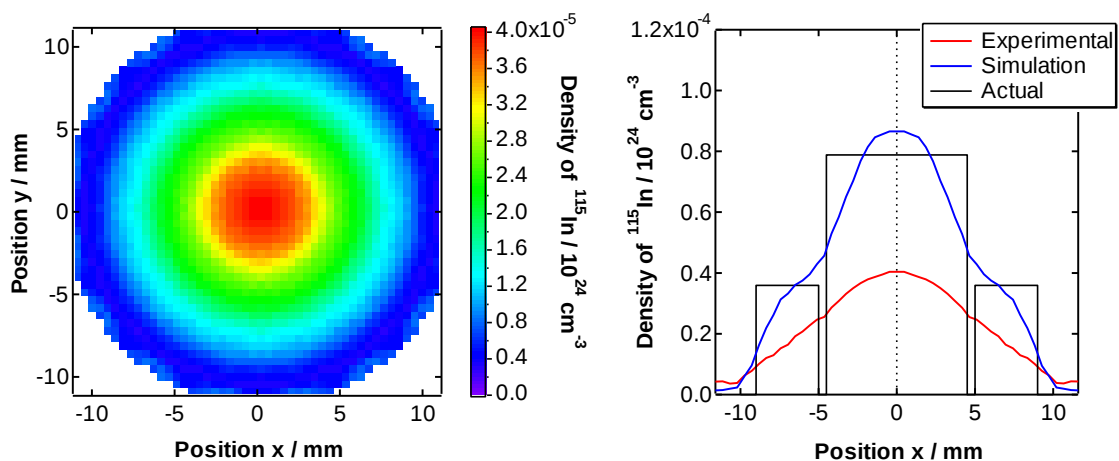


図 A.8 : ^{115}In の原子数密度の CT 再構成画像。右図は中心部分の断面を表している。

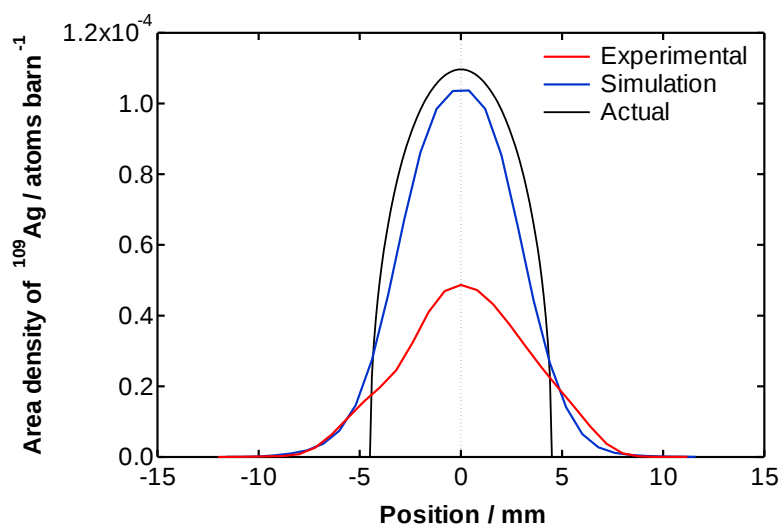


図 A.9 : ^{109}Ag の核種の面密度分布。

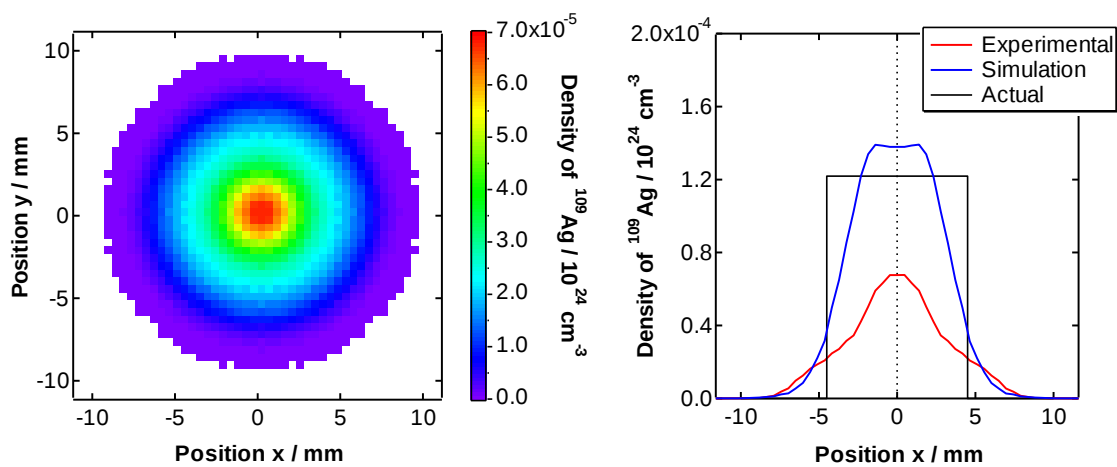


図 A.10 : ^{109}Ag の原子数密度の CT 再構成画像。右図は中心部分の断面を表している。

A.3.3 温度測定

試料に温度勾配を与えた場合における透過率スペクトルを求め、共鳴ディップに関する Doppler 拡がりの解析を行うことで温度測定及びイメージングを行った。なお、規格化の方法は A.3.2 で述べた方法と同じである。

A.3.3.1 試料中心部分における温度測定

密度分析の場合と同様に、まずは試料の中心部分における透過率スペクトルの解析を行い、温度を求めた。実験中の試料中心部分の温度は 326.9°C であるが、観測される温度は試料内の温度をビーム透過方向に平均した値となる。フィッティングの初期値を決めるために、計算からこの平均温度を推定する。中心から距離 r の位置にある温度 $T(r)$ は次の式で近似的に表される。

$$T(r) = T_1 - \frac{T_1 - T_2}{\ln(r_2/r_1)} \ln\left(\frac{r}{r_1}\right) \quad (\text{A-2})$$

ここで、 $T_{1,2}$ はそれぞれ試料の中心にある発熱体（ヒーター）の温度と試料外壁の温度、 $r_{1,2}$ はそれぞれ発熱体の半径と試料の半径である。温度及び寸法を代入して求めた温度分布を図 A.11 に示す。この温度分布を半径方向に積分した値が試料中心部分の平均温度となり、その温度は 123°C であった。

試料中心部分の透過率スペクトルの中の ^{115}In の共鳴ディップを利用して温度を測定する。図 A.12 に試料中心部分の透過率スペクトルとフィッティング曲線を示す。このとき、試料の密度などは試料に温度勾配がない場合の解析から求められた値を用いており、実効温度をパラメータとしている。フィッティングの結果、試料中心部分の平均温度（実効温度から実温度に変換した）は 589.2°C と推定された。この値は熱電対で測られた温度に比べて非常に高い。そのため、試料に温度勾配がない場合、つまり室温状態の場合（平均温度：15.6°C）の透過率スペクトルに対しても温度をフィッティングパラメータとして解析を行った。その結果、温度勾配がない場合の温度は 469.3°C と推定され、室温に比べてはるかに高温である。試料に温度勾配があるないに関わらず温度が高く評価されている。この温度の過大評価は、解析に用いたパルス関数が実際よりも幅が短いためである可能性がある。そのため、原子数密度測定においても指摘したように、パルス関数に関する議論を行う必要がある。この議論に関しては温度イメージングの結果を示した後に行う。

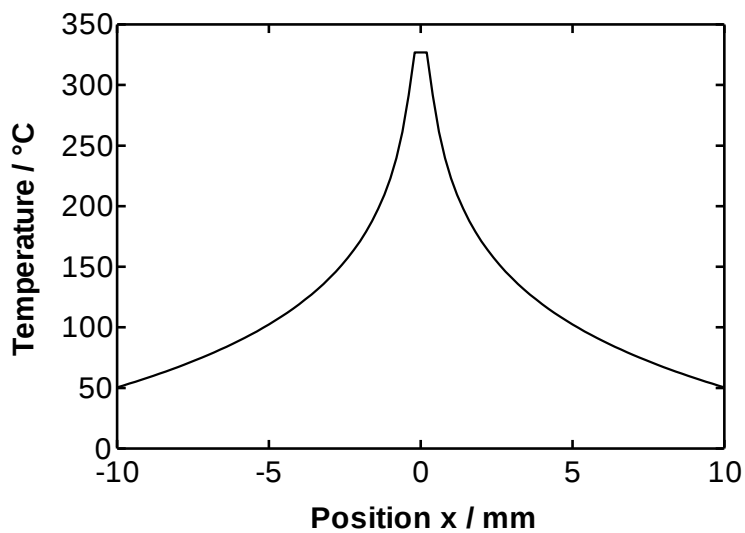


図 A.11：二重円筒試料内部の温度分布の計算値。

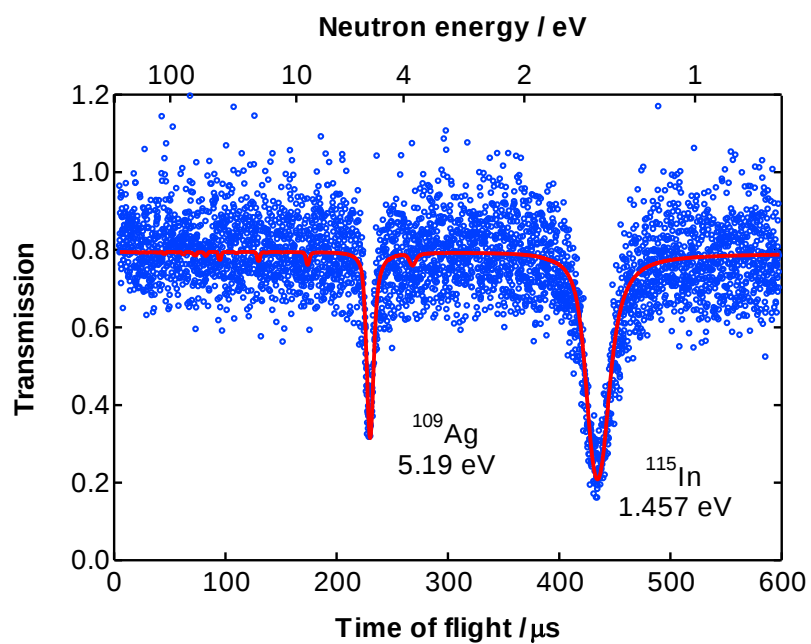


図 A.12：試料中心部分における透過率スペクトルとフィッティング曲線（試料：温度勾配あり）。

A.3.3.2 温度イメージング

各位置における温度を求め、プロットした結果を図 A.13 に示す。ここでいう温度は先述した平均の温度である。また、実験から求めた温度はスムージングをかけてある。やはり、全体的に温度が高く推定されている。このビーム方向に平均した温度分布を再構成することで、試料内部の局所的な温度分布を求めることができる。原子数密度イメージングの場合と同様に ML-EM 法を用いて温度の再構成を行った結果を図 A.13 に示す。左図は試料を上から見た様子となり、右図は $y = 0$ の面の断面図となる。再構成した結果もやはり温度は実際の値よりもはるかに大きく、その差は約 3 倍である。

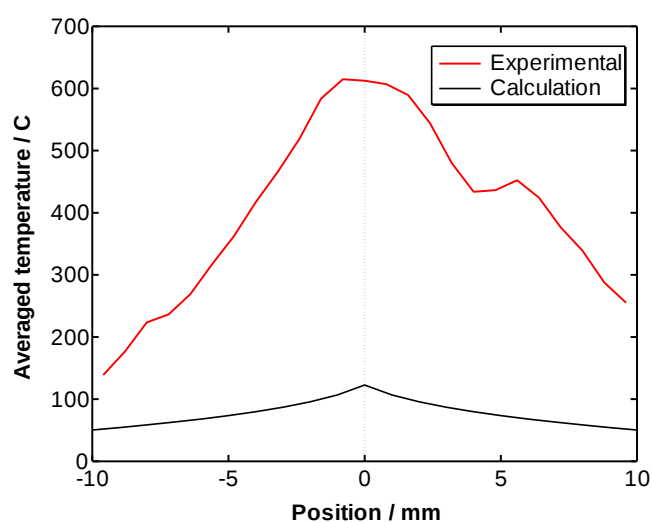


図 A.13：平均温度の分布の実験値及び計算値。

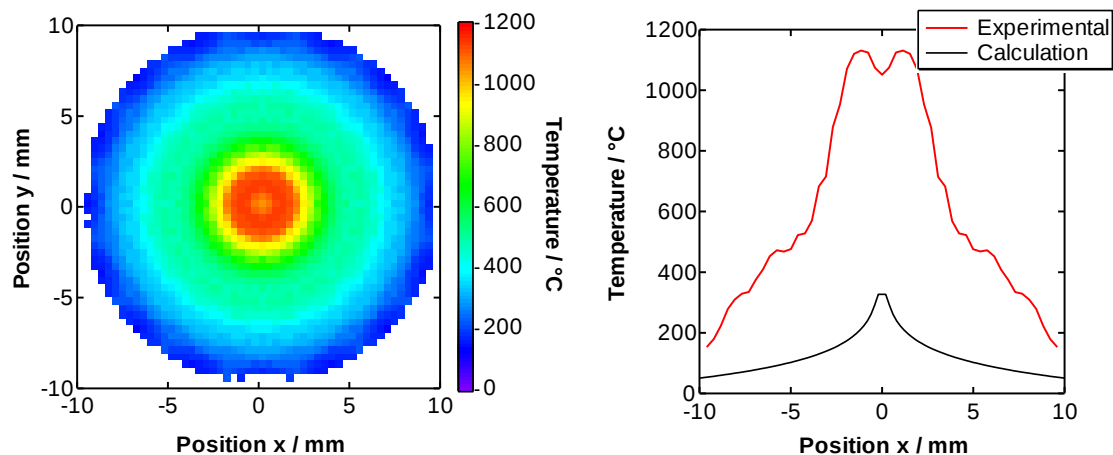


図 A.14：試料内部の温度分布の再構成画像。右図は中心部分の断面を表している。

A.3.4 パルス関数に関する議論

測定した透過率スペクトルに対する解析から、解析に用いたパルス関数と本実験における実際のパルス関数との間に違いがある可能性が示唆された。本実験では、コリメータが広いために、減速材周りの反射体が検出位置から見える体系となっている。そのため、反射体からの中性子が測定されてパルス関数が理想的な場合よりも長いテールを引いた形状となることが考えられる。これは、減速材と反射体に用いられている材料の性質の違いと幾何学的な形状によって説明される。HUNS の減速材は H_2O であり、反射体は黒鉛である。黒鉛の減速能 (0.060 cm^{-1}) は H_2O の減速能 (1.35 cm^{-1}) に比べておおよそ $1/23$ である[50]。そのため、反射体中の中性子によるパルス関数は減速材によるものと比べて非常に幅が広がる。幾何学的な側面から考えると、反射体は減速材の周囲にあるため、反射体から出てきた中性子はそれだけ長い距離を飛行していることになる。したがって、これもパルス関数の幅を広げる原因となる。この反射体からの中性子がパルス関数に与える影響を評価するため、実験体系を模擬した体系を用いてモンテカルロシミュレーション計算によってパルス関数を求めた。

図 A.15 に理想的なパルス関数の計算に用いた体系と実験体系を模擬した体系を示す。前者の詳細は 3.4.2 で示している。前者の場合、タリー位置において減速材の周りの反射体が見えないように、反射体出口からタリーまでの空間は断面が 1 cm 角の直方体となっており、これがコリメータの役割をしている。この場合、反射体からタリーまで中性子が直接飛んでくるようなことはなく、タリーで検出される中性子は全て減速材を通ってくることになる。一方で、実験を模擬した体系では TMRA は同一であるが、反射体出口に 10 cm 角の B_4C 焼結体が、減速材から 6 m ほどの位置に B_4C レジン及び鉛ブロックが設置されている。これらがコリメータの役割を担っている。この場合、タリー位置からは減速材周りの反射体が見える形となっている。この実験を模擬した体系を用いてパルス関数の計算を行った。3.4 で説明した HUNS の理想的なパルス関数の計算と同様に、モンテカルロシミュレーションコード MCNPX を用い、核データは JENDL-4.0 を用いた（詳細は 3.4 を参照）。なお、タリーは点タリーを用い、実験における検出器位置と同じ 7.25 m 位置にセットした。

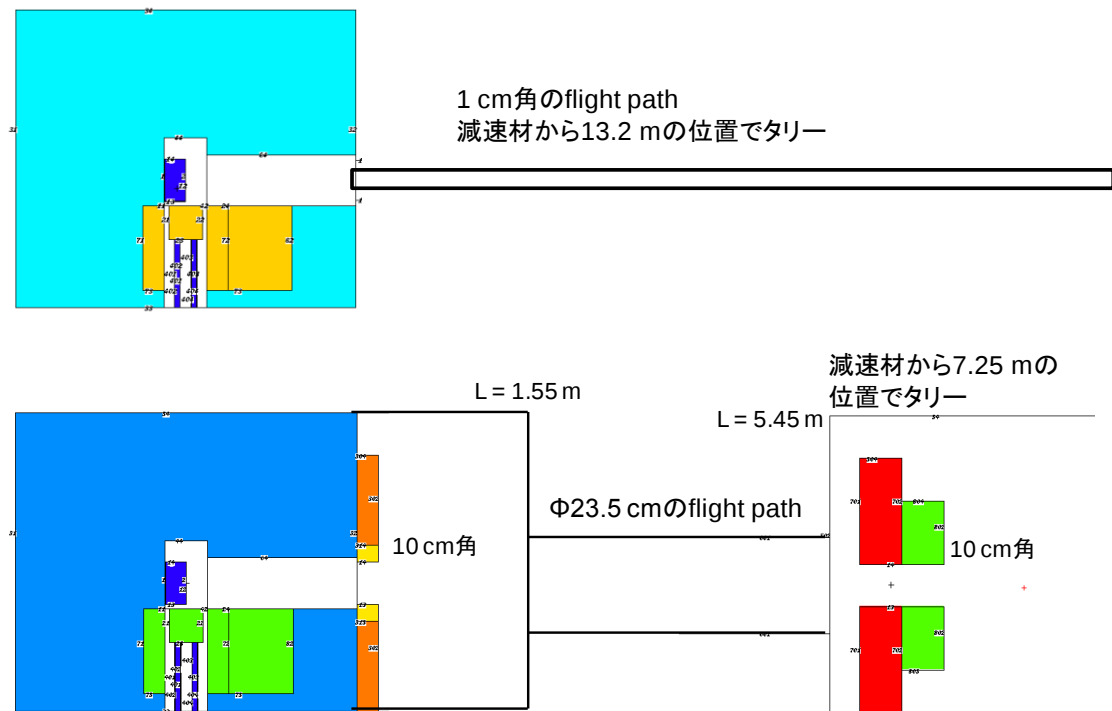


図 A.15：理想的なパルス関数の計算に用いた体系（上）と実験体系を模擬した体系（下）。

図 A.16 に実験体系を模擬した場合のパルス関数と理想的なパルス関数の比較（中性子エネルギー E_n ：1、10、100 eV、1、10 keV）を示す。パルスの立ち上がりからピーク付近までの領域においては、両者の間にそれほど大きな差は見られないが、テール部分の形状が大きく異なる。理想的なパルス関数はなだらかに減衰しているのに対して、実験体系を模擬した場合のパルス関数には盛り上がりが見られる。この盛り上がりは反射体からの中性子による成分である。また、この反射体からの成分に引きずられる形でパルスの半値幅も広がっている。

実験体系を模擬したモンテカルロシミュレーション計算により、実験におけるパルス関数が実際のパルス関数よりもテールを引いており、幅が広い形状となっていることが明らかとなった。この長いテールは共鳴ディップに対して大きく影響することが予想される。A.3.5 では、この結果を用いて透過率スペクトルに対する解析を行い、原子数密度イメージング及び温度イメージングを試みる。

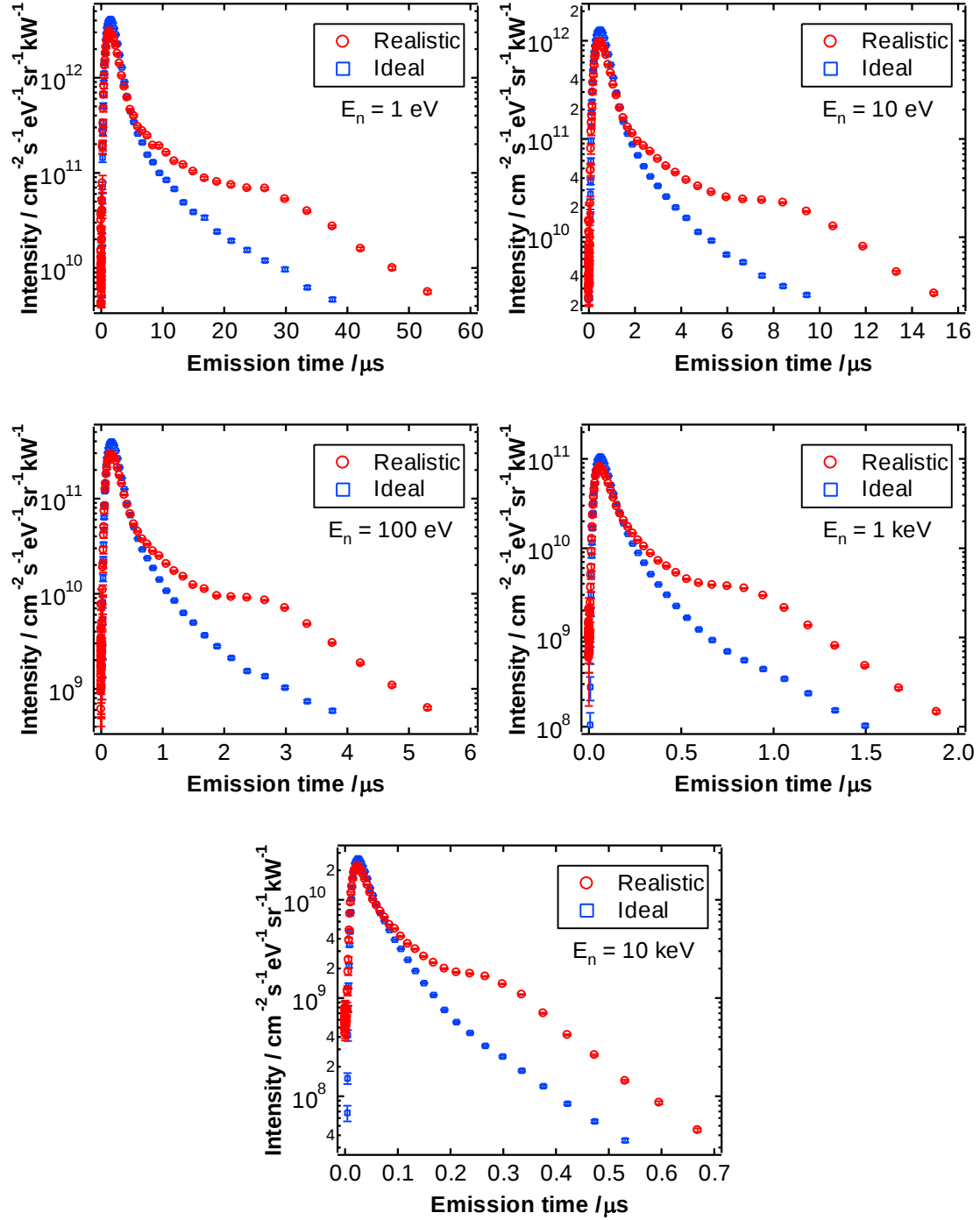


図 A.16：実験体系を模擬した場合のパルス関数（赤）と理想的なパルス関数（青）の比較。

A.3.5 新しいパルス関数による再解析

理想的なパルス関数の代わりに、A.3.4 において計算したパルス関数を用いて改めて解析を行った。解析の方法及び手順は先に説明した通りである。なお、TOF のビン幅を 150 ns で測定したが、1 ビンあたりの統計量を上げるため、ここでは TOF の 1 ビンを 600 ns にまとめた透過率スペクトルを解析した。

A.3.5.1 原子数密度イメージング

図 A.17 に試料中心部分の透過率スペクトルの実験値と計算値を示す。この計算値はフィッティングを行ったものではなく、実際の試料の密度などを用いて計算したものである。共鳴ディップ及びベースラインが全体的に実験値の方が浅くなっている。つまり、新しいパルス関数を用いて解析を行っても密度を過小評価してしまうことがわかる。

測定した透過率スペクトルにフィッティングを行い、 ^{115}In 及び ^{109}Ag の密度分布を求めた。図 A.18 に ML-EM 法を用いて再構成した ^{115}In の密度分布を、図 A.19 に ^{109}Ag の密度分布を示す。この場合も、原子数密度は 1/2 程度に見積もられてしまうことがわかった。この原因については今後解明してゆく必要がある。

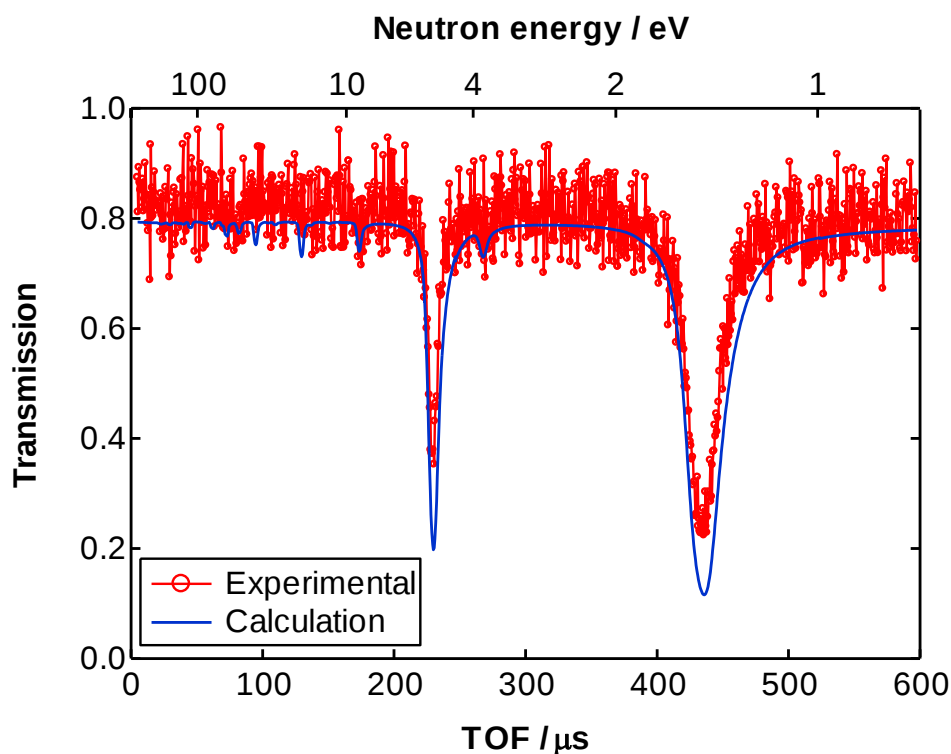


図 A.17：試料中心部分における透過率スペクトルの実験値と計算値。

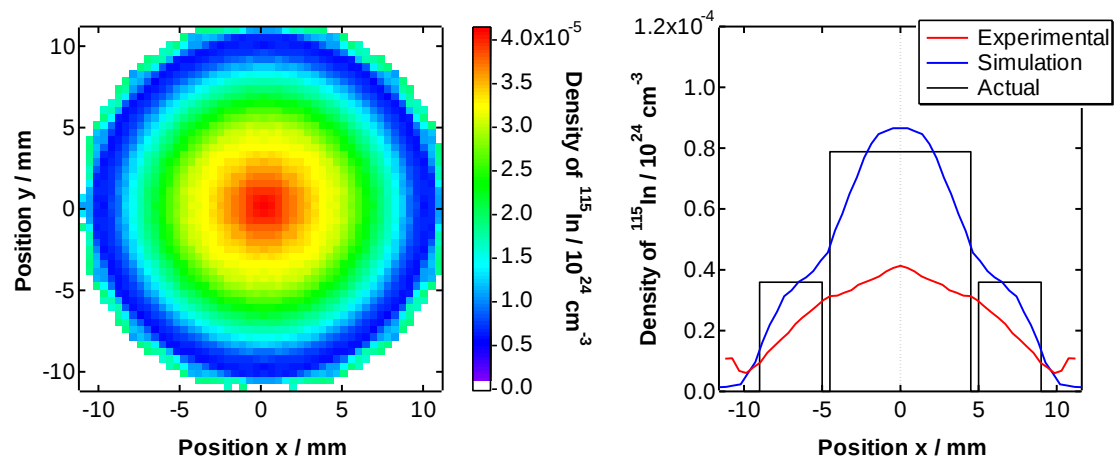


図 A.18：新しいパルス関数により求めた ^{115}In の原子数密度の CT 再構成画像。右図は中心部分の断面を表している。

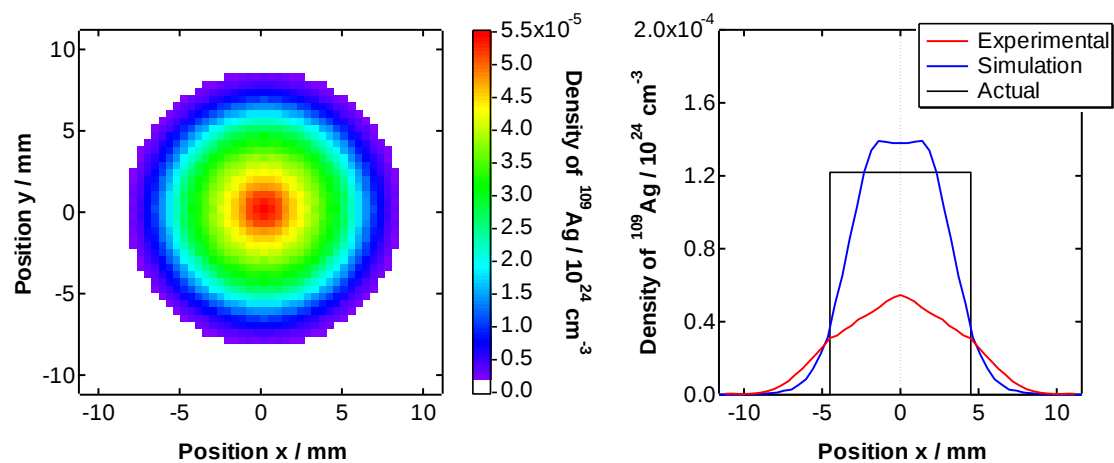


図 A.19：新しいパルス関数により求めた ^{109}Ag の原子数密度の CT 再構成画像。右図は中心部分の断面を表している。

A.3.5.2 温度イメージング

^{115}In の共鳴ディップを用いて温度イメージングを行った。このとき、核種の密度は先に解析で求められた値を用いている。図 A.20 に ML-EM 法を用いて再構成した試料内部の温度分布を示す。求められた温度の絶対値及び分布が計算値と良く一致している。試料の中心部分において、およそ 30 K 過小評価しているのは検出器の分解能 0.8 mm に比べてヒーターの直径が 0.25 mm と小さいためである。また、 ± 5 mm 付近の過小評価は画像のボケに起因しているものと考えられる。

実験体系を模擬した体系を用いて求めたパルス関数を用いることで、試料内部の温度分布を求めることができた。共鳴ディップの僅かな広がりの違いでも温度測定には大きな影響を与えるため、検出器から反射体を見ないような実験体系で測定を行うことが重要である。

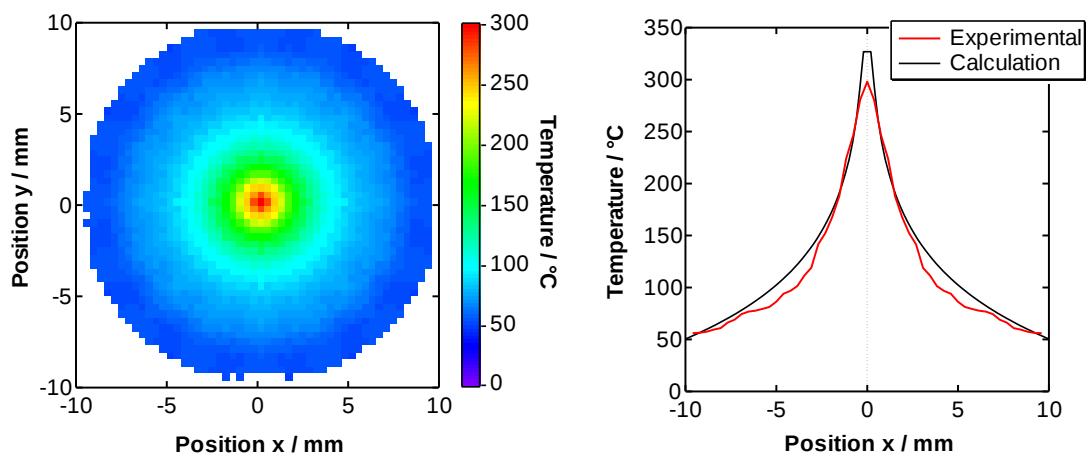


図 A.20：新しいパルス関数により求めた試料内部の温度分布の再構成画像。右図は中心部分の断面を表している。

A.4 付録のまとめ

付録では、HUNS において行った透過型 N-RAS を利用した原子数密度及び温度イメージングについて述べた。実験に用いた試料は二重円筒状の Al 製容器に酸化インジウム及び酸化銀を含む粉末を封入したものであり、中心を通るニクロム線ヒーターで内部に温度勾配を持たせることができる。過去に行われた同試料に対する原子数密度・温度イメージングでは、温度分布は再現できるものの、密度が 1/3 程度に過小評価されてしまうという結果となっていた。そのため、本研究では過去の実験における問題点を解決するため、新しい実験手法及び解析手法によって核種イメージングを試みた。

実験は北大 LINAC のセンタービームラインに設置されている熱中性子源において行った。共鳴吸収時に発生する試料からの即発 γ 線を計数しないために、 γ 線に不感な GEM 検出器を用いた。さらに、試料からの散乱中性子の計数を低減するため、試料を検出器から 38 cm 離して設置した。 ^{115}In の共鳴を利用したラジオグラフィによって試料位置と検出器のピクセルの対応関係を確認して、試料の各位置の透過率スペクトルを求めた。測定した透過率スペクトルに対して、第 3 章で説明した HUNS のパルス関数を組み込んだ REFIT コードによる解析を行い、核種 (^{115}In 及び ^{109}Ag) の面密度分布及び ^{115}In 共鳴ディップを利用した試料深さ方向の平均温度の分布を求めた。また、面密度分布及び平均温度分布に対して ML-EM 法による CT 再構成を行い、原子数密度分布及び局所温度イメージング画像を得た。その結果、密度の絶対値は実際の 1/2、温度は約 3 倍に推定された。この差の主な原因として、実験におけるパルス関数が第 3 章で求めたパルス関数と異なる可能性が考えられたため、パルス関数の再検討を行った。

実験では、検出器から減速材周りの反射体が見えるようなコリメータ配置となっていたため、この反射体から放出される中性子がパルス関数に影響していることが予想される。したがって、この影響を調べるため、実験を模擬した体系を用いてモンテカルロシミュレーションによるパルス関数の計算を行い、理想的なパルス関数との比較を行った。その結果、実験を模擬した体系によるパルス関数は理想的なものよりも長いテールを引くことがわかった。この長いテールは反射体からの寄与である。このパルス関数を REFIT に組み込み、再度測定データの解析を行った。

新しく求めたパルス関数による解析から、原子数密度及び温度のイメージングを行った。温度分布に関しては実測値と良い一致を示した。一方、密度分布は実際の値の 1/2 程度に過小評価されてしまった。パルス関数を再検討した結果、温度分布は正しい値を求めることができたため、共鳴ディップの形状を再現することには成功したと考えられる。原子数密度分析の確度が改善していないのは実験手法に問題がある可能性があり、今後その問題の解決策を議論してゆく必要がある。

参考文献

- [1] K. Kaneko, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, T. Sakuma, S. Ikeda, *J. Phys. Chem, Solids* **60** (1999) 1499.
- [2] K. Tokuda, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, R. Moreh, S. Ikeda, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** (2001) 1504.
- [3] T. Kamiyama, J. Ito, H. Noda, H. Iwasa, Y. Kiyanagi, S. Ikeda, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **542** (2005) 258.
- [4] H. Sato, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **605** (2009) 36.
- [5] T. Kamiyama, H. Sato, N. Miyamoto, H. Iwasa, Y. Kiyanagi, S. Ikeda, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **600** (2009) 107.
- [6] T. Kamiyama, H. Noda, J. Ito, H. Iwasa, Y. Kiyanagi, S. Ikeda, *J. Neutron Res.* **13** (2005) 97.
- [7] Y. Kiyanagi, T. Kamiyama, *Hamon*, Vol.3, No.3 (2011) 174.
- [8] R. Schulze, L. Szentmiklósi, P. Kudejova, L. Canella, Z. Kis, T. Belgia, J. Jolie, M. Ebert, T. Materna, K. T. Biro, Z. Hajnal, *J. Anal. At. Spectrom* **28** (2013) 1508.
- [9] 中川庸雄, *核データニュース*, No. 93 (2009).
- [10] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, J. Katakura, *J. Nucl. Sci. Technol.* **48**(1) (2011) 1.
- [11] M.B. Chadwick, et al., *Nuclear Data Sheets* **112** (2011) 2887.
- [12] A. Santamarina, D. Bernard, Y. Rugama, "The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library," *JEFF Report 22* (2009).
- [13] H. G. Priesmeyer, U. Harz, *Atomkernenergie* **25** (1975) 109.
- [14] J. W. Behrens, R. G. Johnson, R. A. Schrack, *Nucl. Technol.* **67** (1984) 162.
- [15] H. J. Stone, M. G. Tucker, Y. Le Godec, F. M. Méducin, E. R. Cope, S. A. Hayward, G.P.J. Ferlat, W. G. Marshall, S. Manolopoulos, S. A. T. Redfern, M. T. Dove, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **547** (2005) 601.
- [16] ISIS – Ines, <http://www.isis.stfc.ac.uk/instruments/ines/>
- [17] P. H. Fowler, A. D. Taylor, "Temperature imaging using epithermal neutrons", RAL-87-056, Rutherford Appleton Laboratory (1987).
- [18] J. C. Frost, P. Meehan, S. R. Morris, R. C. Ward, *Catalyst Letters* **2** (1989) 97.
- [19] H. J. Stone, M. G. Tucker, F. M. Méducin, M. T. Dove, S. A. T. Redfern, *J. Appl. Phys.* **98** (2005) 064905.
- [20] S. Ikeda, M. Misawa, S. Tomiyoshi, M. Omori, T. Suzuki, *Phys. Lett. A* **134** (1988) 191.

- [21] W. Mondelaers, P. Schillebeeckx, *Notiziario neutron e luce di sincrotrone* **11**(2) (2006) 19.
- [22] B. Becker, S. Abousahl, J. C. Drohe, H. Harada, S. Kopecky, W. Mondelaers, P. Schillebeeckx, D. Vendelbo, R. Wynants, “JRC support to JAEA on the development of Neutron Resonance Densitometry”, JRC Sci. Policy. Rep. (2013).
- [23] H. Postma, L. Amkreutz, A. Borella, M. Clarijs, H. Kamermans, W. Kockelmann, A. Paradowska, P. Schillebeeckx, D. Visser, *J. Radioanal Nucl. Chem.* **283** (2010) 641.
- [24] H. Postma, P. Schillebeeckx, W. Kockelmann, *J. Archaeological Science* **38** (2011) 1810.
- [25] E. M. Schooneveld, M. Tardocchi, G. Gorini, W. Kockelmann, T. Nakamura, E. P. Cippo, H. Postma, H. Rhodes, P. Schillebeeckx, the ANCIENT CHARM Collaboration, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** (2009) 152003.
- [26] P. Schillebeeckx, A. Borella, F. Emiliani, G. Gorini, W. Kockelmann, S. Kopecky, C. Lampoudis, M. Moxon, E. P. Cippo, H. Postma, N. J. Rhodes, E. M. Schooneveld, C. Van Beveren, *Journal of Instrumentation*, **7**, C03009 (2012).
- [27] 平成 19 年度文部科学省原子力システム研究開発事業「中性子共鳴吸収による MOX 燃料ペレット模擬体分析法の開発研究」成果報告書 (2008).
- [28] K. Mizukami, S. Sato, H. Sagehashi, S. Ohnuma, M. Ooi, H. Iwasa, F. Hiraga, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, *Nucl. Instr. and Meth. A* **529** (2004) 310.
- [29] K. Oikawa, F. Maekawa, M. Harada, T. Kai, S. Meigo, Y. Kasugai, M. Ooi, K. Sakai, M. Teshigawara, S. Hasegawa, M. Futakawa, Y. Ikeda, N. Watanabe, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **589** (2008) 310.
- [30] F. Maekawa, K. Oikawa, M. Harada, T. Kai, S. Meigo, Y. Kasugai, M. Ooi, K. Sakai, M. Teshigawara, S. Hasegawa, Y. Ikeda, N. Watanabe, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **600** (2009) 335.
- [31] K. Kino, M. Furusaka, F. Hiraga, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, K. Furutaka, S. Goko, H. Harada, M. Harada, T. Kai, A. Kimura, T. Kin, F. Kitatani, M. Koizumi, F. Maekawa, S. Meigo, S. Nakamura, M. Ooi, M. Ohta, M. Oshima, Y. Toh, M. Igashira, T. Katabuchi, M. Mizumoto, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **626-627** (2011) 58.
- [32] Y. Kiyanagi, T. Kamiyama, H. Sato, T. Shinohara, T. Kai, K. Aizawa, M. Arai, M. Harada, K. Sakai, K. Oikawa, M. Ohi, F. Maekawa, T. Sakai, M. Matsubayashi, M. Segawa, M. Kureta, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **651** (2011) 16.
- [33] M. Ooi, M. Teshigawara, T. Kai, M. Harada, F. Maekawa, M. Futakawa, E. Hashimoto, M. Segawa, M. Kureta, A. Tremsin, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, *Physics Procedia* **43** (2013) 337.
- [34] T. Kai, M. Segawa, M. Ooi, E. Hashimoto, T. Shinohara, M. Harada, F. Maekawa, K. Oikawa, T. Sakai, M. Matsubayashi, M. Kureta, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **651**

- (2011) 126.
- [35] A. S. Tremsin, T. Shinohara, T. Kai, M. Ooi, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Y. Shiota, J. B. McPhate, J. V. Vallerga, O. H. W. Siegmund, W. B. Feller, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **746** (2014) 47.
 - [36] Introduction of KURRI-LINAC, <http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/LINAC/spec.html>
 - [37] 堀順一, 佐野忠史, 高橋佳之, 宇根崎博信, 中島健, 「中性子共鳴吸収を用いた核種定量のための非破壊分析法の開発 (1) Self-indication 法の適用性評価のための基礎実験」, 日本原子力学会 2013 年春の大会, 近畿大学, 大阪 (2013).
 - [38] E. P. Cippo, A. Borella, G. Gorini, W. Kockelmann, A. Pietropaolo, H. Postma, N. J. Rhodes, P. Schillebeeckx, E. M. Schooneveld, M. Tardocchi, R. Wynants, The ANCIENT CHARM collaboration, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **623** (2010) 693.
 - [39] E. P. Cippo, A. Borella, G. Gorini, W. Kockelmann, M. Moxon, H. Postma, H. J. Rhodes, P. Schillebeeckx, E. M. Schoonenfeld, M. Tardocchi, K. Dusz, Z. Hajnal, K. Biro, S. Porcinai, C. Andreani, G. Festa, J. Anal. At. Spectrom. **26** (2011) 992.
 - [40] M. C. Moxon, T. C. Ware, C. J. Dean, “REFIT-2009 A Least-Square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission, Capture, Fission and Scattering Data; Users’ Guide for REFIT-2009-10”, UKNSF(2010)P243 (2010).
 - [41] A. J. Dianoux, G. Lander, “Neutron Data Booklet”, 2nd ed., OCP Science, Philadelphia (2003).
 - [42] M. Harada, N. Watanabe, F. Maekawa, M. Futakawa, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **597** (2008) 242.
 - [43] F. H. Fröhner, “Evaluation and analysis of nuclear resonance data”, JEFF Report 18, NEA/OECD (2000).
 - [44] R. L. Macklin, J. Halperin, R. R. Winters, Nucl. Instr. and Meth. **164** (1979) 213.
 - [45] P. Schillebeeckx, B. Becker, Y. Danon, K. Guber, H. Harada, J. Heyse, A. R. Junghans, S. Kopecky, C. Massimi, M. C. Moxon, N. Otuka, I. Sirakov, K. Volev, Nuclear Data Sheets **113** (2012) 3054.
 - [46] N. Bohr, Nature **137** (1936) 344.
 - [47] N. Bohr, Nature **137** (1936) 351.
 - [48] 高木修二, 丸森寿夫, 河合光路, 原子核論, 岩波書店 (1978).
 - [49] JENDL-4.0, <http://www.ndc.jaea.go.jp/jendl/j40/j40f10.html>
 - [50] K. H. Bechurts, K. Wirtz, “Neutron Physics”, Springer, Berlin (1964).
 - [51] E. P. Wigner and L. Eisenbud, Phys. Rev. **72** (1947) 29.
 - [52] L. C. Leal, N. M. Larson, “Brief Review of the R-Matrix Theory”, SAMMY workshop material (2000).
 - [53] C. W. Reich, M. S. Moore, Phys. Rev. **111** (1958) 929.

- [54] F. T. Adler, D. B. Adler, Proceedings of second international conference on Nuclear Data for Reactors (1970) 777.
- [55] G. Breit, E. Wigner, Phys. Rev. **49** (1936) 519.
- [56] N. M. Larson, “Cross section parameterization in the resolved resonance region”, CONF-921046—7, Oak Ridge National Laboratory (1992).
- [57] N. M. Larson, “Upgrade users’ guide for SAMMY: Multilevel R-matrix fits to neutron data using Bayes’ equations”, ORNL/TM-9179/R8 and ENDF-364/R2, Oak Ridge National Laboratory (2008).
- [58] M. Herman, A. Trkov (Ed.), “ENDF-6 Formats Manual. Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data Files ENDF/B-VI and ENDF/B-VII”, BNL-90365-2009 Rev.1, Brookhaven National Laboratory (2010).
- [59] H. A. Bethe, G. Placzek, Phys. Rev. **51** (1937) 450.
- [60] W. E. Lamb, Phys. Rev. **55** (1939) 190.
- [61] H. E. Jackson, J. E. Lynn, Rhys. Rev. **127** (1962) 461.
- [62] H. A. Bethe, Rev. Mod. Phys. **9**(2) (1937) 69.
- [63] A. Meister, P. Ribon, P. Siegler, A. Brusegun, C. Bürkholz, C. Coceva, C. Monier, M. C. Moxon, H. Postma, H. G. Priesmeyer, A. Royer, H. Tagziria, C. Van der Vorst, C. Zeyen, Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (1997) 435.
- [64] 田中聖一郎、修士論文、北海道大学 (2015).
- [65] C. Kittel, “Introduction to Solid State Physics”, 7th ed., Wiley, New York (1996).
- [66] S. Ikeda, J. M. Carpenter, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **239** (1985) 536.
- [67] Y. Kiyonagi, H. Noda, S. Yasui, Y. Ogawa, J. Ito, T. Kamiyama, S. Ikeda, J. Nucl. Sci. Technol. **42**(3) (2005) 263.
- [68] J. E. Lynn, G. H. Kwei, W. J. Trela, V. W. Yuan, B. Cort, R. J. Martinez, F. A. Vigil, Phys. Rev. B **58** (1998) 11408.
- [69] V. W. Yuan, J. D. Bowman, D. J. Funk, G. L. Morgan, R. L. Rabie, C. E. Ragan, J. P. Quintana, H. L. Stacy, Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 125504.
- [70] A. Brusegan, G. Noguere, F. Gunsing, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl. **2** (2002) 685.
- [71] M. Flaska, A. Borella, D. Lathouwers, L. C. Mihailescu, W. Mondelaers, A. J. M. Plompen, H. van Dam, T. H. J. J. van der Hagen, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **531** (2004) 392.
- [72] C. Guerrero, et al., Eur. Phys. J. A **49** (2013) 27.
- [73] M. Gu, H. Fang, B. Liu, X. Liu, S. Huang, C. Ni, Z. Li, R. Wang, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **269** (2011) 528.
- [74] I. Cole, C. G. Windsor, Nucl. Instr. and Meth. **171** (1980) 107.

- [75] F. Izumi, H. Asano, H. Murata, N. Watanabe, J. Appl. Cryst. **20** (1987) 411.
- [76] T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta, L. Sihver, J. Nucl. Sci. Technol. **50**(9) (2013) 913.
- [77] K. Niita, et al., “PHITS ver. 2.64 User’s Manual” (2013).
- [78] J. F. Briesmeister (Ed.), “MCNPTM—A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4C”, LA-13709-M, Los Alamos National Laboratory (2000).
- [79] Y. Nara, N. Otuka, A. Ohnishi, K. Niita, S. Chiba, Phys. Rev. C **61** (1999) 024901.
- [80] A. Boudard, J. Cugnon, J. C. David, S. Leray, D. Mancusi, Phys. Rev. C **87** (2013) 014606.
- [81] M. Harada, F. Maekawa, K. Oikawa, S. Meigo, H. Takada, M. Futakawa, Progress in Nuclear Science and Technology, Vol 2 (2011) 872.
- [82] R. E. MacFarlane, “Cold-moderator scattering kernel methods”, LA-UR-98-655, Los Alamos National Laboratory (1998).
- [83] T. Nakagawa, K. Shibata, S. Chiba, T. Fukahori, Y. Nakajima, Y. Kikuchi, T. Kawano, Y. Kanda, T. Ohsawa, H. Matsunobu, M. Kawai, A. Zukeran, T. Watanabe, S. Igarasi, K. Kosako, T. Asami, J. Nucl. Sci. Technol. **32**(12) (1995) 1259.
- [84] K. Shibata, T. Fukahori, S. Chiba, N. Yamamuro, J. Nucl. Sci. Technol. **34**(12) (1997) 1171.
- [85] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, T. Shinohara, M. Ooi, H. Sato, K. Kino, M. Segawa, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Nucl. Instr. and Meth. A **773** (2015) 137.
- [86] D. B. Pelowitz (Ed.), “MCNPX User’s Manual, Version 2.6.0”, LA-CP-07-1473, Los Alamos National Laboratory (2008).
- [87] W. P. Swanson, Health Phys., **35** (1978) 353.
- [88] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, H. Sato, M. Ooi, M. Segawa, T. Shinohara, K. Kino, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Physics Procedia **60** (2014) 244.
- [89] G. Noguere, F. Cserpak, C. Ingelbrecht, A. J. M. Plompen, C. R. Quetel, P. Schillebeeckx, Nucl. Instr. and Meth. **575** (2007) 476.
- [90] F. Sauli, Nucl. Instr. and Meth. A **386** (1997) 531.
- [91] S. Uno, T. Uchida, M. Sekimoto, T. Murakami, K. Miyama, M. Shoji, E. Nakano, T. Koike, Physics Procedia **37** (2012) 600.
- [92] M. Inuzuka, H. Hamagaki, K. Ozawa, T. Tamagawa, T. Isobe, Nucl. Instr. and Meth. A **525** (2004) 529.
- [93] 宇野 彰二 教授 | つくばの研究機関から有望な技術シーズの紹介,
<http://iblc.co.jp/tsukuba/contents/15.html>
- [94] T. Uchida, M. Ikeda, T. Koike, K. Miyama, T. Murakami, E. Nakano, H. Ohwada, M.

- Sekimoto, M. Shoji, M. Tanaka, S. Uno, M. Wada, Nuclear Science Symposium Conference Record (NSS/MIC), 2010 IEEE (2010) 1450.
- [95] 鮎川直彦, 「パルス中性子イメージングによる日本刀の結晶組織情報解析」, 修士論文, 北海道大学大学院 (2011).
- [96] Y. Kiyanagi, T. Kamiyama, K. Kino, H. Sato, S. Sato, S. Uno, Journal of Instrumentation, **9**, C07012 (2014).
- [97] 物質・生命科学実験施設 | J-PARC の各施設 | 大強度陽子加速器施設 J-PARC 「研究者向け」, <http://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/instrumentation/index.html>
- [98] S. F. Mughabghab, “Atlas of Neutron Resonances, 5th Edition”, Elsevier Science (2006).
- [99] V. Sobes, “Coupled differential and integral data analysis for improved uncertainty quantification of the $^{63,65}\text{Cu}$ cross-section evaluation”, PhD Thesis, Massachusetts Institute of Technology (2014)
- [100] H. Tsuchiya, H. Harada, M. Koizumi, F. Kitatani, J. Takamine, M. Kureta, H. Iimura, A. Kimura, B. Becker, S. Kopecky, K. Kauwenberghs, W. Mondelaers, P. Schillebeeckx, Nucl. Instr. and Meth. A **767** (2014) 364.
- [101] H. Weigmann, J. Winter, Zeitschrift für Physik **213** (1968) 411.
- [102] J. Julien, R. Alves, S. De Barros, V. D. Huynh, J. Morgenstern, C. Samour, Nucl. Phys. A **132** (1969) 129.
- [103] R. N. Alves, S. De Barros, P. L. Chevillon, J. Julien, J. Morgenstern, C. Samour, Nucl. Phys. A **134** (1969) 118.
- [104] M. S. Pandey, J. B. Garg, Nucl. Sci. Eng. **60** (1976) 399.
- [105] H. Kobayashi, RADIOISOTOPES **56** (2007) 403.
- [106] A. Kimura, K. Hirose, S. Nakamura, H. Harada, K. Y. Hara, J. Hori, M. Igashira, T. Kamiyama, T. Katabuchi, K. Kino, F. Kitatani, Y. Kiyanagi, M. Koizumi, M. Mizumoto, Y. Toh, Nuclear Data Sheets **119** (2014) 150.

本研究に関連して発表した論文・講演

1. 論文

- [1] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, H. Sato, M. Ooi, M. Segawa, T. Shinohara, K. Kino, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, *Physics Procedia* **60** (2014) 244.
- [2] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, T. Shinohara, M. Ooi, H. Sato, K. Kino, M. Segawa, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* **773** (2015) 137.

2. 講演

- [1] 長谷美宏幸, 佐藤博隆, 木野幸一, 加美山隆, 鬼柳善明, 原田正英, 甲斐哲也, 大井元貴, 瀬川麻里子, 篠原武尚, 「定量的な共鳴吸収解析のための J-PARC MLF BL10 のパルス関数の導出」日本中性子科学会第 12 回年会, 京都, 2012 年 12 月 (ポスター発表)
- [2] 長谷美宏幸, 佐藤博隆, 木野幸一, 加美山隆, 鬼柳善明, 原田正英, 甲斐哲也, 大井元貴, 瀬川麻里子, 篠原武尚, 「J-PARC パルス関数を組み込んだ共鳴解析コードによる核種定量分析」日本原子力学会北海道支部会第 30 回研究発表会, 札幌, 2012 年 12 月 (口頭発表)
- [3] 長谷美宏幸, 佐藤博隆, 木野幸一, 加美山隆, 鬼柳善明, 原田正英, 甲斐哲也, 大井元貴, 瀬川麻里子, 篠原武尚, 「中性子共鳴吸収イメージングの定量化に関する研究, 中性子イメージング専門研究会」京都大学原子炉実験所, 2013 年 1 月 (口頭発表)
- [4] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, H. Sato, M. Segawa, T. Shinohara, K. Kino, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, 「Quantitative evaluation of nuclide density distribution in a substance using the neutron resonance absorption spectroscopy at J-PARC/MLF/BL10」The 12th Korea-Japan Meeting on Neutron Science, Okinawa, Japan, February, 2013 (ポスター発表)
- [5] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, H. Sato, M. Segawa, T. Shinohara, K. Kino, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, 「Measurement of the pulse function of J-PARC/MLF/BL10 for the quantitative neutron resonance absorption imaging」5th NEUtron WAVElength Dependent Imaging Workshop (NEUWAVE-5), Lund, Sweden, April, 2013 (口頭発表)
- [6] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, H. Sato, M. Segawa, T. Shinohara, K. Kino, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, 「Quantitative evaluation of nuclide distribution for two-dimensional imaging by neutron resonance absorption transmission method at the NOBORU in J-PARC/MLF」

- International Conference on Neutron Scattering (ICNS2013), Edinburgh, UK, July, 2013
(ポスター発表)
- [7] H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, H. Sato, M. Segawa, T. Shinohara, K. Kino, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, 「Quantitative evaluation of nuclide density distribution in a substance by neutron resonance absorption transmission method」 4th International Meeting of Union for Compact Accelerator-driven Neutron Sources (UCANS-IV), Sapporo, Japan, September, 2013 (口頭発表)
- [8] 長谷美宏幸, 甲斐哲也, 篠原武尚, 原田正英, 木野幸一, 大井元貴, 佐藤博隆, 瀬川麻里子, 加美山隆, 鬼柳善明, 「中性子共鳴吸収分光法による定量的核種イメージング手法の開発」 中性子イメージング専門研究会, 京都大学原子炉実験所, 2013 年 12 月 (口頭発表)
- [9] 長谷美宏幸, 甲斐哲也, 篠原武尚, 原田正英, 木野幸一, 大井元貴, 佐藤博隆, 瀬川麻里子, 加美山隆, 鬼柳善明, 「J-PARC 中性子源特性試験装置 (NOBORU) における共鳴領域中性子パルス関数の測定」 日本中性子科学会第 13 回年会, 柏, 2013 年 12 月 (ポスター発表)
- [10] H. Hasemi, T. Kai, M. Harada, T. Shinohara, K. Kino, H. Sato, M. Ooi, M. Segawa, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, 「Quantitative nuclide imaging by neutron resonance resonance transmission method at HUNS」 10th World Conference on Neutron Radiography (WCNR-10), Grindelwald, Switzerland, October, 2014 (口頭発表)
- [11] 長谷美宏幸, 加美山隆, 鬼柳善明, 「中性子共鳴透過法による元素分析」 2014 年度核データ研究会, 札幌, 2014 年 11 月 (口頭発表)

謝辞

本研究を行うに当たり、多くの方々から多大な御助力を賜りましたので、ここに感謝の意を表します。また、博士後期課程の内の1年間、日本学術振興会の特別研究員制度による援助を受けました。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門応用量子ビーム工学分野の加美山隆准教授には、本論文の主査として多大なる御指導御鞭撻を頂きました。ここに深く感謝の意と敬意を表します。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門応用量子ビーム工学分野の大沼正人教授、同古坂道弘教授、北海道大学大学院工学研究院附属エネルギー・マテリアル融合領域研究センターの渡辺精一教授には、本論文の副査として多大なる御指導を頂きました。ここに深く感謝の意と敬意を表します。

名古屋大学大学院工学研究科加速器 BNCT 用システム研究講座の鬼柳善明特任教授には、本研究の推進に当たり多くの御指導御鞭撻を頂きました。ここに深く感謝の意と敬意を表します。

日本原子力研究開発機構 J-PARC センター中性子利用セクションの原田正英博士、甲斐哲也博士、大井元貴博士、篠原武尚博士、瀬川麻里子博士、及川健一博士には、本研究の推進並びに J-PARC における実験に関して多大な御助力を頂きました。ここに深く感謝の意と敬意を表します。また、同原子力基礎工学研究部門応用核物理研究グループの木村敦博士には、REFIT の改造に関して貴重な御意見を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門瞬間強力パルス状放射線発生装置研究室の木野幸一准教授には、本研究の推進並びに J-PARC におけるプラスチックシンチレーション検出器の使用に際して多大な御助力を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門応用量子ビーム工学分野の佐藤博隆助教には、本研究の推進に当たり多くの御意見を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

高エネルギー加速器研究機構素粒子原子核研究所の宇野彰二教授には、GEM 検出器の使用に関して多大な御助力を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門瞬間強力パルス状放射線発生装置研究室の佐藤孝一技官には、北大 LINAC における実験に関して多大な御助力を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

EC-JRC-IRMM の Peter Schillebeeckx 博士には、REFIT コードの使用並びに改造に関しまして多大な御助力を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

謝辞

名古屋大学大学院工学研究科加速器 BNCT 用システム研究講座の塩田佳徳研究員には、研究上の御意見を頂くだけではなく、公私ともに大変お世話になりました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門応用量子ビーム工学分野の吉田義子秘書には、研究推進において欠くことのできない多くの事務作業をして頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院量子理工学専攻量子ビームシステム工学研究室の学生諸子には、公私にわたり大変お世話になりました。研究室 OB である佐藤友哉君と修士 2 年の田中聖一郎君には、J-PARC における実験を手伝って頂きました。また、研究室 OB である井上隆一君、櫻井貴浩君、及び田中聖一郎君、修士 1 年の藤井伸弥君には並列計算機の管理を手伝って頂きました。その他多くの学生諸子に北大 LINAC における実験において多大な御助力を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

最後に、博士後期課程まで進学させてくれた両親に感謝と尊敬の意を表します。

長谷美 宏幸