HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	電子線型加速器による凝集メタン内の冷中性子スペクトルの測定
Author(s)	井上，和彦；大友，詔雄；宇津呂，雄彦 他
Citation	北海道大學工學部研究報告，63，91-97
Issue Date	1972-03-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41069
Type	departmental bulletin paper
File Information	63_91-98.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

電子線型加速器による凝集メタン内の冷中性子スペクトルの測定

井上和彦* 大友詔雄*
宇津呂雄彦** 藤田薫顕**

(昭和46年8月30日受理)

Measurements of Cold Neutron Spectrum in Condensed Methane

Kazuhiko INOUE* Norio OTOMO*
Masahiko UTURO** Yosiaki FUJITA**

Abstract

The measurements of cold neutron spectrum in condensed methane at low temperature between 10°K and boiling point have been carried out using an 25 MeV electron linear accelerator and time-of-flight technique. It is observed that the neutron spectrum at boiling and melting points indicate establishment of thermal equilibrium, whereas at 20 and 10°K there exists considerable difference from thermal equilibrium. In addition, it is found that the limiting neutron temperature below which it dose not fall, even when the methane temperature drops further, is about 10°K.

1. 序　　言

低温メタンによる低エネルギー中性子散乱の情報は，冷中性子源の研究開発および分子結晶の研究の観点から，重要である。これまでに，多くの研究が行なわれているが，後者の観点からの研究が多く，前者の目的に関しては充分詳しくは調べられていない。低温メタン内の冷中性子温度あるいは中性子スペクトルの測定が二三行なわれているが[1),2),3)]，測定条件にあいまいさが多く，信頼できるデータとしては，Whittemore[3)]による液化点および20°Kにおける中性子スペクトルの測定があるのみである。そこで，我々は，112°Kから10°Kまでの間の数点の温度において，凝集メタン内の冷中性子スペクトルの測定を行なった。

物質の中性子散乱の性質を調べたり，あるいは冷減速材としての中性子減速・冷却の性質を調べる方法としては，その物質の中性子散乱断面積を測るのが，最も直接的で明確な方法である。特に，非弾性散乱断面積を測ることが望ましい。しかし，この種の実験を行なうためには，強中性子源が必要である。現在では，強度の不足のために，国内におけるこの種の実験の実施は必ずしも容易ではない。比較的実行可能な方法としては，媒質内の中性子スペクトルを測定し，その結果から上記の性質を調べるという積分的あるいは間接的な方法がある。

* Department of Atomic Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo.
** Research Reactor Institute, Kyoto University, Kumatori-cho, Osaka.

この積分的な方法では，まず適当な大きさの媒質に高速中性子を打ち込み，内部で減速・冷却して生じた低エネルギースペクトルを測る。他方，凝集メタンの中性子散乱模型を仮定して，中性子エネルギー遷移断面積を計算する。そして，この断面積を用いて中性子輸送方程式を解いて，中性子スペクトルを求める。最後に，この理論の結果と上記実験結果とを対比して，冷減速材としての性質を調べることができる。

中性子スペクトルの測定に用いる中性子源としては，加速器によって発生させるパルス状中性子源が最も適している。本研究では，このための加速器として，京都大学原子炉実験所の25 MeV電子線型加速器（電子ライナック，LINAC）を用いた*。

高速中性子をメタン内に打ち込んで，メタン内の水素によって減速させ，さらに冷却させて，冷中性子を発生させるさいに，中性子の外部への漏洩の影響が現われる。この影響を軽減するためには，凝集メタンの寸法が，ある程度以上大きくなければならない。凝集メタンでは，この量は数立程度である。本実験では，このように多量の凝集メタンを作り，さらに極低温まで冷却する必要があるために，冷凍機を使用した。適当な冷却材，たとえば液体窒素や液体ヘリウムなどを用いる方法も考えられるが，この方法では，得られる温度に制限があり，またゆるやかな温度変化を行なうことが困難である。冷凍機を使用すれば，冷凍量を適宜調整できるので，この種の困難はなくなる。

以下，2章では，まず本実験で使用したメタンコンデンサークライオスタットの構造と特性の概要について述べる。3章では，電子線型加速器によるパルス状中性子源を用いた中性子飛行時間法による低温凝集メタン内の冷中性子スペクトルの測定について述べる。さらに，4章では測定結果についての議論，およびメタンによる中性子冷却の限界について述べる。

2. メタンコンデンサークライオスタット

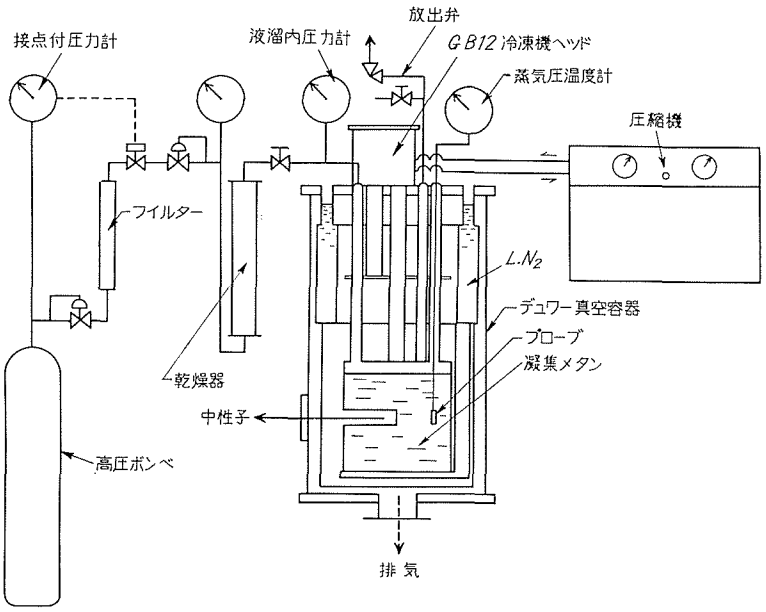
最近では，小型の極低温用冷凍機がいくつも開発されており，取り扱いも容易で，極低温における実験を簡単に行なうことができるようになった。本実験で使用した冷凍機は，CRYOMECH社製GB-12型冷凍機である。本機の冷凍能力は13°Kで約4Wであり，到達最低温度は約9°Kである。本機は，約3000時間の無人連続運転が可能であり，本実験のように強放射線下での遠隔操作を行なうのに適している。

冷凍機の冷却ヘッドに容積6立の円筒状コンデンサーを取り付け，ガス供給系よりのガス配管を直接コンデンサーに接続して，コンデンサー内のメタンを冷却した。コンデンサーは，別に4本のサーマルスイッチを介して，液体窒素バスに連結されている。このサーマルスイッチによって，コンデンサーは，77°K以上では冷凍機および液体窒素によって冷却され，77°K以下では冷凍機のみによって冷却される。

コンデンサーおよび冷凍機冷却ヘッド等の10°Kに達する部分の周囲には，液体窒素で冷却した77°Kの中間温度部分である液体窒素バスが設けてある。この部分への液体窒素の供給を，実験中に適宜行なわなければならないが，液体窒素の消費率が小さく，約3時間毎に供給すればよい。実際には，中性子スペクトルの1回の測定時間は，約1時間以内であるから，この窒素の供給操作は，実験上の支障には全くならない。これらの低温部分は，さらに金属製デュワー内に納められており，デュワー内は排気装置により約10^{-5} Torr以上の真空に排気される。図-1は本装置の概略と動作原理を示す。

メタンガスは高圧ガスボンベから供給され，ボンベ出口に設けられた接点付き圧力計を経

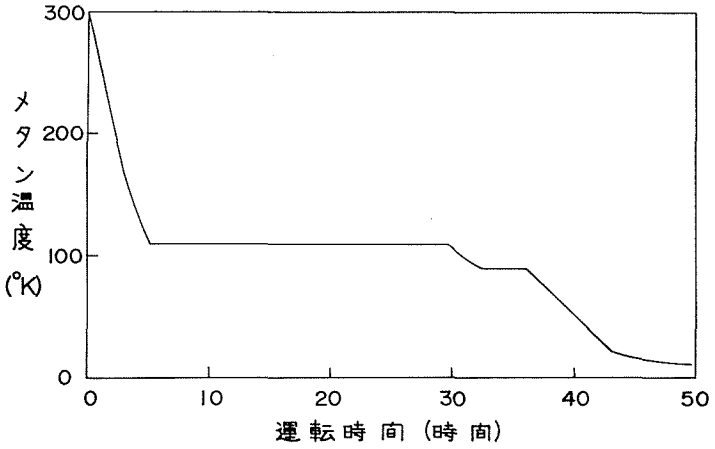
* 本研究は京都大学原子炉実験所共同利用研究として行なったものである。



図—1　メタンコンデンサークライオスタットの構造の概要

て，さらに圧力調整弁と電磁弁を通り，乾燥器によって水分を除去されてから，コンデンサーに入る。コンデンサー温度がメタンの液化温度に達すると，メタンガス圧が低下するので，ガス供給系より自動的にガスが送り込まれる。ボンベ内のメタンが減少して，所定の圧力に達すると，圧力計の接点により電磁弁が閉じて，メタンガスの供給が停止する。そのまま冷凍機の運転を続ければ，コンデンサーの温度が低下して，外部よりの熱侵入量と冷凍機の冷凍能力が釣り合うまで，冷却が行なわれる。もし，途中の温度に保つ必要がある場合には，冷凍能力を絞ればよい。

冷凍機を全出力で運転して，5 立の液体メタンを得るためには，約 30 時間連続運転する必要がある。そのまま運転を続けると，約 3 時間経て固化点に達し，さらに約 20 時間経て 10°K に到達する。図-2 に実際の運転のさいの温度変化の測定結果の 1 例を示す。図の測定結果では，20.4°K の相転移点通過が明瞭に認められる。



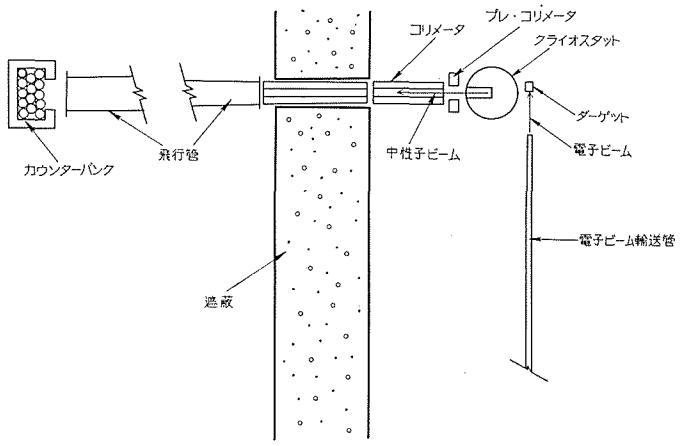
図—2　メタン液化・固化運転特性

最低到達温度から常温までの昇温には，約1昼夜を要する。途中，気化点に達して，気化したメタンガスによりコンデンサー内圧が上がれば，自動放出弁を経てメタンガスは屋外へ放出される。自動放出弁は安全のために高圧用と低圧用の2個があり，さらに手動放出弁が1個設けてある。本装置では多量の可燃・爆発性ガスを使用するので，取り扱いに注意が必要である。しかし，図-1からわかるように密封した閉回路内でガスを扱うので，配管接続部の気密を完全に行なっておけば，実験中のガスの漏出による危険は全くなく，また，昇温時のデュワー内温度の急激な上昇さえ行なわれなければ，極めて安全である。

コンデンサー温度の測定については，約20°K以上では熱電対を用い，約20°K以下では蒸気圧温度計を用いた。

3. 冷中性子スペクトルの測定

メタンコンデンサーによって作った5立の凝集メタンに，LINACで発生させた高速中性子を持ち込んで，メタン内で中性子が減速冷却して生じた冷中性子のエネルギースペクトルを中性子飛行時間法で測定した。LINACとコンデンサーおよび中性子飛行管等の実験装置の配置の概要を図-3と写真-1に示す。

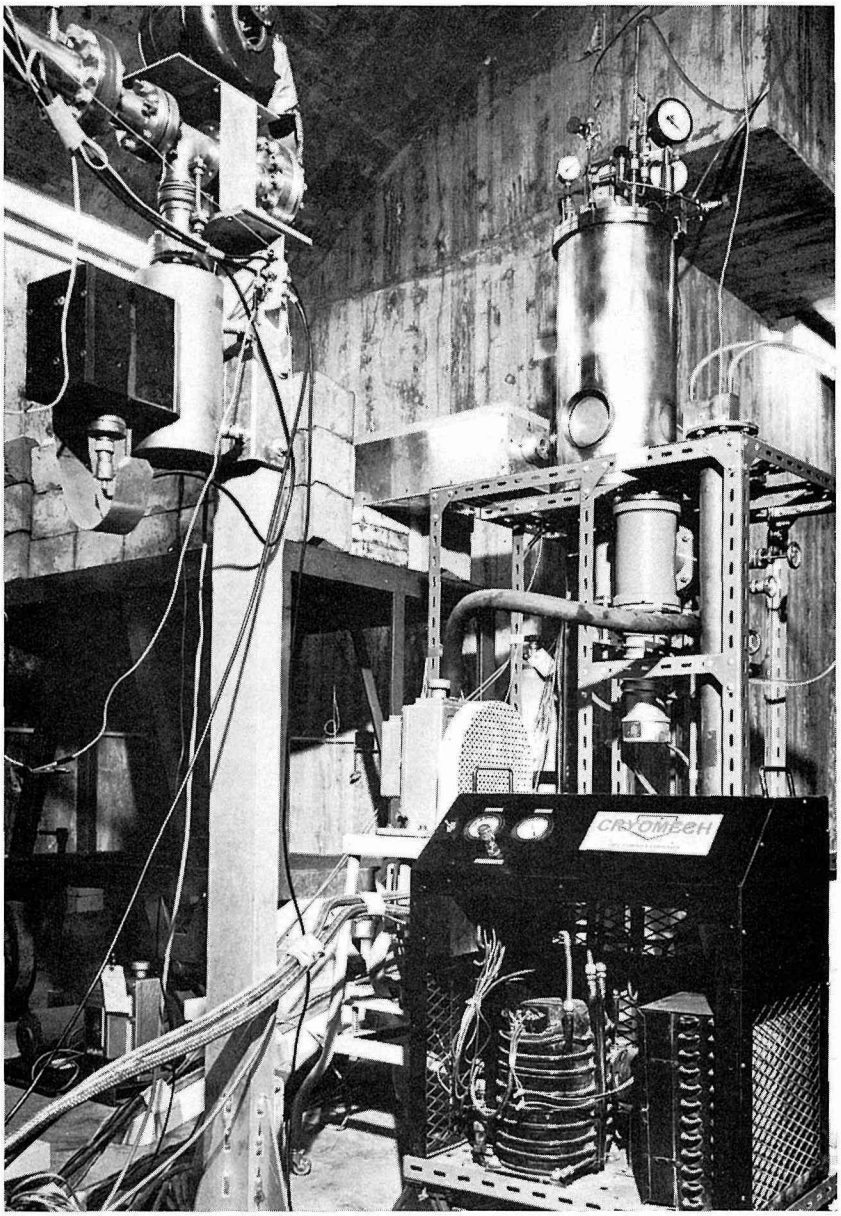


図—3 実験装置の配置

コンデンサーはLINACの電子ビーム輸送管の先端から若干離して置かれた。LINACの運転条件は，加速エネルギーが18 MeVで，ピーク電流が100 mAで，パルス幅が4 μ secで，繰り返しが毎秒15である。輸送管端末の窓から出た高エネルギー電子は，コンデンサーのデュワー外壁の傍に置かれた水冷の鉛ターゲットに当り，制動輻射γ線を発生させ，次いでこのγ線が(γ, n)反応によって光中性子を発生させる。発生した中性子は，コンデンサーの容器壁を透過して凝集メタン内にはいり，減速冷却される。

コンデンサーには，図-3に示すように，中性子ビームを外部に引き出すための引き出し孔が設けてある。引き出し孔の内径は2.5 cmで，深さは10 cmであり，中性子の吸収を軽減するために1 mm厚のアルミニウムで作られている。引き出し孔から漏出した中性子は，内部を真空に引いた長さ約20 mの中性子飛行管内を飛び，反対の端末に置かれた中性子検出器によって検出される。検出器は1直径5 cmのBF_3カウンターを20本束ねたカウンターバンクである。

中性子の飛行時間測定には，1024チャンネルの多重時間分析器を用いた。得られた時間スペクトルをエネルギースペクトルに変換するさいには，飛行路途中の空気やアルミニウムによる衝



写真—1　実験装置の外観。クライオスタット，中性子コリメータ，鉛ターゲット，排気装置，ヘリウム圧縮機および LINAC の電子ビーム輸送管の先端が見える。

突の影響，あるいは平均放出時間による時間軸のずれなどの補正を行なわなければならない。i 番目のタイムチャンネルの計数 $N(t_i)$ から，次式によってエネルギースペクトル $\phi(E_i)$ が求められる。

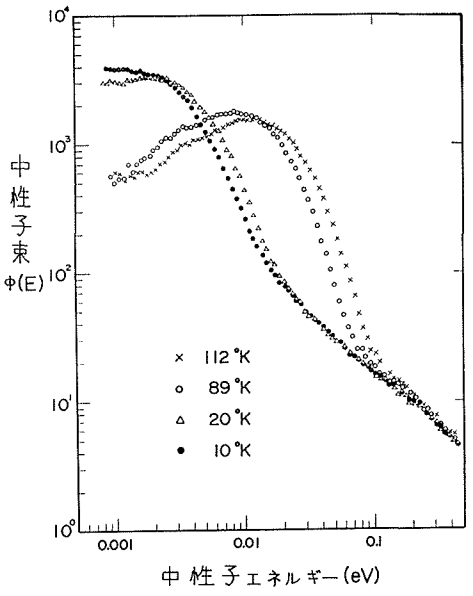
$$\phi(E_i) = N(t_i)\frac{1}{\varepsilon(t_i)}\left|\frac{\Delta t_i}{\Delta E_i}\right| \qquad (1)$$

ここで $\varepsilon(t_i)$ は検出器の感度および飛行路の透過率の補正因子であり，Δt_i と ΔE_i は i 番目のタイ

ムチャンネル幅とそれに対応するエネルギー幅である。

4. 実験結果と中性子冷却の限界

以上の手続きにより，メタンの液化点と固化点および20°Kと10°Kにおいて測定した冷中性子スペクトルを図-4に示す。図からわかるように，メタンの温度が低下すると，当然中性子温度*も低下する。さらに詳細に検討すると，スペクトルの形状にはメタン分子の振動の影響が0.15 eVないし0.2 eV付近に現われているのが認められる。メタン分子の分子内振動には種々のモードがあるが，低い固有振動エネルギーは約0.17 eVである。中性子エネルギーがこのエネルギーより小さくなると，分子内振動の励起が行なわれなくなるために，断面積の急激な減少が起こる。これが0.17 eV付近にスペクトルの小さな脈動を引き起こす。



図—4 冷中性子スペクトルの測定結果

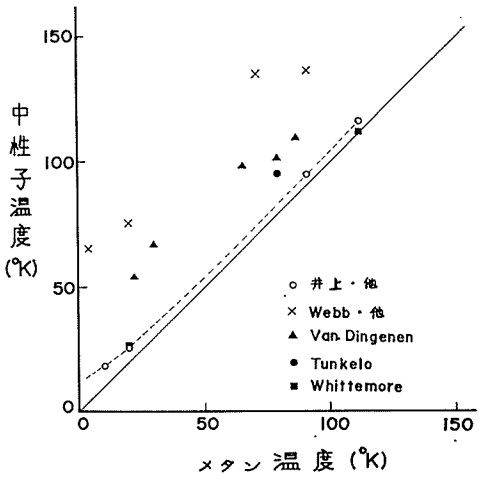
メタンの液化点あるいは固化点付近のスペクトルの形は，いわゆる典型的な熱中性子スペクトルの形によく似ており，低エネルギー領域でマックスウェル分布を示している。したがって，この付近の温度では，中性子散乱は詳細釣り合いの原理を充分みたしていることがわかる。ところが，極低温に近くなると，0.01 eV付近までいわゆる$1/E$分布に近いスペクトルが現われ，さらに0.01 eVより低いエネルギー領域のスペクトルは，マックスウェル分布には必ずしも似ていない。なお，0.01 eV付近より低エネルギー領域については，測定時間の制限などから，計数の統計が悪かったのでバックグランドが多く，有意なデータを得ることができなかった。したがって，10°Kと20°Kのスペクトルについては，0.001 eV以下のエネルギー領域のスペクトルの形が測られていない。しかし，低エネルギー・低温における中性子非弾性散乱断面積の特性から，この形は中性子エネルギーEに比例していなければならない[4]。

メタンの温度と中性子温度の関係の理解を助けるために，横軸にメタン温度をとり，縦軸に中性子温度をとって，測定カーブから求めた中性子温度をプロットすると，図-5のようになる。図-5には，Whittemoreおよび他の人々によって測られた結果を，併せて記入してある。既に述べたように，Whittemore以外の結果は，測定条件の違いのために，我々の結果あるいはWhittemoreのものと比較してもあまり意味がなく，単に参考のために記入したに過ぎない。Whittemoreの結果と我々のものは，ほぼ同一のカーブの上に乗っている。液化点における測定結果が若干ずれているが，差異の相対値は小さい。10°Kと20°Kにおける測定点を外挿すると，メタン温度を零度に近づけても中性子温度は有限な値に止まり，中性子の冷却に限界があることがわかる。このような特性は軽水氷においても認められた[4]。メタンの場合には，この冷却限界は約10°K程度であると推測される。これは，軽水氷のものが約40°Kないし50°Kであったのに比べ

* 中性子温度の定義にはいろいろなものがあるが，ここでは便宜的にスペクトルのピーク附近にマックスウェル分布を適合させて，そのマックスウェル分布の温度を中性子温度と定義する。

て，かなり低い値であり，メタンが優れた冷減速材であることを示している。

10°K における測定では，冷凍機を能力最大限度で使用したために，γ線加熱によってコンデンサー内温度が若干上昇して，10°K から 13°K まで上昇した。20°K の測定では，冷凍機能力に余裕があったので，この変動を約 0.3°K 以内に押えることができた。もし，最低温度の実験のさいのメタン温度がかりに 13°K であったとすると，図-5 からわかるように，冷却限界温度は 10°K より 1～2°K 程度低くなる。



図—5　冷中性子温度とメタン温度の関係

5. 結　　言

数 meV 以下の冷中性子を多量に得る目的にとっては，メタンは極めて優れた冷減速材であり，中性子温度で約 10°K 程度まで冷却することができる。特に低いエネルギーの冷中性子に対しては，メタン温度をできるだけ下げた方が利得が多いと考えられる。

固体メタンを原子炉で用いると，γ線照射による分解の懸念があると考えられているが，加速器を用いた我々の実験条件では，異常は認められなかった。我々の場合には，原子炉とちがってパルス状照射であるために，平均の照射量は原子炉の場合に比べて桁違いに小さい。さらに今後の詳しい検討が必要であるが，加速器を中性子源とする場合には，固体メタンは冷減速材として安全に使用することが可能であろう。

メタンの相転移点の 20°K のスペクトルからは何ら相転移の特徴は認められなかった。このことは，中性子スペクトル形成が積分的過程であり，非弾性散乱断面積の若干の差異では[5] 顕著な変化がスペクトルに現われないだろうと言う予想と合っている。

以上の実験結果から，さらに低温メタン内による冷中性子の減速冷却を詳しく調べるためには，メタン分子による中性子散乱模型を考えなければならない。これに関する理論的検討は別の論文で述べられる[6]。

謝　　辞

本研究の遂行に際して，実験装置の準備調整に関する岩佐浩克氏の助力に深く感謝します。

参 考 文 献

1) Butterworth, I., Egelstaff, P. A., London, H. and Webb, F. J.: Phil. Mag., **2**, 917 (1957).
2) Van Dingenen, W.: Nucl. Instrum. Methods, **16**, 116 (1961).
3) Whittemore, W. L.: Nucl. Sci. Eng, **18**, 182 (1964).
4) Inoue, K.: J. Nucl. Sci. Technol., 1 [11], 580 (1970).
5) Harker, Y. D., Brugger, R. M.: J. Chem. Phys., **46**, 2201 (1967).
6) 井上和彦：北大工学部研究報告，第 63 号.