JPARC 中性子散乱ことはじめ：物質・材料研究への応用

遠 藤 康 夫^{*1,*2,*3}

Introduction to Neutron Scattering for Materials Science

Yasuo ENDOH^{*1,*2,*3}^{*1}Tohoku University, Professor emeritus, Katahira, Sendai 980-0011, Japan^{*2}International Institute for Advanced Studies, Kizugawadai, Kizu, Kyoto Japan^{*3}High Energy Accelerator Science Institute (KEK), Tsukuba, Japan

(Received May 9, 2010, Accepted June 21, 2010)

The introduction prior to series of papers on the application of neutrons for materials science (MS) in this issue starts with a brief summary of neutron scattering research history in Japan; from the individual activity by Motoharu Kimura at RIKEN early around 1940s to those at present era of world leading neutron science facilities of both JRR3 research reactor and JPARC of the largest proton Accelerator complex in Tokai. Then physical properties of low energy neutrons applied to MS as well as such neutron sources are also reviewed (<http://www.jstage.jst.go.jp/browse/jvsj2>).

1. はじめに（日本の中性子科学概史）

中性子の発見（1932年）から間を待たず、当時物質の構造を顕微する優れたプローブである X 線と同様に低速中性子が有用な顕微手段となる理論が出された。中性子磁気モーメントに着目すると「磁性」のミクロ構造が顕微出来ることが示された。この理論を実証する為に必要な強い中性子ビームは存在しなかった時代のことで、今のような中性子散乱あるいは中性子回折は到底不可能であった。日本はというと、太平洋戦争を契機に科学者にとっては困窮を極める時代に突入していた。しかし原子核物理学者木村一治（敬称略）は理研で中性子散乱を始めたのである。遺された資料を辿ると、木村は当時放医研にあった中性子発生の為の線源を自ら理研に運び、手作りの中性子発生と散乱計測を一体的に設計された実験箱の中で全中性子散乱研究を行っていた。詳細を紹介するページ数はないので、彼の艱難辛苦を書く積りは無いが、木村一治こそが日本の中性子散乱研究の先駆者である。

日本で本格的に中性子散乱（古くは中性子回折と呼んでいた）研究が始まったのは1950年代に東海村に研究用原子炉が建設され、殊に JRR2（CP5 型）が稼動し、原研、東大物性研（電通研）が装置を設置してからである。各々の研究所が中性子散乱グループを形成し、主に中性子回折による結晶構造、磁気構造研究をする時代が暫く続いた。一方、欧米では既にこの時代に中性子の特徴を生かした「中性子散乱」が物質科学の重要な道具である点に注目し、中性子散乱研究の為の研究用原子炉が相次いで建設されていた。歴然とした日本と欧米の差を引き立たせたことが象徴的な現象として思い出される。この事態を憂いていたのが、日本の物性物理を率いた久保亮五を筆頭とする理論物理の集団で、中性子散乱研究用の原子炉を日本でも造る様に学会会議や政府に訴えた。久保の洞察は同時に早くも新しい中性子散乱研究の方向の提案であった。それが日本でのパルス中性子法の誕生である。

久保は原研でのワークショップの講話の中で、中性子と外的摂動（磁場、電場、圧力）下での中性子散乱研究の可能性に言及している。当然強い摂動はパルスが最も相応しく、これと組み合わせるにはパルス中性子が理に叶っていることも明らかである。

木村はこの頃東北大理学部に電子リニアック施設を建設し、専門の原子核物理のみならず、物性物理に施設を開放する多分野応用の構想を進め、東北大物理に石川義和を招いてパルス中性子利用研究を始めた。高エネルギー電子による光原子核反応、電子ビームによる電子励起、放射光利用と共に中性子回折実験をする核理研施設の誕生である。木村自身デバイシェラー型の回折計を建設し粉末回折実験を行い、当時の原子炉に設置された回折計に劣らない優れた研究成果を取めた。1980年代初頭、石川は更に大強度を求めてつくばの高エネルギー研究所の陽子前段加速器（ブースターシンクロトロン）に中性子ターゲットを設置、本格的なパルス中性子施設（KENS）を建設し、東北大の研究者のみならず全国の中性子利用者の参加を求めて全国大学共同利用システムを作り上げたのである。一方、久保の提案した国家レベルで動き出した高東中性子原子炉構想は発案以来20余年の歳月を経て東海村の原研（当時 JAERI、現在 JAEA）の JRR3 原子炉を改造して1991年に中性子散乱を主目的とする定常中性子源の誕生となり、国際的にも一級の中性子科学研究施設として今日でも成果を出し続けている。KENS は4年前に陽子加速器の閉鎖と共に運転を終え、現在パルス中性子研究は東海の JPARC に引き継がれ、東海村で中性子科学研究が集約される時代を迎えることとなった。

振りかえると JPARC への路は長くもあり、ここに書けない紆余曲折もあった。その間に永年の夢を見ないまま若くして世を去った先人達が在る。この苦難の路の先にあるのは、世界に冠たる中性子源を物質・材料研究にどう使うかである。素材も道具も一級品であっても使う料理人や其の味が判る人が居なければ所詮は只の高価な道具でしかなくなってしまふことを肝に銘じておこう。

^{*1} 東北大学名誉教授^{*2} 国際高等研究所フェロー^{*3} 高エネルギー加速器研究機構ダイヤモンドフェロー

2. 物質・材料開発の為の中性子と中性子源

物質顕微の道具としての中性子の特徴を概観する。

中性子は陽子とともに原子核を構成する電荷を持たない電氣的に中性の準安定な素粒子（ハドロン）である。中性子の寿命は14分以上（885.8秒）で、ベータ崩壊して最終的に陽子とニュートリノに変わる。以下に物理的な特性を纏めておく。

質量 $m = 1.674928 \times 10^{-27} \text{ kg}$ (1.008664915 *a.u.*)

スピン(磁気能率)

$$S = -\frac{\hbar}{2} (\mu_N = -9.6491783 \times 10^{-27} \text{ JT})$$

波動関数動径 $r = 0.7 \text{ fm}$

クォーク構造 *udd*

中性子散乱にとって重要な特性は電荷を持たない[#]、そしてスピン量子数 1/2 の磁気モーメントを持つことである。量子力学から質量と波動の両面性に基づいて波長（波動の速度）とエネルギーを計算すると、物質の顕微に役立つイオンサイズの波長の中性子は0.1 eV 程度で物質内のイオンや原子さらに電子や磁気モーメントの運動と同じオーダーのエネルギーを持つので結晶の原子位置とその運動を同時に観測し易い状況にある。物質波として運動量（波長）とエネルギーの間の関係が次のように書ける。

$$\lambda(A) = \frac{2\pi}{k} = \frac{h}{mv} = \frac{3.96}{v(km \cdot sec^{-1})} = \frac{0.286}{\sqrt{E(eV)}}$$

中性子と陽子の質量の差： $\frac{m_n - m_p}{m_n} = 0.0013765$

[#]電荷： $q \leq -0.4 \pm 1.1 \times 10^{-21} e$

($d = -0.1 \pm 0.36 \times 10^{-25} e \cdot cm$)

物質の構造解析（動的なものも含めて）の為の中性子散乱は次章以下で解説されるが、中性子の波動関数の広がり波長に比べると数桁も小さく（粒の大きさが小さいとも言える）、原子核による散乱断面積は「点」で表された等方的なスカラー量で、ボルン近似が成り立つ。原子核との衝突に依って複合核をつくる際に小さな磁石である中性子は核スピンと結合する。複合核から飛び出した中性子が中性子散乱現象を担う事になるから、当然核スピンとの結合状態が散乱振幅を決める。物質の中では原子核スピンの揃っていないのが普通で、入射中性子とスピン状態の異なる成分が散乱に混じる（非干渉性散乱）。中性子磁気散乱の原因は原子スピン、即ち原子の周りの電子のスピンがつくる局所磁場によるゼーマン項であり、中性子の磁気散乱振幅は磁気モーメントと中性子磁気モーメントとの間の長距離の双極子相互作用で書けるベクトル量で表される。磁気散乱を解析すると物質の局所的な磁気状態（磁性）が詳しく判る。

中性子と原子との相互作用により散乱が起ることを見て来たが、それと共に中性子が原子核と衝突すると原子核によって吸収されるが其の大きさは小さい。従って(*n, p*), (*n, γ*), (*n, α*)等の強い核反応を起こす例外を除くと、熱中性子の透過度が高いことも特徴の一つである。中性子全散乱断面積は中性子散乱断面積と吸収断面積の和として定義される。中性子光学現象として以上のことを表すと、中性子の反射、屈

折、吸収から透過度が求められる。

中性子散乱を目的とする大型の中性子源は、原子炉と、主として陽子加速器に中性子発生ターゲットを着けて中性子源とする2つの方式がある。前者は核分裂を連鎖的に起こすことで必然的に中性子が減速するので、原子炉から取り出される中性子は主に熱あるいは低速中性子となる。原子炉を定常中性子源とも呼ぶ。後者は中性子発生ターゲットに中性子減速装置を装着して低速中性子を発生源の外部に導く。加速粒子（電子、陽子）をパルス化して強度増強を図るのが通常でこれをパルス中性子源と呼ぶ。世界には20 MW 以上の大きな研究用原子炉が10基近くあり、後者は0.1 MW 以上の加速器として欧米アジアに1基ずつ稼動している。

原子炉室には実験装置が原子炉壁に直接取り付けられて、炉壁を貫通するビームチューブから引出された中性子が主に大型の単結晶で単色化され実験に供する。炉壁の外に中性子を引出す事になるので強度は決して強くない。原子炉に挿入された冷中性子源を臨む導管から数10 m 離れた場所迄全反射を利用して水平方向に大きな曲率で曲げて外に運ぶ方法も確立している。全反射臨界角を決める導管の曲率と中性子の波長は以下の式で決まるが、出来るだけ大きな屈折率 *n* (*b_{coh}*) をもつ物質 (*Ni⁵⁸*など) を導管の内壁に使うことになる。しかし、近年スーパーミラーと呼ばれる膜厚を連続的に変えた多層構造の反射鏡によって大きな臨界角(小さな曲率)を持つ導管デバイスが開発されている。

$$\gamma_c = \lambda \sqrt{\frac{Nb_{coh}}{\pi}}$$

中性子導管の利点は導管内の異なる位置のビームを複数のモノクロメーター結晶を串刺しするようにデザイン出来るので、一本のビームチューブに複数の実験装置を設置出来る。他の利点はより短い波長の中性子は導管を通らないのでノイズの原因となるエネルギーの高い中性子の混入がない。γ線も少ないので実験室の放射線レベルも低くなる。

陽子加速器の中性子源は中性子生成標的(W, U, Hg など)の上下に直接置いた減速剤から最適の中性子ビームを引出せるように工夫されている。JPARC の中性子強度は時間平均でも約30 MW の定常中性子源を凌駕し、パルスのピーク強度は100 MW 級の定常中性子源を越すことになる。パルス振動数は飛行時間の異なる中性子が中性子源から離れた検出器の位置で前後のパルスが重ならないような条件でかつ最大になるように決められる。JPARC では25 Hz を採用している。多くの利点を持つ JPARC のパルス中性子源は陽子が重金属標的内で核破砕反応を起こす際の発熱を除去する為に大掛かりな液体 Hg の流動装置を中性子発生源とする。陽子ビーム方向に突き抜ける高エネルギー中性子や生成核（多くは2次放射化生成物）の遮蔽をする巨大な建造物（遮蔽壁）が必要である。標的の液体 Hg の流動、標的上下に設置された減速剤の低温冷却が大強度の陽子加速器の駆動の建設費や運転経費に加わり、中性子ビームは高額になる。ここで触れておきたい事は東海村に建設された JPARC は異分野の科学が陽子駆動の異なった2次粒子を共用するのに対し、欧米の陽子加速器は中性子発生に専用される。古く東北大核理研で木村が創った加速器の多分野利用方式が日本の独創性とし

て JPARC に継続されていることを筆者は誇りに思っている。

生成の段階で中性子スピンを揃える事は困難で両方のスピン状態が同じ割合の非偏極中性子を散乱の位置に運ぶ途中で、一方のスピン状態の密度が他を凌駕するビームに加工する。これを一般的に偏極中性子と定義する。偏極中性子は下の式で定義される偏極度 (p) で表される。

$$p = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-} \quad n_{\pm}: \text{スピン状態の中性子密度}$$

ベクトルと看做された偏極度 p は磁場中でトルク運動をする。

$$\Gamma = \mu_N \times \vec{H} \quad \omega_L (\text{rad} \cdot \text{sec}^{-1}) = \gamma_L H = 18324 (\text{gauss})$$

この時の Larmor 角 $\Delta\phi$ は次式で与えられるが、0.2 nm の波長の中性子は 10 gauss の磁場を通過する間に約 53 度回転することになる。

$$\Delta\phi (\text{deg ree}) = 0.265 \lambda (\text{nm}) \times H (\text{gauss})$$

中性子磁気散乱は偏極中性子の利用によって核散乱を分離し、格段に詳細な磁気構造解析が可能となる。また偏極中性子の磁場中での歳差運動を応用して回転位相差の検出やスピネコー実験法などの新しい実験方法が使われる。

所謂結晶法と飛行時間分析法の説明をしてこの節を締めくくる。結晶法は単色化された波長の中性子線を試料に照射し、試料周りの回折像を、散乱角を連続的に変えて撮る。この方法は実験室で行う X 線回折実験と同じであるので馴染み易い。逆格子空間 (運動量空間) 上に入射、散乱中性子線の運動量を各々 k_i, k_f とし両方の直線を結ぶ 3 番目の直線 Q を次式で規定する。

$$k_i - k_f = Q$$

k_i, k_f, Q の 3 角形を含む平面を散乱面と定義する。従って $k_i = k_f$ の散乱は弾性散乱となり $k_i \neq k_f$ は散乱過程でエネルギーの授受を伴う非弾性散乱になる。検出器と試料とを同時に 2 : 1 の割合 (2 θ : θ) で回転し乍ら散乱中性子を測ることは、逆格子面において、 Q を原点から動径方向に連続的に動かす事に対応する。非弾性散乱の測定は散乱中性子の波長やエネルギー (速度) を分析するが、通常はモノクロメーターと同じような単結晶 (アナライザー) を使って散乱波の波長分析を行うことが多い。飛行時間分析 (Time of Flight) 法は英語の頭文字を採って一般的に TOF 法と言われるが、熱中性子 (低速中性子とも呼ぶ) は線源から検出器迄の距離を飛行する中性子の到達時間を測定して速度を決めるのに適したエネルギー分析法である。加速器を使う繰り返しパル中性

子源では減速剤の置かれた熱中性子発生源を測定時刻と距離の起点と定義し、検出器に到達する迄の距離を飛行する中性子の時間を測って飛行時間毎の散乱強度を測定する。この方法では広い散乱角に張り巡らした多数の検出器から一挙にデータ集積が可能となる。加速器の繰り返しパルスに同期させ、陽子の中性子発生装置に届いてから測定器に届いた時が TOF の起点になる様にタイミングを取って時間分析を行う。つまり固定した散乱角に異なる Q の散乱が一挙に測れることになる。この方法の最大の利点は検出器を試料の周りに囲んで (4π の立体角) に配置すれば散乱イベントを漏らさず一挙に観る事が可能になることである。

中性子源の途中にモノクロメーターチョッパーを配置して試料に単色光の中性子を照射するのがチョッパー法である。運動量空間では

$$k_i = \frac{mv}{h} = \frac{m}{h} \cdot \frac{l_1}{t_1}$$

$$k_f = \frac{m}{h} \cdot \frac{l \left(1 - \frac{l_1}{l}\right)}{t \left(1 - \frac{t_1}{t}\right)}$$

中性子源と試料迄の距離と時間を各々 l_1, t_1 とし、中性子源から検出器の位置迄の距離と中性子の到達時間を l, t と定めると上の式が求まる。試料や測定器の配置は固定されているので、チョッパーの動作を単色化に必要なモードに設定して、パルスに同期した時間分析を精確に行い、運動量空間に k_i, k_f を描いて各々のベクトルを結ぶ位置に Q を設定出来るように結晶法と同じ手順で逆格子点上に乗せて測定を行う。 Q が結晶の逆格子点に一致する時、回折条件を充たすことは自明である。

3. おわりに (将来の中性子科学)

利用者と施設に属する研究者とが一体化した集団が大規模に成長した中性子科学の研究施設の運営に当たるのが 21 世紀の中性子による物質・材料研究体制である。高度に分化し、国際競争も激しさを増す中にある物質・材料研究は中性子や放射光などの先端的な物質顕微の必要性、或はそれらを含めた総合戦略的、先端的な取り組みが求められる。読者は自らの研究の目的と研究で求められる物質・材料のミクロスコピックな評価などを基にして以下の章で解説される様々な中性子散乱法を学んで頂きたい。