

展望

中性子の鉄鋼研究への応用-1

中性子ビーム利用の基礎とJ-PARC

Neutron Beam Application and J-PARC

Stefanus Harjo

日本原子力研究開発機構
量子ビーム応用研究部門 研究員

神山 崇

Takashi Kamiyama

高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所 教授

1 はじめに

一般に、物質の性質を研究する手段として、外部からの刺激や環境の変化に対する応答を調べる方法がある。温度、磁場、圧力、電場、応力、化学的環境等の変化に対する物理量（例えば、磁化や誘電率等）の応答を調べることで、物性や機能の発現機構の研究や機能開発を行うのである。一方、光やX線、ガンマ線等の電磁波や電子、中性子、ミュオン等の量子ビーム、超音波等を試料に入射し、散乱又は透過（吸収）したビームを計測することも、物質の研究手段として定着している。これらのビームは物質中で何らかの相互作用を起こし、様々な情報を外部にもたらすからである。以上の2つの研究手段の組み合わせが今後ますます重要になることを念頭におきつつ、ミクロな構造情報が後者、特に中性子散乱からどのように得られるか、解説するのが本稿の主題である。

物質に電磁波や量子ビームを入射すると、一部は散乱されたり吸収されたりするが、残りの大部分は透過する。従って、透過像を調べれば物質内部の吸収が多い部位の分布がわかる。これがラジオグラフィーである。X線ラジオグラフィーはレントゲンとして医療診断に広く用いられているのは周知の通りであるが、後述するように中性子の透過能は大きいため材料や製品内部の情報を取り出すことに適している。

ラジオグラフィーから得られる構造情報が、マクロな吸収のコントラストであり、その空間分解能がせいぜい数十ミクロンから数センチメートルであるのに対し、散乱ビームからは原子の散乱能に基づいて原子サイズ～ナノサイズの構造情報を取り出せる点に特徴がある。これは、原子の配列が規則正しければ正しいほど散乱ビームは強い干渉を起こし、干渉ピークの位置と強度を解析することで、原子配列や電子雲の分布についての情報を得ることができるためである。この簡単な原理は現代科学を形成する上で大変重要な役割を演じてきた。それでは、様々な電磁波や量子ビームの中で中性子は

どのような特徴を持ち、それをどのように利用したらいいのであろうか。

2 なぜ中性子散乱が有効なのか

中性子は1932年にChadwickによって発見された電荷を持たない粒子である。発見直後に回折現象が見いだされ、第二次大戦初期には原子炉を用いた中性子散乱研究が開始されている。初期のClifford ShullとBertram Brockhouseの貢献に対し1994年にノーベル賞が授与されている。

中性子の質量は $1.6749 \times 10^{-27} \text{ kg}$ と陽子よりわずかに大きく直径は 10^{-13} cm 。中性子は下記のような性質を持つ。

- ①物を通り抜ける能力；電荷を持たない中性粒子なので、物質を通り抜けやすく壊さずに物質の中の様子を見ることができる。
- ②軽元素や同位体を見分ける能力；原子核と相互作用するので、軽元素の検出や同位体の区別ができる。電子により散乱されるX線では、原子番号の小さな軽元素の散乱への寄与が少ないのに対して、中性子の散乱強度は原子番号と相関がなく同程度であるため、中性子ではX線に比べて軽元素の同定が容易である。また、同じ理由で原子番号が近い原子同士（例えばFeとCo）を見分けやすい。

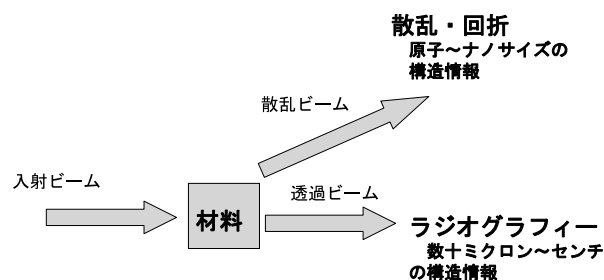


Fig.1 量子ビームで物質を調べる方法：ラジオグラフィーと散乱・回折

- ③原子の並び方を見る；中性子は波の性質を持ち、入射中性子は原子により散乱される。散乱中性子は原子の配列に応じて互いに干渉し合い、ブラッグ散乱や散漫散乱、小角散乱等を引き起こす。ブラッグ散乱や散漫散乱を解析することで結晶構造や局所構造が求まり、小角散乱を解析することでナノ構造を調べることができる。
- ④最小の磁石；中性子はスピンを持っているので、磁気ブラッグ回折が得られ、これを観測することで磁気構造を解明することが可能である。
- ⑤原子の動きを見る；原子間距離程度の波長を持つ中性子のエネルギーは、フォノン等集団励起のエネルギーと同程度である。その結果、散乱過程でのエネルギー変化をとらえやすい。

このような特徴を持つ中性子散乱により原子・分子の配列や運動状態を調べることが可能であるため、物質の性質や機能を解明する目的で、物理から生物まで、基礎から応用までの広い分野で強力な実験手段として利用されている。

散乱過程において中性子のエネルギー変化がない弾性散乱では、試料での散乱前後で中性子のエネルギー解析を行う必要がない。このような弾性散乱実験により、結晶構造解析、液体・ガラス・アモルファスの構造解析、たんぱく質など生体物質の構造解析、応力解析、ナノ構造や磁気構造などの静的構造が得られる。一方、散乱過程において中性子にエネルギー変化のある非弾性散乱では、実験においてエネルギー解析を行うことで、物質とのエネルギーの授受を調べることが可能である。非弾性散乱実験は、格子振動（フォノン）やスピン波励起（マグノン）など動的構造の測定に用いられる。

③ 中性子の発生原理¹⁾と散乱実験²⁾

中性子を得る方法には放射性同位体利用、原子炉定常炉利用、加速器利用等さまざまである。物性研究のプローブとして中性子ビーム利用を考えると、主には研究用原子炉からの定常中性子と加速器からのパルス中性子線源とがある。

原子炉からの中性子：実験に使われる中性子線は、原子炉燃料²³⁵Uの原子核が熱中性子を吸収することで起こす核分裂連鎖反応を維持させ、それによって得られる中性子を定常的に実験装置へ導出したものである。第二次大戦初期には原子炉を用いた中性子散乱研究が開始されたが、1950—60年代の研究用原子炉建設ラッシュ以降、中性子強度は横ばい状態である。最近になり韓国、ドイツで研究用の原子炉が連続して建設されビーム供給が開始されたが、オーストラリアでも建設終了したところである。日本原子力研究開発機構（JAEA）の原子炉（JRR-3）の場合、熱出力が20 MWであり、発生さ

れる熱中性子束は最大 $3 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ になる。実験孔の出口には、実験目的に合わせて中性子線の水平発散角を決めるコリメータとビームシャッターが設けられている。コリメータを通過する中性子束は $1 \sim 3 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ 程度である。**パルス中性子源：**加速器駆動型のパルス中性子源には、電子線を加速し重金属に衝突させて光中性子を発生させる方法と数百MeVに加速した陽子を重金属に衝突させて核破砕反応を生じさせる方法がある。高エネルギー加速器研究機構（KEK）中性子科学研究施設（KENS）（5kW）は後者で、世界最初の施設として1980年にパルス中性子の供給を開始、様々な技術開発、利用開発の後、後述する大強度陽子加速器施設（J-PARC）への道を拓いて2006年に停止した。

原子核核分裂反応においては、²³⁵Uが熱エネルギー領域で中性子吸収が大きいことを利用し、その際²³⁵U原子核が2つに分裂するとともに、平均で2.5個中性子を発生する。一方、核破砕反応は、高速陽子が原子核（どの原子核でもよい）に投入された際に、核子（陽子および中性子）および π 中間子が直接核外にはじき出される過程と、それによって不安定になった原子核から核子蒸発と呼ばれる過程により核子が放出される過程からなっている。その際、出てくる中性子の数は、標的となった原子核質量が大きいほど、また投入する陽子エネルギーが大きいほど多くなる。具体的には、現在建設中の大強度加速器施設（J-PARC）で採用される3 GeV陽子加速器を用いた場合、重金属をターゲットとすると、陽子1つあたり50個程度の中性子を得ることができるため核分裂より効率が良い。

上記に述べた2つの中性子源ではそれぞれの特徴から標準的な散乱実験方法が異なっている。回折実験の場合、原子炉からの中性子を用いた散乱実験は通常結晶モノクロメータで単色化させた中性子（ λ ：波長）を入射させ、散乱角 2θ の走査することで、ブラッグ条件 $2d \sin \theta = \lambda$ （ d ：格子面間隔、 2θ ：散乱角）を満たす格子面間隔を探し出す。この方法は角度を走査することから角度分散型と呼ばれるが、実験室のX線回折装置の原理と同じである。一方、パルス中性子源を利用した実験では陽子がターゲットに入射され、中性子が発生する時刻を起点とする飛行時間を計測する。中性子の速度の違いを反映して、中性子発生後試料を経て最終的に検出器に到達するまでの時間 t が異なってくる。中性子の速度を v 、減速材から試料を経て検出器までの距離を L とすると、 $v = L/t$ である。この式をド・ブロイの関係 $\lambda = h/mv$ （ h ：プランク定数、 m ：中性子の質量）に代入すると、 $\lambda = ht/mL$ となり、 t から λ が求まり、さらにブラッグの条件から格子面間隔 d が計算できる。この方法を飛行時間法（TOF法）という。

$$d[\text{\AA}] = \frac{t[\mu\text{sec}]}{505.555[\mu\text{sec}/\text{\AA m}]L[\text{m}]\sin\theta}$$

Fig.2は通常のX線および原子炉の中性子を用いた角度分散型回折法とTOF回折法の違いを示す。角度分散型回折法では、中性子を単色化し試料に入射させ、回折パターンの収集は散乱角 2θ 上を検出器が走査することで強度を測定する。一方、TOF回折法の場合、波長や速度の異なる白色中性子束が試料に入射するので、検出器の位置を固定して到達する異なる波長の中性子の時間と強度を計測して回折パターンを収集する。時間変化に伴う現象を測定する際には、検出器を移動する時間を気にする必要のないTOF回折法が向いているが、入射中性子のエネルギー分布の変化を気にすることなく、回折プロファイル解析(転位密度や結晶サイズなど)を行う際には角度分散型回折法が向いているとされてきたが、最近のパルス中性子源の技術の進歩は進んでおり、モデレータから発生する中性子のエネルギーの制御は非常に優れているため、これらの分野にも問題なく適用できる。

TOF法はエネルギー分散型であるため、次のようなブラッグエッジ観測から高効率、高分解能でブラッグ散乱を観

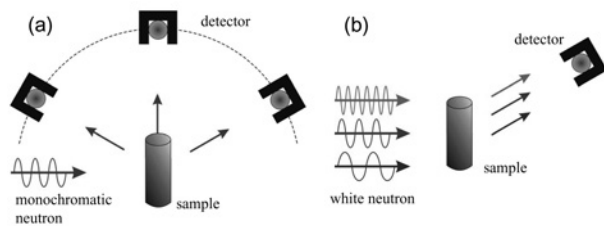


Fig.2 角度分散型回折法 (a) と飛行時間 (エネルギー分散) 型回折法 (b)

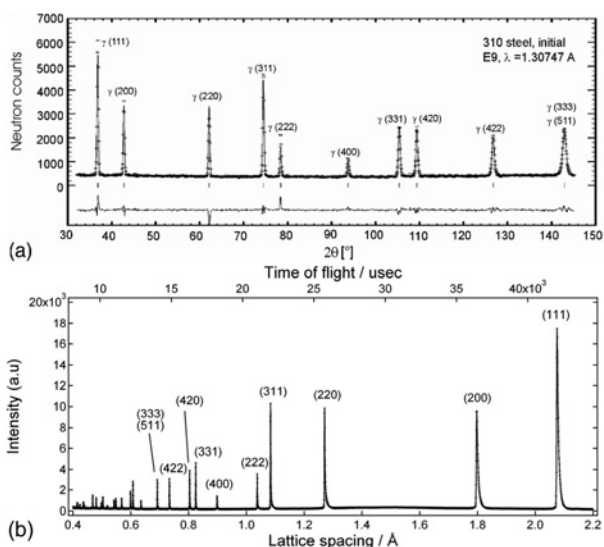


Fig.3 角度分散型 (a) および飛行時間型中性子回折実験で得られたオーステナイト系鋼のパターンの例 (b)

測できる。通常の測定では、散乱した中性子を直接観測するが、散乱するとその分だけ透過する中性子が失われているため、透過スペクトルにもブラッグ反射が反映することになる (Fig.4 (a))³⁾。透過中性子パターンが波長に対してエッジをつくるので、ブラッグエッジと呼ばれている。ブラッグエッジは立ち上がりが鋭くその位置から $\lambda = 2d$ の関係により面間隔を精度よく求めることも可能である。

中性子散乱では通常強度補正の容易さから入射中性子の10%程度が散乱、残りは透過するように試料の大きさを選ぶ。散乱中性子は多結晶では 4π 方向に飛び散るが、それに比べて検出器の立体角は相対的に小さい。したがって、検出器に到達する散乱中性子に比べて透過する中性子のほうがはるかに多い。すなわち、通常のブラッグ反射測定よりもブラッグエッジ測定の方が効率的な測定が可能となる場合がある。

4 大強度加速器施設 (J-PARC)⁴⁻⁶⁾

中性子利用可能な分野は非常に広いが、これまでの中性子源は強度が低く、常に強度不足に悩まされてきた。そのような理由で、現在の100倍以上な強力な中性子源を建設しようという計画が米国、日本、ヨーロッパ連合、中国、インドなどで議論され、ついに1~2年後に相次いで実現されようとしている。日本では、JAEAとKEKがJ-PARCを建設中であり、2年後にはJ-PARCの物質・生命科学実験施設に中性子ビーム供給が開始されることになっている。J-PARCでは、素粒子物理、原子核物理、物質科学、生命科学、原子力工学の分野において最先端の研究を行うため、世界最高の陽子ビーム強度を持った陽子加速器群を建設することをめざす。中核をなす物質・生命科学実験施設では、1MWという大強度のパルス中性子源が据え付けられるが、KENSの中性子源が5kW程度であることを考えると、いかに大きいか分か

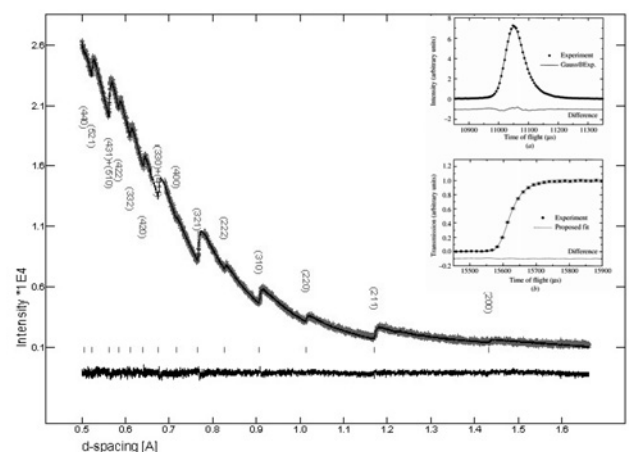


Fig.4 ブラッグエッジ中性子透過法で得られるパターンの例

るであろう。ここでは物質・生命科学実験施設に建設される中性子実験装置群について簡単に説明しよう。

物質・生命科学実験施設には、23 ビームポートに装置を設置できる。現在設計作業を進めている装置を Fig.5 に示す^{5,6)}。弾性散乱実験装置群は：1) 生命物質構造解析装置（茨城県）、2) 生体構造解析装置（JAEA）、3) 材料構造解析装置（茨城県）、4) 物質構造解析装置（JAEA）、5) 超高分解能粉末回折装置（KEK）、6) 新材料解析装置（工学利用回折装置、JAEA）、7) 汎用全散乱装置（KEK）、8) 大強度型小角散乱装置（JAEA）、9) 高性能水平型反射率計（KEK）であり、非弾性散乱装置群は：10) 低エネルギー分光器（JAEA）、11) 高分解能型チョッパー分光器（KEK）、12) ダイナミクス解析装置（JAEA）、13) 4次元空間中性子探査装置（JAEA・KEK・大学）、14) 共鳴中性子スピネコー分光器群（京大）である。

本稿では、展望「中性子の鉄鋼研究への応用」シリーズに関係する装置について簡単に説明しよう。

①材料構造解析装置（J-PARC PD, Fig.6, ①）：

粉末試料や多結晶試料の構造解析を行う装置である。分解能 $\Delta d/d$ は $\sim 0.15\%$ である。0.5 cc の試料であっても5分間の測定でリートベルト解析が可能な回折データを得ることが可能であり、年間数万件の測定が実現できる。定性分析程度の回折データを得るための測定時間が秒オーダーで短縮でき

るであろう。本装置は非常に広い立体角の検出器を持っているため、短時間の集合組織測定への応用が期待できる。

②超高分解能粉末回折装置（J-PARC SHRPD, Fig.6, ②）：

世界最高の分解能である、 $\Delta d/d \sim 0.03\%$ を実現する粉末回折装置であり、従来粉末法では困難であった複雑な結晶構造解析が可能であることに加え、僅かな歪みを高い精度で検出することができることを利用して、新しい構造科学の創成を目指す。

③新材料解析装置（J-PARC ED, Fig.6, ③）：

中性子の透過力を利用して構造材料の内部のひずみや応力を測定する装置である。ゲージ（観測部位）体積 1 mm^3 の体積ひずみ（直交3方向のひずみ）を $10^{-4} \sim 10^{-5}$ の精度（5%程度）で、10分間のうちに測定が可能であり、現在JAEAのJRR-3で稼動している残留応力測定用中性子回折装置（RESA）の100倍もの強度を有する。この装置は粉末回折装置群の中では、微小領域が観察できるように設計されており、例えば、電池反応セル中の正極だけの構造変化を充放電をさせながら観察することなどが可能である。また、測定テーブル周りの広い空間を有するため、様々な環境での測定を実現することが可能である。

④汎用全散乱装置（J-PARC S (Q), Fig.6, ④）：

非晶質、液体、結晶性物質の構造解析を行うための装置である。非常に広範囲な波数空間 $0.01\text{ \AA}^{-1} \leq Q \leq 100\text{ \AA}^{-1}$ (Q

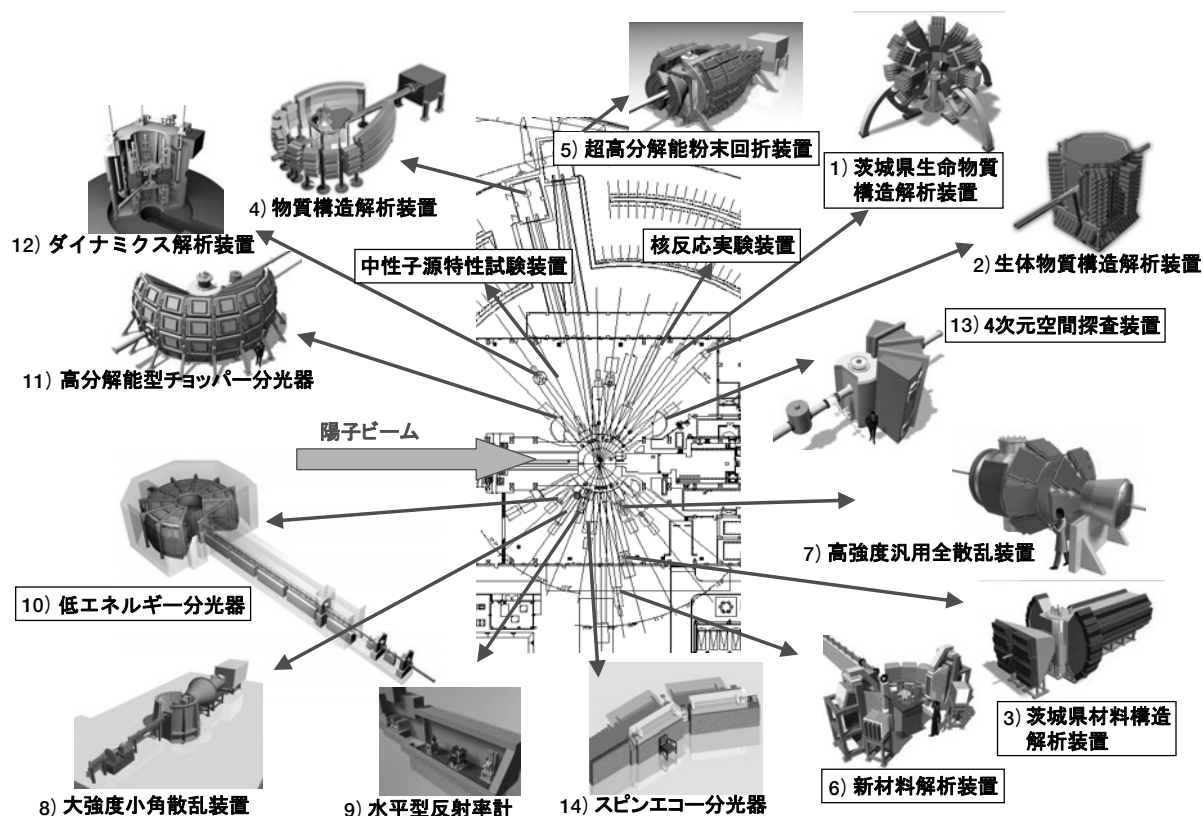


Fig.5 J-PARCの物質・生命科学実験施設にて現段階で予定されている装置群の概略図（四角で囲った装置は2008年に設置予定）

$\cong 2\pi/d$, $0.063\text{\AA} \leq d \leq 630\text{\AA}$ の測定を一挙に行うことで、結晶構造解析、局所構造解析、ナノ構造解析が可能である。この装置は粉末回折装置群の中では、もっとも大強度な粉末回折装置であり、実時間測定や様々な環境下での中性子回折実験が可能である点に特徴がある。

これらの4台の装置をそれぞれが持っている強度と分解能の点をプロットすると、Fig.6のように比較することができる。この比較図から、J-PARCの装置群が如何に高い性能を持つかが理解できるだろう。これらの性能を念頭にそれぞれの実験にどの装置が最適かを判断すればよい。

⑤大強度小角散乱装置：

小角散乱から広角散乱までを一気に観測できるように設計された装置で、これまで観測の谷間であった、中角領域の観測が可能であることから、物質科学研究の新展開に大きな貢献が期待される。フランスにあるラウエ・ランジュバン研究所 (ILL) に設置されている小角散乱装置D11の2倍ほどの強度が見込まれている。

⑥高性能水平型反射率計：

本装置は自由表面、界面の反射測定を $0.5\text{\AA}^{-1}$ まで容易に観測できる。表面・界面波の測定を中性子では初めて可能にする目的で、表面散乱スピネコー装置をオプションとして開発中である。世界一の測定反射率 10^{-10} を目標とする。

5 中性子施設へのアクセス

以上述べてきたように、中性子を用いる施設や装置は様々なものであるが、実験を行う際の手続きについて簡単に説明する。中性子源は巨大な施設である。ここでは弾性散乱、非弾性散乱、放射化分析等様々な実験が同時に行われる。このため、まず中性子源を持つ施設に利用申請を行う。

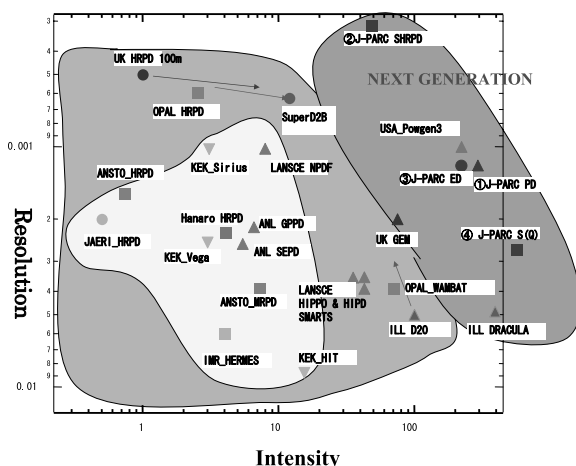


Fig.6 J-PARCの4台の中性子回折装置の性能と国内外の同種装置との性能比較

利用の枠組みには、大学共同利用 (大学や高エネ機構) と施設共用 (JAEA)、及び職員との共同研究がある。J-PARCでは茨城県募集枠等も加わるが、窓口を一本化する方向で調整を進めつつある。大学共同利用の場合、利用者が実験結果を公開することを前提に、中性子ビーム利用料を払う必要がない。これに対して、施設共用では原則有料であるが、実験結果を非公開とする枠では利用料金を減免する方式を導入している。

重要なのは、目的とする実験および研究を行えるかを調べることである。研究目的にあった施設および装置があれば、それを担当する施設職員に予め実験目的、得られる情報、公表の方法などを聞いておく方が、その後の実験がよりスムーズに行える。

JRR-3に設置されている東京大学、東北大学、京都大学の中性子実験装置に対する大学共同利用もJAEAの施設共用枠で実施される。しかし、東大物性研が代表して基本料金を支払うため、利用者に課金はされない。東大物性研が窓口になって、大学共同利用として一括募集している (<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/labs/neutron/index.html>)。共同利用研究課題の公募は、毎年10月中旬に通知され、11月下旬に締め切られる。研究課題の受付は原則として年1回であるが、とくに緊急を要する課題が生じたときは、中性子散乱研究施設運営委員会にその理由を付して、随時申請することができる。

JRR-3以外にも自前の研究用原子炉を持つ京都大学原子炉実験所が全国大学共同利用施設として設置され、毎年10月締め切りの共同利用募集を行っている。KEKの中性子源は平成18年3月をもって25年間の活動を経て運転を終了したが、J-PARCでビーム供給が開始されるまでの間、米国 (ロスアラモス研、アルゴンヌ研)、英国 (ラザフォード・アップルトン研) を中心とした海外中性子実験施設の利用事業が開始されている (第6回公募予定, http://neutron-science.kek.jp/ju_contents.html)。また、JAEAと東大物性研は「日米協力事業 (中性子散乱分野)」を実施しているが、東大物性研の日米協力では、研究課題を一般公募しており、オークリッジ研に設置されている中性子散乱装置が利用できる (締め切りは11月下旬)。

6 おわりに

以上、中性子を利用した研究、それに関係する装置や施設に関する初歩的な知識を紹介した。これにより、中性子を利用した研究にご興味を持っていただければ、展望「中性子の鉄鋼研究への応用」シリーズの第一回目の目的は達成できたであろう。次回からは、中性子を用いた実際の研究の最前線

と研究成果を紹介する。

参考文献

- 1) 森本幸生, 森井幸生, 池田進, 新井正敏: 入門講座
中性子科学への招待, 日本結晶学会, 46 (2006), 1.
- 2) 神山崇: 入門講座 中性子科学への招待, 日本結晶学
会, 46 (2006), 26.
- 3) S. Vogel: Ph.D. thesis, Kiel University, Germany,
(2000)
- 4) J-PARCの最新情報は以下のホームページから得ること
ができる: <http://j-parc.jp>
- 5) M. Arai et. al: Proc. ICNS2005, Physica B, in
press.
- 6) 特集 量子ビームが開く世界—中性子産業利用の展開,
月刊エネルギー, 39 (2006)

(2006年7月10日受付)