総説

〔6〕 パルス中性子法による減速・拡散実験

住田 健二*, 金子 義彦*

Slowing Down and Diffusion Measurements by Pulsed Neutron Techniques

By Kenji SUMITA and Yoshihiko KANEKO

This brief survey report presents the summary of neutron slowing down and diffusion measurements by pulsed neutron techniques.

This techniques have been successfully used for experimental study of reactor physics, especially diffusion problem, in past one decade.

In Chap. I, we shall summarize the theoretical approaches to the diffusion cooling effect and recent developments considering the influence of chemical binding energy. In Chap. II, we shall discuss the basic requirements for instruments and material arrangements. J.A.E.R.L. compact pulsed neutron source (Cockcroft type-200 kV) and time analyser are shown as examples. In Chap. III, we shall survey the theoretical and experimental results for various moderator.

は し が き

歴史的に見ると、パルス中性子が中性子物理の実験に採り入れられたのは、1938年に Alvarez⁽¹⁾ がパークレーのサイクロトロンをパルス運転させて行なった実験が最初であった。その後20年余りの間にパルス中性子を使用した原子炉物理実験は、大別して2つの流れとなりつつ発達を遂げてきている。その1つは、パルス中性子源とタイム・オブ・フライト法を組み合わせた方法で中性子スペクトル(炉中性子を含む)の測定や、高速中性子の断面積測定などのいわば中性子物理といえる分野である。他の1つは狭義のパルス中性子法による炉物理実験ともいうべき分野で、減速材における中性子の減速、拡散現象に関連したもの、増倍物質を含む体系での炉定数測定(反応度、即発中性子平均寿命など)などである。

前者、特にスペクトル測定への応用は、今後のパルス中性子実験において、大きな期待を持たれている重要な部分であるが、われわれは狭義の立場をとって後者のみを取り扱いたい。また増倍媒質系における実験は、近く別の機会に総合報告を行なう予定**であるからここでは一切取り扱わない。

I. 非増倍媒質系における理論的取扱い^{(2)~(5)}

原子炉物理実験におけるパルス中性子法の理論的取扱いは1950年頃より開発され始め Von Dardel によってほぼ体系づけられた。今日では取扱いを簡単化するための仮定をおいた場合には、実験とかなりよく一致するという所まで完成されてきている。しかし、

- (1) 非均質の場合
- (2) 高速中性子の非弾性、非等方散乱の考慮
- (3) 化学結合の効果、結晶格子の量子効果の考慮

については今後の発展が期待されている状態である。ここでは現在までに試みられた理論的取扱いについてその問題点を指摘しつつ紹介したい。

1. 中性子の減速と拡散^{(2)~(6)}

時間 $t = 0$ でのパルスの中性子の発生につづく系の中性子密度、 $N(\vec{r}, v, t)$ は、正確にボルツマンの輸送方程式に従う。しかし、この方程式を解析的に解くことは不可能なので、より単純化したモデルを組み立てねばならない。そこで実験室系で中性子が等方散乱だけを行なうような均質な非増倍質が無限に広がっていて、かつ $t = 0$ でパルスの中性子の発生は全空間に等密度で起こりうるものとし、したがってまた中性

* 日本原子力研究所 (Japan Atomic Energy Res. Inst.)

** 炉物理分科研究発表会(1961.10.7.)総合報告に講演。

子の流れはないものとする。この仮定により、中性子の減速をボルツマン方程式によって論じ得るようになるが^{*}、ここでも一般解を得ることはむずかしい。そこでさらに簡単化を行なうことによって減速、拡散について論じることができる。

ところで、中性子の減速はエネルギーに対して対数的に起こることを考慮し、Von Dardel の分類⁽⁹⁾に従って減速の過程を3つの領域に分けて考えるとわかりやすい。(第1図)

第1図 一般化された年齢と時間との関係

(1) Episcadmium period

これはカドミウムの共鳴吸収エネルギーより高いエネルギーの領域で、1 eV 以上の領域をさす。この領域での中性子の平均エネルギーは減速材の化学結合力や熱エネルギーに比して十分高いから、標的核は自由で、かつ静止しているものとみなせる。ただし、100 keV 以上では非弾性衝突が台頭してくることに注意しなければならない。この領域では重い核に対しては、衝突は剛体球の弾性散乱モデルで取り扱うのが現実的である。大部分の減速材では、平均自由行程 l_b は中性子速度 v に関係しなくなるので、平均速度を $\bar{v}$ とすると、

$$\bar{v} = \frac{l_b}{2t} \left(1 + \frac{r^2}{1+r^2} \ln r^2 \right) \quad (1)$$

ただし、 $r = (M-m)/(M+m)$

この速度の分散は Bergman⁽⁷⁾ によると、

$$\frac{\bar{v}^2 - (\bar{v})^2}{(\bar{v})^2} = \frac{2m}{3M} + \frac{kT_0}{4E_n} \quad (2)$$

ここで、

E_n : 中性子平均エネルギー

kT_0 : 熱エネルギー

t : パルス中性子発生からの時間

M, m はそれぞれ標的原子核と中性子の質量

この式では第2項が熱運動によるものを示している。中性子密度は平均エネルギー $\bar{v}$ の周りに密集している。(2)式の幅でガウス分布をしている。しかし、このことは1回の衝突で熱化が行なわれてしまう可能性のある軽い減速材、具体的には含水素系については適用できない。

(2) Transition period

熱中性子への遷移領域であり、中性子のエネルギー分布が次第に減速材との熱平衡に近づいて行く附近である。エネルギー幅にして約 1 eV 位であるこの領域を通過する時間は、黒鉛では約 100 μ s で、高速中性子がエネルギー 1 eV ちょうどまでの減速に要する時間の約 5 倍になる。この領域では減速核は単純な形にはまとめられない。なぜならば、化学結合力や格子効果が無視できないからであるが、解はマクスウェル分布に近づくと考えてよいであろう。そこで中性子温度 ($T_n = 2/3 \bar{E}_n/k$) が減速材の温度に十分近い時には、中性子1個当りの単位時間当たりエネルギー損失の割合は温度差に比例し、

$$\frac{d\bar{E}_n}{dt} = -\frac{1}{t_{th}} \cdot \frac{3}{2} k (T_n - T) \quad (3)$$

となることが知られている。ここで、 T_n : 中性子温度、 T : 減速材温度、 t_{th} : 熱化時間とする。したがって、もし中性子のエネルギー分布がマクスウェル分布であれば、中性子温度は時定数 t_{th} で減速材温度に指数関数的に近づいて行くことになる。

この熱化時間 t_{th} は、減速材に単原子ガスモデルが適用できる場合次式で与えられる。

$$t_{th} = \frac{3}{16} \sqrt{\pi} l_b (2kT_0/m) \frac{M}{m} \left(1 + \frac{m}{M} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

この熱化時間の計算値を第1表に示す。

(3) Thermal period

中性子は遷移領域を通過してこの領域に入り、ほぼ完全に熱平衡に達した後、拡散を行なう。中性子のふるまいが拡散方程式で記述されるものとする、媒質

* あるいは中性子密度が系の境界でなくなることを、および等方散乱を仮定して、空間変数および中性子速度方向の角度に関してボルツマン方程式を積分すると、中性子の流れを表わす項が消えて、全空間に分布した中性子の総数について時間的な速度分布の様子を記述する基礎方程式が得られる。

第 1 表⁽⁴⁾

減速材	密度 (g/cm ³)	減速時間 (1eVまでの) (μs)	熱化時間 理論値 t_{th} (μs)
水	1.0	1.3(a)	6(b)
重水	1.1	1.0(a)	58(b)
ベリリウム	1.8	1.0	22
酸化ベリリウム	2.95	-	29
黒鉛	1.6	24	35(c)
鉛	11.3	430	310

(a)酸素の存在を無視, (b)分子結合が強いとして計算, (c)ベリリウムと酸素は結合されていないとして計算した。

中の点 $\vec{r}$, 時間 t_i における中性子密度 $n(\vec{r}, t)$ は

$$\frac{\partial n(\vec{r}, t)}{\partial t} = D \nabla^2 n(\vec{r}, t) - \lambda_a n(\vec{r}, t) \quad (5)$$

を満たしている。ここで λ_a は単位時間当りの媒質による吸収率を表わして、

$$\lambda_a = \sum_i n_i \cdot \sigma_{ai} \cdot \bar{v} \quad (6)$$

である。ここで $n_i \sigma_{ai}$ は単位体積当りの i 番目の核種の全吸収断面積。多くの減速材は $1/v$ 吸収体であるが、そのときは λ_a の吸収を表わす項は、中性子のエネルギー・スペクトルをくずすことはない。簡単化のため議論を以後 $1/v$ 吸収体に限ることにし、この一定の吸収を表わす項は、中性子密度 $n(\vec{r}, t)$ を $m(\vec{r}, t) e^{-\lambda_a t}$ の形で表わすことにして除去することができる。

さて、拡散係数 D は平均輸送距離 $l_t(v)$ を用いて

$$D = \frac{\bar{l}_t(v) \cdot \bar{v}}{3} \quad (7)$$

と表わされる。ただし、ここでいう平均は中性子速度分布についてのものである。

ここで新しい概念、すなわち Dardel の名づけた“一般化された年齢 (generalized age)”

$$\tau_g(t) = \int_0^t D(t) dt \quad (8)$$

を導入することにより、拡散方程式(5)を簡単化していわゆる熱伝達の方程式と同じ形の方程式にすることができる。

(8)式で定義される年齢は時間について第1図のように変化する。媒質と熱平衡に達した後では、中性子は拡散のみを行ない、

$$\tau_g = L_g^2 + D_{th} \cdot t \quad (9)$$

である。無限に広がった媒質において、時間 $t = 0$ で

空間の原点に等方的に中性子パルスが発生した後の結果として生ずる中性子密度は、

$$n(\vec{r}, t) = \frac{1}{(4\pi\tau_g)^{3/2}} e^{-r^2/4\tau_g} e^{-\lambda_a t} \quad (10)$$

で表わされる。

この結果は(8)式の新しい定義によって、熱領域のみならず拡散近似がよい近似になるようなすべての減速過程について適用することができる。しかし、含水素系で数 MeV から 10 keV のエネルギー領域では拡散近似が極めて不正確になるので、(10)式の適用はできない。

有限の媒質系では(5)式の解を境界条件とヘルムホルツの方程式を満足する固有値が $\{B_0^2, B_1^2, \dots\}$ であるような固有関数の無限級数 $\{R_r(r), \dots\}$ で表わすことができる。すなわち、パルス中性子源を $Q \cdot \delta(r-r_0) \cdot \delta(t-0)$ とすれば、

$$n(\vec{r}, t) = Q \cdot e^{-\lambda_a t} \sum_r R_r(r_0) \cdot R_r(r) e^{-B_r^2 \tau_g} \quad (11)$$

となる。パルスの高速中性子が発生してから、熱化した後では基本モードだけが残って、媒質中の熱中性子束を形成し、その時間的ふるまいは

$$n(\vec{r}, t) = a R_0(r_0) e^{-B_0^2 \int_0^t D dt - \lambda_a t} \quad (12)$$

である。これを普通に使われている熱スペクトルの拡散定数を使ってかきかえれば、

$$\begin{aligned} \text{崩壊定数 } \alpha_0 &= -\frac{\partial}{\partial t} \left\{ \log n(\vec{r}, t) \right\} \\ &= \lambda_a + D_{as} B_0^2 \end{aligned} \quad (13)$$

と表わすことができる。ただし D_{as} は D の漸近値を示す。

2. 拡散冷却効果 (Diffusion cooling effect)⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁸⁾

しかし、実験と理論の両面から、かなり小さい減速材系では(13)式では不十分で、さらに高次の補正項が必要なことが明らかにされている。これは1つには、バックリングの大きい系に対する初歩的な拡散理論に対する輸送理論からの補正が必要になることと、もう1つは中性子温度が媒質温度より低くなるという、“中性子拡散冷却現象”によるものである。この現象は、中性子のエネルギーが大きいほど減速材系外へ逸脱しやすいため、有限大の系では系内の中性子よりは高いエネルギー中性子をより多く失いつづけることによって生じるものである。

Beckurts⁽⁶⁾ は、正味逸脱していく中性子のスペクトルの平均エネルギー $\langle E_n \rangle$ は、中性子温度が T_n であ

るマクスウェル分布を仮定した中性子分布の平均エネルギー $(3/2) k T_n$ より大きく,

$$\Delta E_n = \langle E_n \rangle - \frac{3}{2} k T_n = k T_n^2 \frac{1}{D} \frac{\partial D}{\partial T_n} \quad (14)$$

であることを示した。

Transition period の (4) 式で, この中性子拡散冷却現象を考慮すると, 中性子 1 個当りの単位時間当りエネルギー消失の割合は,

$$\begin{aligned} \frac{d\bar{E}_n}{dt} = & -\frac{1}{t_{th}} \cdot \frac{3}{2} k (T_n - T_0) \\ & - D B^2 (\langle E_n \rangle - \frac{3}{2} k T_n) \end{aligned} \quad (15)$$

である。 B^2 は幾何学的バックリンクとする。(15)式から近似的に中性子温度と媒質温度 T_0 との差は,

$$T_n - T_0 = -\frac{2}{3} t_{th} T_0^2 B^2 \left[\frac{\partial D_n}{\partial T_n} \right]_{T_n=T_0} \quad (16)$$

拡散係数 $D = \frac{\bar{l} \cdot v}{3}$ は拡散冷却現象の結果, 中性子のエネルギーが低下するため, 小さな体系の媒質の場合ほど減少することがわかる。したがって, 崩壊定数式 (13) は,

$$\alpha_0 = \lambda_a + D_0 B_0^2 - C B_0^4 \quad (17)$$

となる。ここに, D_0 は中性子温度に等しいとしたマクスウェル分布について平均をとった拡散係数である。また, C を中性子拡散冷却係数とよぶ。

Nelkin⁽⁹⁾ はフーリエ変換された多群輸送理論から出発して有限体系における拡散冷却効果を論じている。これによると, 前述のように B^4 の次元における C はつぎの 2 つに分かれる。

$$C = C_D + C_T \quad (18)$$

ただし, C_D は拡散冷却効果によるもの, C_T は輸送理論による補正項で, 拡散によるものではない。また他の方法で Singwi⁽¹⁰⁾ や Sjöstrand⁽¹¹⁾ によっても同様の結果が求まっている。ここで, この C_D は多群拡散理論から求めたものと一致し, 従来からの Von Dardel らの近似計算が成立する。 C_T は中性子エネルギーのマクスウェル分布からのずれには全く無関係ではあるが, 計算過程で散乱断面積が入ってくるので, その速度依存性によっても左右される。しかし, 実際に取り扱われる体系では, ほとんどが $C_D \gg C_T$ であることもわかっている。

また, Nelkin⁽¹²⁾ は化学的結合力の影響を考慮するため, 中性子が 1 回の衝突ごとに失うエネルギーの自

乗平均 M_2 という熱化を示すパラメータを導入した。中性子温度が減速材温度に近い状態では化学結合力の影響は M_2 の項のみに表われてくることを示し, 黒鉛, ベリリウム, 水について計算値を与えている。

すなわち, 平均の D_0 をつぎのように定義し,

$$D_0 = \frac{\int_0^\infty D(E) M(E) dE}{\int_0^\infty \frac{1}{v} M(E) dE} \quad (19)$$

ただし, $D(E)$: 拡散係数

$$M(E) = \frac{E}{(kT)^2} e^{-E/kT} \quad (20)$$

$D(E) \sim E^\alpha$ という関係が成立するものとする,

$$C = \frac{\left(\alpha + \frac{1}{2}\right)^2 \sqrt{\pi} D_0^2}{v_0 M_2} \quad (21)$$

$$t_{th} = (2/3) \sqrt{\pi} v_0 M_2 \quad (22)$$

なる関係が求まる。ここで,

$$M_2 = \frac{1}{(kT)^2} \int_0^\infty \int_0^\infty \Sigma_s(E \rightarrow E') (E' - E)^2 \cdot M(E) dE dE' \quad (23)$$

また, Hurwitz と Nelkin⁽¹³⁾ は同様に多群拡散方程式から出発して, 非増倍質中に高速中性子源が定在されている場合とパルス状に発生している場合とを対比させ, それぞれ重い単原子ガスモデルを使って拡散方程式をとき, 後者では低い方へずれるのに対し, 前者では中性子エネルギー分布が高い方へずれることを示している。このことは, パルス中性子法による結果と定常中性子源を使った実験結果との比較を行なう場合に重要である。この他注目すべきものとしては Singwi⁽¹⁰⁾ が中性子温度の概念を用いないで拡散冷却効果の一般理論を提案している。彼は近似的な中性子エネルギー分布を一階 n 次の Laguerre 多項式の和に展開し, 各項にマクスウェル分布の重みをつけるという方法で輸送方程式から C をきめる場合のエネルギー依存性の補正を行なっている。Häffel⁽¹⁴⁾ らも非均質系についてこれと同じ取扱いを行ない, 集合体内に存在する吸収材へ拡散して行く中性子に基づく補正項を求めている。また Purohit⁽¹⁵⁾ の研究もこの取扱いによっても, 熱化時間と拡散冷却係数との間には,

$$t_{th} = \frac{3}{2} \frac{\pi C_0}{D^2 v_0^2} \quad (24)$$

という簡単な関係が成立し, これは Nelkin⁽⁹⁾ が中性子温度の考えから求めたものと同じ結果であることを指摘している。

第 2 表 熱化時間(計算値および実験値)表⁽¹⁵⁾

	熱化パラメータ $M_2(\text{cm}^{-1})$	熱化時間 t_{th} (μs)	比 較
水	1.515 ⁽⁹⁾	9.42	Dardel ⁽³⁾ の実験値は $7\mu\text{s}$
黒 鉛	0.068 ⁽¹²⁾	209.98	Beckurts ⁽⁸⁾ の実験値は $185\pm 45\mu\text{s}$ Singwi ら ⁽¹⁷⁾ の計算値は $170\mu\text{s}$
ベリリウム	0.36 ⁽⁹⁾ 0.32 ⁽¹⁷⁾	39.67 44.63	Kothari ⁽¹⁸⁾ らの理論値は $28\mu\text{s}$
酸化ベリリウム	0.20 ⁽¹²⁾	71.39	Bhandari ⁽¹⁹⁾ の理論値は $67\mu\text{s}$

II. パルス中性子法実験における

技術的諸問題⁽²⁰⁾⁽²¹⁾

減速材集合体の内部で、パルスの高速中性子の発生によって生じる集合体内熱中性子密度の時間的变化は $e^{-\alpha t}$ の崩壊を示すが、この α は集合体炉材料の核定数から(17)式によって定まる。パルス中性子法の測定はこの原理に基礎を置いているが、この原理が成立するための仮定をふりかえって見ると、

- (1) 熱中性子のエネルギー分布は集合体の温度で定まるマクスウェル-ボルツマン分布に近い。
- (2) 熱中性子の運動は拡散方程式に従う。
- (3) 集合体は適当な大きさであって、その中の熱中性子分布は基本波のみで表わされ、高調波が無視できる。
- (4) 集合体は組成、密度、温度に関して均質である。
またビスマス、黒鉛の格子系のような場合は格子のピッチが十分小さく均質とみなせることが必要である。

この α の値は、例えば一辺 100 cm の立方体黒鉛集合体の場合、(17)式に核定数を入れて計算すると $\alpha = 1.15 \times 10^2 \text{ sec}^{-1}$ である。この体系へパルス状の中性子を打ち込み、例えば 3 デケートの間中性子密度の減少

を測定するとして、約 0.06 秒間集合体からの洩出中性子を検出器で検出し、タイムアナライザでその時間分布を調べれば、 α を実験的にきめることができる。

一辺 50 cm の場合は、 $\alpha = 2.2 \times 10^2 \text{ sec}^{-1}$ で、約 0.03 秒間に中性子密度は 3 デケード減少する。

このように集合体の大きさを順次変え、計算したバックリングの値を使って、おのおのの α を実験的に求め、(17)式の各項の係数すなわち集合体を構成している炉材料の“吸収断面積”、“拡散係数”、“中性子拡散冷却係数”を知ることができる。

しかし、前記の(1)から(4)までの条件が一応満足できる範囲で実験しても、物質によってはバックリングを 0 に近づけるための十分な材料の入手が困難なこと、また集合体が大きくなると吸収に比べて洩出の確率がしだいに小さくなり、統計的誤差を無視し得るほどの測定値が得られないので、よほど上手に実験を行っても数%以上の誤差が容易に入ると考えられる。

1. 実験に必要な減速材のバックリング

代表的な減速材である黒鉛、ベリリウム、酸化ベリリウム、軽水のおのおのについて崩壊定数 α が近似的に(13)式で求まるものとし、 $B^2=0.01$, $B^2=0.001$, $B^2=0.0001$ についての計算をしてみると第 3 表⁽³⁾となる。

第 3 表* バックリング-崩壊定数の関係

物 質	密 度 (g/cm^3)	平均輸送 距 (cm)	バックリング 0.01 (cm^{-2})	バックリング 0.001 (cm^{-2})	バックリング 0.0001 (cm^{-2})
黒 鉛	1.60	2.6	2.1×10^3 (4.0×10^3)	2.8×10^2 (4.9×10^2)	1.00×10^2 (1.2×10^2)
ベリリウム	1.84	1.7	1.83×10^3 (3.4×10^3)	4.4×10^2 (5.94×10^2)	3.01×10^2 (3.2×10^2)
軽 水	1.0	0.42	2.8×10^3 (3.2×10^3)	2.5×10^3 (2.5×10^3)	2.5×10^3 (2.5×10^3)
重 水	1.1	2.5	2.0×10^3 (3.9×10^3)	2.0×10^2 (4.0×10^2)	2.7×10^1 (3.9×10^2)
酸化ベリリウム	2.9	-	3.2×10^3 (5.2×10^3)	1.40×10^3 (1.60×10^3)	1.2×10^3 (1.2×10^3)

() 内は第 1 高調波に相当するもの。

ここで注意すべきことは、集合体が大きくなって(13)式第 2 項の熱中性子の拡散の途中で洩れ出る割合が、第 1 項の減速材による吸収の割合にくらべて小さくなると、高調波に対する崩壊定数 α が基本モードの

* この核的データの出典は、*Nuclear Reactor Handbook* (第 1 版) から拡散係数を、ANL-325 から Be, BeO, D₂O の吸収断面積を、ANL-5800 から黒鉛および軽水の拡散距離をとった。

崩壊定数 α_0 に近くなることである。このような大きさの集合体では、熱中性子束の減衰は多くの指数減衰の重畳したものとなり、測定値の解析が不可能になってしまう危険性がある*。第4表はそのような限界の大きさを各減速材について示すものである。

第4表 $\lambda_a=2DB^2$ のバックリングとして

黒鉛	$B^2 \sim 0.0002$
ベリリウム	$B^2 \sim 0.002$
酸化ベリリウム	$B^2 \sim 0.003$
軽水	$B^2 \sim 0.03$
重水	$B^2 \sim 0.00002$

一方、集合体の大きさが拡散近似の成り立たないほど小さくなってしまうと、パルス中性子法を適用することができなくなる。

一般に拡散近似がよい近似になるのは、集合体の代表的長さが、集合体を構成している物質の熱中性子に対する平均輸送距離に比較して十分大きいときである。これが成立するためには、拡散近似が適用できる限界の1つのめやすとして、1辺が平均輸送距離の10倍である立方体を考えると、各種減速材についてのバックリングはつぎのようになる。

黒鉛 0.044 cm^{-2} ベリリウム 0.11 cm^{-2}
 軽水 1.2 cm^{-2} 重水 0.047 cm^{-2}

2. 種々の測定条件⁽⁶⁾

まず第2表の高速中性子のパルスの発生にともなう熱中性子密度の減衰定数 α を参考して、実験に必要な高速中性子のパルス幅およびパルスあたりの生成量くりかえし率と熱中性子束の時間変化の検出との関係について検討してみよう。

(1) パルス幅

α を理論的に導く場合は拡散方程式の中性子源の項に $S_0(t-t_0)\delta(\vec{r}-\vec{r}_0)\delta(E-E_0)$ の形で入れてとくのであるが、実際中性子のパルスは

- (1) 有限のパルス幅をもって発生する。
- (2) D^+ のビームのエネルギー幅ができる。
- (3) $D-D$ 反応では方向によってもエネルギーは異なる。
- (4) 発生する場合もビームのスポットの大きさのひろがりをもって。

ということを考慮しなければならない。

理論的解釈を簡単化するためのデルタ関数表示の単純化の操作が、実験上で α 測定の解析に際して主に問題となる点はパルスの時間幅である。他の点は平衡に達してからの状態を拡散方程式で取り扱い、かつ基本

波のみをとっているための誤差に含められる。かりに1%の誤差が許容されたとすると、 $t=0$ および少し遅れた $t=\Delta t$ におけるパルス中性子発生に基づく熱中性子束をそれぞれ $\phi_0(t)$, $\phi_{\Delta t}(t)$ とすると、

$$\frac{\phi_0(t) - \phi_{\Delta t}(t)}{\phi_0(t)} < 0.01 \quad (25)$$

例えば、 $\phi(t)$ が3デケート変化する間検出を続けるとすると、この検出時間はつぎの関係式を成立させなければならない。

$$\frac{\{e^{-\alpha t} - \alpha e^{-\alpha t}(-\Delta t)\}}{e^{-\alpha t}} < 0.01 \quad (26)$$

したがって、

$$\Delta t < \frac{0.01}{\alpha} \quad (27)$$

一般に α の変域は $10^3 \sim 10^2$ 程度に選ぶから、パルス幅は $10 \text{ ms} \sim 0.1 \mu\text{s}$ が必要ということになる。

ここで注目すべきは、前述の条件は絶対的なものでなく予備的な実験を行なった結果によって当然ゆめ得る。すなわち、予備的な実験から高調波成分やその他のバックグラウンドの効果が少なく、4デケート程度のきれいな指数関数的減衰を示すとわかれば、共通の崩壊定数をもった指数関数の重畳はその崩壊定数をもった指数関数になるという事実から、条件をゆめめて

$$\frac{\phi_0(t) - \phi_{\Delta t}(t)}{\phi_0(t)} < 0.1 \quad (28)$$

とすることもできる。

この場合は、必要なパルス幅を $100 \text{ ms} \sim 1 \mu\text{s}$ として、パルス当りの中性子発生量は約10倍に増加し、統計的誤差を改善する方が賢明である。

(2) くりかえし周波数

非増倍質における実験は、増倍媒質に関する実験と比較して遅発中性子の累積や原子炉始動用中性子源のないことなどから、バックグラウンドは低く、これまでも4デケートの間きれいな指数関数的減衰が容易に観測されている。しかし、実験の統計的誤差を減少させるために、くりかえし周波数 f をあげていくときは、1つ前のパルスに原因する中性子束が充分減衰しているかどうかには注意しなければならない。かりに3デケートの減衰を測定するものとする、

* このような配慮は Lopez⁽²²⁾ らが行なった実験のように、検出器の位置を変化させて空間-時間分布を測定し、その中から基本波成分のみを抽出するという方法をとればはるかに精度が上がる。今後の実験の傾向として注目すべきである。

$$e^{-\alpha \frac{1}{f}} < 10^{-3}, \quad f < \frac{\alpha}{10} \quad (29)$$

に選ぶ必要がある。したがって、通常は $f = 10 \sim 10^4$ に選ぶ。

(3) 生成量

パルス当りの高速中性子の生成量は、中性子検出系の不感時間が実験結果の補正に大きくきいていない範囲で、できるだけ多いことが望ましく、通常平均 $10^8 \sim 10^9$ 個/sec 以上 10^{10} 個/sec 以下が選ばれる。

この上限をきめるのは測定系の分解能である。

測定系の不感時間を定めているのは、主として中性子検出器系 (BF₃ 計数管, ⁶LiI シンチレーション計数管など検出器類) の不感時間と増幅器、波高分析器、タイムアナライザなどの不感時間である。市販されている製品では BF₃ 計数管の不感時間は最大約 5 μ s 程度であり、後者は 20 μ s 程度で、主として後者によって分解能がきまる。しかし、これらの値は後述のようにもっと短くできる。

つぎに、中性子検出系の不感時間を τ_{sec} とし、計数率を N 、数え落しの計数を ΔN とすると、

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{\tau}{\frac{1}{N}} \left(\frac{1}{N} \gg \tau \right) \quad (30)$$

最初のチャンネルでの数え落しを 2% 以下にするためには、 $\tau N < 0.02$, $N < (0.02/\tau)$ でなければならない。つぎに、集合体の側壁におかれた中性子検出器で計数される統計についての推定を行なってみよう。

減速材集合体では幾何学形状を単純化し、バックリングが理論的に計算される必要があるので、中性子発生用ターゲットと中性子検出器とは集合体の側壁上の最も実験上有利な位置におかれる。

集合体中の熱中性子束の減衰の様子は、

$$\phi(\vec{r}, t) = \frac{v \cdot Y \cdot C \cdot R_0(\vec{r}) e^{-\alpha t}}{V_t \cdot R_0(\vec{r})} \quad (31)$$

で与えられる。

ここに、

$R_0(\vec{r})$: 熱中性子密度の空間分布を表わす関数

Y : パルス当りの高速中性子発生量

V_t : 集合体の全体積

v : 熱中性子速度

C : 1/16, 主としてターゲットの位置によって定まる定数で、 Y のうち約 1/16 (1/4 はターゲットが集合体を見こむ立体角であり、そのうちの 1/4 が基本モードの熱中性子束分布を構成するものと仮定して

この値を与えた。)

集合体の側壁に中性子検出器を密着させたときの中性子検出器の計数率は、

$$S = \varepsilon W \cdot D \text{grad} \phi(\vec{r}, t) \quad (32)$$

ただし、

W : 検出器の有効口径

ε : 検出器の計数効率

で与えられる。

これらの公式を使用して計算してみると、前述のような上限が得られる。

(4) 中性子発生の核反応

これについては、

(1) 生成量が多い。

(2) 生成される中性子のエネルギーは核分裂スペクトルに似ているか、または単色のエネルギーであること。

(3) パルス運転が容易である。

ことが望ましい。一般によく使用されるものは $D-D$, $D-T$ 反応であり、 $D-D$ 反応は核分裂スペクトルと比較的似たスペクトルの中性子を、 $D-T$ 反応では 14 MeV の単色のエネルギーの中性子が発生する。

$D-T$, $D-D$ 反応を利用する場合の中性子収量はパルス運転時の波高電流、加速電圧、ターゲット厚み、冷却能力などできまる。

(5) 1 回の測定に要する時間

1 例としてバックリングが 0.001 である黒鉛集合体の崩壊定数 α を中性子法で測定する場合について述べる。

$$Y (\text{パルス当りの中性子生成量}) = 10^8$$

$$\text{パルス幅} = 100 \mu\text{s}$$

として、集合体の側壁におかれた中性子検出器で計数される統計についての推定の節の計算によると、中性子検出器の計数率は $5.3 \times 10^2 \times e^{-\alpha t}$ 個/sec である。この場合は、中性子束の減衰を 3 デケート測定するには、25 ms の間タイムアナライザを駆動することが必要で、チャンネル数が 20 であれば、チャンネル幅は 1.25 ms である。

そこで 1 回の高速中性子の発生について、最後のチャンネルの予想される計数は

$$5.3 \times 10^2 \times 10^{-3} \times 1.25 \times 10^{-3} = 6.6 \times 10^{-4}$$

である。もしパルス運転のくりかえし周波数が (1.25 ms⁻¹) であれば、毎秒 6.6×10^{-4} 個の計数がある。したがって、30 分間連続して実験を行なうと、最後のチ

チャンネルで 10^3 個の計数を得ることができ、かつ最初のチャンネルの計数は 10^6 個に達する。これで中性子の計数の統計は十分であって、統計からくる α 崩壊定数の誤差は 1% 以内におさえることができる。こうした全測定時間の長さが主として問題となり、測定精度を支配するのは中性子源とタイムアナライザのドリフトが大きい場合である。この中後者の、測定中のチャンネル幅のドリフトは

(i) 時間-波高変換器をマルチ・チャンネル波高分析器に前置した場合は、両方の回路の時間的変動からきまるが、測定の前後で較正を行なうことにより、ドリフトからくる誤差は 1% 程度に抑えることができる。

(ii) 市販のタイムアナライザで水晶発振器を時間基準に用いているものについては、チャンネル幅のドリフトはまず無視できる。

3. パルス中性子源⁽²⁰⁾⁽²¹⁾

これまでの実験では、コックロフトおよびヴァンデグラフ型のものが多く使用されている。勿論、リニアック、ペータトロン、シンクロトロンなども使用可能で実験例もあるが、前述のような要求を満足するため、パルス幅、繰返し、生成量をかなりの幅で可変にするためには、特に前二者が便利である。したがって、市販されている炉物理実験用パルス中性子源はこの 2 種に集中しているといつてよい。

パルス化を行なう方法は、イオン源そのものをパルス化する方法と、加速管の前でビームを静電的に偏向させる方法とが利用されている。前者はイオン源の引き出し電圧をパルス化する方法によって実現でき、この方法ではパルス当りのビーム生成量を大きくとれること、イオン源の寿命の長くなること、ビーム偏向法のようにバックグラウンドが大きくなることが特長である。しかし、イオン源の応答時間と可変周波数範囲を大きくとった耐圧の高いパルス・トランスを作ることが困難な点から、数 μ s 以下のパルス化は不可能である。後者の中、加速前にビームを偏向させる方法はヴァンデグラフなどで行なわれる方法であるが、イオン源パルス化の場合と似た長短が現われ、かつ高圧電極部の構造が極めて複雑になる。加速後のビームを偏向する方法は一番容易であるが、加速されたビームを偏向させるためには、かなりの高圧(数 kV)を加えなければならない上、スリット付近でバックグラウンドが非常に大きくなる欠点* があり、さらに中性子生成量はパルス幅に比例して小さくなっていく。したがって、これらの方法は単独に使用するよりは、同

期させて併用するのが賢明である。

なお、参考として熱中性子炉物理の研究用に原研が東芝に発注して設置した可搬パルス状中性子源の特性を示す。(第 5 表, 第 2 図参照) 現在は平均質臨界集合体と組み合わせて使用中であるが、これら増倍媒質系での実験だけでなく、減速, 拡散実験にも十分使用できるようになっている。ただし、設計に当っては、各種の臨界集合体や炉での使用を考慮して可搬型としたため、加速電圧などはこの面からも大きな制約を受けたことは否めない。

第 5 表 原研可搬パルス中性子源
特性の一部

イオン源	R.F 型	使用予定核反応	D-T, D-D 反応
加速電圧	0~200 kV	可変(コックロフト型)	
ビーム電流	0~1.2 mA	可変	
連続運転時中性子生成量†	5 × 10 ⁹ 個/sec 以上		
ビーム・パルス化は、イオン源引出し電圧パルス化および加速後のビーム偏向による(前者は 0.1~100μs. の範囲で使用)。ビームは電磁石で 45° 偏向可能。			

パルス幅	立ち上がり減衰時間 (μ s)	くりかえし周波数 ††	パルス当り†中性子数 (個)
500 ms	50~500 以下	1~100 可変 1~10 常用	4×10^9
1 ms	40 以下	1~1,000 可変 1~100 常用	9×10^8
100 μ s	5 以下		5.6×10^6
10 μ s	2 以下	1~10,000 可変 1~1,000 常用	5.0×10^5
1 μ s	0.2 以下	1~10,000 可変	4.7×10^4
0.1 μ s	—	1~10,000 可変 50,000 固定	1.7×10^4

† D-T 反応のとき

†† この他 0.1 (固定) も可能になる。

この程度の中性子源では勿論タイム・オブ・フライト法との組み合わせ使用には生成量が不足するが、このレビューで取り扱う範囲の目的には十分である。なお、この程度の特性をもったパルス中性子源は、海外でも何種類か市販され、わが国でも東大に輸入されている。

* ターゲットに到達しなかった D イオンが延長管部に付着し、D-D 反応によってバックグラウンドを生成する。また、加速中に再結合してイオンでなくなった D が、偏向されないでターゲットにぶつかることもバックグラウンドになる。

グ管で各チャンネルのスケアラのゲートを開閉する方式で、設計値としてはチャンネル幅 $1\mu\text{s}\sim 0.1\text{sec}$ 、不感時間 $0.2\mu\text{s}$ 、遅延 $0\sim 8\text{sec}$ を目標としている。

なお、この種の目的のタイム・アナライザはすでに国内で日立中研が完成しており、海外には市販品もある。

Ⅱ. パルス中性子による実験結果

1. 非増倍媒質における中性子拡散の実験

(1) 軽水

軽水はその平均輸送距離が約 0.42cm (22°C) で、減速材の中では最も短いものである。したがって、1辺が約 10cm 以上の集合体ですでに拡散近似が十分成立

すること、また水高を変えることにより簡単にバックリングを変えることができるので、実験が容易であり、(17)式を用いて多くの研究報告が出されている。これらの実験の目的は拡散係数と吸収断面積を求めることにあるが、1つの興味は水の分子結合が拡散に及ぼす効果の測定にある。また水素の全断面積は、

$1\text{eV}\sim 1,000\text{eV}$ 約 2.1 バーン

ではほぼ一定であるが、熱中性子に対しては大きくなり

0.1eV で 約 2.5 バーン

0.05eV で // 3.0 バーン

0.025eV で // 3.5 バーン

0.01eV で // 4.9 バーン

であるので、温度によって拡散係数が大きく変化する

第 6 表 パルス中性子法による水の中性子拡散パラメータ測定結果 (22°C)

実験者	σ_H (水素の吸収断面積) (バーン)	D_0 拡散係数 ($\text{cm}^2\cdot\text{sec}^{-1}$)	中性子拡散冷却係数 C ($\times 10^{-3}\text{cm}^4\cdot\text{sec}^{-1}$)	変えたバックリングの範囲 $B^2(\text{cm}^{-2})$
Manley ⁽²³⁾	0.345	—	—	—
Scott ⁽²⁴⁾	0.32 ± 0.08	$38,500 \pm 800$	—	$0.006 \sim 0.018$
VonDardel ⁽²⁵⁾	0.333 ± 0.03	$36,340 \pm 750$	7.3 ± 1.5	$0.1 \sim 0.7$
Antonov ⁽⁵⁾	0.329 ± 0.010	$35,000 \pm 1,000$	4 ± 1	$0.09 \sim 0.93$
Bracci ⁽²⁶⁾	0.337 ± 0.010	$34,850 \pm 1,100$	3 ± 1	$0.09 \sim 0.96$
Meads ⁽²⁷⁾	0.335 ± 0.004	—	—	(無限大)
Campbell ⁽²⁸⁾	—	$34,800 \pm$	≈ 0	$0.08 \sim 1.1$
Dio ⁽²⁹⁾	0.328 ± 0.006	$35,450 \pm 600$	3.7 ± 0.7	$0.09 \sim 0.87$
Kuche ⁽³⁰⁾	0.313 ± 0.005	$35,400 \pm 700$	4.2 ± 0.8	$0.11 \sim 0.75$
和嶋他 ^{(31)†}	0.349 ± 0.012	$42,600 \pm 1,600$	16.6 ± 3.1	$0.1 \sim 0.6$
能沢他 ⁽³²⁾	0.334	33,000	2.7	$0.06 \sim 1.15$

† 測定値が他の実験値とかなり異なっている理由は目下検討中である旨、原著者より連絡があった。

ことが予想される。

これまでの実験結果は第 6 表の通りである。

なお、実験装置の 1 例として、Antonov⁽⁵⁾ がジュネーブ会議に報告した実験装置の概要を第 4 図に示す。ここで使用したパルス状中性子源は黒鉛の場合と同じものである。また、 BF_3 計数管とターゲットの位置は、特に中性子束の高調波成分の効果が入らぬように選んである。

この実験結果は、 23°C で熱中性子密度の崩壊定数を α 、バックリングを B^2 として、第 5 図の通りとなり、この実験カーブから最小二乗法で D_0 , C , λ_a を求めている。

つぎに、温度を変えた場合の結果は第 6 図の通りである。高温での軽水の拡散係数が 22°C のより大きいのは、水素の散乱断面積がよりエネルギーの高い中性子に対して小さいことにも原因するであろう。実際的な応用面としても、高温での軽水の拡散パラメータは軽水冷却炉 (BWR, PWR) などにも関連して実用的に価値が高いものである。

①支持台 ②高さ調整用ネジ ③ボロンカーバイドの中性子遮蔽 ④蒸留水を入れた円筒 (直径 185mm , 高さ 210mm で Cd のカバーのついたもの) で水面は 275mm から 200mm まで可変 ⑤鉄-コンスタンタン熱電対 ⑥ BF_3 計数管 ⑦計数管チューブ ⑧計数管冷却用パイプ (ブローで送風する) ⑨ボロンカーバイドの中性子遮蔽 ⑩高速中性子源 (D, T 反応) 加熱のためヒータコイルを円筒に入れてある。

第 4 図 Antonov⁽⁵⁾ の拡散実験 (軽水) 装置

第 5 図 Antonov の実験における崩壊定数とバックリングとの関係⁽⁵⁾(23°C)

第 6 表からもわかるように実験値は互いによく一致しているが、 C にはかなりバラツキがある。しかし、他の値は最近までの他の実験法で直接的に測定した結果ともよく一致しており、質量18のガスモデルを使って計算した結果とも合う。そして、このことは常温では水分子の回転の効果が小さいことを意味している。ただし、Rockey⁽³³⁾ らによるごく最近の静的測定の結果では、 D_0 に換算して約10%高い値が出ており、これまでのパルス中性子法の結果とは著しくへだたりのあることがわかっているが、原因は明らかでない。

第 6 図 Antonov の実験における崩壊定数とバックリングとの関係⁽⁵⁾(80°C)

(2) 黒鉛

中性子の黒鉛における拡散の実験結果を第 7 表に示す。黒鉛はその λ_c (平均輸送距離)が 2.6 cm で軽水、ベリリウムに比して大きいため、集合体は極めて多量の黒鉛を要し、全体の温度を可変にすることがむずかしい。それに炭素の原子量が大きいことから、重い単原子ガスモデルで比較的信頼できる理論的取扱いが減速拡散に適用できるので、第 7 表の三者の実験が主なものであって、軽水、重水、ベリリウムに比して研究報告は少ない。

第 7 表 パルス中性子法による黒鉛の減速パラメータ測定値 (1.6 g/cm³)

	λ_0 (sec ⁻¹)	D_0 (cm ² ·sec ⁻¹) × 10 ⁵	C (cm ⁴ ·sec ⁻¹) × 10 ⁵	B^2 (cm ⁻²) × 10 ³
Antonov ⁽⁵⁾	82 ± 3	2.07 ± 0.03	1.25 ± 2.0	1.0 ~ 4.0
Beckurts ⁽⁸⁾	127 ± 1	2.13 ± 0.02	16.3 ± 2.5	0.7 ~ 5.5
Starr ⁽²⁹⁾	71.2 ± 0.9	2.06 ± 0.02	12.4 ± 2.2	1.6 ~ 27.5

ここでは 1 例として Antonov⁽⁵⁾ の実験について述べることとする。(第 7 図参照)

実験装置の概要

中性子源 400 keV, $D-T$ 反応
パルス幅 6 μ s

くりかえし周波数 50 ~ 1,000 c/s
中性子検出器 BF₃ 比例計数管
タイムアナライザ ジングルチャネル
測定時間範囲 中性子パルス発生後
50 ~ 200 μ s

第 7 図 Antonov⁽⁵⁾ の黒鉛拡散実験の
ブロックダイアグラム

検出器の系統は、絶対値で 1% の誤差の範囲で動作し、計数損失は 3% 以内であった。

黒鉛集合体

比重 $1.67 \pm 2.5\%$ の黒鉛を 10 種のバックリングに相当する立方体に積み上げたものである。

これらの結果をみると、ここでもかなりよい一致が見られるが、 C にかなりの差があり、その原因としては B^2 相当項、高調波成分の影響などが考えられるが明確ではない。なお、 C の理論値はデバイ結晶モデルを使った Nelkin⁽¹²⁾ の計算によると $14 \times 10^5 \text{ cm}^4 \cdot \text{sec}^{-1}$ であり、これは Singwi⁽¹⁰⁾ の結果ともほぼ同じである。

(3) ベリリウム

ベリリウムは中性子減速機構について単原子ガスモデルが成立しないため、その減速拡散の定数を求めることが興味深い炉材料である。

実験結果をまとめると第 8 表のようになる。

第 8 表 パルス中性子法によるベリリウム拡散パラメータの測定値 (1.85 g/cm^3)

	α_0 (sec^{-1})	D_0 ($\text{cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$) $\times 10^5$	C ($\text{cm}^4 \cdot \text{sec}^{-1}$) $\times 10^5$	B^2 (cm^{-2})
Antonov ⁽⁵⁾	—	1.17 ± 0.05	2.95 ± 1.0	$0.008 \sim 0.061$
Compbell ⁽³⁵⁾	150	1.25	0	$0.005 \sim 0.036$
Kloverstrom ⁽³⁶⁾	270 ± 19	1.24 ± 0.04	3.90 ± 0.8	$0.003 \sim 0.041$
de Saussure ⁽³⁷⁾	288 ± 60	1.25 ± 0.06	1.40 ± 1.0	$0.008 \sim 0.072$

ここでもやはり D_0 と C 相互間に差異が見られる。しかし、de Saussure⁽³⁷⁾ の結果中 C はベリリウムの結晶格子の振動を考慮した Nelkin⁽¹²⁾ の理論値 $1.4 \times 10^5 \text{ cm}^4 \cdot \text{sec}^{-1}$ と一致し、Singwi⁽¹⁰⁾ の $1.13 \times 10^5 \text{ cm}^4$ に近い。 D_0 は Singwi⁽¹⁰⁾ の計算値 $1.25 \times 10^5 \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ に一致していることに注目してよい。また、Andrews⁽³⁸⁾ は温度変化させた場合 ($292^\circ \sim 478^\circ \text{K}$) について測定を行なった。

(4) その他

まず、酸化ベリリウム (2.96 g/cm^3) に対しては、Iyengar⁽³⁹⁾ が常温 (24°C) から 140°C まで測定を行なっている。 24°C における結果は $\alpha_0 = 131.5 \text{ sec}^{-1}$, $D_0 = 1.18 \times 10^5 \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$, $C = 3.85 \times 10^5 \text{ cm}^4 \cdot \text{sec}^{-1}$ で、拡散係数が媒質の温度の $1/2$ 乗に比例することを確かめ、平均輸送距離が中性子のエネルギーに依存しないことを示した。この C から中性子の熱化時間を計算すると、Beckurts⁽⁶⁾ の理論式によって $160 \mu\text{s}$ となる。また、この高温 (140°C) の中性子拡散冷却係数が常温の 3 倍にもなることから、媒質の温度を上げてやってもかえ

って中性子温度は下がることが直接金属箔の透過実験から調べられている。その他重水⁽⁴⁰⁾、有機減速材⁽²⁵⁾ (高温に上げた場合も) などについても測定が行なわれている。

(5) バックリングの測定

これまでの計算は、バックリングを計算で求め、 α から拡散パラメータを求めていた。しかし、逆にパラメータのわかった減速材では、 α を測定してバックリングを求めることもできる。これは複雑な形状をしていて計算にのりにくい体系のバックリングの決定に好都合で、Beckurts⁽⁴¹⁾ が黒鉛円筒に吸収棒を入れて行なった実験が最初で、その後主として増倍媒質系での実験が行なわれている。

2. パルス中性子源による中性子減速の実験的解析
すでに述べたように、Epicadmium period や Transition period の減速熱化の実験は、化学結合・量子効果のため極めて複雑である。

したがって、一般的なモデルの仮想を行なうとともに、各減速材個々の物性にもとづいた取扱いを調べ

る必要がある。(なお、中性子減速の理論的取扱いは Amaldi⁽²⁾ のレビューに詳しく論ぜられている。) Von Dardel⁽³⁾ は室温において軽水と重水について減速・熱化の実験を行ない、

- (1) 箔の透過率の時間的変化から速度分布の時間的変化を求め、軽水に関しては、理論で予想された時定数で熱化する。
- (2) 熱化した中性子温度は媒質の温度 (354°, 273°, 98°K) に極めて近くなる。
- (3) 低温では減速過程に対する結晶格子の効果が入る。
- (4) 高速中性子の減速過程で、エネルギーの高い領域では重水素核が静止しているというモデルが正しい。

こと確かめた。

実験の概要

実験装置は第8図に示されるように二重の木製の箱

第8図 Von Dardel の中性子減速実験装置(減速材部)

に入れ、二重の壁の間はホウ酸で満たし外部から(特に中性子源から)の中性子の入射を防いでいる。内側の箱の内面の熱絶縁材を張り、各温度での実験ができるようにしてあり、その中に一辺 16 cm の立方体の減速材の軽水や重水を入れるタンクが入る。

BF₃ 計数管と減速材との間に透過率を測定すべき吸収体が置かれた。熱中性子束の検出ブロックダイアグラムは第9図の通りである。中性子のスペクトルは減速材と BF₃ 計数管の間を飛行する間にくずれるので、できるだけこの空隙を狭くしてある。

無限に広い平面から時間的に速度分布が変わりつつある中性子が洩れ出てきているとする。洩れ出るとき方向性は $1 + \sqrt{3} \cos \theta$ (θ は平面に対する垂線と中性子のなす角) であるとすれば、平面および中性子検出器の幾何学的位置を変数 r, ρ, Z, θ で表わして、中性子が平面上から中性子検出器まで飛行するのに、 $\frac{\rho}{v}$ 秒だけ時間がかかることに注意して、中性子検出器のとらえる中性子速度分布は

$$\int_0^\infty \frac{\cos \theta}{4\pi \rho^2} (1 + \sqrt{3} \cos \theta) 2\pi r dr \times f\left(v, t - \frac{\rho}{v}\right)$$

ただし、 $f(v, t)$ は時刻 t における平面上の中性子速度分布で与えられる。平面から中性子検出器が離れるにつれて、速度分布はしだいにくずれてしまう。

Transition period から Thermal period までの熱化の過程で、減速材が軽い核であっても近似的にマクスウェル分布をしていることがわかっているので、¹⁰B 吸収体や Cd 箔 (0.438 g/cm²) の透過率を中性子温度に対応させることができる。

第9図 Von Dardel⁽³⁾ の中性子減速実験装置(測定系)

(1) 軽水系

Von Dardel⁽³⁾ は時間的な Cd 箔, ^{10}B 吸収体透過率の減少を裸の BF_2 カウンタ・モニタ・チャンネルを規準として測定した。なお, くりかえし周波数を早くするために軽水中にホウ酸 20 g/l を加えている。

時間的な中性子温度の低下は, 第10図に示す通りであり, $M=18$ の単原子ガスモデルの計算とかなりよい一致を示している。これはあらかじめ予想されたように $\text{H}-\text{O}-\text{H}$ の振動のエネルギー準位は (0.20~0.45 eV) であり, また回転のエネルギー準位は 1 eV からであって, 問題の熱化領域, すなわち常温の3倍以下では $M=18$ の剛体球モデルが実際に近いからであろう。

第10図 室温における軽水+ホウ酸(20g/l)系での実効中性子温度⁽³⁾

つぎに ^{10}B 吸収体の厚みについては, 一番薄い吸収体の透過率が理論と著しく違った結果を与えている。これは実験の中性子分布がマクスウェル分布からはずれてしまい, エネルギーの低い中性子の数が少なくなっていることを示している。

彼はまた, 98°, 273°K の氷と 354° について同じ実験を行なった。これによると 98°K の氷では, 単原子ガスモデルの計算値より低い熱化時間を示していることがわかった。定量的な格子効果の導入は行なわれていないが, 低温での格子の明らかな検証である。

(2) 重水系

また Von Dardel ら⁽³⁾ は容積 6.2 l, 純度 99.7% の重水を実験装置の中央に入れて実験した。パルスの中

性子の発生から 150 μs にわたって熱中性子束の変化を調べると, 減速の初期では重水素原子が自由に静止しているとするモデルの理論が正しいことがわかる。

軽水系の ^{10}B 吸収体の透過率の時間的減少と同じく, 重水系から洩れ出て来る中性子の Cd 箔の透過率を 0~30 μs の間実験してみると, 0.4 eV 以上の熱外中性子は減速時に重水の熱運動や化学結合の影響を受けないことがわかった。

残された問題は, 0.4 eV 以下で減速過程にはどのようなモデルが正しいか, また等価的なモデルの仮想ができないかの点であり, 化学結合や熱運動を含めた理論が複雑になり, 実際の解析がむずかしいだけに興味がある。

3. その他の実験

(1) パルス中性子源による中性子温度の測定

原子炉の中性子温度をはかることの主たる意義は,

- (1) 中性子スペクトルのおよその有様を知ることができるので, 中性子経済の問題あるいは増殖炉における転換比の推察が可能であること
- (2) 中性子スペクトル理論の検証

の2点である。

中性子温度の測定はこれまで

- (1) スローチョップパ, ファーストチョップパ, クリスタルモノクロメータ等中性子の速度を直接弁別する方法
- (2) $1/v$ 吸収体でつまれた $1/v$ 吸収体箔の誘導放射能による方法, もしくは $1/v$ 吸収体と Cd の反応度に及ぼす影響の差から求める方法

によって主として行なわれてきた。

パルス状中性子源を用いる方法で, (2)と同じく系の中性子スペクトルが近似的にマクスウェル分布である時, スペクトルが変わらない範囲で硫酸カドミ塩を混入させて Cd の非 $1/v$ 吸収の状態から中性子温度をきめるものである。したがって, 燃料を含むような増倍質系の中性子温度は, スペクトルが $1/E$ 領域をもつので解析が簡単でなくなる。しかし, 非増倍質系では Cd 箔を用いる方法は, 中性子群がいかなる温度で平衡に達するかという, さらに基本的な問題に対して比較的容易に解答することができる。

Santandrea ら⁽⁴²⁾ は Cd の非 $1/v$ 吸収を使い, 軽水 ($B^2=0.115\text{ cm}^{-2}\sim 0.75\text{ cm}^{-2}$) に CdSO_4 を混入して, 系が小さくなると中性子温度が 0.004 eV 低くなることを確かめた。

熱中性子吸収断面積の測定はタイム・オブ・フライト法やモノクロメータ法やパイルオッシレータ法によ

て測定されているが、(17)式の第1項の吸収項を、重水や軽水の媒質自体の分と、添加する物質からの分とに分けることにより、添加物質の吸収断面積を絶対測定できる。Santandrea⁽⁴²⁾は軽水中にホウ酸を約10g/lの濃度で添加し、バックリング B^2 が0.55cm⁻²と0.115cm⁻²の体系で実験を行ない、崩壊定数 λ の増加分から $\overline{\sigma_B v}$ (σ_B は速度 v の中性子に対する吸収断面積、平均は中性子速度スペクトルについてとったもの)の値 1.635 ± 0.072 ($B^2=0.115$)と 1.553 ($B^2=0.55$)を報告している。

さらに Meadows ら⁽⁴³⁾は同様の方法で20種以上の物質について熱吸収断面積の測定を行なった。

わが国でも原研の富岡⁽⁴⁴⁾がCd, B, Li, Clについて軽水を媒質にしバックリング $B^2=0.05$ の体系で行なっている。

(2) 中性子減速時間の測定

Dardel⁽³⁾は軽水中で中性子温度が媒質温度の数倍のところから、しだいに媒質温度近くに熱化して行く様子を調べたが、原研の平川⁽⁴⁵⁾はD-D反応による約4 MeVのパルス中性子が0.4 eVまで減速されるのに要する時間を、バックリング $B^2=0.0502$ の体系について、測定系のBF₃計数管にCd箔(カドミウム・カット・オフ・エネルギー0.4 eV)を被せた場合の時間的な計数率の減少の様子から、0.5 eVまでの平均減速時間3.0 μ sを測定している。これはCrouch⁽⁴⁶⁾が0.35 eVまでの値を静的方法で求めた5.2 μ s以下とかなり差があるが、後者にはタイム・オブ・フライトの影響が入っているので、両者の差異の原因は未だ説明できていない。

4. 中性子の拡散に及ぼす結晶減速材の物性

中性子の速度が小さくなってくると、標的核はそれ単独で自由空間に静止しているというモデルでは、中性子の散乱減速を取り扱うことができない。衝突された標的核は電子のバネで隣接する核と結びつけられているため、結晶全体に広がっていく弾性波が結果として生れる。

しかもこの弾性波はデバイモデル等で取り扱えるように、ある基本の振動数で量子化されているから、中性子の散乱減速は振動子のアンサンブルと中性子との間のフォノンのやりとりで取り扱わねばならない。

アンサンブルの中で最も高い振動子のエネルギーに相当するデバイ温度程度のエネルギーをもった中性子の熱化には、格子効果を考えに入れることが必要である。また、極めて減速材の温度が低い場合、中性子の波長 λ が原子間隔 a と同程度になるため、

$$2a \sin \theta = n\lambda \quad (33)$$

(θ : 入射中性子と反射中性子のなす角の1/2)

の条件を満たす角度方向のみに散乱が起きるようになる。さらに、原子間隔より短い波長の中性子の弾性散乱は起こり得ない。すなわち、ブラッグ・カット・オフ・エネルギー以下の中性子は非弾性散乱のみが起きる。

最近の研究報告として、1960年10月ウィーンで開かれたIAEA主催のシンポジウム“Symposium on Inelastic Scattering of Neutrons in Solid and Liquid”での中性子減速機構、中性子スペクトルに関する話題をひろってみると、

- (1) Ramana ら(Bombay)はD₂O, H₂O, B₂Oの各集合体から逸脱してくる中性子のスペクトルをパルス中性子源とチョップで調べている。
- (2) Palevsky (BNL)は低速中性子の散乱によって液体の拡散運動を調べている。
- (3) Borst (ニューヨーク大学)は4°Kにおける軽水中の中性子減速を調べている。
- (4) Walton ら(GE社)は軽水・ポリエチレン・ジルコニウムハイドライドの各集合体中の中性子スペクトルを測定している。

等であるが、ここで注意すべきことはCd箔や¹⁰B膜の透過率から中性子温度、中性子スペクトルを推定していたVon Dardel⁽³⁾時代からみて、1960年のこのシンポジウムではスローチョップ、クリスタルモノクロメータを駆使して、中性子スペクトルを直接測定することが広く行なわれてきていることである。パルス中性子源とチョップ、クリスタルモノクロメータの組合せが炉物理のより強力な手段として取り上げられ、中性子スペクトルや中性子減速機構の精度の高い研究が開始されつつあることを強調しておきたい。

原子炉の減速材に用いられる黒鉛やベリリウムは、その炉物理的性質を論ずるとき、それぞれ低いエネルギーの中性子に対して、結晶格子の効果を考えに入れねばならない。これはエネルギー E の中性子が単位距離を歩行する間に散乱されてエネルギー E になる確率

$$\Sigma(E \rightarrow E)$$

を定常のボルツマン方程式に入れることに他ならない。また、そのような結晶効果を考えに入れた炉スペクトルの計算は、日本原子力研究所平均質臨界集合体における理論的研究や設計計算についてもすでに行ないつつある。

$\Sigma(E \rightarrow E')$ の正確な値をきめることができれば、原理的にはわれわれは炉スペクトルをきめるに必要な情報を得たことになるのであるが、その正確な値は実験によって知るのが現在最も信頼がおける方法と思われる。しかし、理論的な取扱いもデバイモデル、アインシュタインモデルでなされつつある。炉物理的興味に立つと、われわれの欲しいものは結果としてできる中性子スペクトルや中性子の減速熱化の時定数であるのだから、 $\Sigma(E \rightarrow E')$ を直接細部にわたって求める方法の他に、一様なエネルギーの高速中性子をパルスのに打ち込んで、減速熱化の状況をエネルギーによって感度の違う検出器を用いて調べることも意義がある。減速材の集合体の中性子密度の崩壊定数から、スペクトルで平均した平均輸送距離を求めることによって、結晶状減速材を用いた炉の動特性やスペクトルの概要を知ることできる。

なお、Saussure⁽²⁷⁾ は液体チッ素の温度でのベリリウム⁷ の平均輸送距離が常温のその10倍になることを確かめる実験を計画している。

IV. む す び

パルス中性子法による減速拡散実験は、ここ数年の間に急速な進歩をとげ、わが国においても次々と実験が行なわれつつある。しかし、最も一般的かつ歴史の古い常温軽水での測定ですら依然として多くの問題を含んでいる。まして高温または低温における各種の減速材に及ぼす化学結合力の影響などは実験データがまだまだ不足しており、理論面での進歩をおくらせる原因となっている。

しかし、実験技術の面から見れば、旧来からの方法ではすでにある程度の限界が感じられており、空間分布やエネルギー分布を含んだ中性子束時間分布の測定法の開発が急務であると考えられる。したがって、パルス中性子法とチョッパ、モノクロメータの組合せ、小型計数管による空間分布を含んだ測定、エネルギー分解能のよい何種類かの計数管によるエネルギー分布を含む測定などが今後の実験の方向といえよう。

(1991年 8月4日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) L. W. ALVAREZ : *Phys. Rev.*, **54**, 609 (1938).
- (2) E. AMALDI : *Handbuch der Physik*, **38**, 2 (1960).
- (3) G. F. V. DARDEL : *Trans. Royal Inst. Tech.* (Stockholm), Nr. 75, (1954).
- (4) G. F. V. DARDEL : N. G. SJÖSTRAND : *Prog. Nucl. Engng.*, **1**, 183 (1958).
- (5) A. V. ANTONOV : *A/Conf.*, P 661, (1955).
- (6) R. MARSHAK : *Rev. Modern Phys.*, **14**, 185 (1947).
- (7) A. A. BERGMAN, et al. : *A/Conf.*, P 642, (1955).
- (8) K. BECKURTS : *Nucl. Sci. Engng.*, **2**, 516 (1957).
- (9) M. S. NELKIN : *ibid.*, **7**, 210 (1960).
- (10) K. S. SINGWI : *Arkiv Fysik*, **16**, 385 (1960).
- (11) N. G. SJÖSTRAND : *ibid.*, **15**, 147 (1959).
- (12) M. S. NELKIN : *J. Nucl. Energy*, **8**, 48 (1958).
- (13) H. HURWITZ, M. S. NELKIN : *Nucl. Sci. Engng.*, **3**, 1 (1958).
- (14) W. HÄFFEL, et al. : *ORNL-2842*, 124 (1959).
- (15) S. N. PUROHIT : *Nucl. Sci. Engng.*, **9**, 157 (1961).
- (16) L. S. KOTHARI, KHUBCHANDANI : *ibid.*, **7**, 242 (1960).
- (17) K. S. SINGWI, L. S. KOTHARI : *J. Nucl. Energy*, **8**, 59 (1958).
- (18) L. S. KOTHARI, K. S. SINGWI : *ibid.*, **5**, 342 (1957).
- (19) R. C. BHANDARI, et al. : *ibid.*, **7**, 45 (1958).
- (20) G. R. KEEPIN : *LAMS-2215*, (1958).
- (21) K. H. BECKURTS : *Nucl. Instr. Methods*, **11**, 144 (1961).
- (22) W. M. LOPEZ, et al. : *Trans. ANS*, **3**, No.1, 159 (1960).
- (23) J. H. MANLEY, et al. : *Phys. Rev.*, **61**, 152 (1942).
- (24) F. R. SCOTT : *ibid.*, **95**, 582 (1954).
- (25) G. F. V. DARDEL, N. G. SJÖSTRAND : *ibid.*, **96**, 1245 (1954).
- (26) A. BRACCI, C. COCEVA : *Nuovo Cim.*, **4**, Serio 59 (1956).
- (27) R. E. MEADS, et al. : *Proc. Phys. Soc.*, A **69**, 469 (1956).
- (28) E. CAMPBELL, P. STELSON : *ORNL-2204*, 34 (1956).
- (29) W. H. DIO : *Nukleonik*, **1**, 13 (1958).
- (30) M. KUCHLE : *ibid.*, **2**, 131 (1960).
- (31) 和嶋常隆 他 : 私 信, (1961).
- (32) 能沢正雄 他 : 第2回原子力研究総合発表会要旨集, B71 (1961).
- (33) K. S. ROCKEY, W. SKOLNIK : *Nucl. Sci. Engng.*, **8**, 62 (1960).
- (34) E. STARR, G. A. PRICE : *Trans. ANS*, **2**, No. 2, 125 (1959).
- (35) E. CAMPBELL, P. STELSON : *ORNL-2076*, 32 (1956).
- (36) F. KLOVERSTROM, T. KOMOTO : *Trans. ANS*, **1**, No.1, 1 (1958).
- (37) G. de SAUSSURE, E. SILVER : *ORNL-2641*,

- (1959).
- (38) W. M. ANDREWS : *Trans. ANS*, **3**, No.1, 161 (1960).
- (39) S. B. D. IYENGAR, *et al.* : *Proc. Ind. Acad. Sci.*, **45**, 215 (1957).
- (40) N. G. SJÖSTRAND : *Arkiv. Phys.*, **15**, 145 (1958).
- (41) K. H. BECKURTS : *Z. Natf.*, **11a**, 881 (1956).
- (42) E. SANTANDREA, *et al.* : *B/Conf.*, P1372, (1958).
- (43) J. W. MEADOWS, J. F. WHALEN : *Nucl. Sci. Engng.*, **9**, 132 (1961).
- (44) 富岡偉郎 他 : 第2回原子力研究総合発表会要旨集, B73 (1961).
- (45) 平川直弘 他 : 私 信(本誌に投稿予定), (1961).
- (46) M. CROUCH : *Nucl. Sci. Engng.*, **2**, 631 (1957).

原子力計測専門講習会・予稿集(別冊図表)

去る4月開催の第1回講習会の「予稿集」ですが、内容がテキストとして好適なので引続いて好評を得ております。

残 部 僅 少

1. 放射線検出器の構造と特性	太 組 健 児 氏
2. 放射線測定用電子回路	今 井 春 蔵 氏
3. 放射線測定	井 上 弥 治 郎 氏
4. 原子炉計装	片 桐 道 男 氏
	横 須 賀 正 寿 氏
5. 放射線モニタ	三 輪 博 秀 氏
6. 破損燃料検出	豊 田 正 敏 氏
7. 放射線管理	村 主 進 氏

1 部 600円 (送料 70円)