

中性子（東海村）：中性子利用研究の新展開 —大型定常中性子源（JRR-3）と大強度パルス中性子源（J-PARC MLF）の協奏時代の幕開け

武田 全 康

1 はじめに

中性子を分析のためのプローブとして考えるとき、X線との比較で考えるとわかりやすいだろう。中性子は原子核の中にとどまっているもの、X線は一か所に留まらずに伝搬するものというイメージから、中性子は粒子、X線は波のイメージを持つのが一般的と思われるが、両者はともに波でもあり粒子でもあるという二重性（量子性）を持つことが様々な観測からわかっている。中性子を使った分析には大きく分けて構造解析と元素分析があり、さらに構造解析はマイクロなものとマクロなものに分類できる。構造解析のプローブとして中性子をX線と比較すると以下のような特徴がある。

- ・X線の元素に対する感受性が原子番号（陽子数、電子数）に比例するのに対して、中性子では原子番号に対する規則性がなく、周期律表で隣り合う元素に対して大きくその感受性（散乱長）が異なる。

- ・上記の特徴に派生したものではあるが、一般的にX線では検出が難しいと言われる軽元素、特に水素に対して大きな感受性を有する。

- ・中性子の感受性は同じ元素（原子番号が同じ）でも質量数に依存、すなわち同位体によって異なる。

- ・中性子はスピンを持つために固有の磁気モーメントを持ち、物質中の磁気モーメントとの間に磁気双極子相互作用があるため大きな磁気感受性を持つ。

- ・ラマン散乱によって分子振動の情報が得られるように、中性子では構造のゆらぎや格子振動などの集団励起の動的な情報（励起エネルギーと運動量ベクトルの関係、すなわち分散関係）を得ることができる。

- ・回折が観測される結晶格子面間隔と同程度の波長の中性子のエネルギーは上記の励起エネルギーと同程度である。0.1 nmの波長を持つX線のエネルギーは12.4 keVであるが、中性子のエネルギーは81.787 meVである。

- ・中性子に対する吸収が大きな一部の元素（同位体によっても異なることに注意）を除き、物質に対する透過率が大きく、測定対象である物質の奥深くまで侵入することができる。この大きな透過性は、特に金属に対する中性子ラジオグラフィ（透過撮影法）や溶接部の応力ひずみの評価などに大きな威力を発揮する。

2 国内のふたつの大型中性子源

最近では医療用に加えて、中性子を構造解析に使うための小型中性子源の開発が進んでいるが、大強度の中性子を得るためには、原子炉（以後、定常中性子源）や大強度加速器（以後、パルス中性子源）といった大型実験施設が必要になる。国内には茨城県東海村にある日本原子力研究開発機構（原子力機構）原子力科学研究所の敷地に、中性子ビーム利用実験が可能な研究用原子炉JRR-3と、大強度陽子加速器実験施設であるJ-PARCの物質・生命科学実験施設（MLF）が整備されている（図1）。

2.1 研究用原子炉 JRR-3

JRR-3は1962年に初臨界を達成し、ウラン燃料の核分裂によって得られた中性子を使い、黎明期における様々な原子力研究に使われた。その後、1980年代後半の大改造により熱出力20 MWの研究用原子炉として生まれ変わり、2回目の臨界を迎えた1991年から、幅広い学術分野と産業分野で様々な研究開発に利用されてきた。福島第1原子力発電所の事故後に制定された研究用原子炉に対する新規制基準への適合性審査のため、2010年の11月に定期検査で計画停止してから運転を休止していたが、2018年11月の審査合格後、より安全性



図1 茨城県那珂郡東海村の日本原子力研究開発機構にあるふたつの大型中性子実験施設（JRR-3とJ-PARC 物質・生命科学実験施設）

【提供：日本原子力研究開発機構，許可を得て掲載】

を高めるための耐震工事を完了し、本年（2021年）2月に、ほぼ10年ぶりの運転再開を果たした。

2.2 物質生命科学実験施設 (MLF)

MLFでは、大強度陽子ビーム（最終出力値は1MWで現時点では700kW）と水銀の核破砕反応によるパルス中性子を利用した実験が2008年から行われている。MLFも東日本大震災で被災したが、ほぼ1年で復旧し、2011年度内に運転を再開した。MLFではシンクロトロン加速周期である25Hzで大強度パルス中性子が発生し、1パルスあたりの中性子強度（700kW運転時で 1.3×10^{13} 個/ステラジアン/パルス）は現時点で世界最高である。

3 定常中性子源とパルス中性子源の使い分け

パルス中性子源では、標的と検出器の距離と、陽子ビームが標的に入射した時刻から検出されるまでの時間を使って中性子の速さがわかるので、 $E = 8178.7/\lambda^2 = 2.0717 \times 10^{-2} k^2 = 5.226 \times 10^{-6} v^2$ の関係（それぞれの単位は、エネルギー E は meV、波長 λ は nm、波数 $k = 2\pi/\lambda$ は 1/nm、速さ v は m/sec）を使ってエネルギーや波長を決めることができる。これを飛行時間（TOF：Time Of Flight）法と呼ぶ。一方の定常中性子源では、中性子の発生時刻である核分裂が起きた時刻を知ることはできない。

したがって定常中性子源では、Maxwell分布に従った様々なエネルギーを持つ中性子（白色中性子）からモノクロメータなどを使って特定のエネルギー（波長）を持つ中性子を取り出して使うのに対し、パルス中性子源では、あるエネルギー幅に含まれる中性子を一度に測定に使い、飛行時間法を使って、中性子の検出時に中性子をエネルギーごとに分解して計測するのが一般的である。

定常中性子源でもTOF法を、パルス中性子源でも特定のエネルギーの中性子だけを使うことで両者は等価と

なるが、どちらを使っても可能な実験がある一方で、使える中性子強度に大きな差が現れる場合には、適切な使い分けが必要である。たとえば、結晶構造解析を例にとると、中性子回折実験から結晶構造を決定するのに必要なのは、実空間とフーリエ変換で結び付いている逆格子空間での中性子の回折強度の分布から、実空間での構造情報を導き出すことである。一般的に時間平均強度がパルス中性子源に比べて大きな定常中性子源では、温度、磁場、圧力などの外場に応答したピークの強度や形の変化を測定するのに有利である。その一方、パルス中性子源ではTOF法と2次元位置敏感検出器の組合せにより、逆格子空間上での広範囲な構造情報を一度に得ることができる。そのため、前者は航空写真の情報から地図（逆格子マップ）を作る際の望遠レンズ、後者は広角レンズに例えることができる。

非弾性散乱装置の場合は、時間的に変化しないと見なせる静的な構造情報（ここでは熱振動は無視する）の代わりに、散乱体の動的な情報（位置と時間）を含む散乱関数（入射中性子と散乱中性子の波数ベクトルの差と両者のエネルギー差で表される）の逆格子空間上の強度分布を測定することになる。ラマン散乱のストークス、アンチストークスラインと同様に、散乱過程で中性子が獲得または失ったエネルギーに加え、励起された（または消された）運動量とも関係している（分散関係）。ここでもパルス中性子源では、逆格子空間内の散乱関数を広範囲な領域にわたって一度に測定できるので広角レンズに、定常中性子源では高い強度を活かし、逆格子空間の特定の位置の散乱関数を詳細に調べるのに有利であることから望遠レンズにたとえる事ができる。

4 JRR-3とMLFに設置されている中性子実験装置

JRR-3とMLFには図2と3に示すような様々な装置が設置されている。それらの多くにはX線を使った

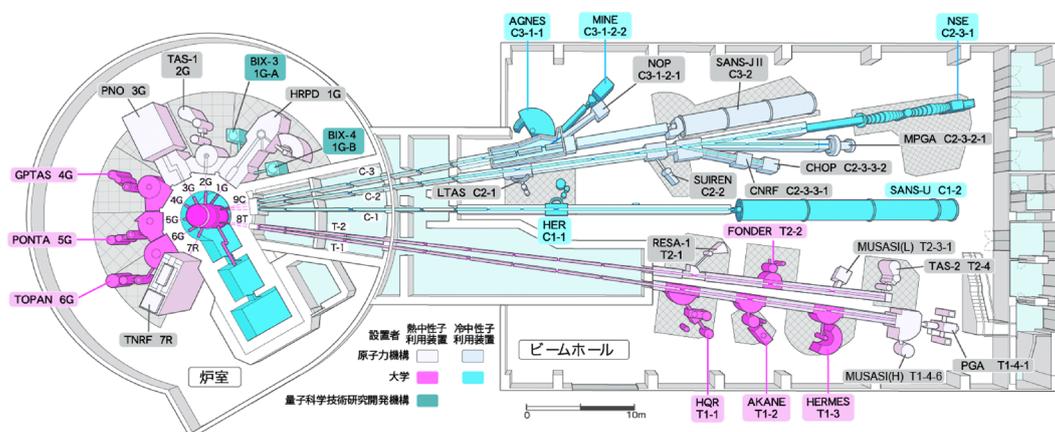


図2 研究用原子炉 JRR-3 の装置配置図（平面図）

[提供：日本原子力研究開発機構，許可を得て掲載]

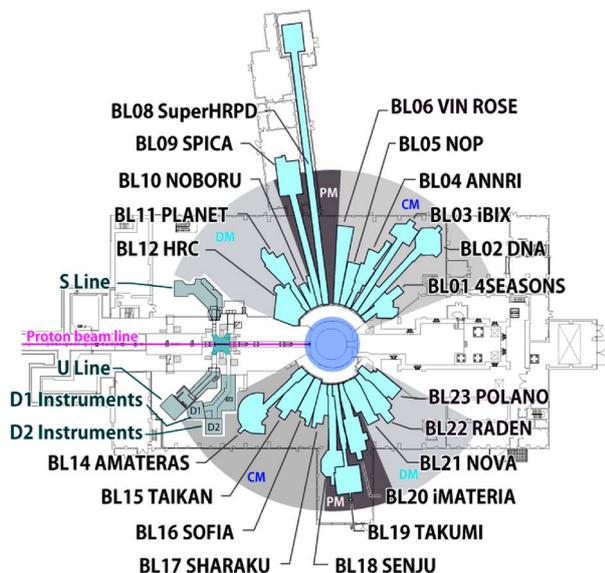


図3 J-PARCの物質・生命科学実験施設の装置配置図(2021年4月現在)
CM, PM, DMは中性子のエネルギー分布を変換するための中性子減速材の種類, S1, U, D1, D2はミュオン実験装置を表す。[提供: J-PARC物質・生命科学実験施設, 許可を得て掲載]

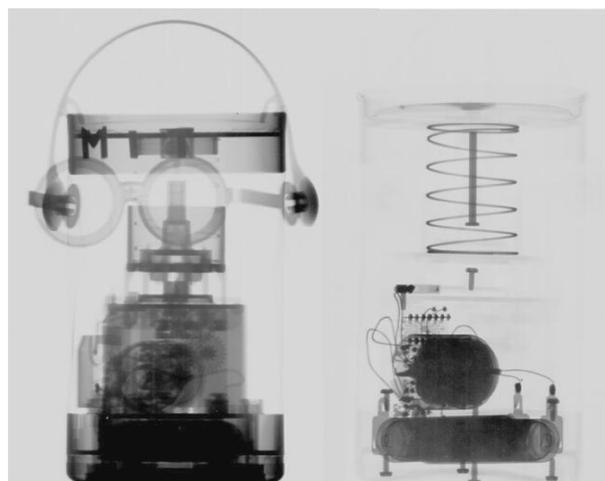


図4 おもちゃの内部透視像の中性子(左)とX線(右)による違い
中性子ではプラスチックのような主として軽元素で見えている部品が見えているが、X線では見えていない。
[提供: 日本原子力研究開発機構, 許可を得て掲載]

同等の装置が存在するが、中性子とX線の物質に対する感受性、同じ波長でも両者のエネルギーが大きく異なること等から、得られる情報に違いがある。一例として、両者の違いをラジオグラフィの例で示す(図4)。このように、全く同じ観測対象に対してかなり異なる印象の透過像が得られる。また、互いに見えない物が見えていることから、両者は相補的な情報を与えていると言える。

以下、両施設に設置されている装置を大まかに分類し

て紹介する。個々の手法や装置の詳細、そこで行われるサイエンスについては参考文献1,2に加え、それらの情報にアクセスするための入口として中性子・ミュオン利用ポータルサイト³⁾が開設されているので、それらを参照していただきたい。以下括弧内は装置の名前で、多機能な装置は複数の項目に現れる場合がある。

4.1 非弾性散乱装置群 (JRR-3: TAS-1, TAS-2, LTAS, GPTAS, PONTA, TOPAN, AGNES, HER, HQR, AKANE, MLF: 4SEASONS, DNA, HRC, AMATERAS, POLANO)

中性子は散乱の過程で、エネルギーだけでなく運動量も受け渡すので、物質の中で起こるミクロな構造の揺らぎや格子振動やスピン波といった集団励起の分散関係等の情報を含む散乱関数 $S(\vec{q}, \omega)$ を調べることができる。これらの装置では、 \vec{k}_i (入射中性子の波数ベクトル) か \vec{k}_f (散乱中性子の波数ベクトル) のどちらかのエネルギーを固定して、固定しなかった方のエネルギーをアナライザ等によって変化させ、その差から散乱過程でやり取りしたエネルギー ($\hbar\omega$) を決定する。アナライザを使わずに非弾性成分も取り込んでしまい、擬似的な弾性散乱装置として使うこともできる。格子振動の測定では放射光にその座を譲りつつあるが、磁気励起に関しては中性子の座は不動である。

4.2 Neutron Spin Echo (NSE) 装置群 (JRR-3: iNSE, MLF: VIN ROSE)

NSEは非弾性散乱実験装置の特殊なもので、散乱関数 $S(\vec{q}, \omega)$ の時間 Fourier 変換である中間相関関数 $I(\vec{q}, t)$ を通して、物質内部の散乱体の変形や移動の時間変化を調べることができる。エネルギー変化に非常に敏感な中性子スピンの Larmor 回転を利用することで、他の非弾性散乱測定装置に比べてはるかに高いエネルギー分解能 ($\mu\text{eV} \sim \text{neV}$ 程度) を得ることができるため、高分子や誘電体などの内部の構造の拡散や緩和現象などのスローダイナミクスの研究に大きな威力を発揮する。

4.3 全散乱装置 (MLF: NOVA)

液体・非晶質などの原子の位置が固定されていない物質の、ある時刻の平均的な実空間上の構成原子の位置関係の情報が見られる。また、結晶構造解析でも、局所的な構造の乱れの解析に利用されている。X線を使った全散乱測定では q が大きくなると形状因子の効果で散乱強度が減少するが、中性子が点とみなす原子核に対する形状因子は一定で大きな q 領域(原理的には無限大)まで散乱強度が減少しないという特徴がある。

4.4 単結晶構造解析装置群 (JRR-3: BIX-3, BIX-4, FONDER, MLF: iBIX, SENJU)

単結晶試料を用いる構造解析装置(回折計)である。BIX-3, BIX-4, iBIX の B は Biology を表していて、タンパク質単結晶の構造解析などの生命科学研究を主目的として設置されている。

4.5 粉末構造解析装置群 (JRR-3: HRPD, HERMES, MLF: SuperHRPD, SPICA, PLANET, iMATERIA, NOVA)

単結晶が得られにくい試料に対して、粉末試料を使う結晶構造解析装置で、SuperHRPD は $\Delta d/d=0.03\%$ という、中性子粉末構造解析装置の中では、特筆すべき性能を有する。PLANET では 10 万気圧、2000°C での高温高圧下での測定が可能である。

4.6 反射率測定装置群 (JRR-3: SUIREN, MINE-II, MLF: SOFIA, SHARAKU)

中性子を試料表面に非常に浅い角度で入射させると、可視光のような反射、屈折、透過、干渉といった光学的な性質(中性子光学現象)を示すことを利用し、鏡面を持つ薄膜の表面や多層構造(各層の厚さは 0.1 nm から 1 μm 程度)を非破壊で解析する装置である。軽水素と重水素に対する中性子の感受性の違いを利用した重水素ラベル法を用いた高分子薄膜や、偏極中性子を使って磁気感受性高めた磁性薄膜の研究などが行われている。

4.7 小角散乱装置群 (JRR-3: PNO, SANS-J, MLF: TAIKAN, iMATERIA, NOVA)

試料内部の回折が起こらない 1 nm から 100 μm 程度の大きさの析出物や不均一構造(構造揺らぎ)によって、入射した中性子が特定の方向にわずかに曲がることを利用し、それらの構造情報を得るものである。また、中性子の磁気感受性を利用した、第 2 種超伝導体の混合状態における磁束線やらせん磁性など、散乱角が小さな回折ピークとして現れる長周期磁気構造の研究にも行われている。X 線小角散乱にはない手法として、軽水素と重水素で中性子の感受性が異なることを利用し、多相成分からなる試料の中から、特定の成分の情報だけを取り出すことのできるコントラストバリエーション法がある。

4.8 中性子ラジオグラフィ装置群 (JRR-3: TNRF, CNRF, MLF: RADEN)

ラジオグラフィ(透過イメージング)法で中性子が X 線に勝る点は、特に金属に対する大きな透過力で、回転中の自動車エンジン内部のオイルの循環の様子を毎秒 2000 コマで撮影することも可能である。このような高速撮影は大強度の中性子によってのみ可能で、定常中性子源に設置されているラジオグラフィ装置向きである。

一方で、パルス中性子源のラジオグラフィ装置では、中性子のエネルギー別の透過像が撮れるので、それを利用した元素マッピング(被写体のどこにどのような元素があるか)や、Bragg 回折に由来する Bragg エッジを解析することにより、試料内部の結晶方位の分布を得ることができる。

4.9 即発 γ 線分析装置群 (JRR-3: PGA, MPGA, MLF: ANNRI)

中性子の吸収によって安定な原子核が励起されると、 10^{-14} 秒程度の短い時間に γ 線を放出して基底状態に戻る。この γ 線を即発 γ 線と呼ぶ。放出される γ 線のエネルギーは原子核に固有であるので、元素の微量分析に使うことができる。検出感度は ppm 程度であるが、分析するための前処理の必要がないことが大きな利点である。

4.10 放射化分析施設 (JRR-3: PN-2)

物質に照射された中性子が原子核に吸収される際、核反応によって非放射性核種が放射性核種に変換される場合がある。その核種からの放射線は固有のエネルギーを持つので、その分析により物質に含まれる元素を同定できる。炉心の近くでキャプセルに封入した試料に中性子を照射した後、外部に取り出して分析する。即発 γ 線分析法と同様前処理が不要であり、感度は ppt 程度に達する。

4.11 多目的実験装置群 (JRR-3: MUSASI-L, MUSASI-H, NOP, CHOP, MLF: NOBORU)

これらの装置群は、ビームシャッターや検出器などの中性子ビーム利用実験に必要な基本的なものを備えており、新たな中性子利用技術開発や、利用者が機器を持ち込んで組み上げた装置での特殊な実験が可能である。

5 中性子利用実験を行うには

上で紹介した JRR-3 と MLF の実験装置で実験するためには、年に 1 回または 2 回行われる課題公募に申請し採択される必要がある。両方の施設には、原子力機構、KEK、茨城県、大学等が設置した装置があり、一部は統一されているものの、異なる利用制度の下で課題公募が行われている。これらの違いや複雑さが、新規利用者の応募の妨げにならないように、統一窓口として中性子・ミュオン利用ポータルサイト³⁾を開設し情報の提供に努めている。

6 結びに変えて

放射光源の出現によって、中性子を使わざるを得なかった、かつての状況は大きく変わり、構造解析という視点での両者の差は小さくなってきている。しかし、定常中性子源とパルス中性子源におのおのの特徴があり、

互いに補完する意味合いがあるように、中性子と X 線の間にも同様の関係があり、それぞれの性質の違いを知った上で、適切に使い分けることによって大きな威力を発揮できる。中性子・ミュオン利用ポータルサイトでは、課題応募に関する相談や申請書作成のお手伝いの他、中性子に初めて接する方からの気軽な質問も受け付けているので、ぜひサイトを活用して中性子の魅力を感じていただきたい。

文 献

- 1) 学会誌「波紋」中性子入門講座，日本中性子科学会，<https://www.jsns.net/blank>（リストから J-STAGE での公開先に飛ぶことができる。令和 3 年 10 月 11 日，最終確認）。
- 2) 伊藤泰男，海老原充，松尾基之 監修・編集：“放射化分析

ハンドブック：確度の高い多元素同時微量分析への実践”，日本アイソトープ協会（2004），（丸善）。

- 3) 中性子・ミュオン利用ポータルサイト，日本原子力研究開発機構，<https://jrr3ring.jaea.go.jp/jjoin/>（令和 3 年 10 月 11 日，最終確認）。



武田全康 (Masayasu TAKEDA)

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原子力科学研究所物質科学研究センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4）。東北大学大学院理学研究科。理学博士。《現在の研究テーマ》中性子・放射光を利用した物性研究。《趣味》radiko でラジオを聴くこと。

E-mail : takeda.masayasu@jaea.go.jp

— 会 員 の 拡 充 に 御 協 力 を !! —

本会では、個人（正会員：会費年額 9,000 円＋入会金 1,000 円，学生会員：年額 4,500 円）及び団体会員（維持会員：年額 1 口 79,800 円，特別会員：年額 30,000 円，公益会員：年額 28,800 円）の拡充を行っております。分析化学を業務としている会社や分析化学関係の仕事に従事している人などがお知り合いにおられましたら、ぜひ本会への入会を御勧誘くださるようお願い致します。

入会の手続きなどの詳細につきましては、本会ホームページ（<http://www.jsac.jp>）の入会案内をご覧ください。下記会員係までお問い合わせください。

◇〒141-0031 東京都品川区西五反田 1-26-2 五反田サンハイツ 304 号（公社）日本分析化学会会員係
〔電話：03-3490-3351，FAX：03-3490-3572，E-mail：memb@jsac.or.jp〕