

2. 中性子ビーム施設

北澤 英明 量子ビームセンター、物質・材料研究機構

1. はじめに

物質を構成する最小基本粒子である電荷を持たない中性子は、透過力にすぐれ、微小磁石（スピン）としての性質を持つために、原子の中心にある原子核やその周りにある電子のつくる磁場（磁気モーメント）と力を及ぼしあう。原子炉中の減速材と熱平衡にある数十 meV 程度のエネルギーの中性子は、粒子としての性質と共に、波としての性質も併せ持っており、光や音波と同様な回折・干渉効果を示す。この中性子の波長は、ほぼ 0.1 ~ 0.3 ナノメートルで、結晶構造解析に利用される X 線と同等な波長であるので、発生方法は異なるが X 線と同じように利用することができる。

特に、中性子は、つぎのような X 線とは異なった魅力ある特徴を有している。中性粒子であるので物質の透過能が遥かに大きい。中性子の場合には散乱能は X 線の場合と異なり、原子番号と無関係であるため、軽元素（例えば水素やリチウム）と重元素から構成される物質の構造がより正確に決められる場合がある。中性子はスピンをもった磁性粒子であり、物質を構成する磁性原子と磁気的な相互作用による散乱も存在するため、X 線に比べて物質の磁気構造を容易に決定できる。数十 meV のエネルギーを持つ中性子は物質を構成している原子の振動とエネルギーのやり取りを行い、自らのエネルギーを変化させる。従って、この情報から物質中の原子振動の様相を明らかにできる。

これらの特徴を利用して多数の中性子を物質に当て、その散乱の仕方（方向・スピード・スピンの向きの変化）を測り、物質内での原子や磁気モーメントの配列や運動の様子を知る実験法を中性子散乱法と呼んでいる。この方法により物質の性質や機能が、原子・分子の配列や運動状態とどのように関わっているかを解明することができるので、物理から生物まで、基礎から応用までの広い分野で最も強力な実

験手段として利用されている。近年、中性子散乱実験では中性子強度の増強、低温・高温、高圧あるいは強磁場といった極限条件での物質研究、高分子や生物といったソフトマテリアルの研究、超伝導材料等の機能材料の構造評価などが行われ、研究内容が多様化し、装置も高度化してきている。

2. 世界の研究動向

2.1 中性子ビーム施設

世界で稼働している代表的な中性子ビーム施設の仕様を発生源別に原子炉（表 1）と加速器（表 2）に分けて掲げた。例えば、フランスグルノーブル・ラウエランジュバン研究所にある GHFR（Grenoble High Flux Reactor）は、出力は 57 MW であるが、世界で最高性能の中性子ビーム実験主体の研究炉であり、これまで物質・材料科学研究に多くの成果をあげてきた。ところが近年、これまで中性子源として活躍してきた世界各国の原子炉施設の老朽化が進んできており、米国オークリッジ国立研究所（ORNL）の大型原子炉 ANS（Advanced Neutron Source）計画が挫折したように、新たな大強度中性子源原子炉の建設は困難になってきている。

このような状況から加速器を用いた大強度核破砕中性子源の建設計画が提案されるようになってきた。加速器中性子源の建設計画としては、日本の大強度陽子加速器計画/パルス中性子施設（J-PARC/JSNS）以外に現在、2つの大強度核破砕中性子源の建設計画が進行している¹⁾。米国では、2006年完成を目指しオークリッジ国立研究所の最先端中性子源 SNS（Spallation Neutron Source）が建設中である²⁾。欧州でも、英国 ISIS ラザフォードアップルトン研究所の第 2 ターゲットステーションの建設を始めとする中性子源の高度化が図られている³⁾。ここで特筆すべきは、米国における SNS へのナノフェーズ材料科学センターの併設や、フランスグル

表 1 世界の主な「原子炉」中性子ビーム施設⁵⁾

国/地域	アメリカ		ヨーロッパ				オーストラリア	アジア	
中性子源	HFIR	NBSR	HFR (フランス)	ORPHEE (フランス)	FRJ-II (ドイツ)	FMR-II (ドイツ)	OPAL	HANARO (韓国)	JRR-3 (日本)
研究機関	オークリッジ国立研究所 ORNL DOE	国立標準技術研究所 NIST 商務省	ラウエランジュバン研究所 ILL	レオンブリリュアン研究所 LLB	ユーリッヒ	ミュンヘン工科大	豪州原子力研究機構 ANSTO	韓国原子力研究所 KAERI	日本原子力開発機構 JAEA
熱出力(MW)	85	20	58	15	20	20	20	30	20
炉心での熱中性子束 (n/cm ² /s)	2.1×10 ¹⁵	3×10 ¹⁴	1.5×10 ¹⁵	2×10 ¹⁴	2×10 ¹⁴	8×10 ¹⁴	3×10 ¹⁴	3×10 ¹⁴	3×10 ¹⁴
冷中性子源/熱外中性子源数	1(2005年新設予定)/0	1/0	2/1	1/0	1/0	1/0	1/0	1(設置中)/0	1/0
中性子散乱装置台数	9(現在)/17(2006年改造後)	24	26	22	6	>10 planned	8	6	25
中性子源完成年	1967年	1970年	1972年、1993年改造	1980年	1962年	2004年	2006年	1997年	1990年改造
特筆事項他	DOEによる高度化推進拠点施設ナノサイエンスセンター併設	DOE、ユーザーから最も共同利用の評判の高い施設、米国「燃料電池」開発戦略拠点	EU 13ヶ国共同運営機関 PSB (構造生物学パートナーシップ) やMINATECを推進中	財政危機による運転時間短縮 (以前は200日以上)	2006年運転永久停止予定	2004年3月臨界達成	建設中、2006年完成予定	冷中性子源設置予算化済	アジア地域で最もよく共同利用されている施設
主な研究分野	固体物性 高分子科学	固体物性 材料科学 高分子科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学		固体物性 材料科学 高分子科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学	固体物性 材料科学	固体物性 材料科学 高分子科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学

表 2 世界の主な「加速器」中性子ビーム施設⁵⁾

国/地域	アメリカ			ヨーロッパ			日本	
中性子源	IPNS	LANSCE	SNS	ISIS (イギリス)	SINQ (スイス)	ESS (EU)	KENS	JSNS
研究機関	アルゴンヌ国立研究所 ANL (DOE)	ロスアラモス国立研究所 LANL (DOE)	オークリッジ国立研究所 ORNL (DOE)	ラザフォードアップルトン研究所 RAL	ポールシェラー研究所 PSI	未定	高エネ機構 KEK	原研・高エネ機構
陽子エネルギー (MeV)/電流(μA)	450/18	800/70	1000/1400	800/200	590/1500	1333/7500	500/9	3000/333
陽子ビーム出力	8.1kW	56kW	1.4MW	160kW	1MW	5MW/5MW	4.6kW	1MW
繰返数(Hz)	30	20	60	50	連続	10/50	20	25
ターゲット材料	濃縮U	W	Hg	Ta	ジルカロイ	Hg	W	Hg
減速材	固体メタン・水	固体メタン・水	液体水素・水	液体水素・液体メタン・水	液体重水素・重水	液体水素・液体メタン	固体メタン・水	液体水素
積分速中性子数 (n/s)	5×10 ¹⁵	6.7×10 ¹⁵	1.8×10 ¹⁷	1.8×10 ¹⁶	1.25×10 ¹⁷	6.3×10 ¹⁷	5×10 ¹⁴	1.25×10 ¹⁷
中性子散乱装置台数	12	7	24	17	15	40	15	23
中性子源完成年	1981年	1983年	2006年6月	1985年/2007年	1996年	未定	1980年	2008年4月
特筆事項他	ナノサイエンスセンター併設	ナノサイエンスセンター併設	建設中(2006年完成予定) ナノサイエンスセンター併設	第2ターゲット計画進行中(2007年完成予定)		最も早い時期に検討されたが延期	世界初のパルス中性子専用施設(2006年3月停止)	建設中(2008年4月完成予定)
主な研究分野	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学	固体物性 材料科学 高分子科学	—	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学	固体物性 材料科学 高分子科学 生命科学

ノーブル地区における中性子源施設 GHFR/ILL に近接したマイクロエレクトロニクス・ナノテクノロジーイノベーションセンターの設置にみられるように、諸外国ではナノテクノロジーへの中性子ビームの積極的利用を促進する体制を大強度化と並行して整備している点である。さらにそれらを欧州全体としてまとめる形で Grand European Initiative on Nanoscience and Nanotechnology using Neutron and Synchrotron Sources (GENNESYS) プロジェクトが始動しつつある⁴⁾。欧州では中性子の材料科学への利用および産業利用が元々盛んであることに加え、さらに公的物質・材料研究機関の密接な関与をサポートするシステムが整いつつあることは大きな脅威といえる。

3. 国内の研究動向

3.1 中性子ビーム施設

国内において、中性子ビームはナノテクノロジー及び物質・材料科学分野において重要なツールとして認識されている。現在、日本原子力研究開発機構(原子力機構：旧日本原子力研究所)の研究用原子炉 JRR-3 (20 MW) の施設が一般利用可能であり、現時点で世界的に比肩しうる水準にある。一方、世界最初の核破砕型中性子散乱施設である高エネルギー研究所中性子散乱施設 (KENS) は、2006年3月にシャットダウンされたが、加速器を用いた中性子実験は、2001年から原子力機構・高エネルギー加速器研究機構が共同で建設している J-PARC 内に建設される中性子施設 (JSNS) に引き継がれる事になっている。2008年に完成予定の J-PARC は、原子力機構東海研キャンパスに 1MW 大強度陽子加速器を共通基盤とする 5つの施設から構成されるユニークなプロジェクト(図1参照)である¹⁾。特に 1MW 陽子ビーム出力、25Hz 運転により核破砕反応で発生する世界最高のパルス中性子強度を有する JSNS は、物質科学や生命科学の基礎から応用研究の最先端を切り拓き、さらに産業利用への貢献が期待されている。

3.2 NIMS における中性子散乱研究の現状

物質・材料研究の中核機関である NIMS には、物質・材料分野における中性子ビーム基盤技術として



図1 大強度陽子加速器計画 (J-PARC) の概観¹⁾。JSNS は、物質・生命科学実験施設内に建設される。
(資料提供：JAEA・KEK J-PARC プロジェクトチーム)

国内外の他研究機関の追従を許さない次の実績を有している。

(1) 粉末回折データを用いた構造精密化法の開発とその応用

NIMS で開発されたリートベルト法のコンピュータソフトウェア RIETAN-2000⁶⁾ は、解析結果の精度の高さと使いやすさにより国内外を問わず広く普及し、X線及び中性子粉末回折パターンから多くの物質の結晶構造決定に使われて来た。例えば、高温超伝導体は、希土類元素、アルカリ土類元素および遷移金属元素等多様な金属元素を含む銅複酸化物であり、軽元素である酸素を含めた解析や、原子番号が近接する複数の元素を含んだ結晶構造解析を行うには中性子回折が唯一の手段となる。そのため、多くの高温超伝導体の結晶構造決定に使われている。

さらに最近では、粉末回折データを用いる新構造精密化法として、リートベルト法と異なるアプローチである MPF (最大エントロピー法 (MEM) に基づく全回折パターンフィッティング) 法を提唱している⁷⁾。MPF 法は結晶構造パラメーターでは表現し切れない原子 (団) の動的・静的不規則分布、結合電子、非局在電子、非調和熱振動などを扱うのに適している。たとえば MPF 法を用いて解析することで二次電池用正極材料、燃料電池、プロトン伝導体などの固体電解質における可動化学種の移動経路を高い確度で決定できるようになっている。このような情報は他手法では得難い情報であり、これをフィードバックすることで材料設計開発に大きく貢献するに違いない。

(2) X線・中性子線小角散乱法による磁性材料・構造材料のマルチスケール評価

小角散乱法はその対象とするスケール領域から材料科学への貢献が多いに期待できる手法である。特に、中性子小角散乱は金属材料に対する透過能の高さ、鉄合金中の Ni や Cr、アルミニウム合金中の Mg や Si の識別性、磁性材料における局所磁化分布情報を与えるため、金属材料分野で多大な貢献につながる。

例えば、ナノグラニューラ軟磁性材料は粒子径が数 nm の純 Co 等の磁性粒子が酸化物相に埋め込まれた微細構造を有する材料である。このような組織を有するためその電気抵抗は大きく、かつ飽和磁化も大きい。このナノグラニューラ材料の軟磁気特性を初めとする磁気特性は磁性粒子が持つ磁気モーメントの協力現象として発現するため、粒子間の相互作用を律する微細組織に非常に敏感である。従って、ナノグラニューラ材料の磁気特性の発現機構を理解するためには磁性粒子集団の磁氣的協力現象の理解と微細組織スケールの定量評価が欠かせない。NIMS では中性子と X 線の両手法の併用が両者の特徴（各原子の散乱能の差、化学構造に対する感度、中性子の磁気散乱）を最大限引き出せるように、高輝度高透過型 Mo-K 線小角散乱装置を導入し、組織スケール、粒子分布の平均的な特徴の評価を進め、磁性材料の特性と微細構造との関係の解明に貢献してきた⁸⁾。

4. 今後の研究動向

4.1 中性子ビーム施設

これまでは中性子をマイクロなプローブとして、物質内部の原子レベルでの構造や原子・分子の運動状態の研究はもっぱら学術目的で行われてきた。確かに、原子力機構 JRR-3M の産業利用プログラムの進展により、徐々に材料・加工品内部の残留応力測定、磁性材料・電池材料開発、高分子材料開発等にも利用されつつある。しかし、産業界が単独で中性子利用できる支援制度はごく最近まで存在せず、多くは産学の共同研究として実施されてきたのが実情である。

さて、2008 年度には新たに J-PARC の運用が始まり¹⁾、JSNS における高強度中性子ビームによる水

素やリチウム等の軽い元素の観測や、磁性の観測等が可能になるため、従来の中性子ビーム施設では難しかった原子・分子レベルの現象の解明が期待される。さらに、同じ茨城県東海地区に隣接する、現在稼働中の高性能 JRR-3 原子炉とを目的に応じて使い分ける事が可能となる。このように中性子散乱研究の 1 大拠点として、国際的に極めてユニークな研究環境が実現する。

現時点で想定される具体的な中性子ビームの物質・材料研究への用途として、ハードディスクの記録密度向上を目的とした積層薄膜の磁気構造の解明、水素吸蔵材料の水素吸着メカニズムの解明、燃料電池中の水の分布・形成排出の観測、大型施設及び大型建造物の非破壊残留応力解析、リチウムイオン電池のエネルギー密度向上を目的としたリチウムの動態及び静的分布の解明等が挙げられる。

その際、これまでは企業側にとり馴染みの少なかった中性子ビームの産業利用を促進するには、先行している SPring-8 の利用体制などを参考にしつつ、施設側で入口から出口までの利用制度と支援体制の構築を目指す必要がある。

5. まとめ

ナノテクノロジー・材料分野は、その目覚ましい発展により、高機能化、高集積化が進められ、さらに、過酷な環境下でも使用可能な材料の開発が進められるなど、今後とも我が国が世界をリードする技術分野の一つである。これに伴い、原子・分子レベルでの現象の解明が新たな研究課題となってきた。こうした課題を解決する有力なツールの 1 つとして中性子ビームも位置づけられている。

引用文献

- 1) J-PARC/大強度陽子加速器計画、<http://j-parc.jp/>
- 2) The spallation neutron source(SNS)(米)
<http://www.sns.gov/>
- 3) Rutherford Appleton Laboratory(ISIS)(英)
<http://www.isis.rl.ac.uk/>
- 4) GENNESYS, <http://gennesys.neutron-eu.net/>
- 5) 文部科学省、
http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/shinkou/010/houkoku/06011702/all.pdf

- 6) F. Izumi and T. Ikeda: Mater. Sci. Forum **321-324**
(2000)198.
- 7) F. Izumi's home page,
<http://homepage.mac.com/fujioizumi/>
- 8) 大沼、宝野：応用磁気学会誌 **26**(2002)915.