

令和 5 年 6 月 2 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19K05339

研究課題名(和文)メチル基及び水素結合が中性子の減速に与える影響の系統的な実験と散乱データの導出

研究課題名(英文)Systematic experiments for influence of methyl radical and hydrogen bond on neutron slowing down and scattering data derivation

研究代表者

原田 正英 (Harada, Masahide)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARCセンター・研究主幹

研究者番号：50354733

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、メチル基もしくは水素結合を有する水素含有物質の中性子透過・散乱データの系統的な取得及び中性子の減速過程への影響の明確化であった。まず、室温でガス状、低温で液体・固体状態となる試料に対し、安全対応できる特殊な形状の試料セルを含む測定用試料セルを製作した。実験では、J-PARCの中性子実験装置(NOBORU及びAMATERAS)にて、20K～300Kの温度領域で、軽水、重水、メタノール、エタノール、ベンゼン、トルエン、キシレン、メタン、水素の中性子透過・散乱データ測定を行った。測定結果から、材質の違いは全断面積に見えず、散乱データには明確に存在することが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、20K～300Kの温度領域で、軽水、重水、メタノール、エタノール、ベンゼン、トルエン、キシレン、メタン、水素の中性子透過・散乱データを系統的に取得でき、打全断面積や二重微分断面積への変換を行うことができた。旧来のデータでは不十分だったこれらのデータを系統的に取得することができ、核データ分野のみならず、含有水素物質が重要となる中性子源開発、研究原子炉開発への波及が期待できる。また、理論計算の改良への大きな道筋をつけることが可能となる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to obtain neutron transmission and scattering data for hydrogen-containing materials with methyl groups or hydrogen bonds systematically and to clarify the effects on neutron slowing-down processes. Firstly, sample cells were fabricated for the measurement, including a special sample cell handling samples that are gas state at room temperature and liquid or solid state at cryogenic temperatures. In the experiments, neutron transmission and scattering data of light water, heavy water, methanol, ethanol, benzene, toluene, xylene, methane, and hydrogen were measured in the temperature range from 20 K to 300 K on the neutron instruments (NOBORU and AMATERAS) at J-PARC. The measurement results show that material differences are not visible in the total cross sections but are clearly observed in the scattering data.

研究分野：原子力工学

キーワード：メチル基 水素結合 中性子の減速 系統的实验 散乱データ

1. 研究開始当初の背景

近年、加速器を用いた小型中性子源の設置、大型中性子源の高度化が進められている。中性子源では、高エネルギーで発生する中性子を中性子散乱実験で活用できる冷熱領域まで減速させ、中性子実験装置に供給する減速材の役割は大きい。水素原子核の質量は、中性子の質量とほぼ同じため、弾性散乱を主とする減速領域での減速は、水素が最も適しており、減速材としては水素含有物質を用いる。冷熱中性子領域に近い減速領域では、水素原子核との弾性散乱のみならず、水素含有物質の分子内での回転運動や、原子スピン状態の変動によるエネルギー吸収反応による減速が大きく効いてくる。水素分子やメチル基は、中性子の減速に寄与すると言われている。中性子減速材材料としては、軽水やポリエチレンが、室温においては固体もしくは液体であり、扱いやすい材料である。メチル基を持ち減速特性の優れたメタンは、室温においては気体であるが、減速材としては、液体もしくは固体の状態が使われる。水素は、放射線損傷の観点から大型中性子源では唯一の材料であるが、室温気体で爆発性があり、取り扱いの難しい材料であるため、パラ水素を積極的に利用することで、大きな利得を得ることができる。このような軽水、ポリエチレン、メタン、水素の水素含有物質に加え、メチル基を持つエタン、メタノール、2 ブチン、メチルアセチレンなどは、中性子温度が低く、取り扱いがしやすいため、減速材候補である。これら減速材候補の特性を系統的に明らかにし、今まで使用されてきた減速材の特性と比較し、小型中性子源もしくは大型中性子源の減速材として有効な材料を明確にすることは、今後の中性子源開発・製作にとって、大変有効である。

水素含有物質の減速材としての過去の研究を見ると、水素含有物質の中性子散乱に関する実験と理論研究は、米国のロスアラモス研究所の MacFarlane、アルゼンチンの Granada、京都大学の森島らが行っている[1-3]。主要減速材候補には、ある程度の測定データや理論評価データが存在する。一方、エタン、メタノール、2 ブチン、メチルアセチレンなどの測定データ、理論データは存在しない。これらの測定データや理論データを既存のデータに加えることは、散乱カーネルの構築に大きく貢献し、中性子源開発において、選択肢の幅を広げることになる。また、気体試料を使用した試料セルを用いた実験はほとんどない。その実験を可能とし、安全性にも配慮した試料セルは、中性子散乱実験にとっては、初めての試みである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、水素含有物質を対象とし、一般的な軽水、水素結合を持つ水素、メチル基の数が異なるメタン、エタン、メタノール、エタノール、ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン、2 ブチンについて、全断面積及び二重微分断面積を系統的に測定し、理論計算と比較し、その特性を明らかにすることである。

3. 研究の方法

本研究は、試料セルの製作、測定、データ処理及び解析の過程で行った。

試料セルは、液体試料用として、透過データ測定用平板セル、散乱データ測定用円筒セルを製作し、さらに、室温ガス状・低温液体状の試料用として、特殊形状の透過データ測定用平板セル及び特殊形状の散乱データ測定用円柱セルを製作した。特殊形状の試料セルは、ガスだまりを設けることで、加圧やガス供給をすることなく、低温で液体状となる試料の測定が可能となる。測定は、J-PARC 物質・生命科学実験施設に設置されている特性試験装置 NOBORU 及び非弾性散乱実験装置 AMATERAS で行った。透過実験は NOBORU で、散乱データ測定は AMATERAS で行い、試料を低温に冷却する試料環境装置を用いた。NOBORU では、試料の上流側 1 台の中性子モニターと試料の下流側に中性子検出器 2 台を設置し、試料の有り無しにより透過データを測定した。AMATERAS では、装置備え付けの中性子検出器群を用い、試料の有り無しにより散乱データを測定した。データの規格化用にはバナジウム試料を用いた。試料温度は、液体試料については、20、100、200、300K の 4 点に加え、融点付近で 2 点、室温ガス試料については、沸点以下、融点以下で少なくとも 1 点ずつ測定した。

データ処理及び解析では、研究分担者の安部らが開発した計算コード[4]による計算結果と比較した。また、散乱データは、同計算コードをベースとした散乱カーネルを用い、シミュレーションなどを用いて、比較できるデータを作成した。密度のデータがない試料もあり、その場合は、同計算コードから導出されるデータを用いた。

4. 研究成果

(1) 試料セル

液体試料用として、透過データ測定用平板セル、散乱データ測定用円筒セル、特殊形状の透過データ測定用平板セル及び特殊形状の散乱データ測定用円柱セルを製作した。図 1 に、特殊形状の散乱データ測定用円柱セルの写真を示す。この形状により、AMATERAS にて、室温ガス状・低温液体状の試料が測定可能となった。

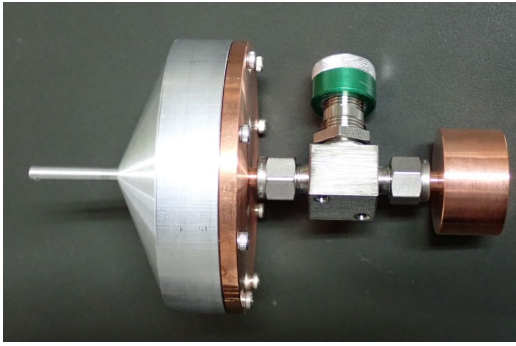


図 1: 特殊形状の散乱データ測定用円柱セ

(2) 測定手法

図 2 に、NOBORU における測定の様子を示す。上流から、中性子モニター、試料(冷凍機入り) 中性子検出器という並びになっている。上流側に中性子モニターを設置することで、入射ビームの規格化が容易になり、下流側に 2 台の中性子検出器を設置することで、数え落としの確認をすることができる。これらを用いて、測定を実施した。

(3) 透過データと全断面積測定結果

図 3 に、測定された透過データから変換した全断面積のうち、オルト、パラ、メタキシレンのデータを示す。測定温度は、20K と 300K である。全断面積には、異性体間の断面積の違いは見えないが、温度の違いは明確に分かる。これらを含め、対象となった物質の温度依存の全断面積を測定した。

(4) 散乱データと二重微分断面積

図 4 に、測定された散乱データから変換した二重微分断面積のうち、オルトキシレンのデータを示す。入射エネルギーは、2.6meV と 23meV、試料温度は、20K と 300K のデータである。弾性散乱成分の他に非弾性散乱成分も観測されていることが分かる。また、試料の温度によって、上方散乱や下方散乱の強度が異なることも分かる。これらを含め、対象となった物質の温度依存、入射エネルギー依存のデータを取得した。

(5) 計算値との比較

図 5 に、測定されたオルトキシレンの二重微分断面積と安部らの計算データ[4]との比較を示す。計算値は、相対値が概ね、実測値との良い一致を示す。一方で、水素結合やメチル基の中性

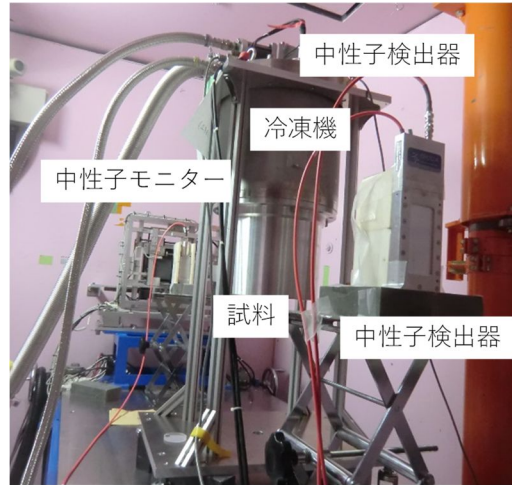


図 2: 測定の様子 (NOBORU)

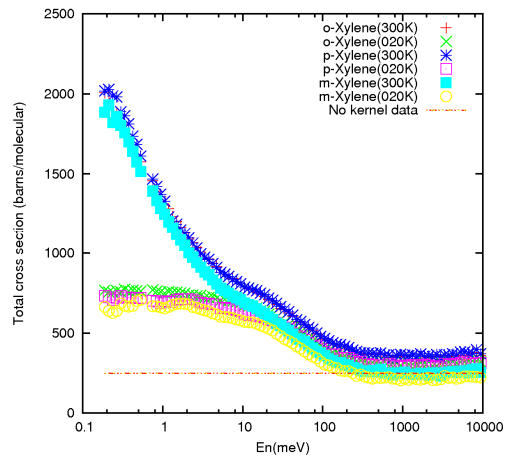


図 3: 測定されたオルト、パラ、メタキシレンの全断面積

測定温度は、20K と 300K である。

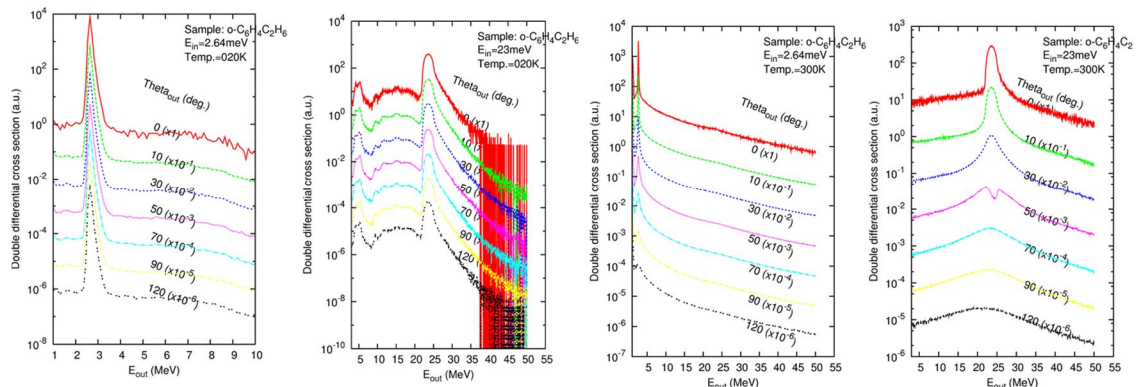


図 4: 測定されたオルトキシレンの二重微分断面積

入射エネルギーは 2.64meV 及び 23meV、試料温度は、20K と 300K。

子減速過程への有効性を示すには、さらなる解析や計算を進める必要があることも分かった。

参考文献

- [1] R.E. MacFarlane, LA-UR-98-655, Los Alamos National Laboratory (1998).
- [2] J.R. Granada et al., Physica B, 348 (2004) 6-14.
- [3] N. Morishima et al., Physica B, 350 (2004) e679-e681.
- [4] Y. Abe et al., To be submitted (2022).

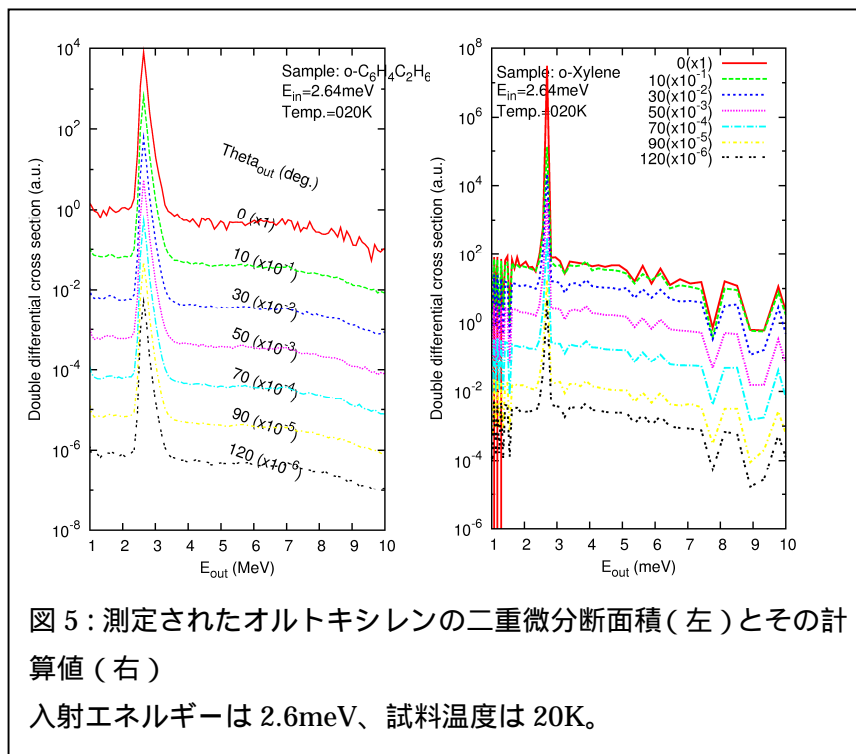


図5：測定されたオルトキシレンの二重微分断面積（左）とその計算値（右）

入射エネルギーは 2.6meV、試料温度は 20K。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 原田正英 安部豊 他
2. 発表標題 20～300Kにおける水素含有物質の断面積測定 o-キシレン、p-キシレン、m-キシレン
3. 学会等名 日本原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 原田正英 安部豊 他
2. 発表標題 水素含有物質の断面積測定
3. 学会等名 2022年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 原田正英 安部豊 他
2. 発表標題 20～300Kにおける水素含有物質の断面積測定；メタノール，ベンゼン及びトルエン
3. 学会等名 表会議名 日本原子力学会2022年春の年
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原田正英 安部豊 他
2. 発表標題 水素含有物質の断面積測定
3. 学会等名 2021年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 原田正英 安部豊 他
2. 発表標題 水素含有物質の断面積測定
3. 学会等名 2020 年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	安部 豊 (Abe Yutaka) (80378794)	京都大学・工学研究科・助教 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------