



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	電子線型加速器による冷中性子利得の研究
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, Kazuhiko; 大友, 詔雄 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 70, 49-61
Issue Date	1974-02-20
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41200">https://hdl.handle.net/2115/41200</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	70_49-62.pdf



# 電子線型加速器による冷中性子利得の研究

井上 和彦 大友 詔雄 岩佐 浩克

(昭和 48 年 7 月 31 日受理)

## Experimental Study of Cold Neutron Gain Using an Electron LINAC

Kazuhiko INOUE Norio OTOMO Hirokatu IWASA

### Abstract

Neutron time-of-flight experiments using an electron LINAC were performed to obtain data for the optimum design of pulsed cold neutron source assembly. Cold neutron gain factors for several cold moderators were measured at various temperatures. This investigation showed that very cold solid methane is a favourable moderator material for the pulsed cold neutron source.

### 1. 序 言

冷中性子は、比較的低いエネルギーの分子運動の極めて有用な探針である。冷中性子を多量に発生させる方法として、原子炉に冷減速材を組み合わせる方法が主に研究され、或る程度実用になっている<sup>1)</sup>。これは定常的な冷中性子源となるが、中性子の散乱実験では一般にこれを適当な方法でパルス化して使用することが多い。パルス状中性子源としての電子線型加速器 (LINAC) の最近の発達、そしてその利用効率の良さからみて、LINAC に冷減速材を組み合わせ、効果的なパルス状冷中性子源として用いる可能性がある。

LINAC を用いた冷減速材内の中性子スペクトルの研究としては、MacReynold と Whittemore<sup>2)</sup> および Whittemore<sup>3)</sup> のものがあり、液体水素、メタンおよび軽水について測定している。彼等は、極低温において寒材を用いて、冷減速材チャンバーを冷却し、これから中性子を引き出して、冷中性子スペクトルの TOF 測定を行なった。冷減速材内で冷中性子がかなり発生する事を明らかにし、また異なる冷減速材間の優劣についての情報を得ている。しかし、測定温度点が限られており、また利得についても定量的な検討を行なうに適したスペクトルを得ていない。井上等<sup>4)</sup> は、冷凍機により減速材を冷却し、TOF 法で冷中性子スペクトルを測定して、軽水氷および凝集メタンにおける冷中性子温度の冷却限界を調べた。

これらの結果の検討から、LINAC に組み合わせる冷減速材としては、原子炉で用いられる水素あるいは重水素よりも、冷中性子のエネルギー領域に応じてメタンあるいは軽水が効果的な冷減速材であり、かつ安全に使用できると考えられる。しかし、効果的なパルス状冷中性子源アセンブリを設計するためには、さらに定量的に詳しいデータを得る必要がある。

本論文では、LINAC を用いるパルス状冷中性子源に関して、冷中性子利得の定義を論じ、さらに LINAC を中性子源として種々の含水素冷減速材について利得の測定を行なった結果について報告する。

## 2. 冷減速材アセンブリー

中性子を減速冷却し冷中性子収量を増す主要な方法としては、冷減速材による方法が使用されている。中性子と減速材が完全に熱平衡に達するのならば、冷減速材の温度を下げれば下げる程、中性子のエネルギーが低くなるはずである。即ち、冷減速材温度を下げれば下げる程冷中性子温度も下がるはずである。しかし、実際にはそのようにならずに、冷減速材の分子運動の性質に応じて、中性子の冷却の限界が現われる。この中性子の冷却の限界についてはこれまでの研究によって<sup>2)~4)</sup>、その様子がかなり明らかにされている。冷減速材による中性子冷却の限界はおおよそ 10°K ないし 40°K 程度である。

冷中性子ビームを散乱実験に利用する立場からは、所要のエネルギーの冷中性子をできるだけ多量に得られればよいわけであるから、冷中性子温度はかならずしも最も主要なパラメータではない。この場合には冷中性子ビーム強度そのものが重要な目安となる。したがって、冷中性子の温度よりも、冷中性子の利得の考えを用いた方が適切である。利得の定義はあまり明確でなく、状況を詳しく述べた上で使用しなければ、一義的な意味がない。後述のように、原子炉で用いる場合と加速器で用いる場合には全く異なった定義にならざるを得ない。

原子炉に組み合わせる冷減速材チェンバーの構造や形状寸法については、すでにいろいろな試みが提案され、検討がなされている<sup>1)</sup>。加速器の場合には冷減速材が冷中性子エネルギーまでの速中性子の減速材として働かねばならないから、冷減速材の形状寸法にはあまり多様性はない。中性子の減速に関しては、加速器を用いて熱中性子パルスが発生させる場合とほぼ同様な考え方をしてよい。LINAC を用いたパルス状熱中性子源については、Day と Sinclair の詳しい報告がある<sup>5)</sup>。

冷減速材アセンブリーは極低温で使用されるから、冷却と熱遮蔽が必要である。原子炉の場合には、 $\gamma$ 線加熱が極めて大きいので、発生熱の除去が重大な問題となる。加速器ではこれはあまり大きな問題ではなく、高利得を得ることと、冷中性子パルスのパルス幅を狭くすることを両立させることが最大の問題となる。冷減速材アセンブリーの設計に当たっては、特にこの点に留意しなければならない。

点状の高速中性子線源を用いて、できるだけ多量の熱中性子を発生させるためには、線源を充分大きな減速材塊の中心に置けば、高速中性子発生率に応じた最大の熱中性子束密度を、減速材塊の中心付近で得ることができる。しかし、これではビーム実験のためのパルス状熱中性子源としては使用できない。ビーム実験のためには、熱中性子を減速材塊の外へ、できるだけ高い中性子束で引き出さなければならない。さらに、この中性子ビームの時間的なパルス幅が、TOF 実験で要求される時間分解能に適應したパルス幅でなければならない。最近では、これらの観点から、平板状の減速材を用い、厚さあるいは適当な吸収材を使用することによって狭いパルス幅を得るようにしている<sup>5)</sup>。

パルス状冷中性子源においても、高利得と狭いパルス幅を両立させる問題は、パルス状熱中性子源の場合と同様に重要である。さらに、減速材を冷却する問題が加わる。これらの諸点を考え合せると、パルス状冷中性子源アセンブリーの冷減速材の形を平板状とし、その外部に高速中性子発生ターゲットを置く最も簡単な配置・形状をとるのが、実現性の高い方法であることがわかる。この配置は、冷却・断熱のための機構的な面でも最も容易であり、 $\gamma$ 線加熱も少ない。冷中性子の収率を考える上では、中性子の減速についてはパルス状熱中性子源と全く同様に考えればよく、中性子熱化のかわりに中性子冷却の機構の問題が加わることになる。

以上の考察に基づいた冷中性子源アセンブリの一つの概念的な構造を図1に示す。このような構造の極低温クライオスタットの製作はあまり問題ではなく、また容量に余裕のある冷凍機を使用することも可能である。一般に使用されるLINACの平均ビーム出力は数kW程度であるから、発生 $\gamma$ 線による加熱の最大割合はこれ以下である。図のような配置と構造では、冷減速材アセンブリの $\gamma$ 線加熱は数W程度あるいはそれ以下と推定される。15°Kで約10W以上の冷却能力があれば、冷減速材を約15°K附近に保つことはおそらく可能であろう。実際に、15°Kで数Wの能力の小型冷凍機を用いて、数立の円筒状の冷減速材を約12°Kに冷却して、外部よりの流入熱量と熱平衡に保たせておき、ビーム方向から90°の方向にターゲットから約30cm離してアセンブリを置き、約1kW程度の電子ビーム出力で $\gamma$ 線を発生させた場合に、温度上昇が約2°程度に止まった。この結果だけから $\gamma$ 線加熱の定量的に正確な評価を行なうことは困難であるが、しかし必要な冷凍機能力に対する上述の推定を充分支持するものである。パルス状冷中性子源では $\gamma$ 線発生時間が極めて短パルスであり、かつ繰り返し数が数10ppsからせいぜい150ppsであるために、原子炉の場合に比べて平均 $\gamma$ 線加熱量が小さいので、中規模の冷凍機で15°Kないし20°Kに冷却することが可能となる。

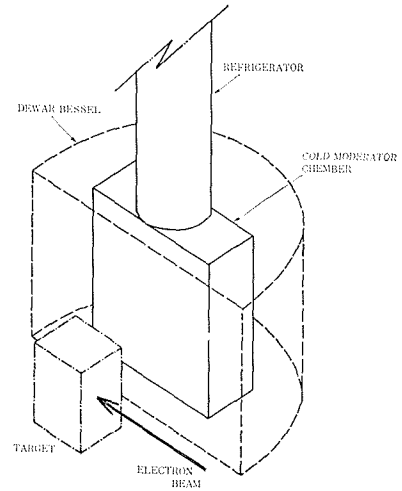


図1 冷中性子源アセンブリ概念図

### 3. 冷中性子利得の定義

加速器を用いる冷中性子源では、冷減速材が中性子の冷却を行なうだけでなく、速中性子エネルギー領域から低エネルギー領域までの減速材として働かねばならないから、原子炉の冷中性子源の場合のように<sup>1)</sup>、冷中性子利得を冷減速材の有無で定義するわけにはいかない。全く別の考え方が必要である。たとえば一つの方法として、もし常温にすることが可能であれば、その冷減速材を常温にした場合と比較するのが適切な定義であろう。しかし、常温で気体の物質を冷減速材として用いる際には、実際にそのような場合があるが、この定義を用いることができない。そこで本論文では、速中性子エネルギーから熱中性子エネルギーまでの領域における減速の性質が良く知られている事と、冷減速材が含水素物質である場合が多いことから、常温の軽水を規準として選ぶことにする。

軽水氷は減速材として用いられる可能性があり、またメタンやその他の含水素冷減速材の高いエネルギー領域における減速の性質が軽水のものに似ているから、この選択は適切であろう。なお、重水素を含む物質については、重水の平均自由行程が大きいことから、加速器では使用される可能性は考えがたい。炭素やベリリウムについても事情は重水と同様であろう。

適当な厚さと、充分大きな広さを持つ平板状の冷減速材チャンバーを考える。チャンバーの冷中性子放出面上の $dS$ から $\vec{Q}$ 方向に出る中性子ビーム $\Phi(E, S, \vec{Q})$ が、 $\vec{Q}$ 方向で距離 $L$ にある標的面上の $d\sigma$ に入射する数は

$$dn(E) = (4\pi L^2)^{-1} \Phi(E, S, \vec{Q}) dS d\sigma \quad (1)$$

で表わされる。中性子発生用ターゲットとチャンバーの相対的な配置について注意する必要がある。この配置が変化すると当然 $\Phi(E, S, \vec{Q})$ が変化するが、ここでは、 $\Phi(E, S, \vec{Q})$ はエネルギー

と、放出面の位置および放出の向きについては函数形の変化がなく、絶対値が変化するだけであると仮定する。この仮定は実際の充分広い平板アセンブリーの場合に対しては、それほど不適切なものではない。加速器の出力が変動すると、 $dn(E)$ が変化するが、これについても同様な仮定をおく。

次に、チェンバー内の冷減速材を常温の軽水で置換した場合について、(1)の量に相当するものを $dn_0(E)$ とすると、

$$dn_0(E) = (4\pi L^2)^{-1} \Phi(E, S, \vec{Q}) dS d\sigma \quad (2)$$

となる。軽水内の減速中性子スペクトルが一般に $1/E$ 分布に近いことは良く知られている。また、含水素冷減速材でもこの事情は同様である。そこで、減速中性子の $1/E$ 分布スペクトルの大きさがともに $1/E$ になるような $\varphi(E, S, \vec{Q})$ と $\varphi_0(E, S, \vec{Q})$ を次式で定義する。

$$\Phi(E, S, \vec{Q}) = a\varphi(E, S, \vec{Q}) \quad (3)$$

$$\Phi_0(E, S, \vec{Q}) = a_0\varphi_0(E, S, \vec{Q}) \quad (4)$$

ここで、 $a$ と $a_0$ は比例定数である。

この $\varphi(E, S, \vec{Q})$ と $\varphi_0(E, S, \vec{Q})$ を用いて、冷中性子利得 $g(E, S, \vec{Q})$ を次のように定義する。

$$g(E, S, \vec{Q}) = \frac{\varphi(E, S, \vec{Q})}{\varphi_0(E, S, \vec{Q})} \quad (5)$$

通常、中性子の引き出しはアセンブリーの放出面の中央部附近から直角方向に行なわれ、また放出面が充分広ければ、 $\varphi$ と $\varphi_0$ の比は $S$ と $\vec{Q}$ にはあまりよらないであろう。したがって、この条件が成り立つ場合には、 $\varphi(E, S, \vec{Q})$ の代りに、放出面から直角方向に出てくる中性子ビームスペクトル $\phi(E)$ で置き換えても、定量的に殆んど間違いはない。

この場合には、冷中性子利得は簡単に

$$g(E) = \frac{\phi(E)}{\phi_0(E)} \quad (6)$$

で表わされる。この式は、同じチェンバーについて軽水と冷減速材の場合の中性子スペクトルをTOFで測定し、 $1/E$ 分布で双方のスペクトルを規格して、低エネルギー領域におけるスペクトルの高さの比をとれば、 $g(E)$ を実験的に求めることができることを意味している。

実際には、軽水の場合と冷減速材の場合では、単位面積当りの含有水素数は必ずしも同じではない。1eV附近までの中性子の減速密度は、特定のアセンブリーについてはその含有水素密度に左右され、水素の化学結合の様子にはあまりよらない。この事を考慮して、(6)式を次のように書きかえる。

$$g(E) = g_{1/E}(\rho_c/\rho_0) \left[ \frac{\phi(E)}{\phi_0(E)} \right]_{E \leq E_c} = g_{1/E}(\rho_c/\rho_0) \cdot g_c(E) \quad (7)$$

ここで、 $g_{1/E}(\rho_c/\rho_0)$ は水素密度の比が $\rho_c/\rho_0$ である場合の1eV附近の中性子減速密度の比であり、 $\rho_c$ と $\rho_0$ は冷減速材と軽水内の水素原子の密度であり、 $E_c$ は $1/E$ スペクトルの下限の適当な境界エネルギーである。 $g_{1/E}(\rho_c/\rho_0)$ については、例えば厚さの異なる軽水アセンブリーから1eVの附近のスペクトルあるいはCdフィルターを通した中性子ビームの強度比を測れば、その値が求まる。これについては、DayとSinclairの測定結果を引用することができる<sup>5)</sup>。

#### 4. 測定装置

メタン、エタンおよび軽水氷の $g_c(E)$ の測定をLINACと小型冷凍機付き冷減速材チェンバーを用いて行なった。図2に、LINACと冷減速材アセンブリー、および中性子飛行時間エネ

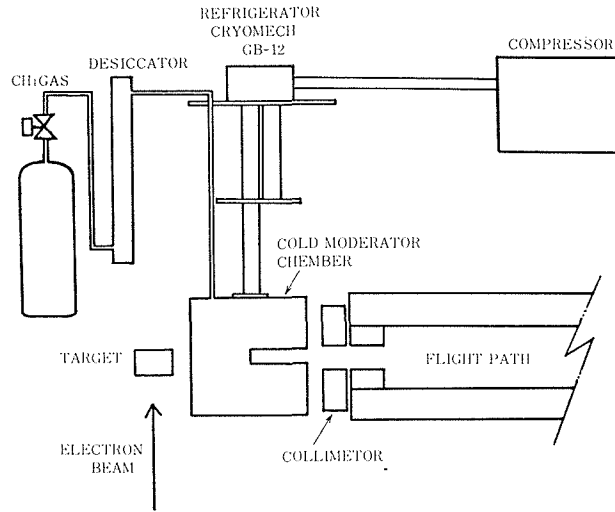


図2 実験装置の配置概要

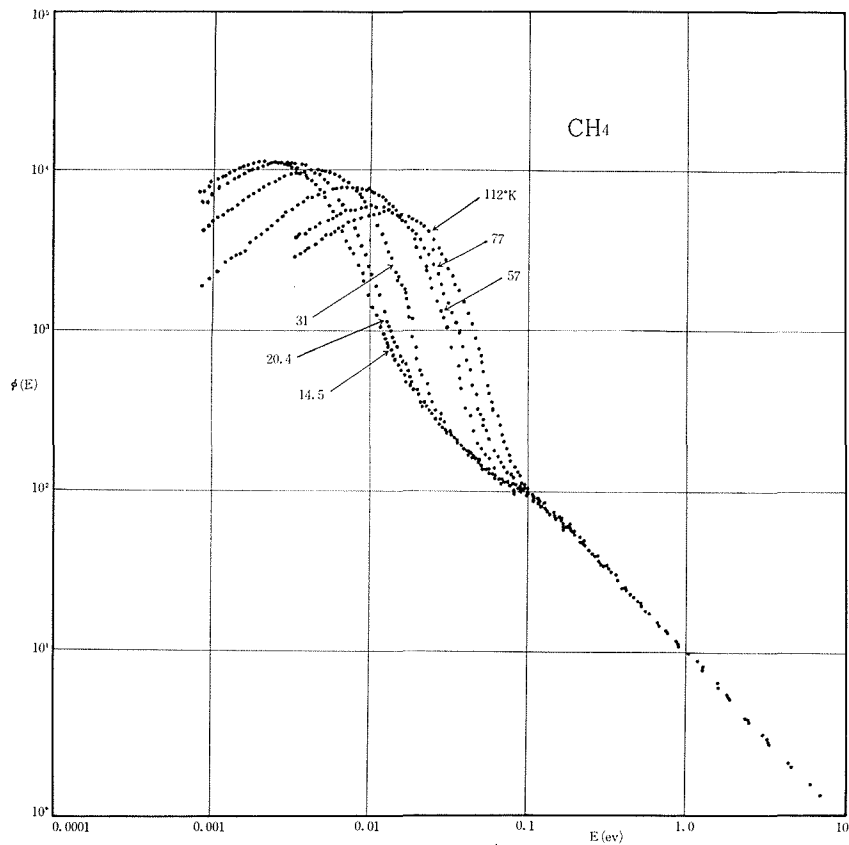


図3 メタンの冷中性子スペクトル

ルギー分析装置の概略図を示す。冷減速材チェンバーは6立の容積の直円筒形であり、常温から約15°Kまで冷却することが可能である。側面から中心部まで2.5 cm 内径のリエントラントホールが設けてあり、これより中性子ビームを引き出してスペクトルを測った。

前章までの議論では、実用的な平板状アセンブリーについて検討した。円筒形アセンブリーでは、広い中性子の放出面をとろうとして、円筒を太くし過ぎると、逆に中性子強度が減少する。また、中性子パルス幅が広がる。したがって、アセンブリーを円筒形にするのは得策ではない。現在、冷凍機付きの平板状チェンバーを製作中であるが、ここで述べる測定では円筒状チェンバーを用い、内部の冷中性子スペクトルを測定した。 $g_c(E)$ についてはこれでも、一応信頼できるデータが得られる。また、平板状チェンバーが完成次第、平板状の場合の測定を行なう予定である。

冷凍機はCRYOMECH社のGB-12型である。中性子飛行時間の測定には、NAIG D-171マルチチャンネルスケーラーに時間おくり装置を附加して、256チャンネル時間分析器として使用した。これらの装置については、既に報告したので<sup>6)</sup>、詳細については省略する。

## 5. 測定結果

図3, 4, 5に中性子スペクトルの測定結果を示す。中性子スペクトルは、LINACの出力に対してではなく、高エネルギー領域の $1/E$ 分布が同一になるように規格化してある。実験を行なっ

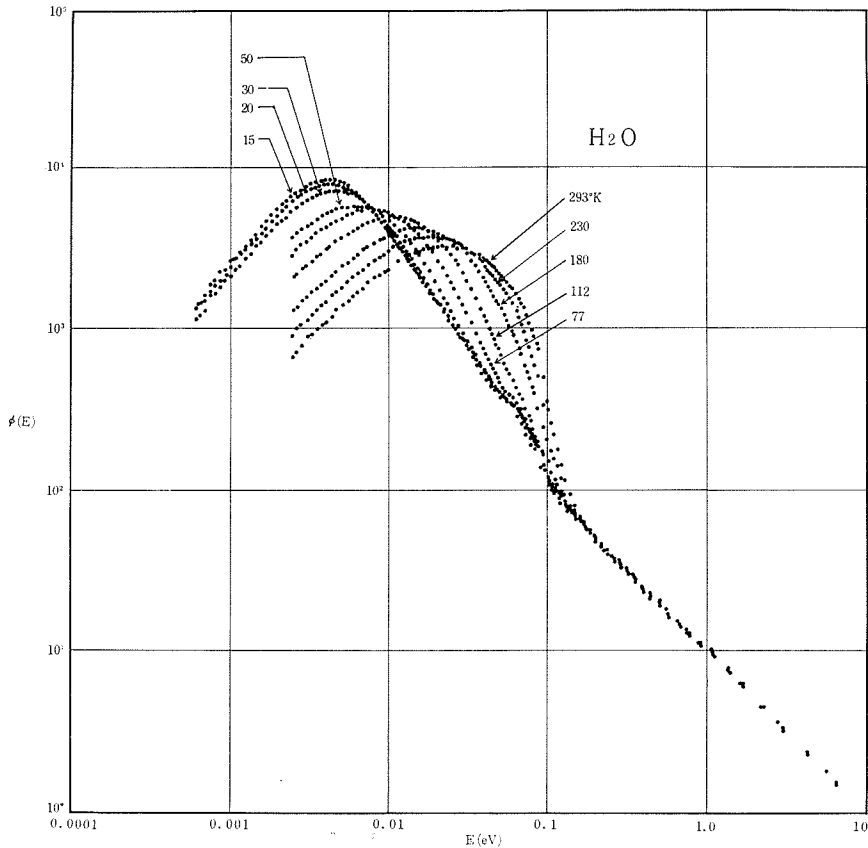


図4 軽水の冷中性子スペクトル

た際の LINAC はまだ第 1 加速管のみで、低エネルギーであり、一回のスペクトルの測定には 60 分ないし 100 分を要した。時間分析器のチャンネル幅は  $30 \mu\text{S}$  と  $60 \mu\text{S}$  であり、飛行距離は約 5 m であった。測定温度は、メタンとエタンについては液化点から約  $15^\circ\text{K}$  まで、軽水については常温から約  $15^\circ\text{K}$  まで適宜選んだ。各冷減速材温度はそれぞれ図に記入してある。

冷減速材内の中性子スペクトルの形は、冷減速材内の分子運動の特徴を明瞭に反映している。メタンでは、メタン分子の回転に対する束縛が小さく、回転定数が  $0.0006 \text{ eV}$  と小さいので、中性子温度が最も低くなり、また、最も低温におけるスペクトルのピークの高さも最も高い。メタン内の水素分子の振動レベルが約  $0.17 \text{ eV}$  附近にあるが、この影響が低温スペクトルにおいて認められる。

軽水氷では、中性子冷却に主に寄与する運動モードは水分子が一体となって併進するモード、すなわち格子振動である。このために、特に低温におけるスペクトルの形がいわゆる Maxwell 分布的な形とかなり異なったものとなっている。この形は熱平衡的なものではなく、むしろ減速と吸収が競合してできた形である<sup>7)</sup>。  $0.075 \text{ eV}$  附近に水のねじれ回転レベルの影響が現われている。

エタンについて、中性子の減速冷却に効果的な運動モードが何であるか不確かであるが、格子運動とねじれ振動の双方が寄与するのではないかと予測される。いずれにしても、固有エネルギーは軽水氷の Debye 温度よりも若干低いと推測される。

図 6 に冷減速材温度に対する中性子温度の変化の様子を示す。中性子スペクトルのピークの

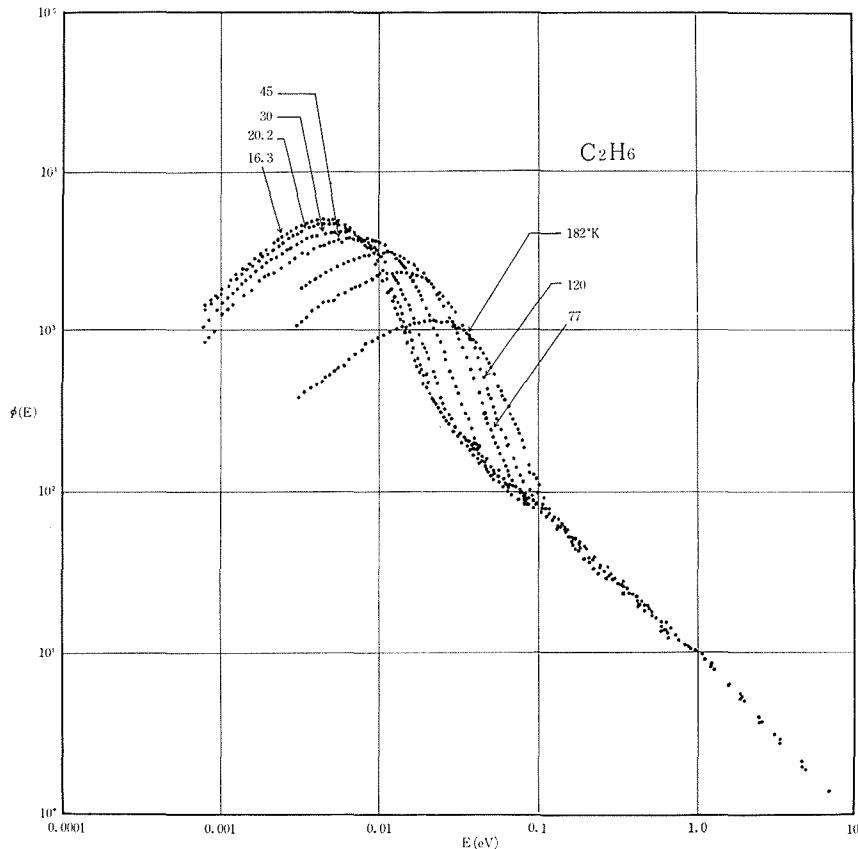


図 5 エタンの冷中性子スペクトル

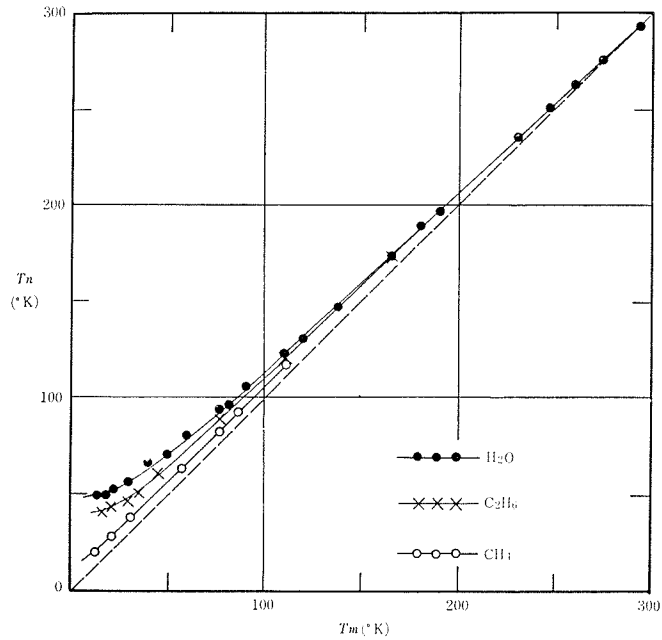


図6 冷減速材温度に対する中性子温度の変化

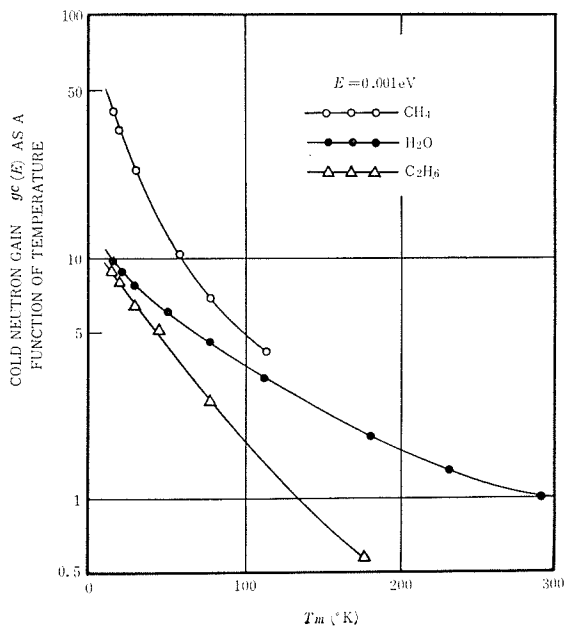


図7 0.001 eV 中性子に対する利得

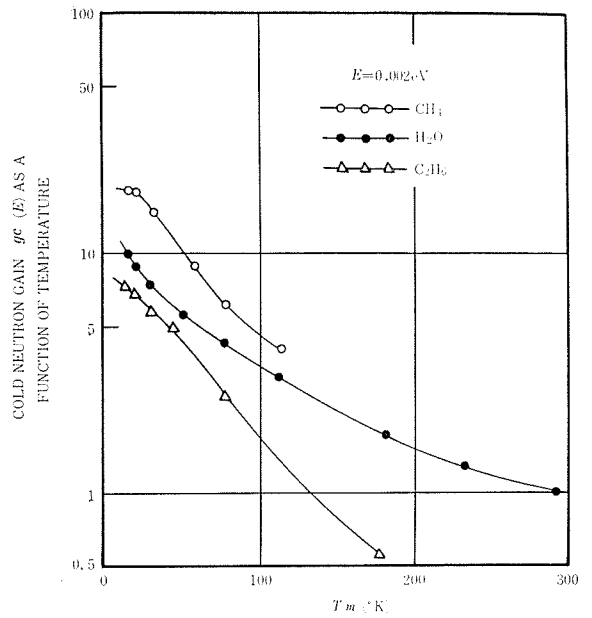


図8 0.002 eV 中性子に対する利得

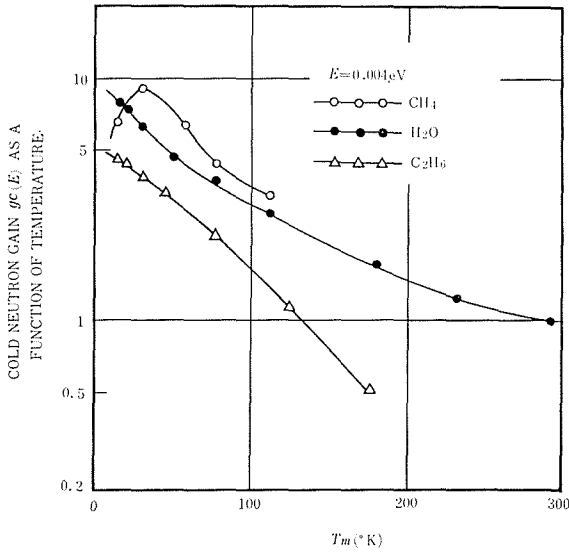


図9 0.004 eV 中性子に対する利得

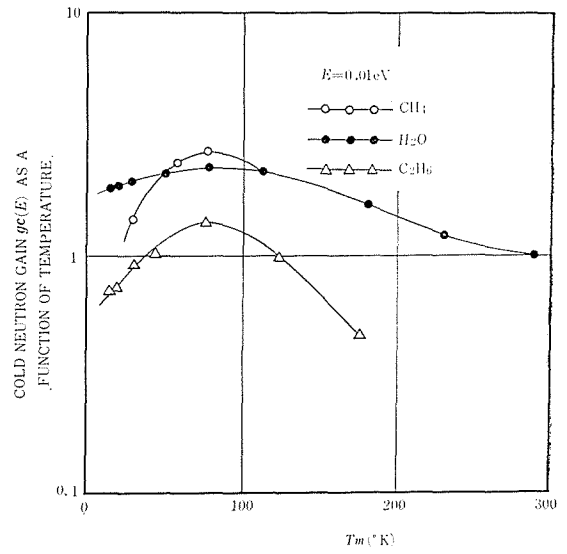


図10 0.01 eV 中性子に対する利得

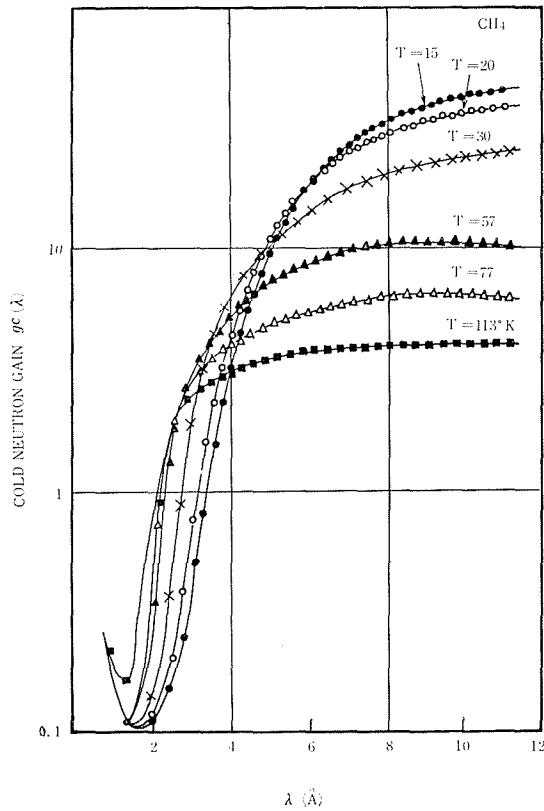


図11 中性子波長に対する利得の変化(メタン)

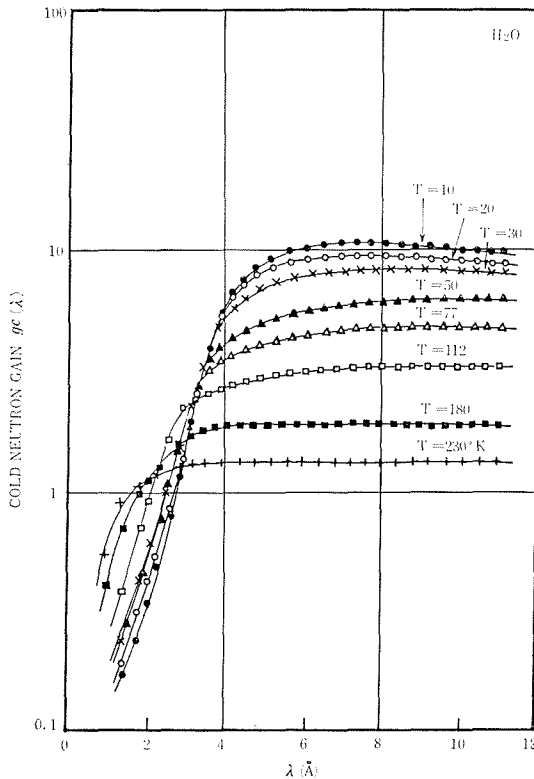


図12 中性子波長に対する利得の変化(軽水)

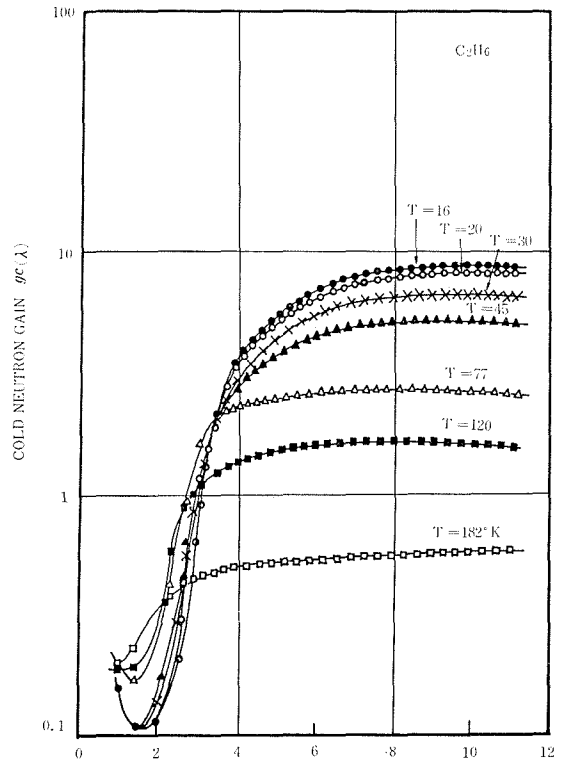


図13 中性子波長に対する利得の変化(エタン)

位置のエネルギーに対応する温度を便宜的に中性子温度と定義している。氷の中性子冷却限界は、すでに指摘したように<sup>7)</sup>、およそ $40^{\circ}\sim 50^{\circ}\text{K}$ である。エタンのものがこれより若干低い。メタンでは、これも既に示したように $10^{\circ}\sim 15^{\circ}\text{K}$ である<sup>4)</sup>。

中性子スペクトルの測定結果から、3種類の冷減速材について冷中性子利得を求め、温度の関数としてプロットしたものを図7~10に示す。3種類のものの利得を $0.001\text{ eV}$ 、 $0.002\text{ eV}$ 、 $0.004\text{ eV}$ および $0.01\text{ eV}$ について比較してある。図11~13は中性子波長に対する利得を示してある。

以上の結果から、 $4\text{ \AA}$ 以上の冷中性子を得るためには、メタンがすぐれていることがわかる。 $4\text{ \AA}$ 附近が必要な場合には、あまり冷却しないで、 $30^{\circ}\text{K}$ 程度に止めた方がよい。 $6\text{ \AA}$ 以上を用いる場合には $15^{\circ}\text{K}$ 位まで冷却するべきである。また、 $2\text{ \AA}$ ないし $4\text{ \AA}$ の中性子についても、メタンの方が軽水氷よりもかなり利得が高い。ただし、メタン温度を $60^{\circ}\text{K}$ ないし $100^{\circ}\text{K}$ の間を選ぶのがよく、冷却し過ぎるとかえって利得が低下する。

## 6. 冷減速材よりの冷中性子パルス幅

パルス状冷中性子源を用いて飛行時間測定を行なう際には、分解能に影響する種々の因子があるが、冷減速材からパルス状に放出される冷中性子のパルス幅が最も問題となる因子である。

ターゲットで発生する速中性子のパルス幅は、LINACの電子線パルス幅に殆んど等しく、 $1\sim 4\text{ }\mu\text{S}$ 程度である。速中性子が冷減速材内に入って、水素原子核と衝突して、約 $0.1\text{ eV}$ 付近まで急速に減速するが、これに要する時間はおおよそ $1\text{ }\mu\text{S}$ 程度である。このあと中性子は、冷

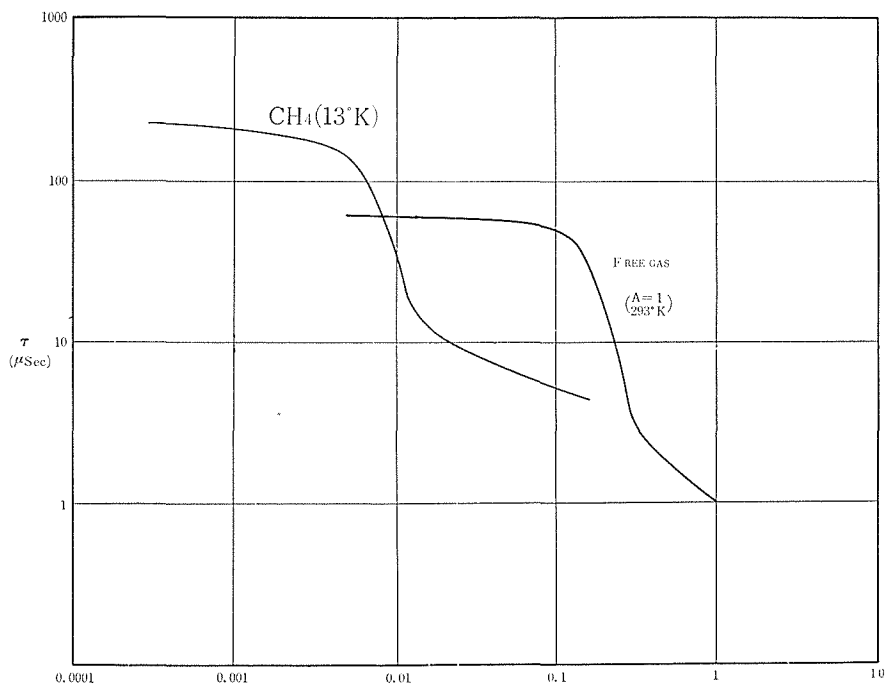


図 14 A=1 自由ガスおよび 13°K メタン内の平均放出時間の理論値

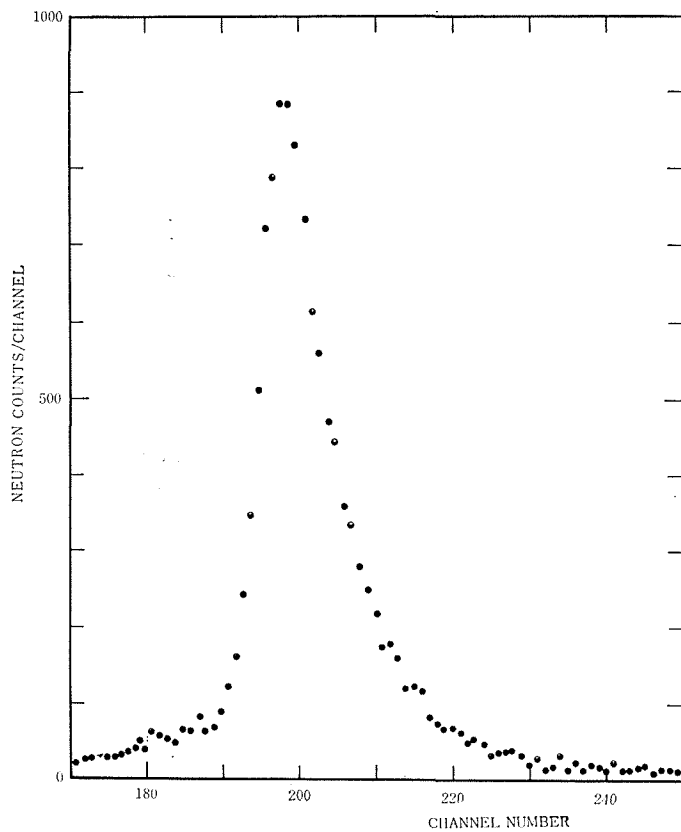


図 15 1.2 Å 中性子パルスの減衰

減速材内分子の運動自由度とエネルギー授受を行ないながら、冷却してアセンブリー内の冷中性子束密度が急速に上昇する。ひきつづいて、低エネルギーにおける比較的大きな吸収断面積により中性子は吸収されて消滅するが、その一部が放出面から漏出して、冷中性子ビームとして使用される。この冷中性子ビーム強度の始めの急速な上昇につづく吸収と漏出による減衰は、始めの減速時間と立ち上り時間に比べてかなりゆるやかで、減衰時間は数10  $\mu$ Sから長い時は200  $\mu$ S程度に達する。

このパルス幅を表わす1つの目安に中性子平均放出時間がある。図14に、常温におけるA=1の自由ガスと13°Kにおけるメタンの中性子平均放出時間の計算値を示す。漏出の割合は両方の場合とも吸収断面積と同じにとつてある。

数mの飛行路にとっては、この程度の減衰時間は全飛行時間の数%にも達し、かなり問題となる。パルス状熱中性子源アセンブリーでは、アセンブリーを薄くしたり、吸収材を加えたりして減衰時間を短くする努力を行なっている<sup>9)</sup>。冷中性子に対しても同様な方法を用いることができるわけであるが、もともと冷中性子の発生率が低いので、収率をできるだけ下げないようにして、減衰時間を短くする工夫が必要となる。

現在、単結晶をTOFと組み合わせて冷中性子のパルス幅を直接測る準備を進めているが、熱中性子源アセンブリーについて行なった予備実験の結果を図15に示す。図に示のように、直径約7cmの銅単結晶に厚さ5cmの軽水アセンブリーパルス状熱中性子源からのビームを当て、Bragg条件を充すエネルギーの中性子だけを反射させて0.06 eVの中性子パルスの時間特性を直接測定した。

## 7. 結 言

凝集メタンが4 Å以上の冷中性子に対してすぐれた冷減速材であり、メタン温度を適当に選ぶことによって、4 Å附近で約7倍、8 Å以上で約40倍の利得があることがわかった。また、2 Åないし4 Åの領域でも60°Kないし100°Kにすれば、常温の軽水あるいは軽水氷よりもすぐれている。

凝集メタンなどを冷減速材とするパルス状冷中性子源の利得について定量的に明らかにすることができたが、時間特性の問題が残っており、これに関する測定を行なっているのいずれ報告する。また、利得の増大についても特殊な断面積の物質の使用を考慮する余地があると考えられる。

## 謝 辞

本研究の遂行に当って、鬼柳善明、林幸雄、中田哲夫、北林隆の諸氏の協力を得たことを附記し、感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) I. Butterworth et al.: *Phil. Mag.*, 2, 917 (1957).  
F. J. Webb: *Reactor Sci. Technol.*, 17, 187 (1963).  
E. Tunkelo: *Acta Polytechnica Scandinavica, Physics Including, Nucleonics Series No. 38* (Helsinki; 1966).  
C. Doose et al.: *Cryogenica*, April, 107 (1971).  
P. Ageron et al.: *Cryogenica*, February, 42 (1969).
- 2) A. W. MacReynold, W. L. Whittemore: *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. IAEA, Vienna, 421 (1961).

- 3) W. L. Whittemore: Nucl. Sci. Engineering, 18, 182 (1964).
- 4) K. Inoue et al.: J. Nucl. Sci. Technol, 9 [6], 374 (1972).
- 5) P. H. Day, R. N. Sinclair: Nucl. Methods, 72, 237 (1969).
- 6) 井上 等: 北海道大学工学部研究報告, 第 66 号, 昭和 48 年 3 月.
- 7) K. Inoue: J. Nucl. Sci. Technol, 7 [11], 580 (1970).