

# タンデム加速器を用いた PSD能力を有したLi含有液体シンチレータの消光係数に関する研究

川端 孝弥\* 中島 恭平\*\* 玉川 洋一\*\* 鈴木 耕拓\*\*\* 小栗 廉太郎\*

## Study on quenching factors of Li loaded liquid scintillator with PSD using a tandem accelerator

Atsuya KAWABATA\*, Kyohei NAKAJIMA\*\*, Yoichi TAMAGAWA\*\*,  
Kohtaku SUZUKI\*\*\* and Rentaro OGURI\*

(Received January 13, 2022)

We developed a Li loaded liquid scintillator (LiLS) with Pulse Shape Discrimination (PSD). In order to observe the  $\alpha$ -ray and tritium from the neutron capture reaction of  ${}^6\text{Li}$ , the quenching factor of  $\alpha$ -ray and proton beam were measured using the tandem accelerator at The Wakasa Wan Energy Research Center. In this paper, we report on the measurement method and results of quenching factors of liquid scintillator.

**Key Words** : Li loaded liquid scintillator, quenching factor, accelerator, reactor neutrino monitor

### 1. 緒言

我々の研究グループは、原子炉ニュートリノモニター開発に向けた基礎研究に取り組んでいる。原子炉運転時に発生する核分裂生成物は $\beta$ 崩壊の際に透過率の高い反電子型ニュートリノを放出する。原子炉ニュートリノモニターとは、この反電子型ニュートリノのエネルギー分布や数を観測することで、原子炉稼働状況や燃料組成を遠隔よりモニタリングする装置である。

我々は原子炉ニュートリノモニターで最も重要な反電子型ニュートリノ検出に用いられる液体シンチレータの開発に向けた研究を行っている。反電子型ニュートリノ検出には逆 $\beta$ 崩壊反応を利用する。逆 $\beta$ 崩壊反応の際に放出する中性子を効率よく観測するために液体シンチレータ内にLiを添加し、さらに波形弁別能を付与したLi含有液体シンチレータ

(LiLS)の開発に成功した。

現在は開発したLiLSの特性評価を行っている。特性評価の中には、発光量、透過率、波形弁別能の他に消光係数を評価する必要がある。 ${}^6\text{Li}$ が中性子を捕獲した際に放出する $\alpha$ 線・トリチウムは電離消光の効果により、観測エネルギーが小さくなる。そのため、中性子捕獲反応を観測するにはLiLSの消光係数を調査する必要がある。今回は若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器を用いて消光係数測定を行ったが、使用したタンデム加速器の仕様上、粒子の照射口は横向きであった。そのため、LiLSを測定する際には横から打ち出される $\alpha$ 線および陽子線を測定する必要があった。通常、LiLSの横側に粒子の照射口のための穴を開けると液体がこぼれ出てしまう。そのため、今回は専用の検出容器を作製した。

本論文では、加速器において粒子の照射口が横向きであっても液体シンチレータといった液体の検出器の測定を可能にする検出容器の作製から測定方法について示し、測定で得られた $\alpha$ 線および陽子線の消光係数のエネルギー依存性について報告する。

### 2. 背景

#### 2.1 研究背景

原子炉ニュートリノモニターはニュートリノの特性を活かした技術の一つであり、原子炉運転時に発

\* 大学院工学研究科安全社会基盤工学専攻

\*\* 原子力安全工学講座

\*\*\* 若狭湾エネルギー研究センター

\* System and Infrastructure Engineering for Safe and Sustainable Society, Graduate School of Engineering

\*\* Department of Nuclear Safety Engineering, Faculty of Engineering

\*\*\* The Wakasa Wan Energy Research Center

生する透過率の高い反電子型ニュートリノを観測することによって原子炉内部の稼働状況や燃料組成をモニタリングする技術である。従来の方法は原子炉を停止した後、燃料を取り出し、解体し、調べることで内部の組成を検証する。これは組成が判明するまでに時間がかかり、放射線による被ばくの観点からも危険が伴う。原子炉運転時に発生する核分裂生成物の $\beta$ 崩壊の際に放出される反電子型ニュートリノは透過率が高いという特徴を持つ。そのため透過率が高いという特徴を活かして、原子炉建屋外から遠隔で反電子型ニュートリノを観測することが可能になる。反電子型ニュートリノの数やエネルギー分布を詳細に取得することができれば、原子炉建屋外からでも原子炉の稼働状況や燃料組成をリアルタイムで特定することができる。

原子炉ニュートリノモニターという技術は、従来の時間と手間のかかる工程を省略するだけでなく、本来の運転計画に対して運転状況が正しいかを瞬時に判断することができる。これにより原子炉の兵器転用防止や、原子力発電所の事故防止に役立つことが期待されている<sup>[4]</sup>。

## 2.2 Li含有液体シンチレータ

### 2.2.1 シンチレーション検出器

物質を構成する原子内の電子が放射線のエネルギーによって励起準位や伝導帯に励起された後、基底状態に戻るときにそのエネルギー差が光（電磁波）として放出される。この光をシンチレーションと呼ぶ。シンチレーションを出す蛍光体をシンチレータという。シンチレータは主に、無機シンチレータと有機シンチレータがある。

無機シンチレータは、原子番号の大きい元素を用いられることが多い。代表としてNaI(Tl)シンチレータがある。無機シンチレータの特徴としては $\gamma$ 線の全エネルギー吸収ピークを検出しやすく、高い発光量を得られるため、エネルギー分解能が良い。

有機シンチレータは、炭素や水素を多く含む物質で構成される。アントラセン、トランススチルベンなどの結晶や液体、プラスチックなど多くの種類が存在する。主な構成元素が、炭素や水素等の原子番号が小さいので、 $\gamma$ 線に対してほとんど光電効果を起こさないため、全エネルギー吸収ピークを形成しない。 $\gamma$ 線のほとんどが有機シンチレータ内でコンプトン散乱を起こす。無機シンチレータとは異なり、減衰時間が数 ns であるため高い計数率で使用できるのが特徴である。

本研究では、逆 $\beta$ 崩壊反応を利用して反電子型ニュートリノを検出するため、水素を多く含んだ有機

シンチレータを使用する。有機シンチレータには主に液体シンチレータとプラスチックシンチレータがあるが、本研究では液体シンチレータを使用する。液体シンチレータのメリットは、液体に添加物を添加しやすく必要な性能のシンチレータの開発が容易であること、プラスチックシンチレータに対して安価な点がある。しかし、使用する溶媒は油なので取り扱いに注意が必要である。

### 2.2.2 反電子型ニュートリノの検出

逆 $\beta$ 崩壊反応を利用して、反電子型ニュートリノを検出する。反応式(1)に逆 $\beta$ 崩壊反応を示す。反電子型ニュートリノと液体シンチレータ内の陽子が逆 $\beta$ 崩壊反応を起こすことによって、陽電子と中性子が発生する。

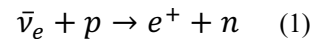


図1にLiLS内における反電子型ニュートリノ検出の模式図を示した。逆 $\beta$ 崩壊反応後、放出された陽電子はLiLS内でエネルギーを落としていきながら、最終的に電子と対消滅し、511 keVのエネルギーを持つ $\gamma$ 線を2本放出する。これを先発事象とする。中性子は検出器内で熱化し、最終的にLiLSに添加した ${}^6\text{Li}$ に捕獲され、中性子捕獲反応である $\alpha$ 線・トリチウム（合計4.78 MeV）を放出する。これを後発事象とする。

先発事象と後発事象の時間差は約数十 $\mu\text{s}$ であり、この時間相関を利用することで反電子型ニュートリノを観測する。先発事象と後発事象の時間差を利用し、時間相関のないバックグラウンド事象を排除する方法を遅延同時計測法という。この先発事象と後発事象の時間差はLi濃度によって変化する。

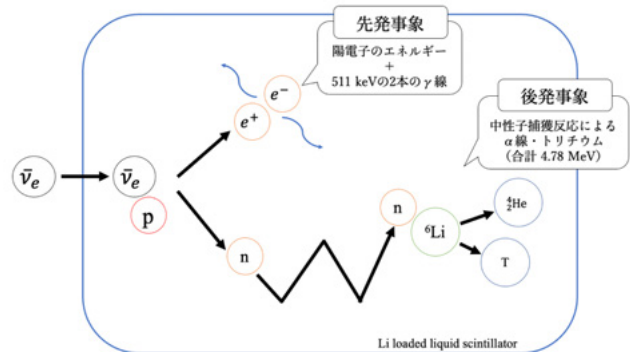


図1. LiLS内での反電子型ニュートリノ検出の模式図

### 2.2.3 消光

シンチレータでは、何らかの原因により蛍光強度が減少もしくは消失する現象が起こる。これを消光、あるいはクエンチング(Quenching)という。消光は、原因により区別される。代表的なものには電離消光、

温度消光，不純物消光，濃度消光がある．本研究で扱う消光は主に電離消光と呼ばれるものである．

#### 2.2.4 消光係数

入射エネルギー（Incident Energy）と観測エネルギー（Observed Energy）との間の係数は消光係数（Quenching Factor）と呼ばれる．式（2）に消光係数の計算式を示す．消光係数は入射エネルギーに依存する．消光係数が分かれば，様々な観測エネルギーから入射エネルギーが計算可能になる．

本研究では，入射エネルギーを後述するモンテカルロシミュレーションソフトである TRIM の結果より得られたエネルギー，観測エネルギーを LiLS で観測したエネルギーとした．

$$\text{Quenching Factor} = \frac{\text{Observed Energy}}{\text{Incident Energy}} \quad (2)$$

### 2.3 加速器

#### 2.3.1 加速器とは<sup>[2]</sup>

加速器とは，電子や陽子などの粒子を光の速度近くまで加速して高いエネルギーの状態を作り出す装置である．

高いエネルギーの粒子を使った研究は大きく分けて二つある．一つ目は高エネルギーの粒子を衝突させ，宇宙誕生時に多数存在した粒子を発生させて反応を調査したり，ニュートリノを発生させ，振る舞いを調べたりする研究などである．これらはいずれも物質を細かく分けていくと何から出来ているのかなど，物質の根源や宇宙誕生時の物質の起源にせまる謎を解明してくれる基礎科学研究である．二つ目は高エネルギー粒子が曲がるときに放つ強力な光や，粒子の衝突反応から生まれるミューオンや中性子といった粒子を用いることで，物質の極微の世界の構造を調べる研究である．このような研究は，タンパク質の立体構造や薬品の新素材の開発研究につながる基礎科学研究である．

#### 2.3.2 若狭湾エネルギー研究センターの加速器<sup>[3]</sup>

本研究では，福井県敦賀市に所在する実験施設若狭湾エネルギー研究センターを使用した．若狭湾エネルギー研究センターには多目的シンクロトロン・タンデム加速器（W-MAST）が設置してあり，タンデム加速器とシンクロトロンでの測定が可能である．タンデム加速器では，最大 500 万ボルトの高電圧により最高で光の速度の約 14%，およそ秒速 4 万 km まで加速することが可能である．シンクロトロンでは，陽子を最高で 2 億ボルト（200 MeV），光の速度の約 60%，およそ秒速 18 万 km まで加速することができる．本測定ではタンデム加速器を使用

して， $\alpha$  線及び陽子線の消光係数測定を行った．図 2 に W-MAST の外観図を示す．また，図 3 に測定を行った加速器の照射口が設置されているチェンバーの様子を示す．図 3 のように加速器からの照射口が横向きなので今回の測定のように液体シンチレータのような液体の検出器での測定には工夫が必要である．



図 2. 多目的シンクロトロン・タンデム加速器本測定においてはタンデム加速器から発生する  $\alpha$  線および陽子線を測定した．また，測定は照射室 1 にて行った．

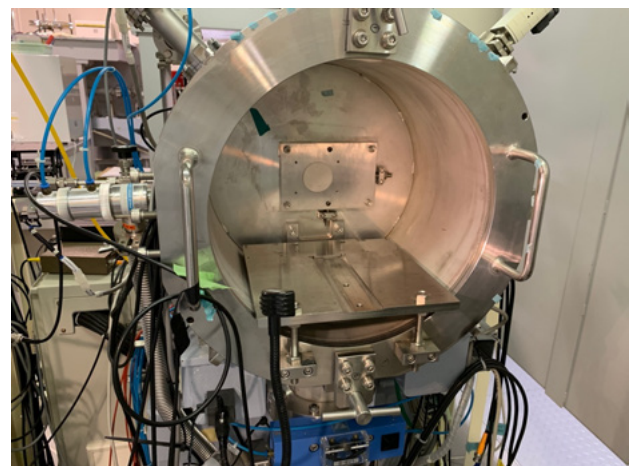


図 3. 使用した加速器のチェンバーの様子．チェンバー奥に見える小さい円が加速器より発生した粒子の照射口となる．

### 3. 研究目的

若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器を用いて液体シンチレータといった液体の検出器を用いた際の $\alpha$ 線および陽子線の測定を行う方法を検討する。また我々の研究グループで開発したLiLSの消光係数測定を行うことで ${}^6\text{Li}$ の中性子捕獲により放出される $\alpha$ 線・トリチウムの観測エネルギーを予測する。

### 4. 検出器

#### 4.1 波形弁別能を有したLi含有液体シンチレータ

今回使用したLiLSはLi 0.1wt%の濃度で溶けている液体シンチレータになる<sup>4)</sup>。表1に詳細な材料の混合比を示した。

表1. 測定に使用したLiLSの材料組成  
サンプル全体が100gの場合の組成である。

材量	分量
LAB	66.0 g
界面活性剤	20.1 g
LiCl 水溶液	3.7 g
PPO	0.35 g
Bis-MSB	35.0 mg
Ultima Gold F	10.0 g

#### 4.2 検出器の作製

図4に加速器の照射部分に光電子増倍管(PMT)を設置し、測定する際の配置を示す。図3、図4のとおり照射口は横を向いており、検出器を横に置く必要があることが分かる。照射する粒子は $\alpha$ 線と陽子線であり、これらの粒子は飛程が短いため、LiLSに直接粒子を入射させる必要がある。そのため、測定を行う際の検出器には工夫を施す必要がある。今回はシャーレを用いて、検出器を横にしても液体の表面張力によって液体が漏れない検出器の作製に取り組んだ。

図5に検出器の材料を示す。検出器の本体になるのはシャーレであり、深さ1.5cm、直径6cmである。シャーレのふたには厚さ0.5mmのアルミ板を使用した。シャーレとアルミ板を接着するために二液式接着剤を使用した。また、反射材にはテフロンテープとアルミホイルを使用した。

図6に検出器の設計図を示す。図6の通り、アルミ板には直径3mmの穴を2種類開けた。その後、直径3.5mmのドリルで穴をならすことにより、穴が滑らかになるように工夫し、発光した際に光が反

射しないようにした。2種類穴を開けた理由は、アルミ板中央の穴は粒子の入射口になるが、もう1種類の穴はLiLSを注入した際に検出器内にたまる空気を逃がすためである。この穴を作製することにより、検出器内をLiLSで満たすことができる。

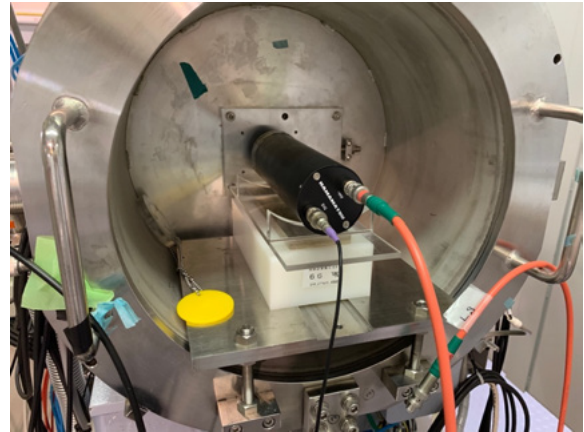


図4. 測定を行う際の配置図

PMTを横に配置するため、検出器も横にする必要がある。

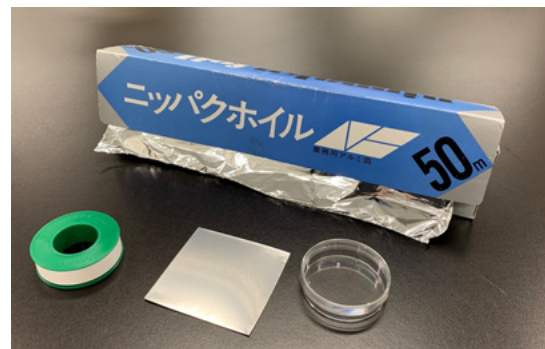
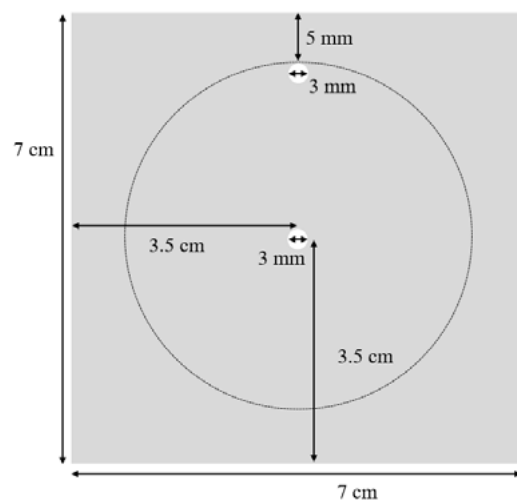


図5. 検出器の材料

奥に見えるのがアルミホイルであり、手前は左からテフロンテープ、アルミ板、シャーレである。



—: シャーレを設置する位置

図6. 検出器の設計図

7 cm × 7 cmのアルミ板に直径3 mmの穴を2箇所開けた。

こうして作製できた検出容器は LiLS を入れた状態で横にしても、粒子の入射口から LiLS があふれることもなく、測定を行うことができた。

## 5. 測定と結果

入射した  $\alpha$  線は 2 MeV~5 MeV、陽子線は 1.4 MeV~3.4 MeV の範囲で測定を行った。

消光係数を求めるには、粒子が LiLS に到達した際のエネルギー（入射エネルギー）と LiLS で観測したエネルギー（観測エネルギー）を知る必要がある。今回の測定では観測エネルギーは、LiLS で観測したエネルギースペクトルからガウス関数でフィッティングすることにより求めた。入射エネルギーは TRIM というシミュレーションソフトを使用することによって、入射エネルギーを見積もり、計算した。

### 5.1 TRIM

加速器からの荷電粒子は真空状態の輸送ラインを進行し、厚さ 200 nm のシリコンを通過し、大気中に取り出される。粒子は LiLS に入射するまでにシリコンと大気でエネルギー損失を受ける。この影響を考慮するため、阻止能  $dE/dx$  のデータベース SRIM-2013<sup>[5]</sup> に付随する TRIM というモンテカルロシミュレーションを用いた。

TRIM において、測定条件を指定し、モンテカルロシミュレーションを実行するとエネルギースペクトルを得ることができる。この結果にガウス関数でフィッティングを行うことによって、平均値を入射エネルギーとした。表 2 に今回測定を行った加速器で発生させた粒子の種類およびエネルギー、TRIM で求めた入射エネルギーを示す。加速器で発生させた粒子のエネルギーはビーム調整の結果を使用している。

表 2. 加速器で発生させた粒子の種類とエネルギーおよび TRIM で求めた入射エネルギー

粒子の種類	発生エネルギー [MeV]	入射エネルギー [MeV]
alpha	5.00	4.87
alpha	4.00	3.84
alpha	3.50	3.33
alpha	3.00	2.81
alpha	2.50	2.29
alpha	2.00	1.76
proton	3.40	3.38
proton	2.40	2.38
proton	1.90	1.87
proton	1.40	1.37

### 5.2 消光係数測定

加速器で発生した粒子は LiLS にて検出を行った。PMT より得られた光信号は CAEN 社製 FADC V1730 (14bit,500MS/s) にて保存した。LiLS は  $\gamma$  線源である  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$  のコンプトンエッジを用いてエネルギー較正を行った。図 7 に 5 MeV の  $\alpha$  線を測定した際に得られたエネルギースペクトルを示す。図 7 に示すように得られたエネルギースペクトルにはガウス関数でフィッティングを行い、平均値を今回の LiLS で得られた観測エネルギーとして評価を行った。

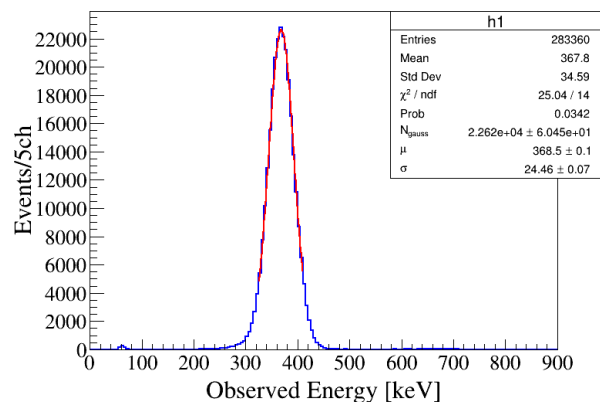


図 7. 5 MeV の  $\alpha$  線で得られたエネルギースペクトル

(青：エネルギースペクトル，赤：観測エネルギーを求めるためにフィッティングしたガウス関数)

## 6. 結果と考察

図 8、図 9 に 5.1 節、5.2 節で求めた入射エネルギー、観測エネルギーを用いて式 (2) より求めた  $\alpha$  線および陽子線の消光係数を示す。今回作製した検出容器を用いることにより、図 8、図 9 に示すように  $\alpha$  線および陽子線の消光係数のエネルギー依存性が確認することができた。これらの結果より、 $^6\text{Li}$  の中性子捕獲反応による  $\alpha$  線・トリチウムはおよそ 1/10 である 500 keV 相当に確認できる。

今後は、入射エネルギーを表面障壁型 Si 半導体検出器 (SSD) にて測定した値を用いた消光係数の見積もり、また実験データに沿うような半経験的手法が Birks によって提案されており<sup>[6,7]</sup>、この理論を用いて異なる粒子においても消光係数を見積もることができるようにすることが必要である。また、今回は加速器を用いた外部照射による消光係数のエネルギー依存性を確認したが、内部崩壊による消光係数の見積もりも必要である。

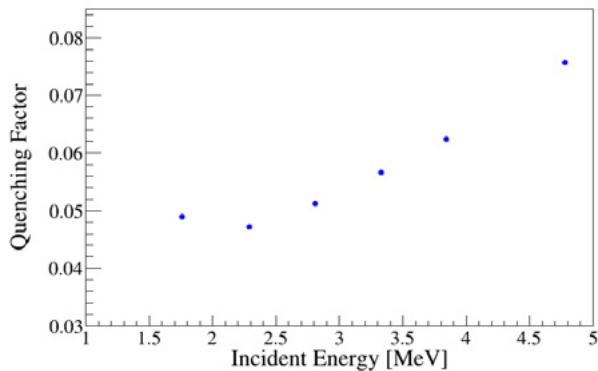


図 8.  $\alpha$  線の消光係数のエネルギー依存性

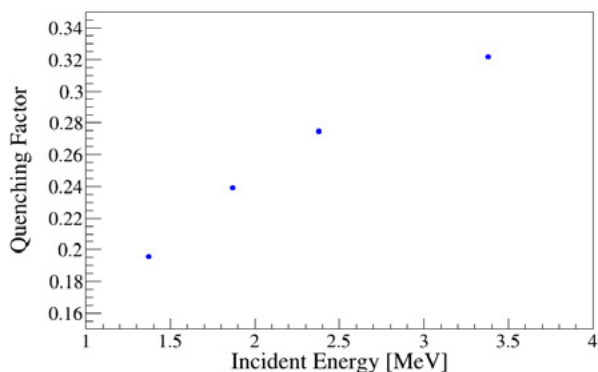


図 9. 陽子線の消光係数のエネルギー依存性

## 7. まとめ

我々の研究グループでは原子炉ニュートリノモニターの開発に取り組んでいる。原子炉ニュートリノモニターは原子炉運転時に発生する核分裂生成物の $\beta$ 崩壊の際に放出される反電子型ニュートリノを観測することにより、原子炉内部を遠隔よりモニタリングする技術である。反電子型ニュートリノは逆 $\beta$ 崩壊反応を利用することによって検出を行う。そのため、有機シンチレータは水素を含み、特に液体シンチレータは水素量が多いことから検出器として適している。我々は中性子捕獲反応によって $\alpha$ 線・トリチウムを放出し、反電子型ニュートリノ検出に貢献が期待できる ${}^6\text{Li}$ を添加した液体シンチレータ(LiLS)の開発に成功した。

そこでLiLSの特性として、加速器を用いた消光係数の測定を行った。福井県敦賀市に所在する実験施設 若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器を用いて、 $\alpha$ 線および陽子線の消光係数のエネルギー依存性を調査した。今回使用した加速器はビームの照射口が横向きになっているため、そのまま検出容器を横にしてしまうとLiLSがこぼれてしまう。そのため、専用の検出容器の作製をした。その結果、ビームの照射口が横向きでも液体シンチレータとい

った液体の検出器でも測定ができることを証明した。また、得られた結果より、LiLSの $\alpha$ 線および陽子線の消光係数のエネルギー依存性について確認することができた。

今後は入射エネルギーを測定することができるSSDの結果を用いた消光係数のエネルギー依存性を評価し、Birksが提案した半経験的手法を用いて異なる粒子でも消光係数を見積もることができるようにすることが必要である。また、今回は加速器を用いた外部照射による消光係数の測定を行ったため、内部崩壊による消光係数の測定を行うことが重要になる。

## 参考文献

1. Final Reports: Focused Workshop on Antineutrino Detection for Safeguards Applications, 28-30 October 2008 IAEA Headquarters, Vienna.
2. 総合研究大学院大学 高エネルギー加速器科学研究科加速器科学専攻ホームページ  
<https://www2.kek.jp/accl/sokendai/kasokuki.html>, 2022.01.03 閲覧
3. 公益財団法人 若狭湾エネルギー研究センターホームページ  
<http://www.werc.or.jp/outline/shisetsu/kasokuki/>, 2022.01.03 閲覧
4. 川端孝弥, 増井友哉, 中島恭平, 玉川洋一, 鈴木耕拓, 「原子炉ニュートリノモニター開発に向けた PSD 能力を有した Li 含有液体シンチレータの発光特性評価」, 福井大学学術研究院工学系部門研究報告, 2021.10, vol.70.2
5. J.F. Ziegler, J.P. Biersack, M.D. Ziegler, <http://www.srim.org>, 2022.01.03 閲覧
6. J.B. Birks, Phys. Rev. 84 (1951) 364.
7. J.B. Birks, Phys. Rev. 86 (1952) 569.