α 粒子計数法による 14MeV 中性子強度の測定[†]

千葉 実

金属材料技術研究所

153 東京都目黒区中目黒2-3-12

1978年6月17日 受理

1. 緒 言

コッククロフトウォルトン型の中性子発生装置は $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$ 反応によって比較的小型かつ簡単な装置で 14MeV 中性子を発生させることができ、取扱いが簡単なことから放射化分析にしばしば用いられる。

従来この中性子の測定には、プラスチックシンチレータを検出器とするシンチレーションカウンタが高エネルギー中性子に対して高感度なのでよく使用されているがこの検出器は高エネルギー γ 線のバックグラウンドの高い場合には中性子との区別が困難である欠点を有している。このほか中性子発生装置の外部に検出器をおいて測定する方法ではいずれもしゃへいをよくすると測定が困難になる欠点がある。

これらのほかに、三重水素ターゲット冷却水中に $^{16}\text{O}(n,p)$ 反応で生成する ^{16}N の測定も用いられるが¹⁾²⁾中性子発生と ^{16}N 測定のための時間的遅れ、冷却水の流量変動の影響が問題である。

(T-d) 反応では 14MeV 中性子と同時に α 粒子が発生し、この測定によって 14MeV 中性子を間接的に測定できる。この場合検出器は真空系内に設置する必要があり、比例計数管^{3)~7)}、硫化亜鉛⁸⁾、有機⁹⁾光体⁹⁾、ヨウ化カリ¹⁰⁾などが用いられている。

荷電粒子検出用の半導体検出器はこれらと比較すると小型で取扱いも容易なので、真空系に設置して用いるのに適している¹¹⁾、すでにこのような装置が市販されているが(たとえば東芝)、同様の構造の装置を製作し、種々検討の結果、多くの欠点があることがわかった。これらの欠点を除くため、新たに設計、製作した

装置について検討した結果、格段に良好な性能を得ることができた。

2. 装置および試料

2.1 装置

中性子発生装置：コッククロフトウォルトン型(最高電圧 200kV, 最大イオン電流(1mA)を用いた。

α 粒子検出器：半導体検出器(東芝 M8811A, 活性面積 3mm²)および前置増幅器(ORTEC 109A)を用いた。

γ 線検出器：14MeV 中性子放射化によって生成する放射性核種の γ 線の検出には 2in. $\times$ 1 $\frac{3}{4}$ in. の井戸型の NaI(Tl) シンチレータを用いた。

放射線、測定装置： α 粒子スペクトル測定用には NS-633, γ 線スペクトル測定用に TMC-404 を用いた。

α 粒子検出部および延長管：当研究所で製作した。

2.2 試料

2.2.1 中性子発生用ターゲット

14MeV 発生に ^3H ターゲット(CEA, ^3H 約 5 Ci, Ti 蒸着層 1.2mg/cm², 平均組成 Ti₃H_{2.18})を用いた。

2.2.2 放射化分析用標準試料

α 粒子の計数値で 14MeV 中性子放射化で生成した放射性核種の量の変動を補正できるかどうかをケイ素を用いて検討した。分光分析用二酸化ケイ素(JMC)を用い、分光分析用黒鉛末(National Carbon)で適当にうすめ、直径12mm, 高さ10mmの円柱状に圧縮成型し、ポリエチレンカプセルに入れて使用した。

2.2.3 α 線標準線源

α 粒子検出器のエネルギー特性を調べるため、²⁴¹Am 標準線源を用いた。

[†] Monitoring of 14MeV Neutron Fluence by α Particle Counting. Minoru CHIBA: National Research Institute for Metals, 3-12, Nakameguro-2, Meguro-ku, Tokyo 153.

3. 方法, 結果, 考察

3.1 α 粒子検出器の位置の選定

加速器で発生させた14MeV中性子には束密度に方向性があり、重陽子ビーム方向の密度が大きい¹²⁾ので、 ^3H ターゲットの背後を試料照射位置とすることが多い。従来、 α 粒子検出器は重陽子ビームに対し 90° 方向に設置されることが多かった^{8)~10)9)}。この角度に放射される α 粒子のエネルギーは重陽子のエネルギーに関係なくほぼ一定なので測定上の利点があるが、この α 粒子と重陽子ビーム方向に放射される14MeV中性子とは相関がないので、この α 粒子の測定では放射化に役立っている14MeV中性子束を正確にモニターしているとはいえない、照射位置が重陽子ビーム延長上にある場合、 α 粒子検出器は重陽子ビーム上にあれば相関性のある α 粒子を測定できるはずであるが、実際上は不可能であるので、できるだけその位置に近づける努力がなされている^{7), 10), 11)}。従来の検出器では比較的大型なので重陽子ビームの影響などから近づけることに制約が多かったが、半導体検出器は小型なのでより近づけることができる。

はじめに市販品と同様の構造の α 粒子検出部を作り検討した、この装置は半導体検出器とターゲットとの距離67cm、半導体検出器と重陽子ビームとの角度 177° で検出器を保護するためにタンタル板を用いた。この装置で測定した α 粒子の計数値と14MeV中性子発生量の間には一応の相関が見られたが、測定中に α 粒子スペクトルの形状の変化、ピークの移動、分解能の低下などが見られた。この現象は重陽子ビームの収束状態の良好でない場合に著しくほとんど測定不能になることもあった、したがってこの現象は検出器保護のためのタンタル板からの熱輻射および散乱または回折されてくる重陽子に原因するものと考えられる。

この現象を除くため新たな装置を作製した(Fig.1)。この装置は距離、角度は前の装置と同じであるが、延長管内に水冷ダクトを取りつけ、延長管とその間に検出器を設置し、熱影響その他の妨害を除くようにした。この検出部で測定した(T-d)反応で生成する3.5 MeVの α 粒子のスペクトルは長時間連続的に測定してもピークの位置の移動は $\pm 0.1\%$ 、FWHMの変化は $\pm 0.2\%$ であって以前の測定器より格段に改善された。また日をおいて測定した場合の再現性も同程度であった。

Fig. 1 Cross section of α particle detector assembly.

1. α particle detector	2. HV BNC connector
3. water cooled jacket	4. d^+ beam from ion source
5. to ^3H target	6. d^+ drifting tube
7. water inlet	8. water outlet

3.2 α 粒子発生量と α 粒子スペクトルに対する重陽子加速電圧の影響

(T-d)反応の最大断面積は重陽子エネルギーが107keVにあるが^{13)~15)}、厚い ^3H ターゲットを使用するときは500keVぐらいまでは重陽子エネルギーの上昇に伴って14MeV中性子および α 粒子の発生量が増加する¹⁶⁾。実験的には重陽子加速電圧160kVでは40kVの38倍に達した。

また、 α 粒子と重陽子加速電圧の関係を計算し¹⁷⁾、実験的に測定した α 粒子スペクトルの主ピークの位置と重陽子加速電圧の関係をみた。ピーク位置と計算で求めた α 粒子エネルギー間には良い直線が得られた。

また、主ピークより高エネルギー側に弱い二、三のピークが

Fig. 2. α particle spectrum.
 ●: experimental,
 ○: estimated by normal distribution,
 —: residual spectrum.

見られた (Fig. 2)。この高エネルギーの部分は重陽子の励起状態が不良なときに相対的に増加する。したがってこの部分は重陽子の分子イオンの反応によって生成する α 粒子であると推測される。

3.3 α 粒子計数による放射化分析結果の補正

^3H ターゲットは重陽子照射によって (T-d) 反応による消耗、発熱による三重水素化チタンの分解、熱拡散によって重陽子照射部位の ^3H 濃度が減少し、14MeV 中性子発生量が徐々に減少する。

これは 14MeV 中性子放射化分析法の精度向上を妨げる原因の一つである。この改善のために多くの方法が考えられているが、積算 α 粒子計数値で放射化法によって生成する放射性核種の量を補正して一定の値が得られるか否かを確かめた。

照射時間が生成放射性核種の半減期の 1/10 くらいまでならば 14MeV 中性子束が大きく変動しても、平均の 14MeV 中性子束で照射したとする場合の結果との差はほぼ統計的な変動内におさまる。一方照射時間があまりに短いときは試料の照射位置への到着の検出の誤差やビームシャッターの動作の遅れの影響が大きくなるので照射時間は 15 秒と定めた。これから決まる生

成放射性核種の半減期、被放射化核種の存在比、放射化断面積、生成放射性核種の γ 線の線質などを考慮に入れて、ケイ素を検討に用いた。ケイ素からは $^{28}\text{Si}(n, p)$ 反応で ^{28}Al を生成する。ケイ素からは ^{28}Al の測定を妨害する放射性核種の生成はないが、共存する酸素の $^{16}\text{O}(n, p)$ 反応で生成する ^{16}N の γ 線の妨害があるので、その完全な壊変を待ため、2 分間冷却後、1 分間 γ 線スペクトルを測定し、 ^{28}Al の 1.78MeV の γ 線の光電ピークの計数値を TPA 法で求め、 α 粒子の積算計数値で補正した。基準とした α 粒子の計数値は α 粒子の発生数を $10^{10}/\text{s}/4\pi \text{ sterad}$ としたとき α 粒子検出器の設置位置から幾何学的効率を計算して求めた値を用いた。

一定重陽子加速電圧で実験した結果、 ^3H ターゲットの消耗に伴い ^{28}Al の計数値は減少し、補正係数は 0.6 から 1.5 まで変化した。補正後の計数値の変動係数は 3.38% にすることができた。

また故意に重陽子加速電圧を 40kV から 180kV まで変化した場合には補正係数は 80 から 0.3 まで大幅に変化した。この場合もあまりに補正係数が大きい場合を除くと補正後の計数値の変動係数は 5.50% までにする事ができた。

4. 結 語

14MeV 中性子放射化分析法の精度向上のため、同時に発生する α 粒子を真空系内に設置した半導体検出器で測定し、その積算値で 14MeV 中性子の変動を補正する方式を検討した。

従来の方式の α 粒子検出器では重陽子ビームからの保護に用いているしゃへい板からの熱輻射のためほとんど測定不能になることもあったが、真空系内に水冷ダクトを設け、 α 粒子検出器を防護するようにした結果、 α 粒子スペクトルの形、分解能、ピークの位置などについて良好な再現性を得ることができた。

重陽子加速電圧を変えることによる α 粒子スペクトルのピークの移動は計算によるものと良く一致した。また分解能は重陽子加速電圧を上げることで低下することが認められた。

$^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ 反応を例として、この装置で測定した α 粒子の計数値で補正をおこなう方法を検討した結果 14MeV 中性子の発生量が大幅に変化しても、それぞれの計数値の統計的な変動を考慮に入れば、満足な結果を得ることができた。

装置の製作に協力された本研究所技術課試作係に感

謝する。

(第十三回理工学における同位元素研究発表会において発表)

文 献

- 1) F.A. Iddings: *Anal. Chim. Acta*, **31**, 206 (1964)
- 2) P.J. Mathew, K.P. Pohl: *ibid.*, **51**, 336(1970)
- 3) E.B. Paul, R.L. Clarke: *Can. J. Phys.*, **31**, 267 (1953)
- 4) M.E. Battat, F.L. Ribe: *Phys. Rev.*, **89**, 80 (1953)
- 5) A.V. Cohen, P.H. White: *Nucl. Phys.*, **1**, 73 (1956)
- 6) A.V. Cohen, S.B. Hyder, P.H. White: *ibid.*, **1**, 278 (1956)
- 7) J.P. Connor: *Phys. Rev.*, **109**, 1268 (1958)
- 8) S. Yasumi: *J. Phys. Soc. Japan*, **12**, 443 (1957)
- 9) E. Remy, K. Winter: *Nuovo Cimento*, **9**, 664 (1958)
- 10) W.E. Kreger, B.D. Kern: *Phys. Rev.*, **113**, 890 (1959)
- 11) D. Crumpton, A.J. Cox, P.N. Cooper, P.E. Francis, S.E. Hunt: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **31**, 1 (1969)
- 12) S.J. Bame, Jr., J.E. Perry, Jr.: *Phys. Rev.*, **107**, 1616 (1957)
- 13) H.V. Argo, R.F. Taschek, H.M. Agnew, A. Hemmedinger, W.T. Leland: *ibid.*, **87**, 612 (1952)
- 14) J.P. Cooper, T.W. Bonnor, J.R. Smith: *ibid.*, **88**, 468 (1952)
- 15) W.A. Arnold, J.A. Phillips, G.A. Sawyer, E. J. Stovall, J.L. Tuck: *ibid.*, **93**, 483 (1954)
- 16) S.S. Nargolwalla, E.P. Przybylowicz: "Activation Analysis with Neutron Generator", J. Wiley & Sons, N.Y. (1973)
- 17) J.B. Marion, F.C. Young: "Nuclear Reaction Analysis", North Holland, Amsterdam (1968)