中性子ビーム実験の最近の動向

(日本原子力研究所) 濱 口 由 和

物性物理のアカデミックな研究用として発達した中性子散乱測定法は、最近多くの他の研究分野において利用されようとしている。本稿では、主として中性子小角散乱の原子炉材料研究への応用を主眼として、この流れを解説してみる。ビーム実験屋の立場から見たものであるから、我田引水のところもあるが材料の研究に関心を持っておられる人に何かの参考になれば幸いである。

I. はじめに

原子力平和利用の一翼をになって順調な発展を遂げて来た中性子ビーム実験に、それほど大きくはないが一つの転機が訪れているように感じられる。中性子散乱の研究は1948年以後、汎用研究炉を利用して順調な発展を続けてきたが、特に BNL の HFBR や グルノーブルの HFR のような $10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ の中性子束を発生し、その上中性子ビーム実験に最適な中性子スペクトルや低バックグラウンドを持つビーム実験専用炉を利用した実験が開始されることにより、物性物理研究の手段としての最盛期を迎えるに至った。中性子ビーム実験は研究炉の熱中性子束の増大に比例して発展している。研究炉の熱中性子束は約10年で1桁ずつ増加してきた。これを将来に外挿すると、HFR が稼働を開始したのが1974年であるから、1985年には $10^{16} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ の研究炉が必要となってくるが、定常炉ではこれは困難である。一方において、1950年代後半から1960年代前半にかけて世界各国で建設された $10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 級のいわゆる中型汎用研究炉は、その後しばしば改造や改良が行われたにもかかわらずそろそろ寿命に達しつつある。このような時期を迎えてビーム実験の研究者や利用者の間で将来計画を検討する機運が生まれたのは当然であった。実際にいくつかの会合が開かれ、その報告が出されている⁽¹⁾⁻⁽³⁾。わが国においても KEK パルス中性子源計画⁽⁴⁾、KUR 2号炉計画、原研 JRR-3 改造計画などが進行中であるので、この機会にビーム実験の世界的な現状を紹介し、どのような転機が訪れているかを将来への展望とともに述べてみたい。

II. ビーム実験の現状

まず日本の現状を紹介する。わが国のビーム実験に利用されている研究炉は JRR-2, JRR-3, KUR-1 の3

基である。熱中性子出力、稼働時間等からみて JRR-2 が中心的な研究炉であるが、JRR-3, KUR-1 でもユニークな研究が行われている。

JRR-2, -3 で行われた最近の研究は年次報告として出されているが⁽⁵⁾⁽⁶⁾、稼働率の増大はあったものの、出力の増強はなされなかったにもかかわらず、ビーム実験の内容は、本格的な研究を開始した約10年前に比べて質・量ともに飛躍的に進歩している。その間多くの装置の改良や新設、実験法の進歩があったためである。その結果、測定の実効効率率は約100倍増加している。現在では通常の粉末中性子回折であれば0.1ccの試料で充分測定が行えるようになり、単結晶であれば3mg という紙のような試料でも充分磁気構造の解析が行えるようになっている。非弾性散乱の場合には1ccの単結晶があればフォノン・マグノンの測定が可能である。

第1図に JRR-2 の水平実験孔の利用状況を図示するが、実験面積の関係ですべての実験孔を利用することは不可能であることを考慮すると、利用できる実験孔はほとんどすべてビーム実験のために利用されているといつてよい。この状況はビーム実験専用炉のみならず、欧米の中型研究炉のほとんどすべてについて同様である。ただし、わが国の実験装置の種類は大部分が中性子回折装置と3軸型中性子分光器と呼ばれるオーソドックスな測定装置である。この傾向は米国、カナダ等でもほぼ共通であり、熱中性子を有効に利用して格子振動などの研究に重点を置くという、10年前の傾向がそのまま続いている。

それに対しヨーロッパの研究炉の傾向はやや異なっている。ヨーロッパの研究は英国を除いては米国より

Recent Tendency to Neutron Beam Experiments,
Yoshikazu HAMAGUCHI.

(1979年7月31日受理)

PTNS: TOF 分光器(原研), NDTC: 中性子トポグラフ用装置(原研), CTNS: 3 軸型分光器(原研), ND-1: 複結晶 3 軸型分光器(東大物性研), PANSI: 3 軸型偏極中性子解析器(東大物性研), DMNS: 複結晶 3 軸型分光器(原研), TUNS: 3 軸型分光器(東北大理)

第 1 図 JRR-2 の 実 験 装 置

やや遅れてスタートした。したがって、スタート時点から米国とはやや異なった研究方針を考えていたようである。その反映として積極的に開発を進めてきたのが冷中性子源であり、またこれに付属する芸術的な(state-of-the-Arts)実験装置である。冷中性子源の原理その他についてはすでに井上、渡辺による解説が本誌でなされているので省略するが、Risø の DR-3 にさらに 1 台、また最近稼働を開始しようとしているフランスの Léon Brillouin 研究所の ORPHEE にも 2 基の冷中性子源が設置されて活発に利用されようとしている。第 2 図に示すように、一般に冷中性子源から取り出された冷中性子は、中性子導管と呼ばれる装置で短波長中性子をカットしながら炉外へあまりロスなく

引き出される。炉室外は中性子や γ 線のバックグラウンドが通常の実験室と大差ないくらいに低下している。冷中性子はここで種々の測定装置に分配されて利用される。

これらの装置のうち最近特に注目を浴びているのが小角散乱測定装置である。小角散乱の利用法、実例などについては次章で詳しく述べるが、一口でいえば、試料によって入射方向から 5° 以内の小角度に散乱される中性子の強度を角度の関数として測定する装置である。小角散乱の効用は古くからよく知られており、中性子の場合にもすでに 1951 年に Weiss による報告がある⁽⁹⁾。しかしながら、その後あまり活発な研究が行われていなかったのは、通常の中型炉では中性子強度が

第 2 図 Jülich 研究所 FRJ-2 に設置した冷中性子源と付属装置

現在最強の X 線源 (100 kW, 回転対陰極型) に比べて 10^{-10} 程度しかないというためであった。

中性子小角散乱の利点は後に述べるように X 線に比してずっと長波長のビームが利用できる点にもあるが、冷中性子源を利用して長波長中性子の強度を数～数 10 倍増強することに成功して以来、この利点が再び注目されるようになってきた。現在最強といわれている HFR の冷中性子源を利用すると X 線源との比は 10^{-7} 程度となる。中性子の場合 X 線に比し、ビーム面積を増大することにより $10^2 \sim 10^3$ 倍、角度分解能に見合うように入射中性子分解能を落すことにより 10^2 倍、透過度が良いことを利用し、試料の厚みを増加することで $10 \sim 10^2$ 倍にすることができる。これらを合すると $10^5 \sim 10^7$ 倍の利得があるので、中性子は充分 X 線に匹敵するものになっている。これに加えて検出器の著しい進歩がある。面検出器 (area detector) と呼ばれる 60×60 cm 程度の大きさの平板カウンタで入射する中性子の位置を 0.5×0.5 cm の精度で検出する ^3He や BF_3 の検出器が開発されたことにより⁽⁹⁾、検出器効率も 10^4 倍になったことが中性子小角散乱の利用法を著しく発展させた。

西ドイツ Jülich 研究所やグルノーブルの ILL における中性子小角散乱を利用したエレガントな研究が発表されると、生物物理や高分子の研究者がこれに強い関心を示し、高分子の高次構造や生体組織の研究に利用するようになってきた。そのため共同利用研究所である ILL の小角散乱装置には多くの利用希望が出され、特に今まであまり中性子散乱には関心のなかった研究グループからの希望が目立つようになってきた。

このようなヨーロッパでの中性子散乱研究の動向が中性子ビーム実験の専門研究者の間に、研究分野の偏りや利用方法の閉鎖性などについての反省をうながし

た。なにしろ中性子源は非常に高価なものである。特に高濃縮 U の使用に問題が生じたために新しい高中性子束研究炉を建設することが困難になってきた。この現状を打開するためには、一方においてはパルス中性子源のような今までの核分裂とは異なった中性子発生方式を利用して 10^{16} n/cm²・s の高中性子束を得る方法を開発するとともに、他方、今までの物物理的研究のみならず生物物理、材料科学、エネルギー開発など、現在緊急に必要な研究の分野で中性子散乱の技術が非常に有効であることを示すことが必要であることが力説されるに至った⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。同様な状況が米国においても生じている。米国は冷中性子源に関してはヨーロッパ諸国にまったく遅れをとっている。BNL の HFBR に設置を計画中の冷中性子源は 10 年近くの基礎研究を経てもいまだ実用化されていないようである。しかしながら、中性子小角散乱を利用したいという強い希望が各方面の研究者より出され、ORNL に米国では初めての利用者本位 (User-Oriented) の装置が、冷中性子源なしで建設中である。MURR (ミズリー大学研究炉) からも同様な計画が提出されている。このように現在の世界のビーム実験の動向は、固体物理関係を中心として開発利用されてきた中性子散乱の技術が、他の多くの研究分野に拡散を開始し出したといつてよいであろう。わが国もほぼ同様な状況にあり、KEK (高エネルギー研) の中性子実験装置には多くの研究分野からの研究者の参加が予定されている。原研の JRR-3 改造計画に際しても、ビーム実験装置としては多くの研究分野からの要望を満足できるようなものを設置することを考慮しているが、当面は冷中性子源を利用した小角散乱装置を第 1 目標とすべく、関連した準備研究を開始している。小角散乱だけでなく中性子回折も、種々のエネルギー関連材料開発の基礎的研究手段とし

て必要不可欠なものであることはいうまでもないが、本稿では述べる余裕がないのでレビューを参照されたい⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。

Ⅲ. 中性子小角散乱

X線や中性子の回折により、われわれが固体内における原子や磁気スピンの配列に関する知識を得ることができるのは、個々の原子等による散乱波の干渉効果のためである。干渉が完全に起るためには、“きちんと周期的に配列した多数の原子面”が必要である。この条件が満たされない場合には干渉効果の完全性は低下する。熱振動は周期性を乱す典型的な例の1つであるが、この場合には原子の時間的平均位置は周期性を保つので干渉条件は変わらず、むしろ熱振動の構成成分である波動が別の意味の干渉条件を満足するので、干渉性非弾性散乱として測定され、これが格子振動の分散関係に関する知識を与える⁽¹¹⁾。他の典型的な例は照射によって生じた欠陥や析出物が周囲の結晶格子に与える歪み場である。この歪み場が周期性を乱すが、それによる干渉性の不完全性は干渉性散乱ピークの周囲に特殊な形の散乱となって現れる。これは Huang 散乱と呼ばれ欠陥の形状の解析などに利用される⁽¹²⁾。上に示した2つの例は原子位置がずれることにより周期性が乱される場合であるが、他の例として原子位置のみならず原子の種類に関する周期性の乱れがあり、この効果は散漫散乱と呼ばれる形で現れる。

次に、格子欠陥クラスターや析出物がある場合これによる散乱を考える。析出物は一般に母格子と異なった結晶構造を持っているので、形が充分大きい場合(約1,000 Å以上)には、母格子と別の干渉条件を満足するピークを生ずる。形が次第に小さくなると、それに伴って前に述べた“多数の原子面”という条件が満足されなくなり、析出物による干渉ピーク(ブラッグ・ピーク)の形がぼけてくる。ピークのぼけ方は析出物の大きさ、形状により、形が小さいほど大きく広がるが、すべてのブラッグ・ピークについて同等である。多結晶の場合は同等なブラッグ・ピークが各方面に平均して分散され、デバイ・シェラー環となるので1方向での反射強度は弱まる。しかし逆格子原点(ビーム入射方向)も1つのブラッグ・ピークであり、それは多結晶であっても1点に集中しているので、単結晶の場合と同等になり、原点付近でピークの広がり方が最もよく観測される。

しかも、いかなる結晶型の場合でも、また結晶を形成しない液滴のような場合でも、原点の反射ピークは

存在する。したがって、原点付近のピークの広がりには母格子と散乱能が異なる異物による散乱であり、その形は異物の大きさと形状およびその分布によって決定され、強度は異物の数と異物と母相との散乱能の差の積で与えられる。これが小角散乱と呼ばれるものである。日常われわれがよく知っている月のまわりのハローは、月による反射光が空気中の水滴によって引き起す小角散乱である。空格子点が集合することで出来るボイドによる小角散乱や、析出初期過程の溶質原子の集合による小角散乱は、二相分離型合金の短距離秩序によって生ずる散漫散乱としても解析できるが、一般には前述の異物による小角散乱として解析することが多い。

10~1,000 Åの大きさのボイドや析出物は材料の強度に非常に大きな影響を与える。例えば析出強化型合金は、結晶粒内に適当な大きさの析出物を分散させることにより強化させた合金であり、固溶体強化型合金は異種元素を結晶粒内に無理に固溶させて強化をはかっている合金である。これらの合金は一般に完全な熱平衡状態ではない形で利用される。したがって、最近の原子炉材料や核融合材料のように、高温、応力下、特殊外界条件下(雰囲気、高照射、強磁場など)で 사용되는場合には、析出物や固溶原子の様相が次第に変化することが予想され、材料選択の条件として高温クリープ等のデータが重要視されている。またボイドはスエリング等形状変化の原因となるので、その生成・成長過程が重要な研究題目となっている。

中性子小角散乱はこれらボイドや析出物の様相を知るのに大変有効な測定手段である。すなわち、冷中性子を用いるために

- (1) 非破壊で実物大に近い試料の測定が可能である。
- (2) 温度、応力、雰囲気など外的条件を制御しながらの測定が容易である。
- (3) 相当強い放射能を帯びた試料の測定が可能である。
- (4) 電子顕微鏡観察に比してはるかに大きな体積についての統計平均量が得られる。
- (5) 長波長ビームを用いるので多重散乱の影響がない。

などの特色があり、電子顕微鏡観察と併用することにより材料開発の有力な研究手段となる。

以下に2, 3の研究例を紹介する。ここでの紹介は原子力と密接な関係のある耐熱合金の研究と中性子照射効果の研究にとどめ、Al合金、高分子、生体物質、超

伝導体の研究については、他のいくつかのレビュー^{(13)~(15)}を参照されたい。

実用材料の寿命を推定するための非破壊検査としての利用の可能性を示した例が、イタリア Pisa の CA-MEN にある GALILEO 研究炉(5 MW 液体プロパン冷中性子源利用)で行われたタービン・ブレードに関するものである⁽¹⁶⁾。タービン・ブレードは Ni 基耐熱合金 Inconel X-750, -700 などで作られているが、この合金は母格子中に γ' 相と呼ばれる析出物を析出させて強化をはかっている合金である。この合金は析出物が 200~300 Å 程度の大きさで 10^{18} 個/cm² 程度分布しているとき最強の高温強度を示す。そのために時効処理を行なって使用するのであるが、タービンとして高温、応力下で使用していると析出物が次第に大きくなるとともに、数が減少することにより強度が低下して最後には破壊に至る。

この様相は第3図の(A)に示すように、加速クリープ試験を行なった試料の電顕観察から推定されていたが、中性子小角散乱により非破壊的に実用ブレードについての試験が行われた。第3図の(B)がその様子を示したものであるが、ベース部分は特に大きな変化を示さないが、中央部および先端部では16,000 h 以上使用すると析出粒子径の増大が認められ、約900 Å に達すると破壊してしまった(約60,000 h)。これは蒸気タービン用ブレードの例であるが、航空機エンジン用タービン・ブレードでも900 h、特に高温の場合には400 h 使用後に、ブレード中央部の析出粒子径が約2倍に増大することが認められている。このように一度破壊に至るまでのデータを取っておくと、以後の非破壊検査によりブレードの寿命を推定することが可能であり、

第3図 蒸気タービン・ブレードの使用による析出物直径の経時変化

中性子小角散乱ならではの検査方法である。

原子力压力容器用鋼材の照射効果については次のような例がある⁽¹⁷⁾。压力容器の通常部と溶接部(この部分の材質は Mn, Ni が少なく C が多い)から試料を切り出し、高速中性子で 290°C, 2×10^{19} n/cm² の照射を行なった後小角散乱を測定した。通常部では未照射材との間に差異が認められなかったが、溶接部では第4図に示すように明らかな変化が認められた。この変化は 450°C 焼なましでも完全には回復せず、20 Å 程度の小さなボイドが発生していると推定される。この程度の大きさのボイドは電顕では測定が不可能であり、中性子小角散乱の有効性を実証したものである。

A: 未照射, B: 照射後

第4図 压力容器溶接部材料の中性子小角散乱

また強い放射能を帯びた材料の測定例としては、EBR-II の制御棒から切り出した SUS 304 の例がある⁽¹⁸⁾。この試料は 400°C で 1.6×10^{23} n/cm² の高速中性子照射を受けた材料で、表面で 2R の放射能があるものである。測定結果は 290 Å 程度のボイドが平均 310 Å 離れて多数存在することを示しているが、同様の照射を受けた試料の電顕観察結果とよく一致するデータである。中性子照射によるボイドの測定として有名なのは 2×10^{21} n/cm² の照射を受けた Al 中のボイドの測定である⁽¹⁹⁾。Al 中のボイドは“先端を切られた正八面体”の形で存在するが、この形を反映して小角散乱も異方的に現れる(第5図)。ボイド径分布を測定す

ると電頭で求められた結果より小さい方に分布がずれているが、これはより多数の平均が得られたためであり、中性子小角散乱の利点をよく表わしている。

第5図 Al ボイドの中性子小角散乱
(上図は計算図, 下図は実測図)

前に述べたように小角散乱の強度が非常に増大したことを利用し、析出物の析出や固溶の様相の時間変化の“その場観察”⁽²⁰⁾、高温、応力下での析出物の変化の様相の観察⁽²¹⁾なども行われている。前者は Al-Zn 合金についてであるが、20 s の測定時間で充分なデータが得られるのは驚くべきことである。

以上の例のように、現在は中性子小角散乱の原子炉材料への応用例はあまり多くなく、系統的な研究もほとんど行われていない。しかし有効性は実証されており、今後の発展および材料開発への寄与が大いに期待される。

Ⅳ. おわりに

中性子散乱は物性物理の研究にとってユニークな有力研究手段である。したがって、この方面の研究者はさらに強力な中性子源を求めてパルス中性子源を建設し、新しい測定法を開発することにより一層の発展をはかっている⁽⁴⁾⁽²²⁾。もちろんこれは非常に重要なことであり、このような努力が現在の中性子散乱研究の発展を生む原動力となってきた。しかしながら他方において、物性物理以外の研究分野においても中性子散乱による研究が非常に有力であることが次々と実証されている。このような研究分野では必ずしも最新鋭、最高の測定装置は必要でない場合も多いが、中性子散乱の研究手法に不馴れな人や装置を利用する機会に恵まれない人も多いようである。このような分野の人々に中性子散乱の有用性を理解していただき、専門の中性子ビーム実験家と協力して積極的に新しい研究分野を開拓して行くこともビーム実験の発展にとって重要なことであり、世界の大勢もその方向に向いていると思われる。

— 参考文献 —

- (1) REIJONE, H. (Compiled): *At. Energy Rev.*, **15**, 755 (1977).
- (2) Solid Sci. Comm.: “Neutron Research on Condensed Matter: A Study of the Facilities and Scientific Opportunities in The United States”, (1977), Nat. Academy Sci.
- (3) WILKINSON, M., et al. (Organizer): *Mater. Sci. Eng.*, **35**, 33 (1978).
- (4) 石川義和: 原子力誌, **18**(7), 401 (1976).
- (5) HAMAGUCHI, Y., et al. (eds.): *JAERI-M 7408*, (1977).
- (6) *idem.*: *JAERI-M 8009*, (1978).
- (7) 井上和彦, 渡辺 昇: 原子力誌, **18** [3], 129 (1976).
- (8) WEISS, R.J.: *Phys. Rev.*, **83**, 379 (1951).
- (9) SCHELLEN, J., et al.: *J. Appl. Cryst.*, **11**, 297 (1978).
- (10) WILKINSON, M.K.: *Phys. Today*, p. 32, July (1979).
- (11) 星埜禎男(編): “実験物理学講座 22 「中性子回折」”, (1976), 共立出版.
- (12) 前田裕司: 応用物理, **48**, 447 (1979).
- (13) SCHMATZ, W., et al.: *J. Appl. Cryst.*, **7**, 96 (1974).
- (14) 好村滋洋, 武田隆義: 結晶誌, **17**, 255 (1975).
- (15) GEROLD, V., et al.: *J. Appl. Cryst.*, **11**, 376 (1978).
- (16) GALOTTO, C.P., et al.: *Nucl. Instrum. Methods*, **134**, 369 (1976).
- (17) FRISIUS, F., et al.: *Atomkernenergie*, **29**, 139 (1977).
- (18) CHILD, H.R., SPOONER, S.: 私 信, (1977).
- (19) HENDRICKS, R.W., et al.: *Phil. Mag.*, **36**, 907 (1977).
- (20) ALLEN, D., et al.: *J. Appl. Cryst.*, **11**, 578 (1978).
- (21) MILLER, R.J.R., et al.: *ibid.*, **11**, 583 (1978).
- (22) RL-77-064/C, (1977).