



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	加速器冷中性子源と準弾性散乱分光器およびそれによる研究
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, K; 鬼柳, 善明 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 106, 57-68
Issue Date	1981-11-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41700
Type	departmental bulletin paper
File Information	106_57-68.pdf



加速器冷中性子源と準弾性散乱分光器およびそれによる研究

井上和彦* 鬼柳善明* 岩佐浩克* 神宮司潔*
(昭和56年6月30日受理)

Accelerator-based Cold Neutron Sources, Quasielastic Scattering Spectrometers and Investigation Using These Apparatuses

K. INOUE, Y. KIYANAGI, H. IWASA and K. JINGUJI
(Received June 30, 1981)

Abstract

Several laboratories in the world have been developing intense neutron sources using large capacity accelerators for the neutron scattering experiments. We have developed a cold neutron source using a modest capacity electron linac at the Hokkaido University, and it has been under operation successfully over an extended period. The design philosophy developed at the Hokkaido University was adopted for the installation of the cold neutron source into the spallation neutron source at the National Laboratory for High Energy Physics. These accelerator-based cold neutron sources are the only two which are under operation in the world at present. Furthermore two quasielastic scattering spectrometers utilizing the characteristics of the pulsed cold neutron source were developed and installed with the above cold neutron sources, and have used for the investigation of the random motions in the molecular systems. Here we describe the design philosophy, the details and operational experiences of the apparatuses, and some results of the experiments using these spectrometers.

1. 序 言

低エネルギー中性子散乱は、凝集体研究の有力な手段として活用されているが、そのための中性子散乱実験では、殆んどの場合に研究用原子炉が中性子源として使われてきた。加速器も中性子発生に利用することができる。初期には、コッククロフト型あるいはシンクロトロンが核物理などの研究に中性子発生用として使われ、その後、原子力開発においてライナックが中性子輸送や中性子断面積の研究に利用された。しかし、これらの加速器中性子源は、特に初期のものは中性子散乱実験用には全く強度が不足していたし、また原子力開発で発達して使われたライナックも中性子散乱実験用としては十分な性能ではなかった。

中性子散乱実験では、使用できる中性子束強度が高ければ高い程、即ち、線源輝度が明るい程実験精度は向上し、さらに効率よく複雑な測定が可能となる。そこで、高中性子束の要請に応じて、研究用原子炉は高出力のものが作られて発展を続けてきたが、現在ではほぼ原子炉工学的な

* 原子工学科 放射線源工学講座

制約による最高限界に達している。^(註1) そのため、近年、世界各国において、将来の中性子散乱実験用強中性子源としての加速器による中性子源の可能性が見直されて、加速器中性子源の研究開発が始まっている。^{(1)~(4)} この加速器強中性子源の研究開発における国際協力活動が ICANS (International Collaboration on Advanced Neutron Sources) である。

加速器中性子源は、この強中性子源の可能性という特色の他にもまだいくつかの特色を持っている。例えば、(i)パルス線源であるために比較的エネルギーの大きな低エネルギー中性子による散乱実験の可能性があり、これは原子炉中性子源では困難である。⁽⁵⁾ また、(ii)汎用の加速器のさきうるマシンタイムを利用して散乱実験に流用するなど、これは全く方式の異なる実験への加速器の適応性の良さを生かした使い方である。⁽⁶⁾ この他にも、(iii)加速器では冷中性子源設備を、原子炉の場合に比べて、はるかに簡単に設置できるなどの利点がある。⁽⁷⁾

(i)の特色を生かした研究は Harwell において早くから提唱されて、Windsor 等が研究を進めている。⁽⁵⁾ また、我が国では、パルス線源の利用に関して東北ライナックにおいてパイオニア的研究が進行した。⁽⁸⁾ (ii)の特色については、その最も適切な例を、後述する高エネルギー物理学研究所の我が国最大のシンクロトロンブースターを利用した KENS スパレーション中性子源において見ることができる。⁽⁴⁾ (iii)に関しては、20 K 固体メタンを使って、初めての実用的な加速器冷中性子源が北海道ライナックにおいて作られ、⁽⁹⁾ これと同方式のものが上記の高エ研 KENS 中性子源にも設置された。^(註2) 稼動している加速器冷中性子源は、世界中で、我が国のこの2基だけであり、現時点で、海外のものは建設中あるいは計画中である。⁽¹⁰⁾

上記の ICANS には、米国、英国、西独からそれぞれ2研究所、およびカナダ、スイス、日本からそれぞれ1研究所が参加している。我が国の ICANS 加盟研究所は上記の高エ研であり、高エ研の KENS 中性子源は ICANS の中性子源のなかで最初に稼動を始めた。KENS には東北ライナックで研究開発された経験と技術が集約されており、また KENS の冷中性子源には北海道ライナックで研究開発された冷中性子源の方式と技術が用いられている。⁽⁴⁾

北海道ライナックにおいては、加速器冷中性子源の特性を利用した準弾性散乱分光器が開発設置されて、小容量加速器にもかかわらず、高能率の冷中性子源と相まって、分子系の揺動の研究に利用されてきた。⁽⁹⁾ さらに、同設計の準弾性散乱分光器が KENS 冷中性子源にも設置されて、高感度の利点を生かして利用されている。⁽¹⁰⁾

本論文では、まず 20 K 固体メタンを用いた加速器冷中性子源の設計理念と中性子工学的特性および北大冷中性子源の運転経験について述べる。次に、北大および高エ研に設置された加速器冷中性子源を用いた準弾性散乱分光器の設計と構造および特性について述べる。最後に、これを用いた分子系の揺動の研究について述べる。

2. 加速器冷中性子源

2.1 冷中性子とその発生

低エネルギー中性子のなかで、エネルギーが 0.005 eV 以下のものは冷中性子と呼ばれて、主に

(註1) 現在、世界最強の研究用原子炉は Laue-Langevin 研究所 (ILL) の HFR 炉であり、その熱中性子束密度は $1.5 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。ほぼこの値が現在の技術の上限と考えられている。

(註2) 東北ライナックは東北大学核理研電子ライナックのことであり、北海道ライナックは北海道大学 45 MeV 電子ライナックのことであり、現在、各国の加速器中性子源関係者の間でこれらの呼称が使用されている。

凝集体研究の有用な道具として使われている。波長で言うと 4 \AA 以上の長波長中性子であり、その長波長と低エネルギーであることの特徴を生かして、 $10^{-12} \sim 10^{-9}$ 秒の特性時間の揺動運動を調べる準弾性散乱、巨大分子系や微小ドメインの静的構造を調べる小角散乱、あるいは格子欠陥を調べる散漫散乱などの種々の中性子散乱実験に冷中性子は利用されている。

原子炉の減速材内で作られる熱中性子には、ごくわずかであるが冷中性子が含まれている。さらにその量を増すために冷減速材が使われる。この原子炉冷中性子源は定常冷中性子源であり、冷中性子を多量に発生させることができる。⁽¹¹⁾ 原子炉冷中性子は、早くから欧州の研究用原子炉に設置・活用されてきたが、我が国にはまだ設置されていない。米国ではごく最近になって設置されたばかりであり、我が国では計画中でその実現は数年先の予定である。したがって、我が国では、冷中性子を使った実験は殆ど行なわれなかった。我が国で、冷中性子源が原子炉に設置されなかった1つの理由は、冷中性子源を原子炉に設置する際の安全性の問題と、その安全対策のための技術的複雑性のためである。そこで、我々は、原子炉冷中性子源の完全な代わりにはならないが、限られた用途に対しては充分実用になる冷中性子源を、加速器によって実現することを考えた。加速器の場合には、装置が開放的であるので、原子炉の場合に比べて問題がはるかに軽減される。まず、手頃な小容量の電子ライナックを用いて予備実験を行なうことにして、さらにこのライナックに最小限度の容量で実用になる強度を備えた冷中性子源を設置することを計画した。

2.2 冷減速材の選択

我々が加速器冷中性子源を計画した当時は、加速器冷中性子源の実例あるいは設計に役立つデータは殆どなかった。冷中性子源に関する情報は原子炉中性子源に関するものだけであった。原子炉冷中性子源では、冷減速材として、液体水素または液体重水素が使われていた。⁽¹¹⁾⁽¹²⁾ 加速器の場合にはこれらの冷減速材はあまり適当ではない。液体水素の欠点は、まず水素原子密度が小さく、次に 0.015 eV 以下でパラ水素の断面積が激減することである。このために、冷減速材自体が低エネルギー中性子に対する減速中性子を供給する役割を持つパルス中性子源では、液体水素では強度が小さくなり、また冷中性子の漏洩による損失が大きくなる。液体重水素の欠点は、全散乱断面積が小さくないために、冷減速材の大きさが大きくなり、パルス線源としてのパルス特性が不適切になる。パルス幅が狭く、かつ強度を大きくするためには、やはり含水素冷減速材を用いる必要がある。適切な冷減速材としての他の重要な条件は、小さなエネルギーを中性子から受け取ることができる機構を備えていることである。液体水素あるいは液体重水素では、この機構としては、分子の併進がその役割を果たしているが、それ以外の含水素物質では 20 K 程度の低温で全てのものが固体状態になっている。この状況のもとで、充分小さな固有運動エネルギーを持つものとしては、メタンがある。

以上の様な中性子工学的な問題以外に、放射線による冷減速材の放射線損傷の問題がある。水素の場合には γ 線加熱または核加熱による蒸発だけを考えればよいが、メタンではメタンの分解生成物が問題となる。そして、使用時には、固体メタン内にそれが蓄積することになる。後者の点については、我々がさしあたり使用する加速器では、数日の連続運転においては、殆ど問題にならない。しかし、分解生成した水素がそれ以外にどのような影響を及ぼすかは、当初は予測がつかなかった。しかし、水素ガスがメタンガスに混入するだけでは、安全性の上では問題が起これないと予想された。この安全性に関する予想は正しかった。しかし、安全性には全く影響しないが、運転上の問題を引き起こすことが後で明らかになった。

我々は、まず、数種類の冷減速材について、加速器線源と中性子飛行時間法で、冷減速材からの

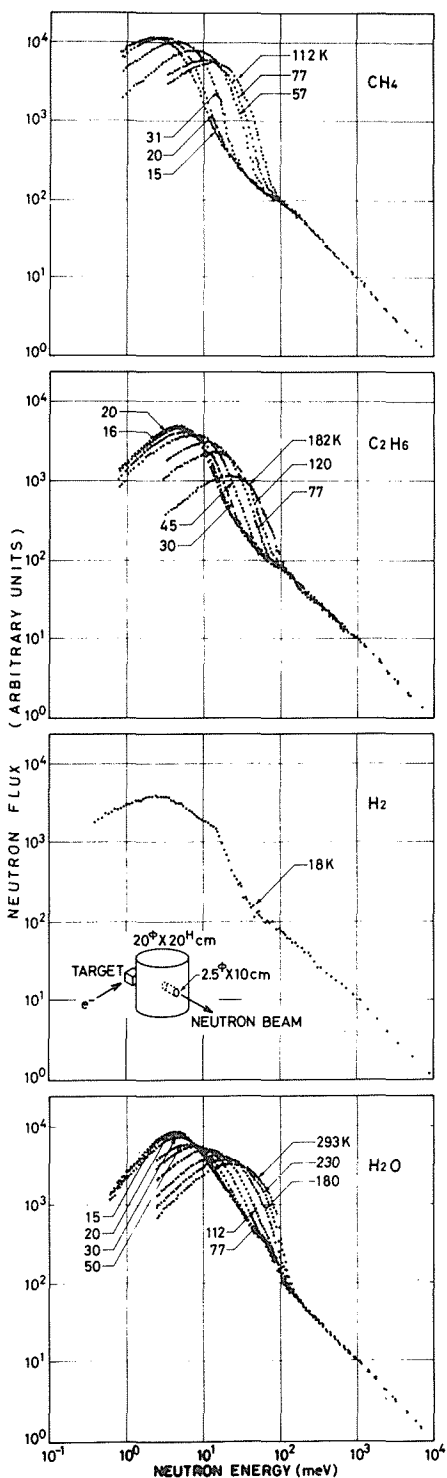


図1 各種冷減速材よりの中性子エネルギースペクトル

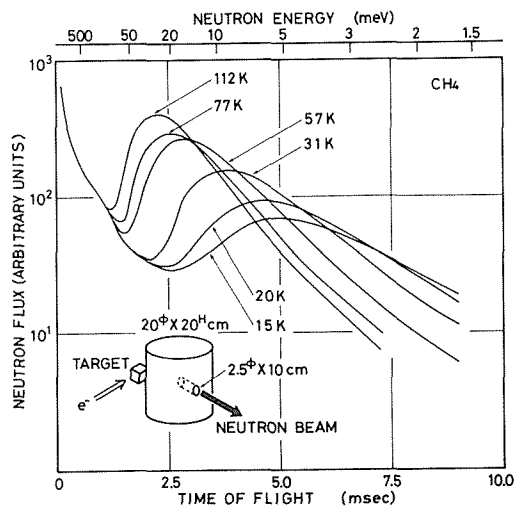


図2 メタン冷減速材よりの中性子飛行時間スペクトル

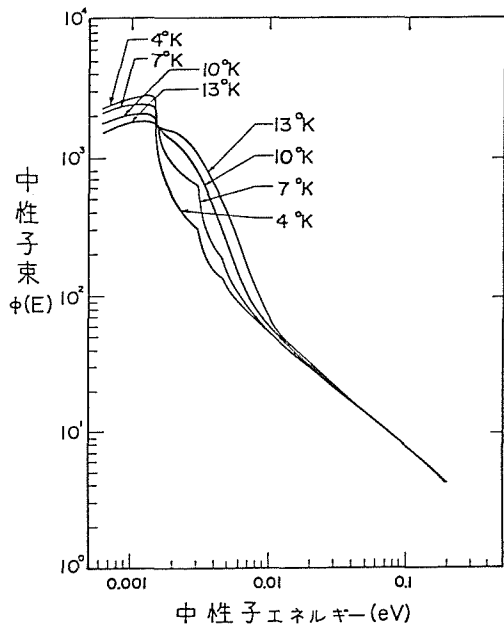


図3 極低温メタンよりの中性子エネルギースペクトルの計算結果

冷中性子スペクトルを比較測定した。McReynolds と Whittemore は水素およびメタンについて飛行時間法による測定を行っていたが、彼等のデータは我々の目的には不十分なものであった。⁽¹³⁾ 数種類の冷減速材について測定した結果を図1に示す。円筒状の冷減速材について、種々の温度で測定し、 $1/E$ 分布で規格化してプロットしてある。図からわかる様に、冷中性子利得の点からは、メタンが最も有利である。図2は、メタンの冷中性子スペクトルを飛行時間の関数で示したものである。4 Å 付近の波長の中性子に対して、ほぼ平坦な飛行時間スペクトルを得るためには、およそ15ないし20 Kに冷却すれば良いことがわかる。

図3は、極低温のメタンにおいて、メタン分子の回転レベルが冷中性子スペクトルの形にどの様に影響するかを検討した結果を示す。⁽¹⁴⁾ この結果では約13 K以下では、温度が低下するにつれて、スペクトルに凹凸が強く現われるが、13 K以上では、スペクトルの形は比較的滑らかになり、問題はない。

2.3 設計理念

北海道ライナックの速中性子発生量が約 10^{12} n/sに限られているので、十分な強度の汎用の冷中性子源を作るのは明らかに不可能であったので、用途を制限することにより、この困難を解決することを試みた。汎用の線源では、使用条件が互いに著しく異なる複数のビーム条件の間の妥協を計らねばならない。これに対して、ただ一つのビーム条件の最適化を計る場合には、高い効率を得るための方策を見出すことが容易になる。そこで、我々は、ただ一つの試料位置において、4 Å 付近の入射冷中性子ビーム強度が極力高くなる様にして、かつパルス幅についてはこれを狭める手段を積極的に採らないことにした。これは、冷中性子までの速中性子の減速時間は余り長くなく予測され、またパルス幅を狭める方策は冷中性子強度を著しく抑えるからである。

試料位置において高い入射ビーム強度を得るためには、中性子放出面を許される範囲で最大に選ぶべきであり、さらに中性子発生ターゲットを減速材の背面に近接して置けばよい。冷中性子の飛行路長として5~7 m程度を予定したので、冷減速材を直方体とし、かなり大きな広い放出面にすることができる。また、冷減速材を冷やす冷凍機の容量に応じて冷減速材寸法に制限があるが、すでに行っていた冷凍機を用いた予備実験において、20 Kで約20 W程度の冷凍能力ならば、1~2 KW平均ビーム出力の電子ライナックによる γ 線加熱下において、2~3立の冷減速材を20Kに保てることがわかってきた。冷減速材の厚さの決定については、当時は何もデータが無かったので、熱中性子に関するデータを参照して決定した。⁽¹⁵⁾

前述の予備実験の結果と冷凍機の使用経験から、メタンを冷減速材として採用した。メタンの冷中性子利得は、含水素減速材の中で最も高いものの1つであり、常温でガスがあることは取扱いの点から好都合である。反面、空気と混合して爆発する危険性があり、安全性に嚴重な配慮が必要である。したがって、装置の複雑化によって安全性を保証しなければならないならば、メタンの採用は考え直さねばならない。当然ながら、複雑化はフェイル・セーフにとって好ましくない。逆に、簡単な装置で機能を充足し、かつ安全性が保証されるならば、これは最も望ましい。この方針に沿って設計を行ない、運転時の温度制御を一切行なわないことにした。熱輻射および γ 線による冷減速材の加熱と、冷凍機による冷却が釣り合って、冷減速材の温度は十分な精度で一定に保たれることが既に予備実験でわかっていたので、この設計方針は妥当であると考えられた。そして、単純化が性能を何ら損うことなく、装置の無駄な部分を省くことになり、結果的にフェイル・セーフを保証することになった。

2.4 構造と特性

北大冷中性子源の冷凍機および冷媒ガス循環系のフロー図を、図4に示す。冷凍機はフィリップス社製 PEH-100 型で、冷凍能力は 20 K で約 20 W であり、最低 12 K までの冷凍能力を持つ。循環ヘッドは上部にあり、熱交換器は 2 段で、各々約 12 K、45 K になっている。冷媒ガス循環ベンチレータも熱交換器に対応して 2 サイクルになっている。冷媒ガス輸送管は長さ 4 m であり、ベンチレータは最大稼動圧力 25 kg/cm² で、回転速度 16,500 rpm で運転している。循環ガス量は約 30 Nm³/h である。冷減速材チェンバーの熱交換器はチェンバー上部にあり、低温側の冷媒ガス循環系で冷却される。高温側の循環サイクルは冷減速材クライオスタット内の熱遮蔽として用いられており、内側デュワーに接続されて約 80 K に保っている。

冷減速材チェンバーは Al 製で、大きさは 25 cm × 25 cm × 5 cm である。中性子ビーム取出方向の Al の厚さは 3 mm で、上下はそれぞれ 15 mm、5 mm となっている。チェンバーの歪みを防ぐために、厚さ 5 mm の Al 板によって作られた十字形の補強板をチェンバー内外に取り付けてある。図5に冷中性子源クライオスタットの断面図を示す。

メタンガスは1650立のタンクに貯蔵され、貯蔵圧はほぼ1気圧である。タンクと冷減速材チェンバーはパイプによって接続されている。途中にはバルブ類は殆どなく、メタンガスは冷却・昇温に伴って自然にタンクとチェンバー間を移動する。

冷中性子強度増強のために速中性子反射体を装着した。ベリリウムが反射体として最適であるが、北大冷中性子源では、費用の点から黒鉛を用いた。厚さは約 15 cm であり、中性子放出面を除いて、冷減速材と反射体の間に Cd 板のデカプラを置いた。

ターゲットはタングステン板と鉛を組み合わせた構造で、直径 5 cm で長さが 6 cm であり、水で冷却している。ターゲットの位置は図4に示す様に放出面の反対側である。

冷凍機起動後、約9時間でメタンが減速材チェンバー内に凝縮固化して20 Kに達する。停止時には、約2.5時間でメタンがガス化して貯蔵タンクへ戻る。加速器運転時には、繰返し100 ppsの際に、 γ 線加熱により約0.5 Kの昇温が起こる。 γ 線加熱を軽減するために、18 mm厚の鉛板をターゲットとデュワーの間に置いてあるが、これを除くと約3 Kの昇温になる。内蔵した電気ヒーターを用いて γ 線加熱による熱発生を模擬測定した結果では、16.5 Wであった。運転中の温度変動は極めて少なく、起動時より1時間以上を経れば長時間にわたって実質的には温度は一定

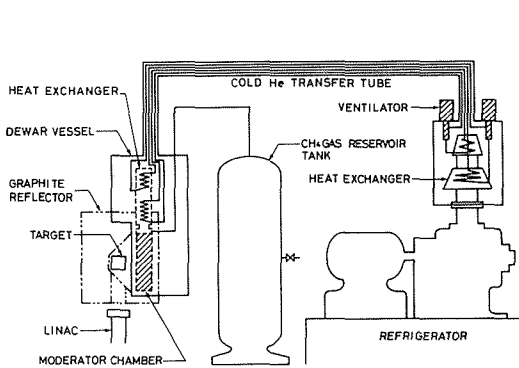


図4 冷中性子源冷却系フロー図

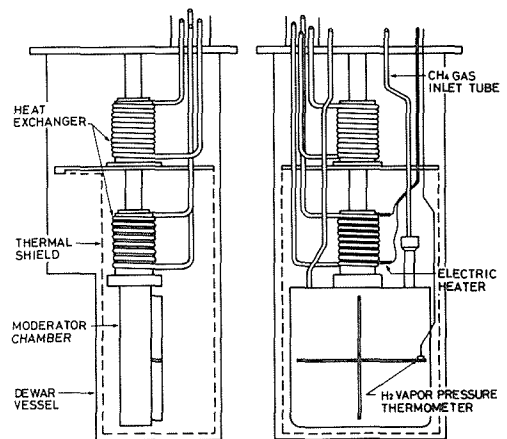


図5 冷中性子源チェンバー図

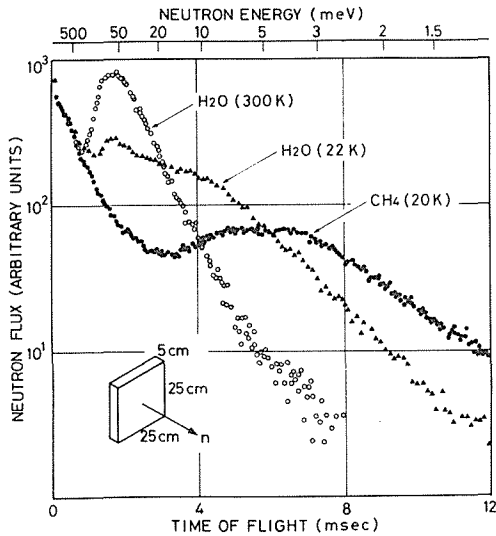


図6 冷中性子源デューワーを用いた、固体メタン、氷、

水減速材よりの飛行時間スペクトル

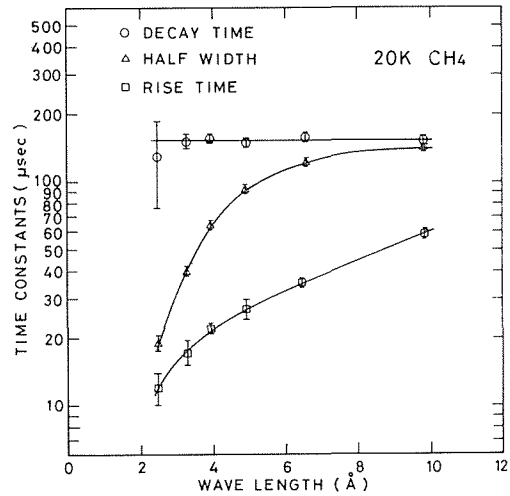


図7 メタン冷減速材よりの放出中性子の時間特性

である。

図6に冷中性子源からの冷中性子の飛行時間スペクトルを示す。図には、併せて22 Kの水と、室温の水のスペクトルが示してある。冷中性子ビーム強度をバナジウムの散乱を用いて測定したが、放出面上のピーク強度は $4.5 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ であった。放出面が $25 \times 25 \text{ cm}^2$ と極めて広く、また空間分布が余弦カーブに近いので、試料位置における入射冷中性子強度は散乱実験にとって十分な強度となる。図7には冷中性子パルスの立上がり時間、半値幅、減衰時間の測定結果を示す。

2.5 冷中性子源開発のその後の経過

北大冷中性子源は、既に数年間運転されたが、極めて安定で信頼度が高い。平均の年間運転時間は1200～1500時間である。後述の準弾性散乱分光器の研究開発にこの冷中性子源はまず利用され、引続いて分光器専用冷中性子源として使用され、その有用性が立証された。

昭和52年頃より前記の高エ研中性子源KENSプロジェクトが始まったが、これの冷中性子源として北大方式のものを設置することになった。他方では、ICANS関連の海外の計画が明らかになり、各計画とも冷中性子源の設置を考えていたが、強線源への20 Kメタンの採用には疑念が持たれた。⁽¹⁶⁾しかし、北大において得られたデータと、高エ研の陽子スパレーション線源による予備実験から、この場合には核加熱は殆ど問題にならないことが明らかにされた。⁽¹⁷⁾また、北大における運転経験から、照射されてメタン内に生じた水素ガスがチェンバー内を過冷却して、メタンの凝縮が入口付近で起こることがわかっていた。⁽¹⁸⁾そこで、この問題を回避する運転方式が高エ研冷中性子源では採用されて、昭和55年6月に初回運転を行ない、その後順調に運転を続けて、実験に利用されている。

以上の様に、20 K固体メタン冷中性子源は、電子ライナック中性子源および陽子スパレーション中性子源の双方に適用されて、成功を取めた。当然、今後さらに強力な冷中性子源の開発が必要となるが、より強力な線源への20 Kメタンの適用には問題がある。これまでの経緯から、北海

道ライナックあるいは高エ研ブースターシンクロトロンのおよそ10倍の強度までならば、充分な注意を払えば適用が考えられる。しかし、100倍以上の強線源では根本的に変える必要がある。

3. 準弾性散乱分光器

3.1 準弾性散乱

冷中性子のエネルギーが適度に小さく、散乱の際の波数変化量 Q が適度な大きさであるために、冷中性子準弾性散乱を、凝集体の原子・分子の揺動的運動を調べる有効な方法として利用することができる。周期的運動あるいは非周期的揺動運動を行なっている散乱体に単色の冷中性子を当てると、図8に示す様な特徴のある散乱スペクトルが観測される。(a)の周期的運動を行なっている結晶の場合には、全散乱角においてエネルギー的に幅がないシャープな弾性散乱が観測される。(実際には測定装置の分解能による若干の幅が生じるが、本論文では簡単のために、これを省略して話を進める。)

原子・分子の空間的な位置や向きが、時間的に不規則な揺動をしていると、(b)~(d)に示す様に、前方散乱以外ではエネルギー的に小さな広がりをもつ準弾性散乱スペクトルが観測される。(b)と(c)は、それぞれ拡散運動をしている単原子液体と分子液体による準弾性散乱スペクトルの特徴を示す。単純拡散を行なっている散乱体の場合には、ピークの半値幅は Q^2 に比例し、比例係数から拡散定数を決定することができる。

(d)は最も簡単な拡散的回転を行なっている分子結晶の場合であって、幅がある準弾性散乱スペクトルと幅がない弾性散乱スペクトルから成る合成スペクトルが現われる。この様に準弾性散乱スペクトルには、散乱体の動的構造の特徴がそれぞれ反映している。この特性のために、冷中性子準弾性散乱は物理、化学、材料から工学的応用まで含めた広い分野において利用される。

冷中性子準弾性散乱の測定には、エネルギー分解能が数 $100\mu\text{eV}$ 以内の中性分子分光器と冷中性子源を併用することが望ましい。現在、準弾性散乱測定用として稼動している分光器の殆ど全てが冷中性子源を使用している。これらの準弾性散乱分光器には、エネルギー分解能が数 $10\sim$ 数 $100\mu\text{eV}$ 台の通常分解能型と、 $0.1\sim 1\mu\text{eV}$ 台の超高分解能型の2種類がある。前者は従来の飛行時間型分光器が発達したもので、後者は後方散乱あるいは中性子スピン・エコー現象を利用した新しい方式の分光器である。前者の組では、早くから使われていた代表的なものがDIDO炉の分光器であり、⁽¹⁹⁾最新のものがILLのIN 5分光器である。⁽²⁰⁾後者の組の分光器はまだその数が少なく、西独の2台とILLのIN 10⁽²¹⁾とIN 11⁽²²⁾だけである。

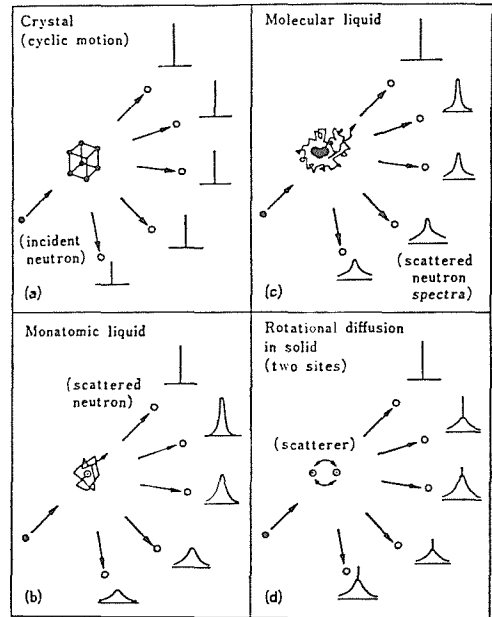


図8 種々の散乱体からの冷中性子散乱スペクトルの例

(a)周期運動をしている結晶、(b)単原子液体、(c)分子液体、(d)結晶中でのランダム回転子

3. 2 LANDAM および LAM 分光器

北海道ライナックに設置された加速器冷中性子源を使用して、準弾性散乱の測定を行なうために、逆転配置で大面積アナライザーミラーを使った通常分解能型の準弾性散乱分光器を開発した。⁽⁹⁾ アナライザーミラーと高次反射除去のためのフィルターのシステムの概要を図9に示す。ミラーは1/2インチ角のパイロリティック黒鉛結晶片144枚を曲面上に配列して、中性子を収束するようになっており、良好な分解能と高感度が得られる。

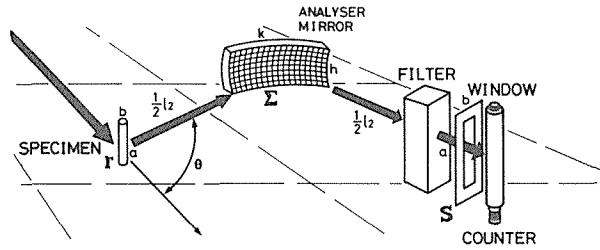


図9 エネルギー分析鏡概略図

図10は分光器の機能を示すための図で、入射中性子スペクトル $Z(t-t')$ とミラーの分解能函数 $R^*(t')$ および観測されるスペクトル $y(t)$ の関係を示す。図からわかる様に、 $y(t)$ の立上がり側は主としてミラーの分解能函数によってその形を決定される。この逆転配置型分光器の特色の1つは、飛行時間の逆3乗因子に起因するスペクトル歪が小さいことである。さらに、この分光器のもう1つの特色は、小容量加速器を使っているにもかかわらず、 $10^{14}n/cm^2 \cdot sec$ 熱中性子束級の研究炉の準弾性散乱に使用されている分光器に充分匹敵できる感度を備えていることである。これは、前記の大放出面積の高効率冷中性子源と大面積高感度アナライザーの特性に負っている。

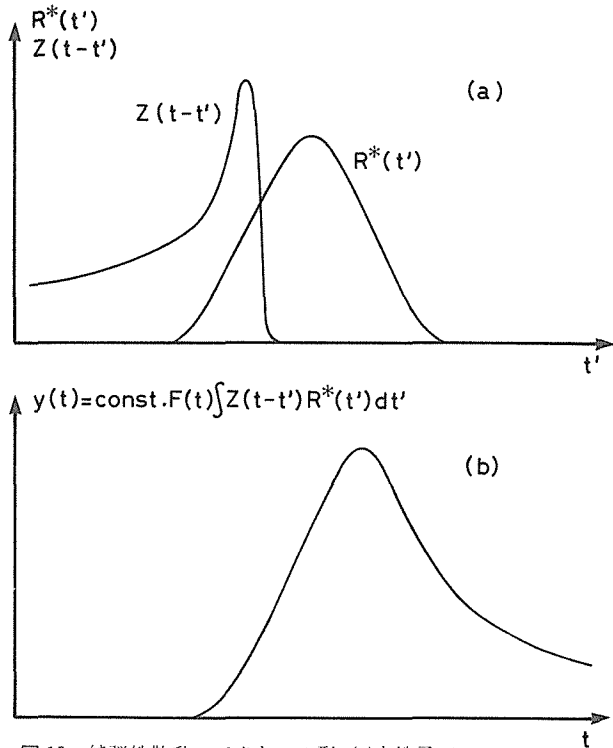


図10 純弾性散乱スペクトルの形。(a)中性子パルスの時間分布 $Z(t-t')$ 、ミラー分解能函数 $R^*(t')$ 、(b)強度分布 $y(t)$ 。

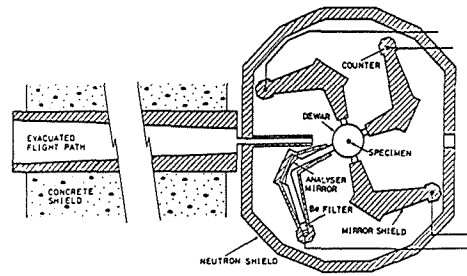
北海道ライナックに設置された準弾性散乱分光器(LANDAM)と構造および機能的に全く同設計の分光器が高エ研冷中性子源にも設置された。⁽¹⁰⁾ この高エ研の準弾性散乱分光器(LAM)はLANDAMに比べて丁度10倍高い感度を有している。LANDAMおよびLAM分光器の配置概要図を図11-a,bに示す。また、両方の分光器の構成と諸元を表1に示す。

表1 LANDAM および LAM 分光器の特性

	LANDAM (北海道大学)	LAM (高エネルギー物理学研究所)
中性子源	20K固体メタン冷中性子源	20K固体メタン冷中性子源
エネルギー分析部		
ミラー		
台数	4台	4台
ブラッグ角	40°	40°
分析エネルギー	4.4 meV	4.4 meV
縦方向曲率	35.7 cm	35.7 cm
横方向曲率	46.7 cm	46.7 cm
パイロリティック黒鉛		
枚数	8×18=144枚/台	8×18=144枚/台
モザイク幅	3.5°	1.2°
大きさ	1.2×1.2×0.1 cm ³	1.2×1.2×0.2 cm ³
フィルター	Be (4×6×11 cm ³)	Be (4×6×11 cm ³)
飛行路長 l	6.0 m	5.7 m
エネルギー分解能	100~200 μeV	100~200 μeV
運動量変化量	0.5~2.5 Å ⁻¹	0.5~2.5 Å ⁻¹
モニター	-	バナジウム散乱型

予備的な評価の結果では、高工研冷中性子源は、冷減速材放出面上において、北大冷中性子源に対して約 500 倍の冷中性子束強度を有している。しかし、実際には上記の様に、LAM は LANDAM の 10 倍の感度を有しており、約 50 倍の効率の損失が生じた。これには種々の理由がある。まず第 1 の因子は、加速器の繰り返しの違いで、4 倍の差がある。第 2 の因子は、放出面の違いで、6 倍の差がある。最後の因子は、ビーム高の差であって、このために約 2 倍の効率の差があり、累計ではほぼ上記の値になる。これは結局、汎用線源と単目的線源の設計方針の違いが端的に現われた結果であり、将来の汎用線源の計画において充分配慮すべき点である。しかし、10 倍の高感度であっても、研究上の利点は極めて顕著であり、LANDAM ではなかなか実行できなかった測定を、LAM では容易に遂行することができる。線源輝度の向上が測定の質を向上させる良い事例となっている。

a) LANDAM



b) LAM

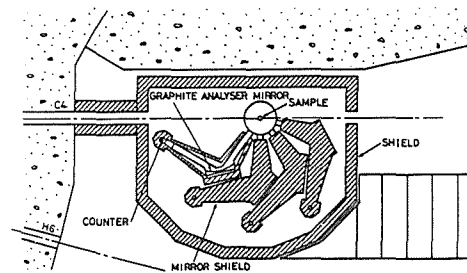


図 11 LANDAM および LAM 分光器の平面図

4. 準弾性散乱による研究

冷中性子準弾性散乱の手法の発展とその応用は、1960 年代から 1970 年代の初期にかけて、その第 1 段階を終えた。これについては Springer が 1972 年の総合報告にまとめている。⁽²³⁾ 現在は、第 2 段階の後半にあると考えられるが、中間的な総合報告を同じく Springer が 1977 年に行なっている。⁽²⁴⁾ さらに、近年になって急速な展開を見せ始めている。

水素原子の低エネルギー中性子に対する散乱断面積は、他のものに比べて約 10 倍以上大きい。このために、冷中性子準弾性散乱は水素原子をラベルとして揺動的挙動を調べる良い手段となる。さらに、重水素置換を利用することによって、特定の位置の水素原子の挙動を取出して見ることにより、分子の 3 次元的な動きを調べることができる。

LANDAM および LAM を用いて測った水、メタノールとその重水素置換体およびそれらの水溶液の準弾性散乱スペクトルを図 12, 13, 14 に示す。試料コンテナとバックグラウンドの補正量は著しく小さくなっている。揺動モードの解析は、通常、非干渉性散乱に着目して行なわれるから、干渉性成分の補正を正しく行なう必要がある。メタノールの場合には、図 13 のスペクトルに示される様に干渉性成分の寄与は比較的小さい。

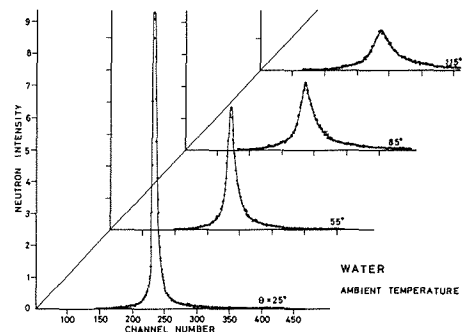


図 12 水の中性子準弾性散乱スペクトル

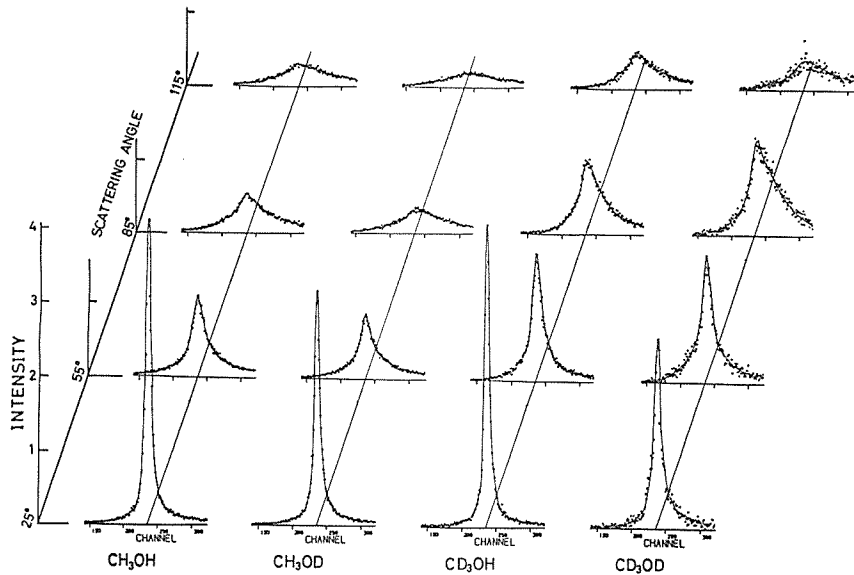


図 13 アルコールの中性子準弾性散乱スペクトル

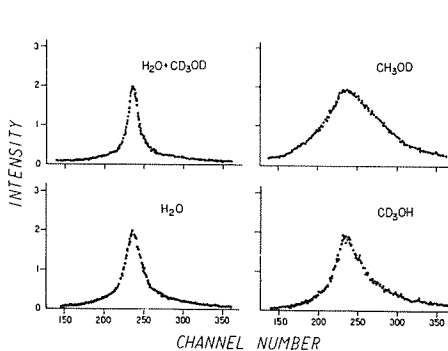


図 14 アルコール水溶液の中性子準弾性散乱スペクトル

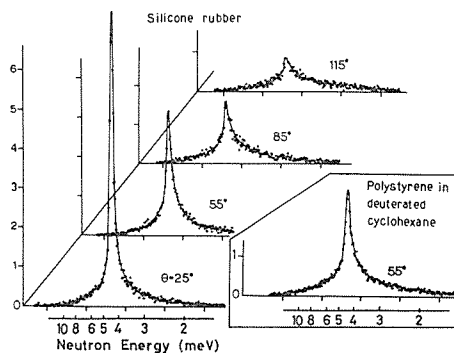


図 15 高分子および高分子溶液の中性子準弾性散乱スペクトル

水については、並進拡散がジャンプ的であり、数ピコ秒の特性時間を有していることがわかっているが、⁽²³⁾ 局所的なモードについては殆ど何もわかっていない。図 12 のデータの前準備の解析において、非干渉性弾性散乱構造因子の Q 依存性を調べた結果では、個々の水分子は短い特性時間の様な拡散回転を行っていない。これは、水の局所的な構造の存在から考えて妥当な結果であるが、非干渉性弾性散乱構造因子の Q 依存性は水のクラスターの局所構造の速い回転も否定する。これらの結果は水分子の短時間で均した向きの変化が著しく遅いことを示唆する。

図 13 のメタノールと重水素置換体のスペクトルは、メチル基と水酸基内の水素原子の揺動モードにおける違いがあることを示唆している。また、図 14 のデータは、メタノール水溶液内の水分子の運動が著しく阻止されていることを明らかに示している。また、これらのデータは溶液内の水分子、メタノール分子の挙動に関する情報を与えるもので、現在、より広範囲の測定と解析が進行中である。

LANDAM および LAM は高分子のマイクロブラウン運動の研究にも有用である。図15にシリコンゴムの準弾性散乱スペクトルを示す。架橋の存在を示す中央ピークと、架橋間のマイクロブラウン運動を示す裾が明らかに分かれて見える。内挿図に示す重水素化溶媒中の高分子の準弾性散乱スペクトルの形と特徴が酷似している。⁽²⁵⁾ これは両者の鎖セグメントのマイクロブラウン運動の様子が良く似ていることを示唆している。

5. 結 言

冷減速材として 20 K 固体メタンを使う方式は、電子ライナック冷中性子源に適切であり、高い効率と信頼度があることが立証された。さらに、この方式は陽子スパレーション線源にも適応できることが示された。大線量線源における 20 K 固体メタンの使用限界は γ 線または中性子による放射線分解の割合に依存しており、電子ライナックでは北大冷中性子源の約 10 倍、陽子シンクロトロンでは高エ研冷中性子源のこれも約 10 倍の強度が上限と考えられる。したがって、この放射線分解は不可避的なものであるから、より大容量冷中性子源たとえば上記のものの 100 倍の冷中性子源に対しては、発想を変える必要がある。

加速器冷中性子源の特性を利用した通常分解能の逆転配置・大面積アナライザーミラー型準弾性散乱分光器は、スペクトル歪が小さく、信号対雑音比が優れており、極めて分析効率が高く、液体あるいは高分子などの分子系の揺動研究に有用な装置である。

参 考 文 献

- 1) 石川義和, 渡辺昇; 日本物理学会誌, 28 (1973) 461.
- 2) Carpenter, J. M.; Nucl. Instr. and Meth., 145 (1977) 91.
- 3) Hobbs, L. C. W. et al; RL-77-064/C, (1977).
- 4) Ishikawa, Y. et al.; KEK Internal Report 80-1, May (1980).
- 5) Windsor, C. G.; "Pulsed Neutron Scattering", AERE Harwell, to be published.
- 6) Harling, O. K.; Nucl. Instr. and Meth., 119(1974) 217.
- 7) 井上和彦, 他; 日本原子力学会誌, 21 (1979) 865.
- 8) 石川義和; 加速器とその応用, III-2, 中性子分光, 日本物理学会, 8月 (1979).
- 9) Inoue, K. et al.; Nucl. Instr. and Meth., 178(1980) 459.
- 10) Ishikawa, Y. et al.; Proc. International Collaboration on Advanced Neutron Source (ICANS) 4th. Tsukuba, (1980).
- 11) Cocking, S. J. et al.; The Thermal Neutron Scattering (1965) p.141, Academic Press, London and New York.
- 12) Ageron, P. et al.; Irradiation Facilities for Research Reactors (1973) p 247, IAEA, Vienna.
- 13) McReynolds, A. W.; Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids (1961) p 421, IAEA, Vienna.
- 14) 井上和彦; 北大工学部研究報告, 63号 (1972) 99.
- 15) Day, D. H. et al.; Nucl. Instr. and Meth., 72(1969) 237.
- 16) Mildner, D. F. R. et al.; Ann. Nucl. Energy, ; 6(1979) 225.
- 17) 石川義和, 他; 高エネルギー研中性子源 (KENS) の建設とそれによる中性子散乱研究, (昭53), 文部省科学研究総合 (A) 報告書,
- 18) Inoue, K. et al.; to be published (1981).
- 19) Stirling, G. C.; Chemical Application of Thermal Neutron Scattering (1973) p31, Oxford Univ. Press, London.
- 20) Heidemann A.; Intenal Report 74H230T (1974) TLL, Grenoble.
- 21) Alefeld, B. et al.; Naturwissenschaften 56 (1969) 410.
- 22) Mezei, F.; Neutron Inelastic Scattering, 1 (1977) p 133, IAEA, Vienna.
- 23) Springer, T.; Springer Tracts in Modern Physics 64(1972), springer-Verlag. Berlin.
- 24) Springer, T.; Topics in Current Physics, 3(1977) 255, Springer-Verlag, Berlin.
- 25) 三宅康博; 私信 (1981).