HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	冷減速材内の時間依存中性子スペクトルの研究
Author(s)	大友, 詔雄; 井上, 和彦
Citation	北海道大學工學部研究報告, 64, 63-70
Issue Date	1972-03-30
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/41086
Type	bulletin (article)
File Information	64_63-70.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

冷減速材内の時間依存中性子スペクトルの研究

大友詔雄* 井上和彦*

(昭和46年11月30日受理)

On the Time-dependent Neutron Spectra from Very Cold Moderators

Norio OTOMO Kazuhiko INOUE

Department of Atomic Engineering, Faculty of Engineering
Hokkaido University, Sapporo, Japan

(Received November 30, 1971)

Abstract

The time-dependent multi-group transport equation has been solved analytically in the given small time intervall and the solution at any time can be obtained by the iterative procedure. Using this method the time behaviour of the cold neutron pulses injected into the cold moderators has been studied. For light water ice and solid methane at very low temperatures, the results of the calculation are in good agreement with the results of the pulsed neutron experiments in the whole region provided that the time-of-flight effect is considered.

1. 序　　言

冷中性子は，凝集体の原子運動の研究に対する有用な道具として利用されようとしている[1]。この冷中性子による中性子分光の目的のためには，大きな強度で，かつ中性子分光に適切な時間巾を持つパルス状冷中性子源を実現する必要がある。これまでには，冷中性子源に用いられる冷減速材としては，原子炉では経験的に液体水素が主に用いられているが，加速器においては固体メタンが有望であると予想される[2,3]。原子炉で冷中性子を発生させる場合には，一般に，定常的冷中性子源となり，加速器を利用する場合には，本質的にパルス状中性子として発生させなければならない。したがって，後者の場合には，冷減速材内の冷中性子の時間的振舞いに関する充分な理解が必要になる。

これまでに，冷中性子束の強度を増す試み，あるいはそれに関連した研究が或る程度行なわれており，パルス状冷中性子の時間的挙動を調べた研究も二，三行なわれている。Reichardt[4] は，軽水氷内の冷中性子パルスの減衰の測定を行ない，その結果を理論計算の結果と比較している。彼の方法では，時間依存の熱化方程式の形式解を演算子を用いて求め，それを級数展開して有限項で切って，時間依存中性子スペクトルを求めている。又 Tewari と Kothari[5] は，273°K～21°K の軽水氷についての冷中性子パルスの減衰について，理論的な検討を行っている。この仕事では，時間依存の熱化方程式を，多群固有関数展開法によって解いている。しかしいずれの研究でも，時間の速い過渡領域については殆んど触れられておらず，また対象とした冷減速材が軽

* 原子工学科放射線源工学講座

水氷に限られている。

含水素減速材内では，速中性子が減速して熱中性子エネルギー領域の上限に達するまでに，通常数 μS 程度の減速時間を要する。この時間は，水素の化学結合の状態にはあまりよらない。常温の減速材では，上記の減速した中性子が熱化して，さらに引きつづいて減衰する特性時間は数10ないし200 μS 程度に達する。水素を含む冷減速材では，当然，速中性子の減速時間が若干長くなり，さらに熱化と減衰の特性時間は，常温減速材に比べて，一般にさらに長くなる傾向にある。また水素の化学結合の差異に応じて，冷中性子のエネルギー分布，あちいは時間的挙動に差が生じる。これらの事情は，冷減速材の熱および冷中性子に対する散乱断面積によって左右される。この冷中性子パルスの特性は，冷中性子による中性子分光の実験精度に直接影響する大切な因子となる。この問題を明かにするためには冷中性子パルスの立ち上りの過渡部分から漸近部分の減衰の状態にわたって，時間依存の中性子スペクトルの性質を詳細に調べる必要がある。

本論文では，時間依存の多群熱化方程式を微少時間幅 Δt 間について解析的厳密に解き，この表式を用いて，Δt 時間後の解の値を計算する。非斉次の中性子スペクトル群については，Taylor 展開を行なう。この結果を用いて，再び次の微少時間幅について解を計算する。これを逐次反復することによって，任意の時間領域内の時間依存中性子スペクトルを求める。この方法を用いて，極低温における軽水氷及び固体メタン内の冷中性子束の時間的振舞いを，過渡領域から漸近領域にわたって調べる。さらに，この計算結果と実験との比較検討を行なう。

2. 基礎方程式と解法

一様な体系内における中性子スペクトル $\phi(E, t)$ に対する次の時間依存輸送方程式：

$$\frac{1}{v}\frac{\partial\phi(E,t)}{\partial t}+\Sigma_T(E)\phi(E,t)=\int_0^\infty \Sigma(E'\to E)\phi(E',t)dE'+S(E)\delta(t) \tag{2.1}$$

を考える。ここで，

$$\Sigma_T(E)=\Sigma_a(E)+\Sigma_S(E)+D(E)B^2$$

であり，$\Sigma_a(E)$ は，巨視的吸収断面積であり，低エネルギー領域では一般に $1/v$ に比例する場合が多い。$\Sigma_S(E)$ は，巨視的散乱断面積，$D(E)$ は拡散係数であり，B^2 は幾何学的バックリングであり，$\Sigma'(E\to E)$ は，巨視的非弾性散乱断面積である。$S(E)S(t)$ は，$t=0$ に体系内に打込まれた中性子源である。

エネルギーについて多群に分割して，そのi番目のエネルギー群に対する中性子束を $\phi_i(t)$ とすると，(2,1) 式の代りに次式を得る。

$$\frac{1}{v_i}\frac{d\phi_i(t)}{dt}+\Sigma_{Ti}\phi_i(t)=\sum_{k=1}^{I}\Sigma_{ik}\phi_k(t)+S_i\delta(t) \tag{2.2}$$

ここで，I はエネルギー群の総数である。演算子 $\boldsymbol{J}$, $\boldsymbol{J}'$ 及び係数 Σ_i' は次のように定義される。

$$[\boldsymbol{J}\phi]_i=\int_0^{E_i}\Sigma(E'\to E_i)\phi(E',t)dE'=\sum_{k=1}^{I}\Sigma_{ik}\phi_k(t) \tag{2.3}$$

$$[\boldsymbol{J}'\phi]_i=\sum_{k=1}^{I}\Sigma_{ik}\phi_k-\Sigma_{ii}\phi_i \tag{2.4}$$

$$\Sigma_i'=\Sigma_{Ti}-\Sigma_{ii} \tag{2.5}$$

(2.3)～(2.5) 式を用いると，(2.2) は次のように書きかえられる。

$$\frac{d\phi_i(t)}{dt}+v_i\Sigma_i'\phi_i(t)=v_i[\boldsymbol{J}'\phi]_i+v_iS_i\delta(t) \tag{2.6}$$

(2.4) 式からわかるように，$[\boldsymbol{J}'\phi]_i$ は露わには ϕ_i を含んでいないから，(2.5) 式を，右辺を非斉

次項とした $\phi_i(t)$ に関する定数係数一階非斉次線形常微分方程式と見なすことができる。$[\boldsymbol{J}'\phi]_i$ がもし既知であれば，方程式は初期条件が与えられれば，容易に解かれる。時間 t_ν の解 $\{\phi_i^{(\nu)}\}$ の組を初期値として，時間 $t_{\nu+1}$ における解は次式で得られる。

$$\phi_i^{(\nu+1)}(\Delta t_\nu)=e^{-v_i\Sigma_i'\Delta t_\nu}\left\{\phi_i^{(\nu)}+\int_0^{\Delta t_\nu}e^{v_i\Sigma_i'i'}v_i[\boldsymbol{J}'\phi]_i dt'+v_iS_i\delta_{\nu,0}\right\} \tag{2.7}$$

ここで，$\Delta t_\nu=t_{\nu+1}-t_\nu$ である。実際には，$[\boldsymbol{J}'\phi]_i$ は既知ではないから，ϕ を $t=t_\nu$ のまわりで Taylor 展開する。

$$\phi(t)=\phi^{(\nu)}+(t-t_\nu)\left[\frac{d\phi}{dt}\right]_{t=t_\nu}+\cdots\cdots \tag{2.8}$$

$t\neq 0$ では (2.6) 式から

$$\frac{d\phi_k}{dt}+v_k\Sigma_k'\phi_k=v_k[\boldsymbol{J}'\phi]_k \tag{2.9}$$

であるから，(2.8) と (2.9) 式を (2.7) 式に代入し積分を実行すると次式が得られる。

$$\phi_i^{(\nu+1)}(\Delta t_\nu)=\phi_i^{(\nu)}e^{-v_i\Sigma_i'\Delta t_\nu}+v_i[\boldsymbol{J}'\phi^{(\nu)}]\frac{1}{v_i\Sigma_i'}(1-e^{-v_i\Sigma_i'\Delta t_\nu})$$

$$+\left\{v_i[\boldsymbol{J}'[v\boldsymbol{J}'\phi^{(\nu)}]-v\Sigma'\phi^{(\nu)}]_i\right\}\frac{1}{v_i^2\Sigma_i'^2}\left\{v_i\Sigma_i'\Delta t_\nu-(1-e^{-v_i\Sigma_i'\Delta t_\nu})\right\}+\cdots\cdots \tag{2.10}$$

(2.10) 式の第一項は，その群の中で Δt_ν 時間内に吸収，散乱による i 群から除去される効果を示しており，第二項は，Δt_ν 時間内に他の群から i 群へ入ってくる効果であり，第三項以下は，さらに高次の効果を表わす。

この方法で採用した近似的方法は，エネルギーに関して多群近似を用いたこと，および (2.7) 式の積分計算を実行する際に，中性子束 ϕ をティラー展開したことにある。後者の処置に関しては，短時間内における中性子束の時間的変化が小さいという条件のもとでは適当な処置であり，展開の高次の項を含めてゆけば，(2.7) 式の解の精度は向上する。(2.10) 式の解は，その形から，或る次数までとった近似解に関し，その解の誤差を評価することが可能である。これに対して，Reichardt[4] や Tewari-Kothari[5] の方法では，それ自体では誤差を評価することが容易ではない。

(2.10) 式の最初の 2 項迄とって展開し，さらに変形すると，(2.6) 式を差分方程式におきかえて近似して得られた解：

$$\phi_i^{(\nu+1)}(\Delta t_\nu)=\phi_i^{(\nu)}\frac{2-v_i\Delta t_\nu\Sigma_i'}{2+v_i\Delta t_\nu\Sigma_i'}+[\boldsymbol{J}'\phi^{(\nu)}]_i\frac{2v_i\Delta t_\nu}{2+v_i\Delta t_\nu\Sigma_i'} \tag{2.11}$$

に等しくなる。差分方程式 (2.11) 式では，第一項の分子に $2-v_i\Delta t_\nu\Sigma_i'$ の形があらわれ，Δt_ν の大きさによって，あるエネルギー範囲をこえると第二項まで含めても，全体として中性子束が負になってしまう場合が生ずる。(2.11) の形の差分方程式ではしばしばこの種の困難が生じるが，(2.7) 式には，決してこうした不都合は起らない。

3. 冷減速材の散乱核

軽水氷および固体メタンはともに分子結晶であるが，冷減速材としての特性にはかなりの差異がある[2,3,6]。低エネルギー中性子から小量のエネルギーを奪う主な機構は，前者では格子振動であり，後者では分子回転である。両方の分子結晶とも原子運動を分子内振動，分子回転および格子振動にわけて考え，それぞれ独立であると仮定する。

軽 水 氷:

軽水氷では，簡単のために $T\to 0$ の極限について考える。軽水氷では固有振動のエネルギーが比較的高いために 20°～30°K 以下では，断面積が実質的に $T=0$ とおいた断面積と殆んど変らなくなる。以下の計算においては，次式の断面積を用いる[6]。

$$\sigma(E'\to E)=\sigma_b\frac{A}{4E'}\sum_{l,m}\frac{1}{l!\ m!}\left(\frac{3A}{2m_a\omega_a}\right)^l\left(\frac{A}{m_0\omega_0}\right)^m T_{l+m}(E',\ E)Q_{l,m}(\varepsilon)$$

ここで

$$\frac{1}{A}=\frac{3}{2m_a\omega_a}+\frac{1}{m_0\omega_0}$$

$$T_{l+m}(E',\ E)=\int_{(\sqrt{E'}-\sqrt{E})^2/A}^{(\sqrt{E'}+\sqrt{E})^2/A}t^{l+m}e^{-t}dt$$

$$Q_{l,m}(\varepsilon)=\frac{1}{\omega_a^{2l}}\int_0^{\omega_a}\cdots\int_0^{\omega_a}\delta\left(\varepsilon-m\omega_0-\sum_{i=1}^{l}\omega_i\right)\prod_{j=0}^{l}\omega_j d\omega_j$$

である。m_a と ω_a は音響学的分枝の実効質量と Debye 振動数であり，m_0 と ω_0 は光学的分枝の実効的質量と Einstein 振動数である。この模型では，格子振動すなわち音響学的分枝の振動数分布を Debye 分布で近似し，束縛回転と分子内振動すなわち光学的分枝を 1 つの振動数で代表している。この散乱模型によって，極低温氷内の冷中性子スペクトルの実験値をかなり良く説明することができる[6]。

次章の計算では，各パラメータの値として次のものを用いる。

$$\omega_a=0.016\ \mathrm{eV}$$
$$\omega_0=0.075\mathrm{eV}$$
$$m_a=18$$
$$m_0=2$$
$$\sigma_b=81\text{バーン}$$

固体メタン:

固体メタンによる中性子散乱を考えるに当って，メタン分子の回転が束縛されていることを考慮しなければならない[3]。低エネルギー中性子に対しては，球形こま分子の束縛回転を 3 次元等方調和振動子で近似した模型を用いる。やや高いエネルギー領域に対しては，Krieger と Nelkin の理論を用いる。

まず，前者のエネルギー領域における温度 T の固体メタンの微分散乱断面積は次式で与えられる[3]。

$$\sigma(E'\to E,\theta)=\frac{\sigma_b}{4\pi}\frac{k}{k_0}\exp\left\{-\frac{\kappa^2}{2\omega_r m_r}\coth\left(\frac{\omega_r}{2T}\right)\right\}e^{-\kappa^2\gamma}$$
$$\times\sum_{\nu=0}^{\infty}\sum_{n=-\infty}^{\infty}e^{-(n\omega_r/2T)}In\left(\frac{\kappa^2}{2\omega_r\sinh(\omega_r/2T)}\right)\frac{(\kappa^2\gamma_l)^\nu}{\nu!}Q_\nu(\varepsilon+n\omega_r)$$

ここで説明のない記号の意味は参考文献[3,6]のものと同じである。次に，後者のエネルギー領域に対しては，微分散乱断面積は次のようになる。

$$\sigma(E'\to E,\theta)=\frac{\sigma_b}{4\pi}\frac{k}{k_0}\left(\frac{\alpha}{2\pi T^*\kappa^2}\right)^{1/2}e^{-(\delta/2T)\varepsilon}\exp\left[-\frac{\alpha}{2T^*}\left(\frac{\varepsilon}{\kappa}-\frac{\kappa}{2\alpha}\right)^2\right]$$

この場合も記号については前と同様である。

次章の計算に用いた各パラメータの値は次の通りである。

$m_r=3.2$
$\omega_r=0.0015\,\mathrm{eV}$
$m_e=16$
$\omega_e=0.007\,\mathrm{eV}$
$m_\gamma=1.6$
$\omega_\gamma=0.17\,\mathrm{eV}$

4. 計算結果及び実験との比較

前章の軽水氷と固体メタンの散乱核を用いて，(2.10) 式から時間依存の中性子スペクトルを計

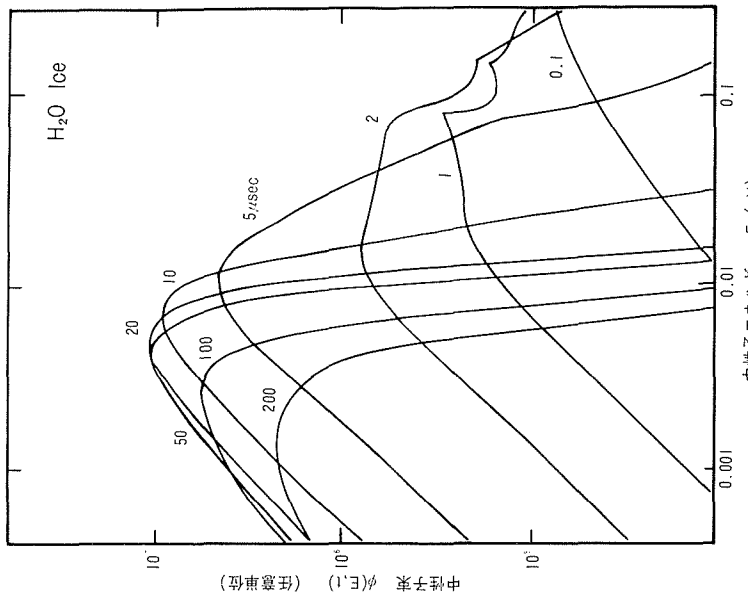

Fig. 1 軽水氷内の時間依存中性子スペクトル

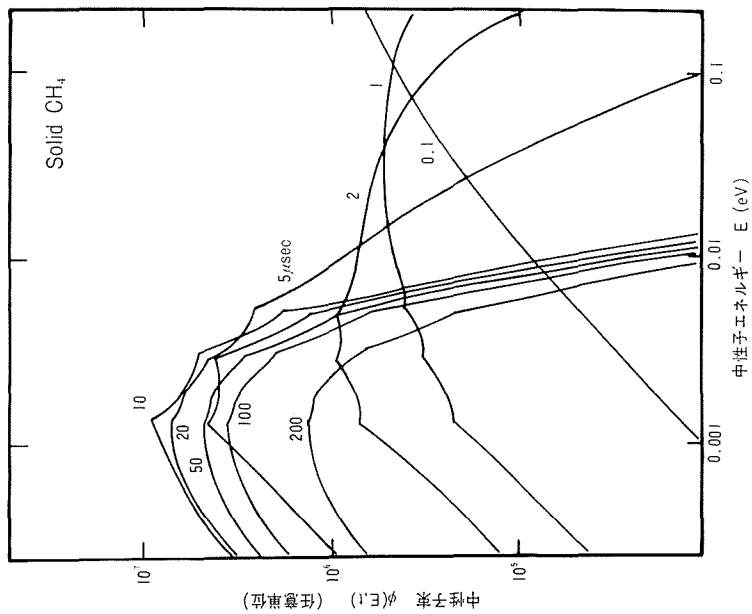

Fig. 2 固体メタン内の時間依存中性子スペクトル

算した。この計算では (2.10) 式の $\boldsymbol{J}'$ について1次までとった。Fig. 1 は軽氷水内の時間依存中性子スペクトルを示す。これは初期には分子振動の励起の影響を示すピークを0.075あるいは0.15 eV 付近にもった，特徴のある過渡スペクトルを形成し，10数 μS 程後に，ほとんどの中性子が0.01 eV 以下のエネルギーへ急速に減速し，その後，数100 μS あるいはそれ以上の長期間にわたり徐々にスペクトルのピークの位置を低エネルギー側へ移動させながら，全体としてはほぼ一定の形を保って減衰する。しかし，0°K の極限で軽水氷のモデルを考えているから，スペクトルは落ちつかない。

固体メタンでは，Fig. 2 に示すように，束縛回転励起の影響を0.0013 eV 付近に示すスペクトルが形成されているが，全体としての傾向は自由ガス模型の場合によく似た時間依存スペクトル

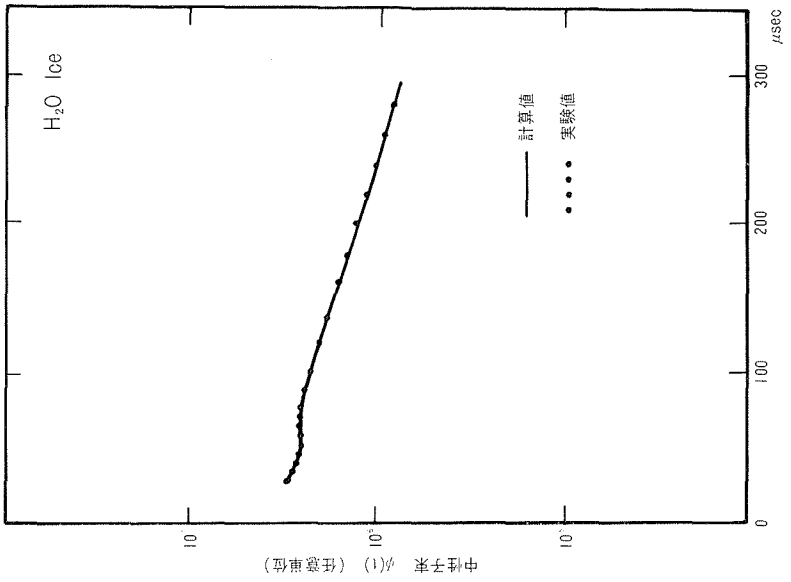

Fig. 3 冷中性子パルスの時間的減衰の理論と実験の比較

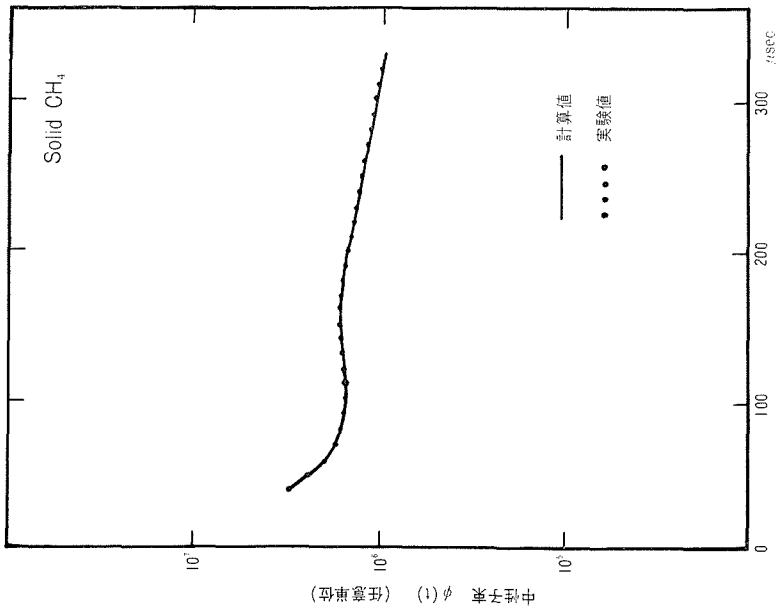

Fig. 4 冷中性子パルスの時間的減衰の理論と実験の比較

である。固体メタンの場合も，軽水氷と同様に，スペクトルのピークは10数 μS で急速に熱化領域に落ちこみ，その後，徐々にスペクトルが落ちつき，ほぼ一定の形のスペクトルで減衰する。この場合には，軽水氷の場合のように冷中性子スペクトルの位置が時間とともに明瞭に移動するようなことは見られない。

Fig. 3, 4 に，夫々軽水氷と固体メタンにおけるパルス中性子実験による値と[7]，理論計算で求めた減衰曲線を示してある。この場合に，理論計算では体系と検出器の間隔約 5.5 cm に対する中性子の飛行時間の影響を考慮し，検出器の計数効率の補正と，加速器のパルス幅が有限であるためによるひろがりの影響を含めて求めた。理論値と実験値とは，過渡領域からよい一致を示している。減衰定数は飛行時間の影響が大きく，実際の定数とはかなり異なっている。飛行時間の影響がない場合の減衰時間の理論値は，軽水氷では180 μS 固体メタンでは215 μS である。軽水氷の場合には，モードの形成はかなり長時間後であり，実質的にはモードは形成されないと考えてよいが，減衰曲線は一応ほぼ一定の減衰定数を示している。又，固体メタンでは，モードの形成は早いが，中性子のエネルギーが低いので，飛行時間の影響がさらに大きく現われている。

5. 議論と結言

極低温含水素減速材内の時間依存中性子スペクトルの特徴は，まず典型的な冷中性子スペクトルの形が形成され始めるまでの時間が10数 μsec で比較的短く，媒質によらずほぼ一定であるということであり，第二に，冷中性子スペクトルが或る程度形成された後には，ほぼ定まったスペクトルの形を保ちながら，ゆるやかに減衰するが，必ずしも常に基本モードがこの時期に強く励起しているとは言えないことである。

これらのことを，減速材の散乱機構から見ると，時間的に早い間は，中性子は高エネルギー領域にあり，主に水素原子による減速過程の途中にあり，化学結合の影響による差異はあまりきいてこない。次いで時間の経過とともに，中性子が冷中性子エネルギー領域に落ち込み，化学結合の影響が強くなって来ると，媒質の非弾性散乱断面積の特徴を強く反映した特有のスペクトルの形成が見られるようになる。

極低温の軽水氷の場合は，比較的高いエネルギーでは，非弾性散乱断面積が分子回転および格子振動の励起により，かなり大きな値を有している。ところが，数 10 meV の付近およびこれより低いエネルギー領域にかけては，非弾性散乱断面積が E^3 に比例して急速に減少する。このために，冷中性子エネルギー領域に入った中性子は，エネルギー授受の過程がゆるやかになり，スペクトルの形が急速に変化することなく密度の減衰を続ける。しかし，長時間後において，中性子密度が小さくなるが，スペクトルが充分低エネルギー側へ移った段階では，当然，詳細釣合の原理が作用し出すと考えられる。したがって，その段階でスペクトルは落ちつき，基本モードの減衰という形をとるはずである。しかし，このような状況は，軽水氷では，非常に長時間の後におこるので，実質的には殆んど基本モードの励起はないと考えてもよい。

固体メタンの場合は，状況はかなり軽水氷とは違っている。低エネルギー領域への中性子の落ち込みは早く，早くから詳細釣合の原理が作用するから，スペクトルは落ちついてほぼ基本モードに近い形で減衰する。しかし，この状況も，メタン温度が約 10°K 以上の場合についてであり，温度がこれよりかなり低くなると異なった状況が生じるはずである[8]。

これらの結果から，パルス中性子法による減衰実験において，減衰定数 α の測定が一応可能であることがわかる。事実，減衰実験の結果は，α の決定が行われている。しかし，極低温減速材内では，平衡スペクトルの形成がなされるにしてもゆるやかであり，たとえ形成されたとしても

かなり長時間後である場合が多い。また，体系から検出器に中性子が達着するまでの飛行時間の影響がきわめて大きくなることがある。したがって，極低温減速材でのパルス中性子実験の解析については充分な注意が必要である。

参 考 文 献

1) D. J. Hughes, H. Palevsky, W. Kley and E. Tunkelo, Phys. Rev., **119**, 872 (1960). B. N. Brockhouse, Proceedings of the Conference on the Condensed State of Simple Systems, Varenna, September, (1957). C. Doose, A. Preussner, F. Stelzer, H. Stiller, and A. Tholen, Cryogenics, April, (1971). I. I. Gurevich and L. V. Tarasov, Low-energy Newtron Physics, North-Holland Publishing Company, (1968).
2) 井上和彦，大友詔雄，宇津呂雄彦，藤田薫顕，北大工学部研究報告第 64 号 (1971).
3) 井上和彦，北大工学部研究報告第 64 号 (1971).
4) W. Reichardt, International Atomic Energy Agency Symposium on Neutron Thermalization and Reactor Spectra, Ann Arbor, USA, July, (1967).
5) S. P. Tewari and L. S. Kothari, Nucl. Sci. Eng., **39**, 193 (1970).
6) K. Inoue. J .Nucl. Sci. Technol., **7** [11], 580 (1970).
7) 日本原子力学会　昭和 45 年度年会予稿集，B48, B51.
日本原子力学会　昭和 46 年炉物理・炉工学分科会予稿集，A20.