齊藤 泰司，大場 洋次郎，日野 正裕
(京都大学 原子炉実験所)

Yasushi Saito, Yojiro Oba and Masahiro Hino

Research Reactor Institute, Kyoto University

We review the neutron imaging (NI) and small-angle neutron scattering (SANS) instruments at KUR, Kumatori, Osaka, Japan. There are two NI and one SANS instruments. The both instruments are compact and used flexibly. Some challenging experiments taking advantage of low neutron fluence are described. The feature of KUR is also described briefly.

1. はじめに

本入門講座（定常炉編）で、JRR-3 設置の様々な分光器の説明がなされてきた。今回は初めて京都大学原子炉実験所の研究用原子炉（KUR）の実験装置となるので、まず KUR の紹介を簡単に行う。そして産業利用も含めて、今後最も潜在ユーザーが多いと考えられ、かつ最近の進展の大きい、イメージングと小角散乱装置について説明する。

KUR は、軽水を減速・冷却材とした最大熱出力 5MW、平均熱中性子束約 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ (5MW 時) のスイミングプール型原子炉である。1964 年に初臨界、2006 年 2 月まで高濃縮ウラン燃料（濃縮度 93%）を利用していた。2010 年 5 月から低濃縮ウラン燃料（濃縮度約 20%）に切り替えて運転を再開した。再稼働後は 1~5MW 出力で、火曜日昼頃から木曜日夕方までの約 53 時間の連続運転をしている。ただしホウ素中性子補足療法（BNCT）が行われる週は、運転時間が若干延長されることもある。Fig. 1 に KUR の平面図を示す。ビーム利用改造された JRR-3 と異なり、炉心も比較的大きく、水平実験孔は炉心に対して接線方向ではなく [1, 2]、炉心を直接見込む構造になっている。そのため高速中性子を除去し、質の良い中性子ビームを得るためにも中性子光学技術が発展した。

KUR の定格出力は 5MW であり、一般的には中小型炉に分類される古い原子炉ながら、日本で最初の中性子導管である E-3 導管と世界初の本格的なスーパーミラー導管である B-4 導管、また原子炉で日本初の冷中性子源 (CNS: Cold Neutron Source) を見込む CN-2, CN-3, VCN 導管の 5 本の導管が設置されている。KUR の冷中性子源は 25K の液体重水素を約 4 リットルためるものだが、老

朽化による安全性確保の問題と研究者が運転することの効率性等を考慮した結果、現在は停止している。

Fig. 1 Plane view of KUR.

中性子束もさることながら、連続運転が 2 日程度という短さは、近年の散乱実験への展開を困難にした。そのため中性子導管以外の炉室の実験装置は近年大きく様変わりした。例えば、B-1 照射孔は、24keV 準単色中性子発生装置から高強度陽電子発生装置へ、B-2 は 3 軸分光器から大面積中性子照射装置へ、B-3 は 4 軸中性子回折計から小型汎用中性子回折計へと変更が行われている。今回説明する中性子イメージング装置と小角散乱分光器も現在の中性子ビーム利用の状況を踏まえて、53 時間の間に様々な意義ある実験が実施できるテーマ選択をしている。

2. 中性子イメージング (NI)

中性子イメージング(あるいはラジオグラフィ)は、X線ラジオグラフィ(レントゲン撮影)と類似の種類の放射線透過法の一つであり、物質の透過画像を取得して、内部情報を可視化する技術である。中性子イメージングは、周辺技術の急速な進展に伴って、画像解析技術、高速度撮像技術、パルス撮像技術、エネルギー選別技術、フェーズコントラスト技術などが進み、従来では考えられなかった高機能化と高性能化が進んでいる。特に、J-PARCの建設に伴い、パルス線源の特徴を利用した新しいイメージング技術に注目が集まっている[3]。一方、研究炉のような定常中性子源を用いたイメージングについても、様々な応用研究が進行している[4]。

3. 中性子イメージングの基本原則

定常中性子源における中性子イメージングの基本原則は極めてシンプルで、物質中での中性子線の減衰を利用する。従来手法のイメージング技術については、すでに様々な文献で紹介されているので参照されたい[5]。撮像システムは、過去にはフィルム法が主流であったが、撮像機器の高度化に伴い、現在では、電子的撮像法が主流である。現在最もよく用いられている手法は、蛍光スクリーンで中性子像を可視光画像に変換し、高感度カメラで撮像する方法である。

4. KURにおける中性子イメージング

原子炉のような管理区域における実験では、遮蔽や安全管理の観点から、試料環境に大きな自由度を持たせることは困難である。既存の中性子ラジオグラフィ設備 E-2 ポートは $\phi 15\text{cm}$ と比較的大きな視野があるが、中性子束強度は低く($10^5\text{n/cm}^2\text{s}$ 程度)、動画計測には向かない。JRR-3のような大型炉の中性子イメージング設備(TNRF-2)では、中性子束強度が高く($10^8\text{n/cm}^2\text{s}$ 程度)、広い視野で動画計測が可能である。しかしながら、中性子束強度の高さは、そのまま遮蔽の困難さに直結する。TNRF-2のような中性子イメージング専用ポートにおいては、試料を囲むように頑丈な撮影室が据え付けられており、内部の容量は比較的小さいのが現状である。したがって、大規模な試験設備を導入するには限界があり、自ずと実施可能な実験は限られてくる。また、E-2ポートやTNRF-2などは炉室内に設置されており、安全規制が厳しく、例えば大電流を使う様な実験は実施が困難である。そこで中小型研究炉であるKURの特長を活かすため、中性子イメージング装置の整備を行った。

原子力安全研究にも重要で、定常炉を用いた中性子イメージングの応用の一つとして、沸騰現象などの熱流動計測があげられるが、実験においては、高温、高圧、高熱流束条件が求められることが多く、試験部も金属製となる場合がほとんどである。X線ラジオグラフィと相補的な特徴を有す

る中性子イメージングは、撮像法を適当に選択することにより、金属容器内熱流動、液体金属流動の非接触、高空間解像度、高時間分解能、三次元計測の可能性を秘めており、得られた画像の輝度は、計測対象物の内部情報を包含しているため、ボイド率等の流動特性値の計測にも適用可能である。しかし先に述べたように、既存の中性子イメージング設備においては高電流を用いた実験を行うことが難しく、系統的な実験的研究を行うことは事実上不可能であった。これらの安全上の制約を解決するために、炉室外のB-4導管実験室に可動式の遮蔽と撮影機器を設置し、原子炉制御系電源と異なる電源ラインを用いた加熱用大電源を設置した(Fig. 2)。

Fig. 2 Schematic view of B-4 experimental room.

B-4導管実験室では比較的高い熱中性子束($5 \times 10^7\text{n/cm}^2\text{s}$, 5MW運転時)が得られる。さらに、実験室にはFig. 2に示すように加熱用直流電源および冷却設備を備えた沸騰二相流専用の中性子イメージング設備を整備している[6]。また $^6\text{LiF-ZnS}$ 蛍光コンバータを備えた暗箱と高感度カメラ(冷却式CCDあるいは高速度カメラ)を組み合わせる様々な計測に対応している。

5. イメージング装置の実験例紹介

現在まで、KURの中性子イメージング分野において多くの共同利用研究が実施されており、そのいくつかについて紹介する。

金属管内の水の沸騰現象は、定常状態であっても、液相と気相が時間的に変動した流れであり、そのダイナミクスの解明には、詳細な動画観察が不可欠である。Fig. 3は金属管内部で振動する沸騰現象を中性子イメージングにより定量化した結果であり、中性子透過像の輝度変動から沸騰流中の気相割合(ボイド率)の時間変化を求めた。図中のプロット点がボイド率の時間変化、下部の変動が流量計の差圧の時間変化を表している[7]。

超臨界水熱合成反応器はナノサイズの粉体を製造する装置の一つであるが、粉体の粒子径や特性を制御するためには装置内の流動・混合状態を詳細に調べる必要がある。水の場合、臨界圧力は約22MPaであり、一般の炉室内では実験を行うことが難しい。Fig. 4は25MPaの400℃程度の超臨界水と常温水の混合の様子を可視化した一例である。

試験部は T 型のコネクタで、上部から超臨界水、左から常温水を流している。上部から下降する超臨界水は密度が小さく、中性子をよく透過するが、水平方向から流入する常温水は黒く見える。このように密度の違いから、常温水と超臨界水の混合の様子がよくわかる[8]。

Fig. 3 Temporal variation of void fraction α of boiling water in a metallic tube by using neutron imaging and differential pressure Δp of orifice flowmeter.

Fig. 4 Neutron image of mixing behavior of supercritical water in a metallic T-junction tube.

高強度のコンクリートは火災において、爆発的に破壊されることがある。この現象はコンクリートの爆裂現象と呼ばれるが、水分を含むコンクリートが火災などにより急激に加熱されたとき、内部に保持されていた水分の相変化と移動が急激に発生し、爆裂が発生すると考えられる。中性子イメージングでは、Fig. 5 の左に示すように試料を試料の下部からガスバーナーで直接加熱した。また、右図は加熱後、爆裂が起こり、コンクリートの試験片の下部が欠落した様子を示している。

また、加熱中の試料を中性子により連続的に可視化したのが Fig. 6 である。左から加熱開始直後、340, 350, 360 秒後の中性子イメージの変化を表す。

画像の白く見える部分がコンクリート内の骨材を表し、黒く見える部分がコンクリート中の水分の多い部分を表している。加熱開始後 340 秒から 350 秒後に爆裂が起こり、試料下部のコンクリートが欠落していることがわかる。このような中性子イメージングにより、加熱開始から爆裂に至るまでの試料内部の水分移動の様子を詳細に計測することが可能である[9]。

以上の他にも、冷凍機器内の冷媒の挙動、空調機の着霜現象の可視化計測[10]、あるいは、宇宙用部品の検査手法の高度化[11]などが行われている。今回紹介した研究例は、大電力を利用した二相流研究、高圧・高温が必要な超臨界水の可視化、さらに、火炎を用いたコンクリート爆裂実験などであり、現在も継続的に研究が行われており、それぞれの分野でユニークな研究が実施されている。

Fig. 5 Experimental setup for high strength concrete (left) and test piece after a destructive spalling (right).

Fig. 6 Successive neutron images of high strength concrete resulting in a destructive spalling.

6. 中性子小角散乱法 (SANS)

SANS は、ナノ構造の解析に使われる手法である。ポリマー等のソフトマターへの応用については、本誌 2014 年 No. 2 の入門講座に紹介されている[12]。SANS の測定対象はソフトマターだけではなく、金属材料や超伝導研究等にも SANS が利用されており、最近では生体物質への利用が進んでいる[13, 14]。SANS はナノ構造を定量的に解析することができ、局所的な領域でナノ構造の高分解能観察ができる顕微鏡と相補的な手法と言える。また、類似の実験手法に X 線小角散乱 (SAXS) や光散乱等があり、これらを SANS と複合して利用すると、ナノ構造に関してさらに多くの情報を得ることができる。

7. SANS の基本原理

定常中性子源における SANS の基本原理は以前の紹介記事に詳細に解説されている[12]. 小角散乱では、フォームファクターの解析、ミクロ相分離の解析、サイズとサイズ分布の解析、ナノ・マイクロ構造の界面に関する解析、構造因子の解析等の多彩な手法が、目的に合わせて使い分けられている。

8. KUR における SANS 測定

冷中性子源を見込む CN-2 導管 (Ni 導管) には熊取中性子小角散乱装置 (KUMASANS) が常設されている (Fig. 7) [15]. KUMASANS はコンパクトでモノクロメータが 2 回反射型の NiC/Ti 多層膜ソーラーミラーであることが大きな特長であり、中性子速度選別器 (velocity selector) のような大型でメンテナンスコストのかかる高速駆動部を持たない。使用する波長やその波長分解能は、異なる面間隔を持つ多層膜ソーラーミラーに入れ替えることで変更する[16]. 変更にかかる時間は 1 時間以内である。最近 KUMASANS では新規モノクロメータや試料への磁場印加用永久磁石の導入、データ収集システムの高度化等を行った。この結果、KUMASANS で実施可能な実験は飛躍的に増大した。以下に KUMASANS における典型的な実験条件を述べる。

SANS では一般的に板状の試料を測定することが多い。溶液や粉末は石英等のセルに入れて測定する。薄膜状の試料は複数枚重ねて測定することもある。測定に必要な試料ボリュームは、基本的

Fig. 7 Photograph of KUMASANS.

にはビームサイズと中性子の透過率によって決まる。試料の厚さは、多重小角散乱の影響を抑えるため、経験的に透過率が 80-90% 程度になる厚さが最適値とされている。SANS では 0.5-0.8 nm の波長の中性子を使うことが一般的であり、多くの試料で 1-2 mm 程度が最適な厚さになる。現在 KUMASANS では試料位置でのビームサイズは約 $6 \times 6 \text{ mm}^2$ であり、取り扱いの便を考慮して、ビーム照射面の試料寸法は $10 \times 10 \text{ mm}^2$ 以上が望ましい。

測定時間は、試料の散乱の強さと測定の目的、測定範囲に依存する。KUMASANS での標準的な測定時間は、1 MW 運転時は 5-12 時間程度である。5 MW 運転時は約 4.7 倍の中性子強度が得られるため、より短時間で測定ができる。

9. KUMASANS 実験例の紹介

KUMASANS で推進している研究分野の一つに鉄鋼材料がある。近年、日本鉄鋼協会の研究プロジェクト等を通じて、鉄鋼研究における SANS の利用が広がってきている[13, 17-20]. 鉄鋼研究では、SANS は主に析出物や介在物等の解析に用いられている。鉄鋼中には数 nm からマイクロメートルにわたる様々なサイズの炭化物や酸化物、窒化物等が析出物・介在物として分散しており、力学特性に大きく影響している。SANS は、このような鉄鋼中のミクロ組織の形状やサイズ、体積分率等を定量的に評価できる手法として、あるいは中性子の透過能を活かしたその場観察手法として利用されている。

そこで、KUMASANS でも鉄鋼材料の SANS 測定ができるように、平均波長 0.46 nm の新規モノクロメータと、磁気散乱を分離するための磁場印加用永久磁石を導入した。平均波長 0.46 nm としたのは、鉄のブラッグカットオフ波長よりも長く、かつできるだけ中性子強度が得られる波長を利用するためである。

Fig. 8 SANS profiles of Fe-Cu alloy. Filled circle and open diamond indicate the profiles parallel and perpendicular to the magnetic field applied to the sample.

鉄鋼のモデル材料として、Fe-Cu 合金を測定した例を Fig. 8 に示す。試料は溶体化処理後、時効熱処理を施して Cu ナノ粒子を析出させた。Fig. 8 には散乱が明瞭に見られ、Cu ナノ粒子の散乱を観測することに成功した。磁場方向と垂直方向の散乱強度に差があるが、これは磁気散乱によるものである。Cu は非磁性であるため、強磁性の Fe との間に磁気散乱コントラストを生じ、磁場と垂直な方向には核散乱に加えて磁気散乱も観測される

ことから、散乱強度が高くなる[21]。このような確認実験を踏まえ、現在は応用的な鉄鋼材料の測定も進んでいる。

KUMASANS は鉄鋼の他にも多彩な研究に活用されている。一例として、水素吸蔵合金の SANS 測定が行われている[22]。水素の観察は中性子の得意分野であるが、この測定では、水素吸蔵セルを用いて水素吸蔵状態のその場 SANS 測定を行い、水素吸放出に伴う合金表面の構造変化を捉えることができた。

また、溶液から有用資源イオンや有害廃棄物イオンを分離するイオン浮選に用いられる界面活性剤の研究も行われている。重金属イオンの吸着によって形成されたミセルの構造の詳細が、距離分布関数 $P(R)$ を用いて議論されている[23, 24]。

SANS 測定による小麦タンパクの研究も始まっている[25]。小麦グルテンの物性は構成要素であるグリアジンとグルテニンの凝集構造と密接に関係していることから、この凝集構造と、生成条件による違い等が調べられている。

10. 今後の改良

これまでの実験結果から、鉄鋼用に導入したモノクロメータでは当初の期待以上の入射中性子強度が得られていることが分かった。これは成膜技術やソーラーミラーの組み立て精度の向上によるものと考えている。CNS の稼働が見込めなくなった現在、CN-2 導管で最高の強度が得られる短波長 (0.3 nm) [26] についても新しいモノクロメータの導入を進めた。標準試料としてグラッシーカーボンを用いた測定から、新規短波長モノクロメータは、同様のスリット条件とほぼ同じ入射波長で、旧モノクロメータの 2.5 倍の強度が得られている。今後、試料サイズを大きくし、スリットサイズ等の光学系を最適化することで、当初の狙い通り 1 桁程度の実質強度増大を見込んでいる。この短波長モノクロメータは鉄鋼研究での利用は限定されるが、多重回折が問題とならないソフトマター等の多くの材料に有効である。

さらなる強度増大を目指して KUMASANS ではコンバーティングコリメータ等の中性子集光素子の導入や、偏極ミラーを用いた偏極 SANS への展開等も計画中である。

11. 最後に

研究用原子炉 (KUR) と、炉室 (E-2) と B-4 ガイド室の 2 台のイメージング装置と CN-2 の小角散乱装置 (KUMASANS) の現状と測定例を紹介した。KUR は関西空港から JR で 3 駅の熊取駅からバスで 10 分 (徒歩約 25 分) と空の便は大変便利な場所にある。現在は KUR も JRR-3 同様、新規規準への対応のため停止しており、出来るだけ早期の再稼働を目指している。再稼働後は、現在 B-3 実験孔で整備を進めている小型汎用回折計や CN-3 スーパーミラー導管の中性子素子評価用汎用ポート等の紹介をしたい。KUR は既に 50

年を越えた古い中小型炉ではあるが、廃炉するまで、大型中性子源では難しい萌芽的な研究を推し進めていきたいと考えている。新しい実験アイデア等のある方、J-PARC や JRR-3 の前には是非ご相談頂ければ幸いである。

参考文献

- [1] 飯泉仁, 波紋 25, 151 (2015).
- [2] 川端祐司, 波紋 12, 89 (2002).
- [3] P. von der Hardt and H. Rottger (eds.), Neutron Radiography Handbook (D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, The Netherlands, 1981).
- [4] 日本アイソトープ協会理工学部会中性子イメージング専門委員会, 中性子イメージング技術の基礎と応用 (2009).
- [5] 日本アイソトープ協会, 中性子による計測と利用(1999).
- [6] Y. Saito, et al., Nucl. Instrum Methods Phys. Res. A 651, 36 (2011).
- [7] H. Umekawa, et al., Physics Procedia 43, 269 (2013).
- [8] S. Takami, et al., J. Supercrit. Fluids 63, 46 (2012).
- [9] M. Kanematsu, et al., Nucl. Instrum Methods Phys. Res. A 605, 154 (2009).
- [10] R. Matsumoto, et al., Proc. International Heat Transfer Conference IHTC-15, IHTC15-9144 (2014).
- [11] H. Kagawa, 47th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference, San Diego, California, AIAA-2011-5841
- [12] 小泉智, 柴山充弘, 能田洋平, 山口大輔, 古坂道弘, 波紋 24, 141 (2014).
- [13] 大沼正人, 非破壊検査 60, 86 (2011).
- [14] M. J. Hollamby, Phys. Chem. Chem. Phys. 15, 10566 (2013).
- [15] M. Sugiyama and Y. Maeda, Jpn. J. Appl. Phys. 33, 6396 (1994).
- [16] H. Sunohara, M. Hino, et al., Physica B 350 e869 (2004).
- [17] 大沼正人, ふえらむ 20, 62 (2015).
- [18] 安原久雄, 佐藤馨, 田路勇樹, 大沼正人, 鈴木淳市, 友田陽, 鉄と鋼 96, 545 (2010).
- [19] Y. Oba, S. Koppoju, M. Ohnuma, T. Murakami, H. Hatano, K. Sasakawa, A. Kitahara, and J. Suzuki, ISIJ Int. 51, 1852 (2011).
- [20] Y. Su, S. Morooka, M. Ohnuma, J. Suzuki, Y. Tomota, Metall. Mater. Trans. A 46, 1731 (2015).
- [21] K. Osamura, H. Okuda, M. Takashima, K. Asano, and M. Furusaka, Mater. Trans. JIM 34, 305 (1993).
- [22] K. Mori, K. Iwase, Y. Oba, T. Fukunaga, and M. Sugiyama, Mater. Trans. 55, 1643 (2014).
- [23] 原一広, 宮崎智博, 大場洋次郎, 佐藤信浩, 杉山正明, 日高芳樹, 岡部弘高, 京都大学原子炉実験所「第 49 回学術講演会報文集」, 29 (2015).
- [24] K. Hara, T. Miyazaki, Y. Hidaka, H. Okabe, N. Sato, Y. Oba, and M. Sugiyama, KURRI Prog. Rep. 2013, 151 (2014).

- [25] R. Urade, A. Matsumiya, Y. Higashino, N. Sato, M. Sugiyama, and Y. Oba, KURRI Prog. Rep. 2013, 152 (2014).
- [26] M. Sugiyama, T. Kawai, T. Ebisawa, S. Tasaki, and Y. Maeda, Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ. 27, 12 (1994).