



Title	20Kメタン減速材と超強パルス冷中性子への応用
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, Kazuhiko
Citation	北海道大學工學部研究報告, 114, 41-46
Issue Date	1983-05-31
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41797">https://hdl.handle.net/2115/41797</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	114_41-46.pdf



## 20 K メタン減速材と超強パルス冷中性子への応用

井上 和彦

(昭和57年12月27日受理)

### On the 20 K methane moderator and its application to a highly intense cold neutron source

Kazuhiko INOUE

(Received December 27, 1982)

#### Abstract

The utilization of cold neutrons in studies of condensed matter has received much attention. In the case of a pulsed cold source with a reflector, the characteristics of 20 K solid methane as cold moderator are discussed compared with other typical cold moderators. Especially, the resistance of 20 K methane to intense radiation is described. Furthermore, the design philosophy of highly intense pulsed cold source by using 20 K methane is presented.

#### 1. 序 論

凝集体研究のプローブとしての冷中性子の重要性は、いくら強調してもし過ぎることはない。現に、現在世界最強の冷中性子源であるラウエ・ランジュバン研究所(ILL)の高中性子束炉(HFR)に設置されている冷中性子源については、増大する需要に応えるためには1基では足りなくなったので、2基目の増設に取り掛かっている<sup>1)</sup>。また、これまで長らく、原子炉冷中性子源を持たなかった米国でも2つの高中性子束炉にそれぞれ冷中性子源を設置して、冷中性子源保有国の仲間入りをした。フランスでは、ILLのHFRの冷中性子源利用に最も有利な立場にあるにもかかわらず、さらに高中性子束炉と冷中性子源の設置を行った。中国においても、フランスの技術援助を受けて冷中性子源の設置計画を進めている<sup>2)</sup>。我が国では、原子炉冷中性子源に関しては、設置の計画があるだけで、その稼働の時間的スケジュールさえ決っていない。他方、加速器冷中性子源に関しては事情は全く異っている。プロトタイプを含めて2基の加速器冷中性子源が、我が国において、すでに稼働を続けている。我が国以外では、アルゴンヌ研究所のIPNSスパレーション中性子源による加速器冷中性子源が、最近ようやく稼働を始めたところである<sup>3)</sup>。また、諸外国においてもいくつかのスパレーション線源とそれによる加速器冷中性子源のプロジェクトが進行中である<sup>4)</sup>。

我々は、約10年前から20 Kメタンによる加速器冷中性子源を開発して、北大45 MeV電子ライナックに冷中性子源を設置して、中性子散乱研究に利用してきた<sup>5)</sup>。さらに、高エネルギー物理

学研究所のスパレーション中性子源 (KENS) にこの 20 K メタン方式を応用して<sup>4)</sup>、すでに、2 年有余・延約 3,000 時間以上の利用運転を行ってきた。諸外国の ICANS 関連研究所においても<sup>註)</sup> 加速器冷中性子源の開発を行っているが、いずれも冷減速材として液体水素および液体メタンの使用を考えている。20 K 固体メタンを採用しているのは我々だけである。

Mildner 等は、加速器冷中性子源の冷減速材について詳細な検討を行った<sup>6)</sup>。そのなかで彼等は、20 K メタンによる北大冷中性子源は低強度だから実用化できたのであり、KENS のような強線源では放射線の影響により不適當であると述べた。しかし、この結論は不適切であり、実際に KENS では約 3,000 時間以上の運転を何の支障もなく行って、20 K 固体メタンの有効性を実証している。

本論文では、北大方式の 20 K 固体メタン冷減速材を強放射線下で使用できる理由を説明し、20 K メタンをパルス冷中性子源に応用した時に、他の冷減速材に比べて圧倒的に有利である事情を述べ、さらに、ILL の HFR の冷中性子源強度を越える超強パルス冷中性子源を 20 K メタン冷減速材によって実現する方法について述べる。

## 2. 20 K メタンおよび他の冷減速材の特性

### a. 冷中性子利得

加速器冷中性子源では、冷減速材自体が速中性子の減速材の役割をはたさなければならないために、含水素物質以外の冷減速材の使用は通常は考えられない。したがって、水素原子を含む物質の化学的構造が、冷減速材の特性を左右することになる。数 meV 以下の冷中性子を効率よく発生させるためには、冷減速材内の水素を含む分子が数 meV 以下から、少なくとも 1 meV 程度までの低エネルギーの固有運動モードが存在し、しかもそれが関与する中性子断面積が充分大きい必要がある。

表 1 に、20 K 軽水氷・100 K 液体メタン・20 K 固体メタン・20 K 液体水素の水素原子密度および速中性子反射体付きパルス冷中性子源に使用した時の相対利得を示す。

表 1 各種冷減速材の比較

冷 減 速 材	水素原子密度( $10^{22}/\text{cm}^3$ )	相対利得*
軽 水 氷 (20K)	0.067	0.20
液体メタン (100K)	0.078	0.21
固体メタン (20K)	0.078	1.0
液 体 水 素 (20K)	0.042	0.18

\* TOF 測定スペクトルおよび衝突密度より求めた値。

20 K 軽水氷：

60 ないし 70 meV にある水分子のねじれ振動のために、100 meV 附近の減速中性子は効果的に数 meV ないし 10 数 meV まで減速する。しかし、氷の格子振動モードは Debye 温度が高いために、低エネルギー中性子から効果的に小さなエネルギーを奪うことができない。他

註) 日本、米国、英国、西独、カナダのスパレーション中性子源プロジェクトを行っている研究所は ICANS (International Collaboration on Advanced Neutron Source) と言う国際研究協力組織を作っている。スパレーション中性子源は、高中性子束炉の中性子束強度の技術的限界 (約  $10^{15}\text{n}/\text{cm}^2\cdot\text{s}$ ) を越える中性子源として期待されている。

方、水素原子の吸収断面積が充分小さくないために、発生した冷中性子は急速に吸収される。数 meV 以下への中性子の冷却機構が有効でないために、結局、20 K 氷では数 meV 以下の冷中性子強度はあまり大きくならない。

#### 100 K 液体メタン：

メタン分子が軽いために、100 K 液体メタン内では中性子はメタン分子と衝突を繰返して熱平衡に達する。したがって、100 K の中性子温度を有する中性子を得るためには 100 K 液体メタンは有効である。しかし、数 meV 以下の冷中性子利得は、当然大きくならない。さらに、10 ないし 100 meV の領域において短パルス中性子を得る目的にとっては、100 K 液体メタンは不適當である。熱平衡に到達する過程が 10 ないし 100 meV 領域で行われるために、パルス幅が広がるからである。

#### 20 K 固体メタン：

メタン分子が球形こま分子であるために、その回転の固有エネルギーが十分に小さい。そのために、20 K 程度までならば、20 K 固体メタンは中性子から効果的に小さなエネルギーを奪うことができる。その過程の散乱断面積も大きい。また、中性子が熱平衡に接近する過程が 1 ないし 10 meV の領域で行われるから、10~100 meV 領域の中性子パルスの幅は、100 K 液体メタンのものに比べてかなり狭い。

#### 20 K 液体水素：

水素分子が最も軽い分子であるために、本来ならば液体水素が最も効率の良い冷減速材であるはずであるが、液体水素にいくつかの都合の悪い特性がある。液体水素にはパラ水素が混っているが、パラ水素の中性子散乱断面積は 0.015 eV 以下で急激に小さくなる。これは冷中性子の体系外への漏洩を助長することになる。さらに不都合なことに、液体水素の水素原子密度が小さく、凝集メタンの約 54% しかない。このために中性子減速過程における巨視断面積が小さく、中性子の漏洩による損失が相対的に大きい。

以上の事柄から、表 1 に示すように、パルス冷中性子源においては、中性子利得の点で比べる限りでは、20 K 固体メタンが他のものに比べて圧倒的に優れている。

#### b. メタン冷減速材への放射線の影響

原子炉冷中性子源では、液体水素（重水素を使用する場合もある）が使用される。これは主に放射線による分解の対策のためである。また、核加熱で気化した水素を冷却して循環するが、これは水素が全てパラ水素に転化するのを防ぐためでもある。また、液体メタンでも循環することができるから、放射線照射による生成物を外部において除去することが可能である。これに対して、固体メタンでは、循環は当然不可能である。また、水素分子に比べてメタン分子は放射線に対して弱く、さらに重合生成物ができやすくと、一般には考えられていたようである。しかし、後者の点に関しては 20 K メタンでは事情は違っている。

表 2 に、北大冷中性子源において約 1,000 時間照射したメタンのガスクロマトグラフィによる分析結果を示す<sup>9)</sup>。測定は、同一ガスボンベから予め採取しておいた未照射メタンと使用メタンの両方について行われた。また低次炭化水素についても充分注意して存在の有無が調べられた。表 2 からわかるように、かなりの量の水素が発生しており、これは明らかにメタンの放射線分解で生じたものである。これに対して、メタン以外の室温において気化している炭化水素は検出感度以下であった。メタン以外の低次炭化水素の存在が検出感度以下であることは、固体炭化水素も生じていても微量であると判定される。事実、冷減速材チェンバー内壁にはそのような物質の多

表2 メタンの分析結果

試料	H <sub>2</sub>	高次炭化水素
照射メタン <sup>a)</sup>	7.2%	b)
未照射メタン	<100ppm	

a) 延1000時間照射

b) CO<sub>2</sub>、CO、エタン、エチレン、プロピレン、イソブタン、*n*-ブタン、1-ブテン、イソブチレン、トランス-2-ブテン、イソペンタン、1,3-ブタジエンは20 ppm以下である。

量な存在は目視では認められなかった。ただし、炭素が残留しているべきであり、淡灰白色の硬い膜状のものがアルミ内壁面に極めて薄く附着していた。

KENSでも同様の測定が行われて、水素が検出されている。また、この場合には、微量の低次炭化水素の存在が報告されているが、対照比較試料の保存がなされていなかったため、結果の確認ができない。今後の追試が必要である。水素の発生量は北大の結果と矛盾しない。流入エネルギー当りの水素発生率はスパレーション線源の方が $\gamma$ 線源に比べて約4倍大きい、チェンバーの $\gamma$ 線加熱を考慮すると、この比は約半分程度になる。

20 K メタン冷減速材の場合に、高次炭化水素の生成が著しく少ないことは、次のように説明される。まず、放射線によるラジカルの生成は線量率に主に依存するであろう。しかし、生成したラジカルは、極めて低温の固体内にあるために、格子点から逸脱して格子間隙を拡散する可能性は著しく小さい。他方、遊離した水素原子は格子間隙を拡散するが、その拡散速度は低温のために遅い。また、水素原子同士は結合して水素分子となるが、水素分子の拡散はさらに遅く、発生点の附近に止まるであろう。また、生じたラジカルは放射線の照射を受けて、水素の遊離が進行して、炭素が残る過程が起こる。冷中性子発生を停止して、冷減速材を昇温すると、途中で液相を通過する。この時にラジカルの存在量が多いと重合反応が若干進行するであろう。いずれにせよ、20 K 固体メタンでは、ラジカルの生成による水素の発生を避けることはできないが、ラジカルが重合する反応速度は著しく小さい。これに対して、もし100 K 液体メタン減速材の場合は事情が大きく変る。液相内で生じたラジカルは、速やかに拡散して、重合反応が進行する。しかし、放射線照射下では重合生成物の分解も起こるから、重合生成物の量はある飽和値に達する。もし、液体メタンを循環すると重合生成物の放射線分解過程がチェンバー外では起こらないから、重合生成物の生成率は著しく増大する。

### 3. 交替複数チェンバー方式の超強冷中性子源

現在、世界の ICANS 関係研究所で進行しているスパレーション線源プロジェクトの最大級のものは、KENS-I のほぼ100倍の強度である。KENSの次期計画のKENS-IIにおいても、同規模のものを考えている<sup>7)</sup>。そこで、このクラスのスパレーション線源において20 K メタンの冷中性子源を実現できれば、その利点は極めて大きい。その冷中性子ピーク強度はILLのものを遙かに越えるものとなる。上記の技術データと経験に基づけば、そのような冷中性子源を実現する方法として次のようなことが考えられる。

#### a. 照射線量の軽減

遮蔽あるいはターゲットからの距離増大などによって、減速材が受ける照射線量を軽減するこ

とは可能であるが、当然中性子収率の大幅な低下を招く。照射線量を軽減するには、照射時間を短くするしかない。KENS-Iの結果から考えて、100倍の線源強度の場合には、4~5時間程度の照射には耐えると予測される。この場合には約1%弱のメタンが分解すると評価される。中性子輸送の点では、この程度のメタンの分解は殆ど問題にならない。むしろ、炭素のチェンバー内における蓄積が問題になる。

照射時間短縮の方法として、3個のチェンバーの交替使用を考えてみよう。まず、1つが冷中性子を発生している間に；他の2つの内の1つでは、使用済みメタンを昇温放出し；残りの1つでは、新しいメタンを凝縮・冷却する。これを逐次交替して行う。仮に、1つのチェンバーの1回の冷中性子発生時間を5時間とすると、1サイクルは15時間となる。交替時に加速器を停止するか否かは充分検討する必要があるが、できれば停止しないで交替できる遮蔽を設計できれば理想的である。

### b. 冷凍機と装置の配置

上述の目的の冷凍機としては、1kW程度のものが1台あればよい。予冷用は数10Wで充分である。図1に冷凍機のためのコンプレッサーを除く装置配置の1例を示す。3台のチェンバーは回転・上下動駆動機構により、3カ所の縦坑間を移動する。1つの縦坑はターゲットと反射体アセンブリーまで貫通しており、そこで冷中性子を発生する。

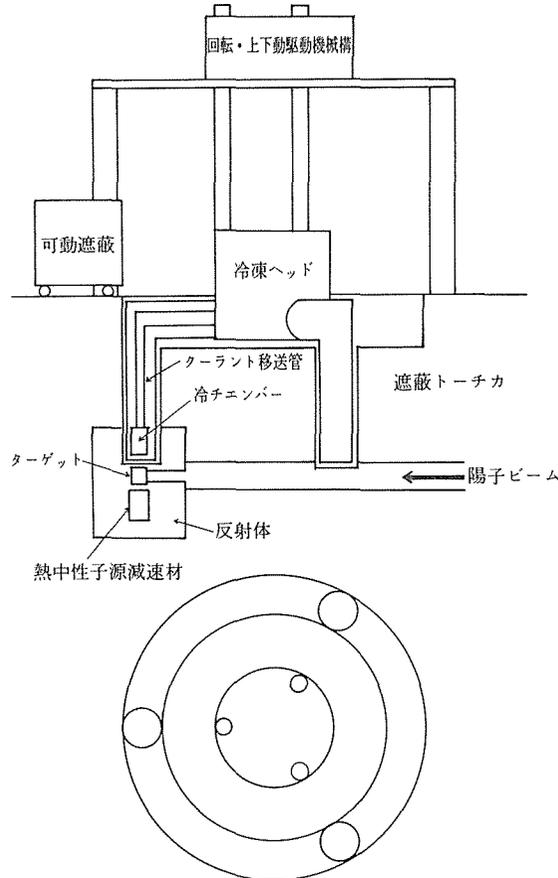


図1 超強パルス冷中性子源配置概念図

#### 4. 結 言

20 K メタンは (i) 球こま分子であるために、固相においても充分小さな固有エネルギーを持ち、全ての減速材中で最も冷中性子利得が高い。また、(ii) 低温の固体であるために、ラジカルの重合反応速度が極めて遅く、放射線に対して高い抵抗性を示し、最も優れた冷減速材である。この特性を適切に利用すれば、最強の冷中性子源を実現することが可能である。具体的な詳細設計のためには、さらに定量的なデータがあることが望ましい。このための実験を準備しており、いずれその結果を報告する。

#### 参 考 文 献

- 1) T. Springer: The Instalation of a Second Cold Source in the High Flux Reactor at the Institute Laue-Langevin, 81SP49S, Institute Max Von Laue-Paul Langevin (1981).
- 2) B. Farnoux: private communication (1982).
- 3) J. M. Carpenter: private communication (1982).
- 4) Y. Ishikawa: Proc. 4th Int. Collaboration on Advanced Neutron Source (ICANS), Tsukuba, Japan (Oct. 1980).
- 5) K. Inoue, et al.: Nucl. Instr. and Meth., **192** (1982) 129.
- 6) D. F. R. Mildner, et al.: Ann. Nucl. Energy, **6** (1679) 225.
- 7) T. Adachi: Proc. Meeting on BSF Future Prospects, KEK Internal 82-6 (1982).