HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	冷減速材内の冷中性子パルスの時間的振舞いの研究
Author(s)	大友, 詔雄; 井上, 和彦
Citation	北海道大學工學部研究報告, 73, 105-114
Issue Date	1974-12-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41239
Type	departmental bulletin paper
File Information	73_105-114.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

北海道大学工学部研究報告
第73号 (昭和49年)

Bulletin of the Faculty of Engineering,
Hokkaido University, No. 73 (1974)

冷減速材内の冷中性子パルスの時間的振舞いの研究

大友詔雄* 井上和彦*

(昭和49年6月28日受理)

On the Study of the Time Behaviour of the Cold Neutron Pulses in the Cold Moderators

Norio OTOMO* Kozuhiko INOUE*

(Received June 28, 1974)

Abstract

Theoretical calculations of a time-dependent neutron spectra were carried out in detail in water at room temperature, in ice and condensed methane at extremely low temperatures and a comparison of the results of several experiments was run; pulsed neutron method, measurement of the monochromatic neutron pulses by the neutron reflections of a single crystal and all experiment of the time-dependent neutron spectra. The neutron pulse width can be obtained from the monochromatic neutron pulse characterisitics and the mean emission time of the cold neutron at 0.001 eV was more than 200 micro-sec. in ice and solid methane at 20°K. The effect of the time resolution in the experiment of the cold neutron spectroscopy can not be disregarded.

1. 序　　言

加速器を用いるパルス状冷中性子源では，ターゲットで発生した速中性子が，冷減速材内の主として水素原子核との相互作用を通して減速され，数 μS で熱中性子エネルギー領域に至り，数 10 μS で冷中性子エネルギー領域に及ぶ。この間，媒質内の吸収や体系外への漏出によって，冷減速材内の全中性子強度は急速に低下し，特に高エネルギーにおいて著しい低下を見るが，冷中性子強度は，これとは反対に急速な増加が見られる。その後，中性子の高エネルギー側から供給が減少するに伴い，又，低エネルギー側で増大する吸収によって，冷中性子強度も減衰する。この結果，当初数 μS の電子線パルス幅に等しかった速中性子パルス幅は，数 10～200 μS の冷中性子パルス幅になる。このパルス幅は，体系の平均放出時間に対応する。

パルス状冷中性子ビームを散乱実験に利用する場合，冷中性子源からの冷中性子の平均放出時間が，TOF 実験の時間分解能に直接影響する因子となるから，加速器を用いるパルス状冷中性子源の研究開発には，冷中性子パルス幅をあらかじめ明らかにしておくことが重要であり，このために，単色エネルギーの冷中性子パルスの時間特性を知る必要がある。パルス状冷中性子源

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

に用いる極低温の含水素冷減速材内の中性子スペクトルの形状は一般に Maxwell 分布とは異なり[1]，冷中性子パルスの時間特性に基本モードの励起は見られないし，又，基本モードの励起が見られたとしても，かなり長時間後の冷中性子強度を著しく低下させた段階であるし，過渡的領域では，当然，各エネルギーによって減衰モードは異なり，同一エネルギーでも時々刻々変化しているから，実質的に基本モードを観測することは難かしい。従って，パルス幅を決めるには任意のエネルギーの冷中性子パルスの過渡的領域から漸近領域に至る冷中性子パルスの形状を詳細に知らなければならない。

冷中性子パルスの時間特性は，実験・理論のいずれの方法でも原理的に求め得るが，パルスの立ち上がりが数 μS であるため，実験的にこれを精度良く測定することは実際には出来ないので理論的に求めるのが手取り早く，減速材の散乱模型さえ決まれば比較的容易であるから，これ迄に，時間依存中性子スペクトルを解く試みは数多くなされている。例えば，冷中性子成分よりも高いエネルギー領域については，Marshak[2] 及び von Dardel[3] らの仕事があって，時間の早い領域から有効な解を与えている。しかし，彼らの用いた散乱模型は，中性子減速材としては実用的でない理想化されたものであり，我々が問題にしたい低エネルギー領域の中性子パルスの時間特性を明らかにする点について見れば，定性的情報を得るとしても，パルスの立ち上がりの部分を除き，実質的に役に立たない。一方，実用的な散乱模型については，Reichardt[4] や Tewari と Kothari[5] らによって行なわれている。ところが，彼らの研究では，時間の早い過渡的領域については殆んどれ触られていないし，冷減速材も氷に限られており，効果的なパルス状冷中性子源についての知見を得るには不十分である。

本論文では，上述の観点で，既に提案した過渡的時間依存中性子スペクトルの数値計算に適した解[6),7)]

$$\phi_i^{(1)}(\Delta t) = \phi_i^{(0)} e^{-v_i \Sigma_i' \Delta t} + \frac{1}{\Sigma_i'} [\boldsymbol{J}' \phi^{(0)}]_i (1 - e^{-v_i \Sigma_i' \Delta t}) + \frac{1}{v_i \Sigma_i'^2} [\boldsymbol{J}' (v \boldsymbol{J}' \phi^{(0)} - v \Sigma' \phi^{(0)})]_i \{v_i \Sigma_i' \Delta t - (1 - e^{-v_i \Sigma_i' \Delta t})\} + \cdots \qquad (1.1)$$

を用いて，水，氷，凝集メタン内の時間依存中性子スペクトルを計算し，パルスの時間特性を明らかにし，各種の実験結果との比較検討も併わせて行っている。

2. 冷減速材内の冷中性子パルス

(1.1)式の右辺の第2項迄とった近似式を用いて，冷減速材として固体メタンと，極低温氷について，時間依存中性子スペクトルを計算し，パルスの時間特性を調べた。又，常温の水についても同様のことを行なった。この三つの減速材についてのパルス中性子法及び単結晶による単色中性子パルスの測定結果との比較検討も行った。

2.1 水

常温の水は，典型的な Maxwell 分布を形成し，無限体系で $1/v$ 吸収体の場合，中性子束の減衰時間 $t_0 = 1/v_0 \Sigma_{a0}$ は約 200 μS であるが，有限体系では漏洩する中性子による減衰を考慮しなければならず，この場合の減衰時間は，体系の幾何学的バックリング B_g^2 を用いて，$t_0 = 1/(v_0 \Sigma_{a0} + \bar{v} D B_g^2)$ で近似される。$B_g^2 \sim 0.405\ \mathrm{cm}^{-2}$ の体系についてのパルス実験の結果 (図 1.1) において，常温では $1/\alpha \sim 149\ \mu$S となっていて，t_0 の値よりも大きく，低エネルギー成分の中性子飛行時間の影響が見られる[6)]。打込み直後の時間の早い領域では，エネルギー分布の高調波成分が存在し $1/\alpha$ を決定することは出来ない。

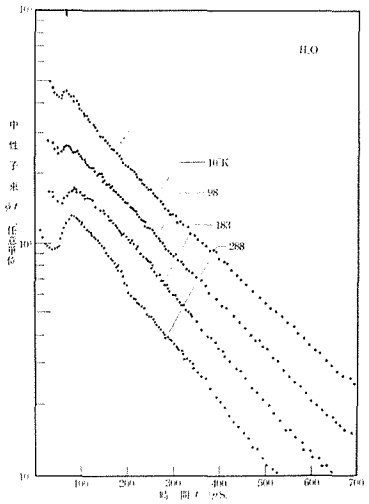

図 1.1　水及び氷の中性子パルスの減衰

表 1

E (eV)	$1/\alpha$ (μ Sec.)
0.017	34.5
0.03	35.7
0.08	37.8
0.11	36.0
0.24	24.4

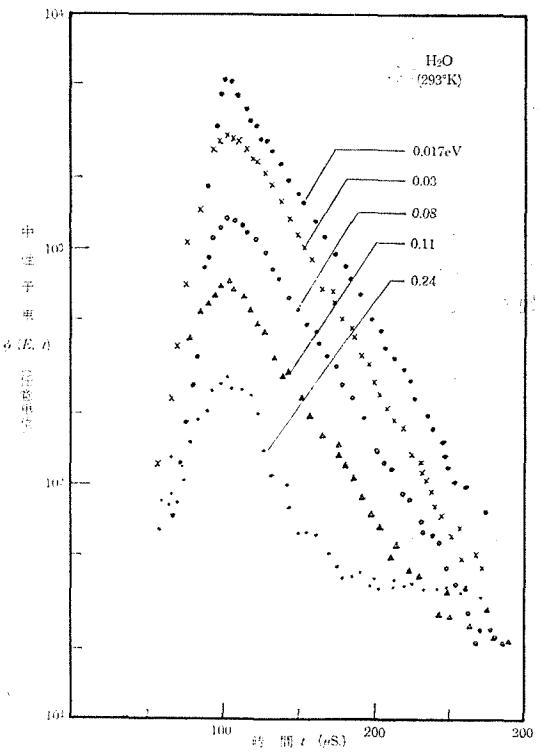

図 1.2　常温の水における単色中性子パルスの時間特性

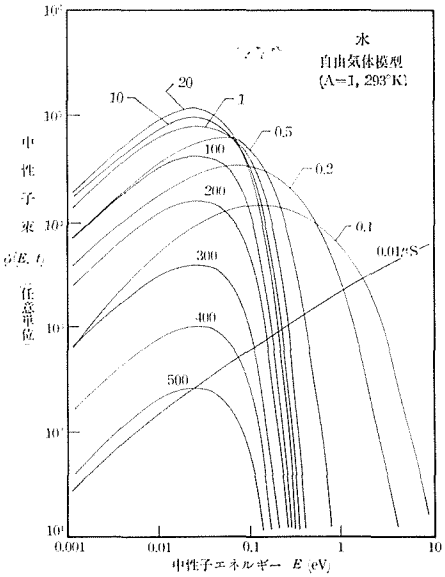

図 1.3　水（常温，自由気体模型）の時間依存中性子スペクトル

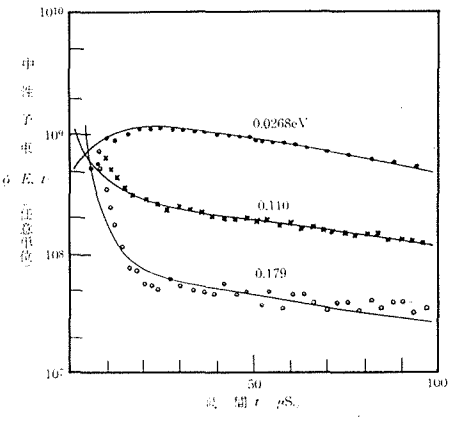

図 1.4　水の単色中性子パルスの時間特性の実験値（Menzel ら[10]）と計算値との比較

常温の水 ($5\times25\times25\ cm^3$, $t_0\sim60\ \mu S$) の単色中性子パルスの測定結果 (図 1.2) から，各エネルギーの $1/\alpha$ の値は表 1 に示してあるが，漸近領域に至っていない減衰曲線から α を求めているため，t_0 よりも幾分小さくなっている。パルスの立ち上がりは数 10 μS になっているが，これは単結晶に入射する中性子の角度のゆらぎによる分解能によるものであり[9]，従って，この測定結果から直接パルス幅を決定出来ない。

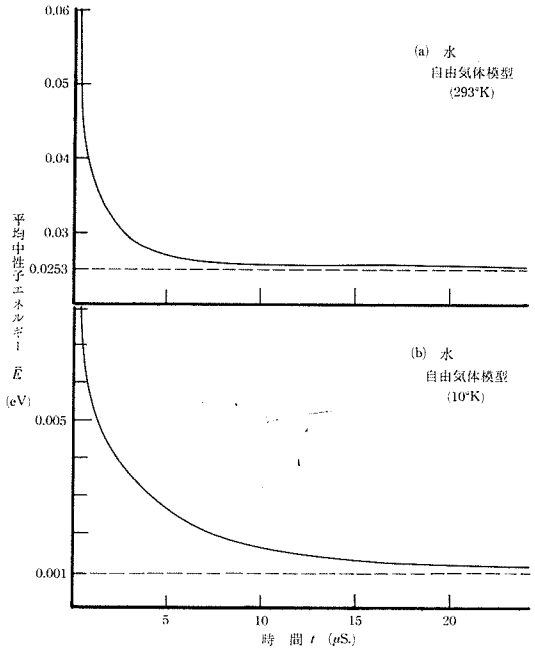

図 1.5 水の平均中性子エネルギー $\bar{E}$ の時間変化

Menzel ら[10] は，311°K の水 ($7.16\times25.02\times25.4\ cm^3$) の時間依存中性子スペクトルを測定し，単色中性子パルスの時間特性を求めているが，この場合は立上りの部分から一応測定がなされ，パルス幅を決定出来る。我々は，Menzel らと同じ条件で自由気体模型で時間依存中性子スペクトルの計算を行なった。時間依存中性子スペクトル (図 1.3) は，過渡的領域で特異な形状を示し，基本モードの励起を論じることは出来ない。これから単色パルスを求め，Menzel らの実験と比較した (図1.4)。両者は比較的良い一致を示している。中性子の平均エネルギーの時間的変化は，常温 (図 1.5 a) で，熱化時間が 4 μS の値になることを示していて，妥当な結果となっている。10°K (図 1.5 b) では，約 30 μS に達し，中性子の減速・冷却に時間を要していることが明瞭である。

2.2 氷

極低温の氷では，Debye 温度が比較的高エネルギー領域にあって，非弾性散乱断面積が低エネルギー側で非常に小さな値になるため，中性子スペクトルのピークはかなり高エネルギー領域に現われる[1),11)]。このことは，熱平衡へ近接する時定数がかなり大きくなり，実際に観測されるスペクトルは熱平衡スペクトルではない。

氷のパルス中性子の実験の結果は，図 1.1 から $1/\alpha$ の決定が一応可能であって，その値は表 2 に示す。ところが，これから各エネルギーの中性子パルスの時間特性を推察することは出来ない。この理由は以下に述べる。

表 2

T (°K)	$1/\alpha$ (μ Sec.)
288	149
183	182
98	209
10	225

0°K の極限の氷の模型[11] を用いて計算した時間依存中性子スペクトル (図 2.1) は，過渡領域において，分子振動の励起や分子のねじれ回転の励起をそれぞれ 0.16 及び 0.075 eV 付近にも特徴のある形状を示している。図 2.1 と中性子の平均エネルギーの時間変化 (図 2.2) の状況とから，ほぼ 10 数 μS 後に，ほとんどの中性子が熱中性子エネルギー領域以下へ急速に減速し，体系内に冷中性子を蓄積させ，氷特有の非弾性散乱断面積による冷中性子ネルギー領域における緩やかな中性子エネルギー授受の過程によって，数 100 μS あるいはそれ以上の長時間にわたって，スペクトルの形状をあまり変えることなく，徐々に平均中性子エネルギーを減少させつつ，スペクトル強度を減衰させていることが理解される。0°K の極限の模型であるから，詳細釣

合の原理が作用することはなく，スペクトルの形状も Maxwell 分布とは違った，散乱と吸収の競合による特異な鋭い形をなし，スペクトルは落着かない。しかし，十分長時間後，実質的には無限大時間で，中性子密度は大幅に小さくなるが，スペクトル・ピークが充分低エネルギー側へ移動した段階でスペクトルは落着き，基本モードの励起を見ることが出来る。図 2.2 は明らかにこの傾向を示している。有限温度の模型では，詳細釣合の原理が作用するのは早くなるはずであるが，20～30°K では，0°K の場合と大差はない。Reichardt による 20°K の氷の時間依存中性子スペクトルの測定結果[4] と計算結果との比較では，両者は良い一致を示す (図 2.3)。

単色中性子パルスの時間特性 (図 2.4) は，上述の氷特有の状況を明瞭に示していて，前節の自由気体の場合とは異なり，基本モードの励起を見るこ

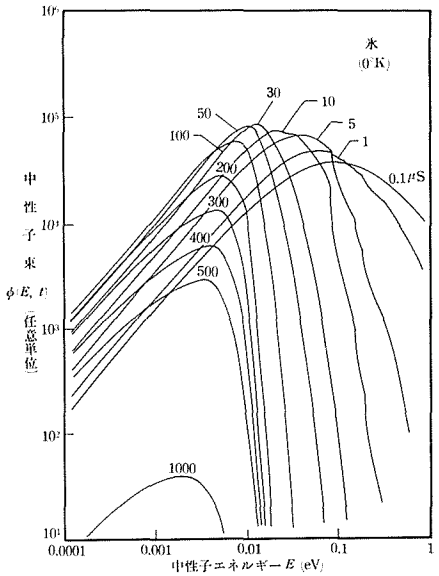

図 2.1　氷 (0°K) の時間依存中性子スペクトル

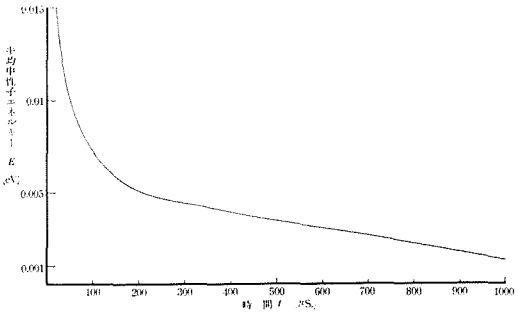

図 2.2　氷 (0°K) の平均中性子エネルギー $\bar{E}$ の時間変化

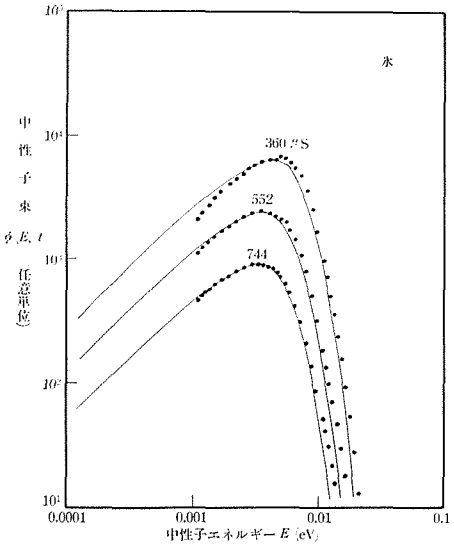

図 2.3　氷の時間依存中性子スペクトルの実験値 (Reichardt[4]) と計算値との比較

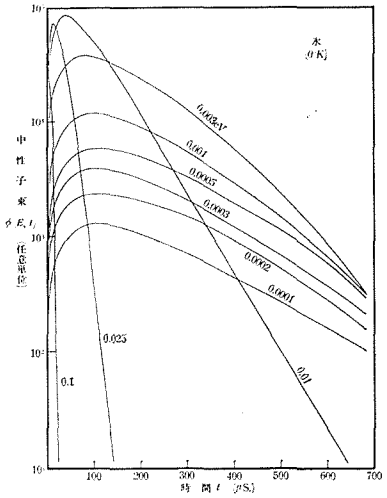

図 2.4　氷の単色中性子パルスの時間特性

とは出来ない。氷の単色中性子パルスの時間特性については，Ishmaev[12] が 77°K で測定を行っているが，あまり明瞭ではない。図 1.1 のパルス中性子実験の結果は，図 2.4 の各エネルギーの $1/\alpha$ の重畳であるから，10°K について減衰曲線を，各種の補正を行った計算から求めると図 2.5 の実線になり，良い一致を見る。破線は補正を行なわなかった場合であるが，体系の真の減衰曲線を示していて，$1/\alpha \sim 124\ \mu$S となる。

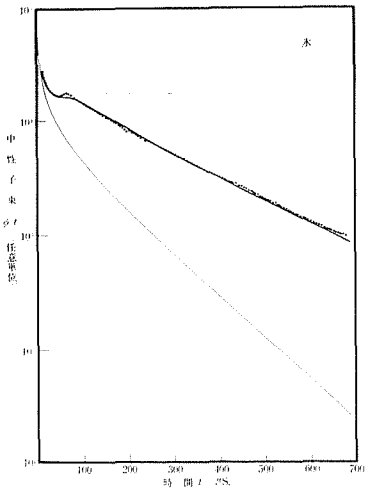

図 2.5 氷の中性子パルスの時間的減衰の計算と実験との比較

2.3 固体メタン

パルス状冷中性子源に適切な冷減速材である固体メタン[1),13)] の時間依存中性子スペクトルを調べた例は未だない。固体メタンは氷とは違って，自由回転定数が 0.00075 eV と低く，回転の自由度が低エネルギー中性子の減速機構として存在している。

液体・固体メタンのパルス中性子実験の結果[8)] (図 3.1) から，固体メタンが氷とは違って凝似基本モードの励起が早く，表 3 のように $1/\alpha$ の値が求まる。$1/\alpha$ の値は，温度の低下に伴って大きくなり，12.5°K で 237 μS で，同一体系 ($B_g^2=0.1349\ \mathrm{cm}^{-2}$) についての t_0 の値が 220 μS であるから，ほぼ 1 割程度大きな値になっているが，これは氷の場合と同様に，低エネルギーでの飛行時間の影響による[6)]。

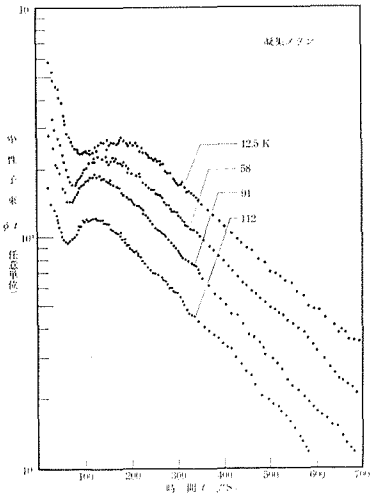

図 3.1 凝集メタンの中性子パルスの減衰

固体メタンの散乱模型は，回転の自由度の束縛の強さについては未だ明らかでないため自由回転模型[14),15)] と束縛回転模型[16),17)] を用いて，時間依存中性子スペクトルの計算を行った。結果を図 3.2 a, b に示す。束縛回転模型の場合 0.0017 eV 付近に束縛回転の励起の影響が見られ，スペクトルの立上がりが自由回転に比べて幾分緩やかになっているが，これらを除けば，両者の様相は，過渡領域から漸近領域に至る迄ほぼ同様である。回転模型の違いが，時間依存中性子スペクトルに大きな差異を示さないのは，回転の基底状態から第 1 レベルへの遷移が十分低エネルギーにあって，この領域迄の中性子の減速・冷却に回転の自由度の模型の違いがあまり影響しないことと，回転模型の影響が強まる低エネルギー領域では，それ以上に詳細釣合の原理が作用するためと考えられる。

中性子の平均エネルギーの時間変化 (図 3.3) から，平均エネルギーが数 μS で急速に熱中性子エネルギー領域に落ち込み，その後，徐々に媒質温度に近づき，熱化時間は約 100 μS になっている。低エネルギーへの中性子の落ち込みが早く，早くから詳細釣合の原理が作用して，スペクトルが落ちつき，典型的な Maxwell 分布によく似たスペクトルを形成して，ほぼ基本モードで減衰している。しかし，こうした状況もメタン温度が 10°K 以上の場合につい

表 3

T (°K)	$1/\alpha$ (μ Sec.)
112	183
91	184
58	218
12.5	237

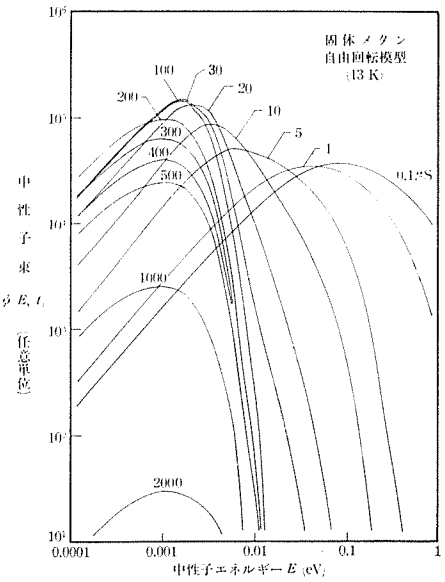

図 3.2(a) 固体メタン（自由回転模型）の時間依存中性子スペクトル

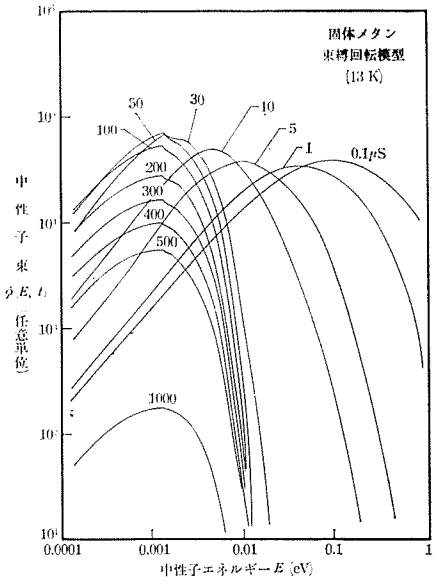

図 3.2(b) 固体メタン（束縛・回転模型）の時間依存中性子スペクトル

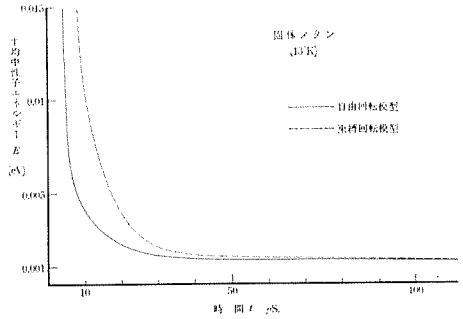

図 3.3 固体メタンの平均中性子エネルギー $\bar{E}$ の時間変化

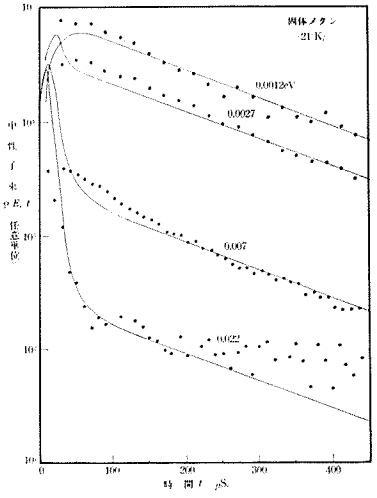

図 3.4 固メタンの単色中性子パルスの実験値と計算値との比較

てであり，温度がこれよりかなり低くくなると異った状況が生じるはずである[17]。

20°K の固体メタン (B_g^2=0.217 cm^{-2}) の単色中性子パルスの時間特性の測定結果と，計算結果の比較 (図 3.4) は，減衰部分について良い一致を見ているが，パルスの立ち上がりの部分については，実験の分解能によって大きく広がっているため一致しない。0.022 eV について見ると，減速によるスペクトルの低エネルギー側への移動による中性子密度の減少による 50 μS 位迄に急速に減衰するモードと，その後の基本モードの減衰の二つの減衰モードが見られ，高エネルギーほどこの状況が顕著に観測される。各エネルギーの減衰による減衰部分の $1/\alpha$ の値

表 4

E (eV)	$1/\alpha$ (μ Sec.)
0.0012	180
0.0027	145
0.0056	117
0.022	15
0.031	22
0.046	17

は表4 に示す。0.0021 eV の $1/\alpha$ の値はほぼ基本モードの減衰である。

図3.1の場合の 12.5°K の固体メタンのパルス中性子実験の結果を導くと，図3.5の破線になり，$1/\alpha \sim 188\ \mu S$ となっている。これから，10°K 以上の固体メタンの場合には，パルス中性子実験による α の測定が一応可能であることがわかる。実線は，氷の場合と同様，各種補正を行った結果であって，実験値と良く一致している。

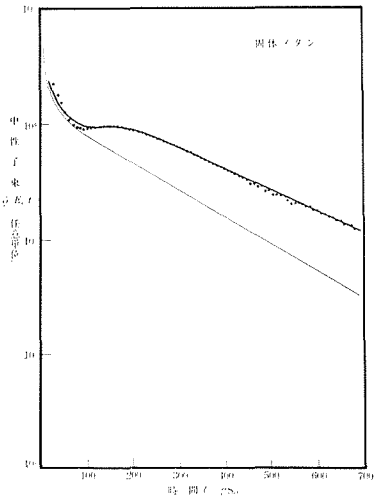

図3.5 固体メタンの中性子パルスの時間的減衰の計算と実験との比較

3. 議論と結言

単色冷中性子パルスを立ち上がりの部分から実験的に正確に求める目的には，パルス中性子法は本質的に困難であるし，単結晶回折法では立ち上がりの部分がぼけてしまうからパルス幅を決めれない。従って，Menzel や Reichardt らのように時間依存中性子スペクトルを直接測定することが望ましい。しかし，これは容易ではない。それで，単結晶回折法などで単色冷中性子パルスの一応の測定を行ない，理論計算で立ち上がりの部分の時間を補正して，正しい冷中性子パルス幅に近づけることが実際的である。我々の方法による計算では，立ち上がりの部分から漸近領域迄，正しい値を示すから，実験との適合を見ながら，冷減速材の散乱模型の検証を併わせて行いつつ，パルス幅を求めることに有力である。

こうした実験と理論計算とを結合させてパルス幅を求め，これからパルス状冷中性子源の平均放出時間を求めた。図4.1～3に常温の水，極低温氷，固体メタン (20°K) の場合について，我々の計算値から $1/\alpha$ を求めこれに立ち上がりの時間を加えたものを実線で示し，パルスの半値幅を鎖線で示し，一次モーメントによるもの[18),19)]を破線で示してある。実験値は単結晶による単色パルスの $1/\alpha$ の値である。いずれの場合も，類似の結果が求まっているが，固体メタンの 0.007～

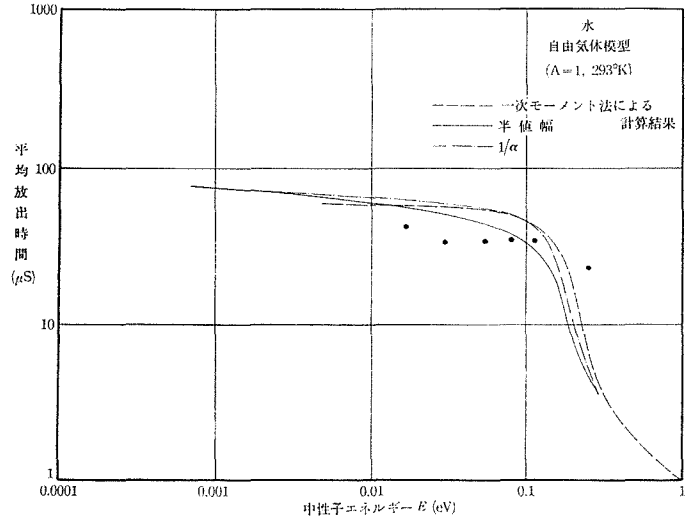

図4.1 水の平均放出時間

0.01 eV 付近では，かなりの差が見られ，さらに検討が必要である。氷及び固体メタンとも，0.001 eV の冷中性子の平均放出時間は，約 200 μS 以上に及び，冷中性子をを用いる散乱実験では飛行路は数 m 程度であるから，分解能に与える影響は無視出来ない。表 5 に固体メタン 20°K の場合の平均放出時間の分解能を示す。効果的なパルス状冷中性子源に望まれるパルス幅としては，さらに短いことが必要である。パルス状熱中性子源では，減速材を薄くしたり，吸収材を加えたりして，減衰時間を短かくして，パルス幅を狭める努力をしているが[20]，冷中性子源についても，同様の方法を用いることが出来るが，もともと冷中性子強度は弱いから，冷中性子強度を出来るだけ下げないようにして減衰時間を短かくする工夫が必要であるが簡単なことではない。

極低温冷減速材では，一般に完全な熱平衡分布は形成されないから，熱化時間を従来のやり方で求めることは妥当ではない。極低温氷では明らかにこの理由によって熱化時間を求めること

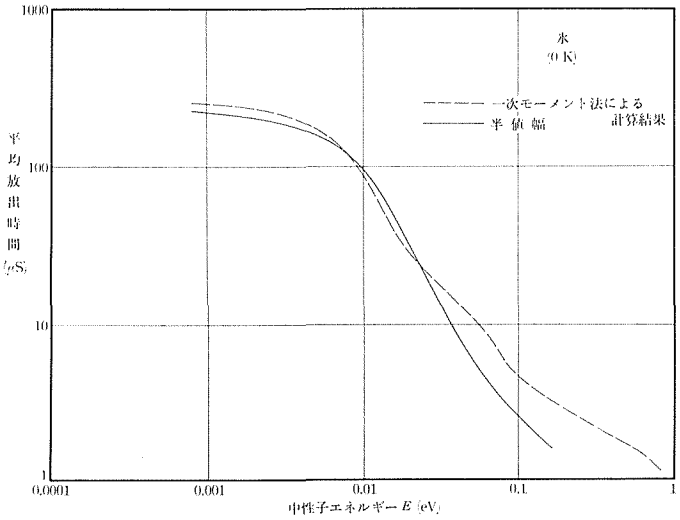

図 4.2　氷の平均放出時間

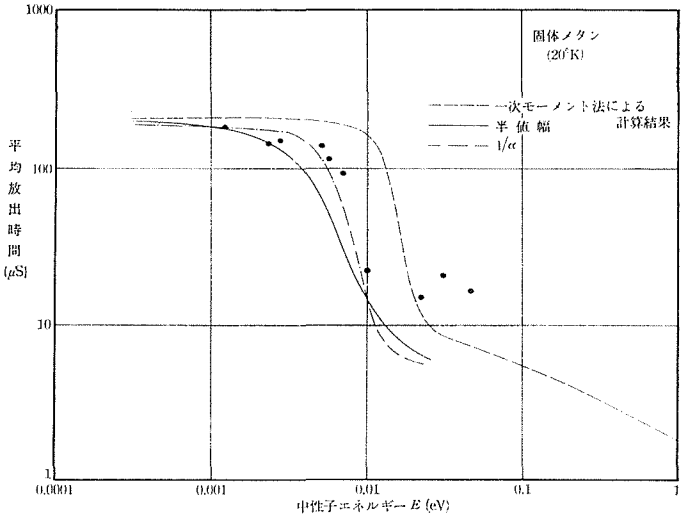

図 4.3　固体メタンの平均放出時間

表 5

E (eV)	平均放出時間 (μS)	飛行路長 5 m			飛行路長 10 m		
		飛行時間 (mS)	$\Delta t/t$ (%)	$\Delta E/E$ (%)	飛行時間 (mS)	$\Delta t/t$ (%)	$\Delta E/E$ (%)
0.001	200	11.4	1.8	3.6	22.9	0.9	1.8
0.025	10	2.3	0.4	0.8	4.6	0.2	0.4

は出来ない。固体メタンの場合は一応基本モードに近い励起が見られるから，熱化時間の評価が出来て，t_{th}～100 μS になる。この値は，10°K の自由気体模型で計算した常温の水の場合の約3倍以上の長時間になっていて，熱平衡分布が形成しにくいことを示している。

参考文献

1) Inoue, K., Otomo, N., Iwasa, H. and Kiyanagi, Y.: J. Nucl. Sci. Technol., 11 [5], 60 (1974).
2) Marshak, R. E.: Rev. Mod. Phys., 19, 185 (1947).
3) von Dardel: Transactions of the Royal Institute of Technology Nr. 75 (1954).
4) Reichardt, W.: IAEA Symposium of Neutron Thermalization and Reactor Spectra, Ann Arbor, USA, July (1967).
5) Tewari, S. P and Kothari, L. S.: Nucl. Sci. Eng., 39, 193 (1970).
6) 大友詔雄，井上和彦：北海道大学工学部研究報告，第 64 号 (1972).
7) 大友詔雄，井上和彦：同上，第 72 号 (1974).
8) 住田健二，他：日本原子力学会，昭和 46 年年会，B. 51 (1971).
9) 井上和彦，他：同上，昭和 49 年年会，C. 15 (1974).
10) Menzel, J. H., Slovacek, R. E. and Gaerttner, E. R.: Nucl. Sci. Eng., 42, 119 (1970).
11) Inoue, K.: J. Nucl. Sci. Technol., 7 [11], 36 (1970).
12) Ishmaev, S. N. and Sadikov, I. P.: Atomnaya Énergiya, vol. 32, No. 1, pp. 33-38, January (1972).
13) 井上和彦，大友詔雄，岩佐浩克：北海道大学工学部研究報告，第 70 号 (1974).
14) Pauling, L.: Phys. Rev, 36, 430 (1930).
15) Dorner, B. and Stiller, H.: Inelastic Scattering of Neutrons, IAEA, Vienna vol. II, 291 (1965).
16) Kosály, G. and Solt, G.: Physica 32, 1571 (1966).
17) 井上和彦：北海道大学工学部研究報告，第 63 号 (1972).
18) 井上和彦：日本原子力学会，昭和 47 年年会，C. 33 (1972).
19) 中田哲夫：北海道大学工学研究科，修士論文 (1974).
20) Day, P. H. and Scinclair, R. N.: Nucl. Sci. and Meth., 72, 237 (1969).