

物質科学研究用加速器中性子源と低エネルギー中性子断面積

京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻

森島 信弘

morishima@nucleng.kyoto.u.ac.jp

1. 低エネルギー中性子の利用

中性子はスピン1/2を有し、電氣的に中性で、陽子とほぼ等しい質量をもつ粒子である。この特性を利用して、液体や固体など様々な物質の構造と機能を調べる研究が進められており(中性子散乱による物質科学研究/1-4/)、今後の広い展開が期待されている。現在よく用いられている熱中性子について言えば、25 meV 程度の運動エネルギーと 1.8 Å 程度のドブロイ波長を有しており、これらの値は常温の液体や固体での原子分子の運動エネルギーと平均間隔とほぼ同程度である。すなわち、熱中性子を物質により散乱させると、散乱前後のエネルギーと運動量の変化より、物質の微視的構造(原子分子の動きと配置)に関する情報を得ることができる。例えば、ブラッグ散乱を利用して結晶の格子面の平均間隔を調べたり(中性子回折)、更には運動エネルギーの変化より格子振動(フォノン)のふるまいを解明すること(中性子非弾性散乱実験)が挙げられる。スピン相互作用を利用して磁性体や誘電体の物性を解明することも大切な利用法である。一般的な言葉で言えば、物質・材料科学への展開が期待される。

より低い運動エネルギー(より長い波長)をもつ中性子が利用できれば、更に様々な物質の多様な微視的構造を解明できる。例えば、冷中性子(運動エネルギーとドブロイ波長がそれぞれ 1 meV 及び 9 Å 程度)や極冷中性子(0.01 meV 及び 9 Å 程度)が高輝度で利用できれば、液体やアモルファス物質の構造(分子拡散運動、分子集団運動、不規則分子配置など)、高分子系の相転位・相分離、DNA生体分子の反応・構造などの解明に威力を発揮するものと期待されている。特に、中性子は原子核との核力相互作用が主であり同位体による強度変化が期待できる(X線や放射光は専ら電子による散乱のため重い原子との散乱が主となる)。この事実は生体分子系に特有の水素の挙動(水素結合)を調べるのに適しており、更に重水素への置換による散乱強度の変化(コントラスト)より分子系としての構造や機能性を解明できる可能性を示してい

る。まさに中性子による生体・生命科学の開拓である。

更に一層低い運動エネルギーを持つ中性子として、超冷中性子($0.1 \mu\text{eV}$ 及び 900 \AA 程度)が最近注目を集めている。物質構造解析への適用もいずれは考えられようが、当面は超冷中性子の光学的ふるまいに注目した利用が考えられる(中性子光学)。例えば、金属容器中の超冷中性子は容器表面で光学的に全反射されて完全に閉じ込められることになり、やがて β 崩壊して消滅する(寿命は約15分程度)。従って、容器中での生成と消滅の釣り合いで中性子密度が決まり、スピン1/2のフェルミ粒子として各エネルギー準位を満たせば容器からあふれ出ることになる。つまり素粒子としての性質があらわになることから、中性子の β 崩壊寿命や電気双極子モーメントなどを調べるのに都合よい。こうした実験により理論モデルの検証が出来ることから、基礎物理学への展開が期待されている。

2. 低エネルギー中性子の高輝度生成に向けて

中性子の利用は科学、技術そしてエネルギーの諸分野に展開されつつあるが^{3/}、その中でも上述の物質科学を中心にした領域ではいくつかの特徴的な利用方法が挙げられる。要約して記すと次の通り。

- (a) 解明する物理的機構に対応したエネルギー(波長)を有する中性子の生成。
- (b) 統計的に有意な実験結果を得るための十分なビーム強度(高い輝度)の必要性。
- (c) 微視的情報を抽出するためのエネルギーと散乱角度(運動量)に関する微分分析。
- (d) 理論 and/or 計算機実験(分子動力学)の併用。

高輝度低エネルギー中性子ビームによる新しい展開を図るためには、以下に述べる一次中性子源より高い強度の中性子を発生させる必要がある^{4,5/}。まず、高中性子束炉(定常型)では、核分裂反応により生成した高速中性子を炉心周辺の反射体減速材中(主に、重水)で熱化して(過減速熱化)、熱中性子束を生成している。冷中性子は低温減速材体系(主に、液体重水素又は液体水素)を炉心近傍に設置して熱中性子の減速により生成される。なお、熱外中性子の生成には核加熱された高温減速材(2000 K 程度の黒鉛)が用いられている。熱中性子束としては、 $1.5 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (ILL, 62 MW)が得られているが、より高い値 $8 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ を目指した米国のプロジェクト(ANS, 200 MW)は数年前に中止になった。この結果、最近20数年間にわたって最高熱中性子束はほぼ一定の状態が続いている。その主な理由は、出力密度と炉心材料の照射損傷が工学的限界に近づいているためと言われている。

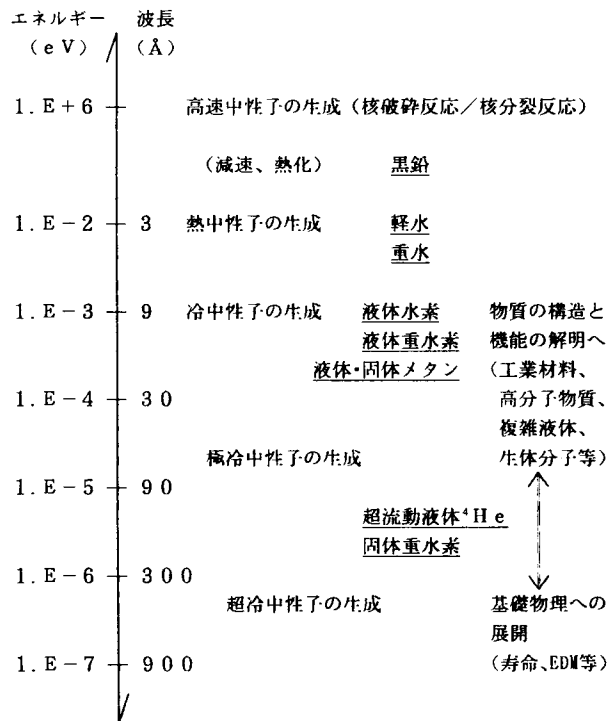
こうした状況のなかで、高エネルギー陽子による核破砕反応を利用して高速中性子

を生成する方法が大型陽子加速器の開発と相俟って進められている。生成された高速中性子は大部分が核分裂スペクトルに近いエネルギーを有しており(一部は陽子エネルギーに近くなるが)、重金属の標的(^{238}U など)の近くに設置された減速材に入射して減速・熱化されて散乱実験に利用されている。高中性子束炉との主な違いは、より小さい領域(標的)で高速中性子が生成されること及びパルス状に繰り返して生成されることである(ISISの 0.16 kW パルス源では、ピーク中性子強度が $3.7 \cdot 10^{16} \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ で毎秒 50 パルス生成)。このため、高速中性子を速やかに減速して、次のパルスが来る前に除去することが必要となる(減速不足の体系での時間依存熱化過程)。この要求により、含水素物質が減速材として通常用いられており、熱中性子生成用には常温の軽水、冷中性子には液体水素や固体メタンが代表例である。なお、連続型陽子加速器(SINQ)では中性子生成が定常的であるため高中性子束炉と同様の減速材(重水反射体中に液体重水素減速材)が用いられている。日米欧で現在計画中の大出力陽子加速器では(1~5 MW パルス中性子源)、従来より2桁程度高い中性子強度($10^{17} \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ 程度)を目指していることから、効率よく低エネルギー中性子を生成し利用することが一層求められよう。

3. 低エネルギー中性子生成用減速材とその散乱断面積

必要とする中性子エネルギーと減速材を要約して図1に示す。高速中性子の 10 eV付近までの減速は自由原子個々との散乱によるものであり(例えば、重心系での弾性散乱が実験室系での標的核の反跳を生じ、その分中性子が運動エネルギーを失う)、必要な散乱断面積はJENDLなどの評価済核データより利用できる。ところが、入射エネルギーが 10 eV 以下になると、原子や分子の化学結合による効果が散乱に効いてくるため減速材毎の物理的性質を考慮した散乱断面積を必要とする。評価済核データには自由原子気体モデルの値が収められており、散乱則

図1 低エネルギー中性子の生成と利用



S(α, β)データでは熱中性子に対する常温の水や黒鉛などに限られているため新たに作成する必要がある。表1には ENDF/B-VI(TSL3)に収録されている物質名を示す/6/。軽水と重水は分子気体モデルによる非干渉近似で計算されており、液体水素及び重水素は特定の温度とオルソ・パラ組成によるものである。なお、低エネルギー中性子に対する散乱断面積の測定値は極めて少ないのが現状である。

表1 散乱断面積(DDX)モデルと核データ

Materials	ENDF/B-VI TSL3	DDX MODEL-Kyoto
Light water	H/296-1000(8) K	300-350 K
Heavy water	D/296-1000(8) K	300-350 K
Liquid para-H ₂	20 K	13.9-20.4 K
Liquid ortho-H ₂	20 K	13.9-20.4 K
Liquid para-D ₂	19 K	18.7-23.7 K
Liquid ortho-D ₂	19 K	18.7-23.7 K
ZrH	H/296-1000(8) K	
ZrH	Zr/296-1000(8) K	
Be metal	296-1000 K	
BeO	296-1000 K	
Graphite	296-2000(10) K	
Liquid-CH ₄	100 K	(90-111 K)
Solid-CH ₄	22 K	(\leq 90 K)
Polyethylene	296.350 K	
Liquid ⁴ He		0.1-4.2 K

そこで、低エネルギー中性子の液体減速材による散乱断面積が理論的考察により開発された。現在のところいくつかの物質に限られているが、それらを適用可能な温度範囲と共に表1に示す。開発された断面積モデルの主な特徴は次の通り。

(a)融点と沸点間の温度依存性を考慮した分子間動力学モデル(主に速度相関関数)を物理的結条件により構築した(目下、分子動力学法で検証中である)。

(b)熱外中性子より超冷中性子までも取り扱えるように広い入射中性子エネルギー(0.1 μ eV より 10 eV)に関して計算可能である。

(c)二重微分散断面積モデルとして開発し、角度分布、全断面積、減速パラメータなどの積分量も求めて、既存実測値との整合性を確認した(いずれ実験的な検証が期待される)。

(d)予測性及び対話処理機能を確保したこと。入射エネルギー、温度そして組成を与えれば必要とする量を直ちに求めることが出来て可視化も可能である(密度相関関数の時間フーリエ変換を高速化し自動化できたことが主な理由である)。

3-1. 軽水と重水による熱中性子の生成/7/

これまでに開発した散乱断面積モデルの特徴を物質毎に以下に記すが、減速・熱化を起こす物理的機構に注目して述べてみたい。図2に示した結果は、常温の軽水に関する入射エネルギー $E_0 = 304$ meV の二重微分散断面積である。装置分解能補正を行っていないが、散乱角度 $\theta = 30^\circ$ の鋭いピークを除いて、ほぼ実測結果と整合している。この E_0 の場合、分子内振動モードのひとつ(205meV、他は 478, 488 meV)を

励起するため、 $\theta=30^\circ$ で散乱後エネルギー $E=100$ meV 付近に小さいピークがわずかに見られる。更に分子回転運動(水素結合によりかなり束縛されているため 60 meV程度)も併せて励起して、 $E=240$ meV 付近への下方散乱を生じている。なお自由分子モデルと $\theta=30^\circ$ においてかなり異なるのは、液体中での分子熱運動(25 meV 程度)によるエネルギー授受が生じるためであり(準弾性散乱)、散乱角度が大きくなると反跳効果が支配的になるため幅の広いピークがより低い散乱後エネルギーに表れてくる(非弾性散乱)。

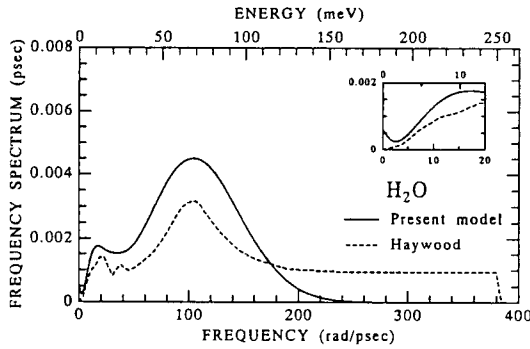
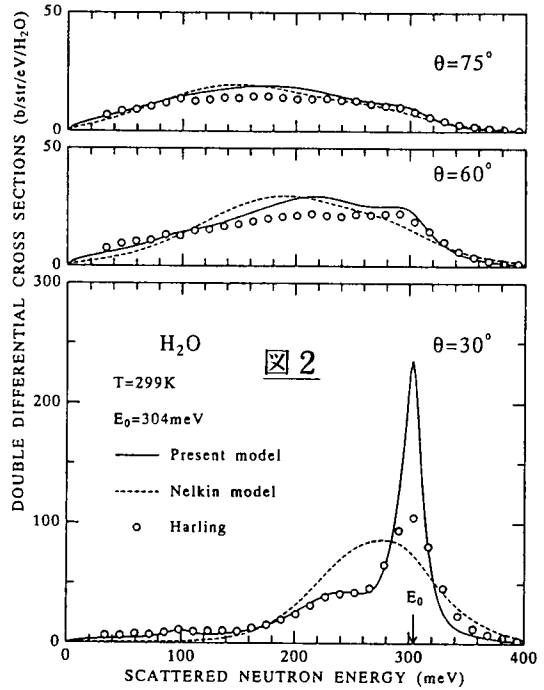
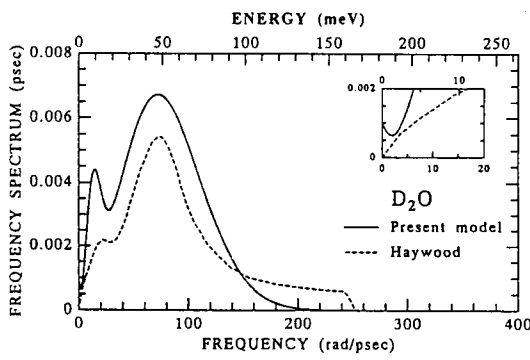


図3 軽水の周波数分布関数



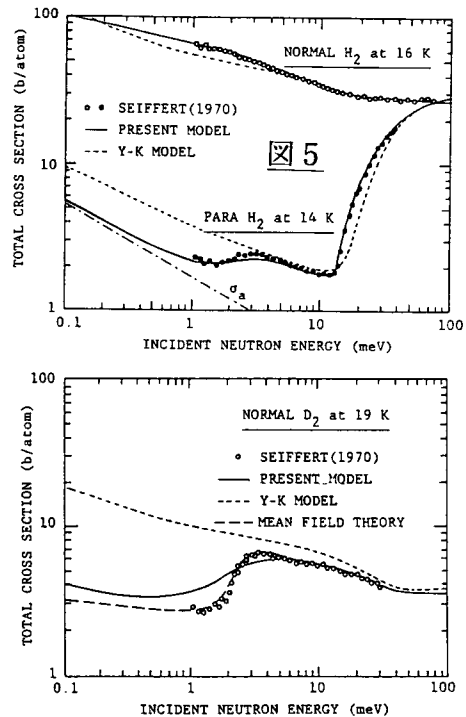
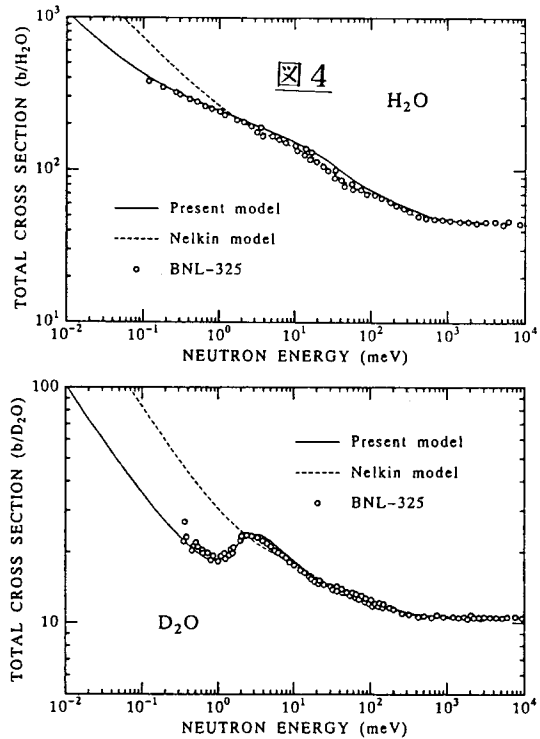
重水の周波数分布関数

軽水及び重水中での分子運動を端的に表すものとして、速度相関関数をフーリエ変換して求められる周波数分布関数を図3に示す。分子内振動は省かれているが、分子束縛回転を表す幅の広いピーク(軽水で 70 meV付近)、水素結合ネットワークでの分子間振動のピーク(同 10 meV付近)そして分子拡散運動を表す部分(同 0meV 付近)が見られる。すなわち、中性子の減速・熱化に関する運動機構がこのような存在しているのが分かる。なお、重水分子は慣性モーメントが大きいので、分子回転運動に関連するピークは低エネルギー側にシフトする。即ち、より低い入射エネルギーでも減速を生じて、重水中で熱中性子束を増やす原因のひとつになっている(主な原因は中性子吸収が極めて少ないことである)。

軽水と重水では散乱の性質がかなり異なる。水素はスピン非干渉性散乱断面積が大であるため($\sigma_{inc} = 79.9$ b、 $\sigma_{coh} = 1.76$ b)、分子個々の運動の様子を反映した断面積を示すが、重水素は干渉性散乱がより強いため($\sigma_{inc} = 2.04$ b、 $\sigma_{coh} = 5.60$ b)、分子間運動の様子を伝えてくれる。図4に全散乱断面積を示すが、重水については分子配列に起因した干渉性ピークが 3meV 付近に見られる(冷却して氷の結晶になれば Bragg 切断となる)。このように散乱の性質が異なることは、含水素物質(水、高分子、生体分子など)のミクロな特性を調べることに利用される(コントラスト法)。

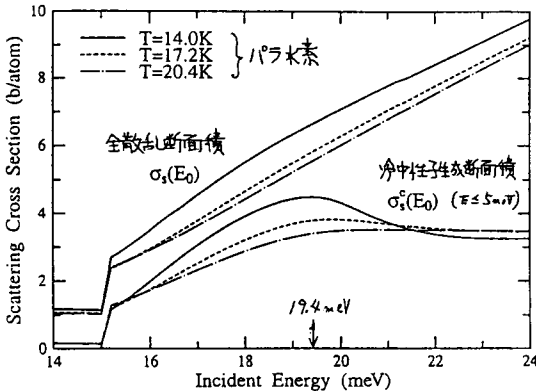
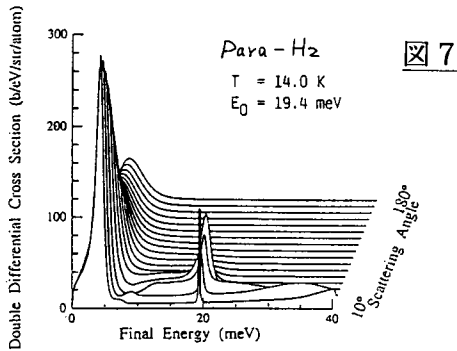
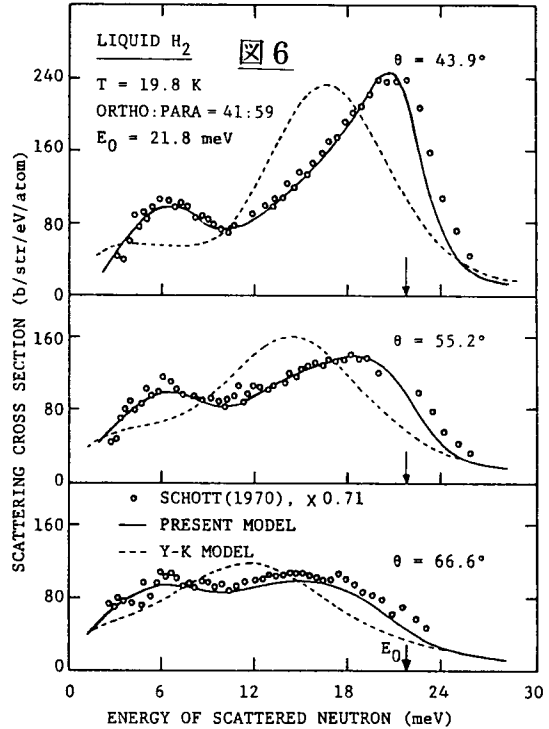
3-2. 液体水素及び重水素による冷中性子の生成/8/

等核2原子分子である H_2 と D_2 による中性子散乱では、分子内振動、分子回転運動そして分子併進運動とのエネルギー遷移が起きるが、更に核スピン相関の存在による干渉・非干渉性散乱が生じることが特徴的である。水素分子の場合、互いに反平行なスピンを有するパラ水素は分子スピンのゼロであり干渉性散乱体となるが、平行スピンのオルソ水素は分子スピン1を持ち非干渉性散乱体である。この違いは図5の全断面積を見れば明らかである。パラ水素は数 meV 付近で干渉性散乱による diffuse Bragg peak を示し、15 meV 以上の入射エネルギーに対しては回転運動準位(J)の励起によるパラ(J=0) → オルソ(J=1)転移が起こり全断面積の急



激な増加として表れている。重水素はオルソとパラの両状態とも干渉性散乱が有意であるため、違いをあまり生じない。

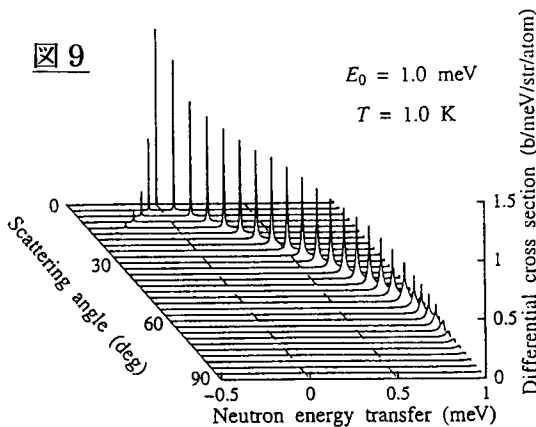
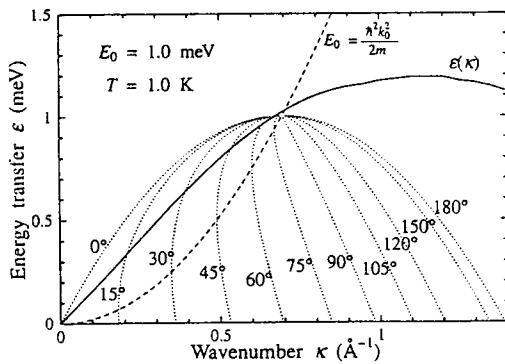
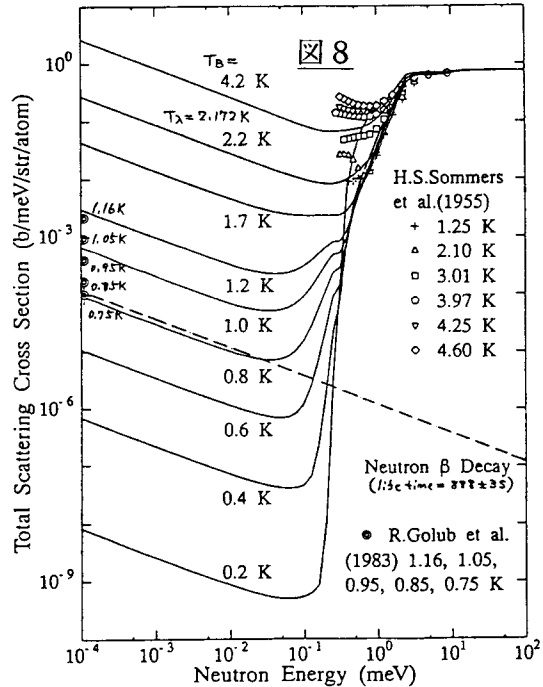
温度 19 K の液体水素(オルソ:パラの組成比=49:51)に $E_0=21.8$ meV の中性子が入射した場合の二重微分散乱断面積を図6に示す。液体中での熱運動による上方と下方散乱が起きるために $E \sim E_0$ 付近に準弾性散乱ピークが生じているが、分子間束縛振動へのエネルギー遷移により下方散乱($E < E_0$)も起きて非対称なピークとなっている。なお、15 meV の回転運動励起(パラ→オルソ)による下方散乱の結果、 $E \sim 6$ meV 付近に小さいピークが見られる。



液体水素のパラ→オルソ転移が熱中性子の減速に効果的であることを図7に示す。融点(14 K)での $E_0=19.4$ meV に対する二重微分散乱断面積を散乱角度毎に示したもので、冷中性子生成($E \leq 5$ meV)が顕著になる様子が明らかである。全散乱断面積のうち冷中性子生成断面積が占める割合は融点でおよそ2/3にも達する。この結果はAltarev et al の実測結果/9/を物理的に解明しており、パルス状中性子源での減速不足体系における冷中性子及び超冷中性子の生成機構に密接に関係している。

3-3. 超流動液体ヘリウムによる超冷中性子の生成/10/

液体⁴Heの全散乱断面積を沸点(4.2 K)、ラムダ点(2.172 K)及び0.2 Kまでの各温度について図8に示す。入射中性子エネルギーが10 meV程度及びそれ以上であれば、⁴Heとの弾性散乱が支配的になるが、より低い入射エネルギーでは液体ヘリウムの物性が干渉性散乱として明白に表れる。散乱の内容は結晶の場合と類似している。3 meV付近での特性は数分子程度のごく弱い分子配列による diffuse Bragg 散乱であり、0.1 meV以下での顕著な温度依存性は分子集団運動(フォノン)による上方散乱の寄



与を表している。すなわち、温度の低下と共にフォノン生成も減少し、それだけ散乱される確率も減る。特に注目すべきことは、中性子のβ崩壊寿命(15分程度)に相当する吸収断面積との比較である。低エネルギー(<0.1 meV)かつ低温度(<0.8 K)では、中性子は液体ヘリウム中でほとんど相互作用せず、β崩壊によってのみ消滅することを意味する。

超冷中性子の生成機構は超流動性に関係している。分子スピンのゼロである⁴Heはボーズ統計に従い、温度の低下と共に基底状態成分(ボーズ凝縮成分)が増加する。この成分を励起するエネルギーは分散関係として知られ、その寿命も定式化されており低温では長くなることが実験的に確認されてい

る。入射中性子のエネルギーを適切に選ぶと(およそ 1 meV に)、大部分の運動エネルギーと運動量をこの成分の励起に受け渡して、 μeV より更に小さい運動エネルギーを有する中性子を得ることが可能である。この様子を図9に示す。自由中性子と液体ヘリウムの分散曲線の交点が超冷中性子生成の条件であり、そのときの二重微分散乱断面積を散乱角度毎に三次元的に示した。エネルギー遷移が 1 meV に極めて近い部分で超冷中性子が生成している。

従って、液体ヘリウムを金属容器中に満たして 1 meV の中性子を入射すれば超冷中性子を生成することが出来る。この中性子は容器表面で光学的全反射を繰り返して閉じ込められ、 β 崩壊するまで蓄積することになる(理想的な superthermal helium source)。このとき得られる中性子密度は、 $10^{10} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ の冷中性子束に対して数万個に達することが計算上求められている。現在実験的に確認されている値は百個以下であり/11/、もし2桁程度増加出来れば、中性子 β 崩壊寿命や電気双極子モーメントの値を飛躍的に改善できる。

4. 大型加速器低エネルギー中性子源とその利用

上述の減速材の例から分かるように、低エネルギー中性子の生成には減速材物質中の素励起を適切に利用することが肝要である。10 eV 程度の熱外中性子を必要な低エネルギーまで減速・熱化するには、複数の減速材を(従って数種類の異なる素励起を)組み合わせて利用することになろう。特にパルス状中性子源では時間的に速やかに生成し利用する必要があるため、小さい(減速不足な)物質中で高い中性子密度を得る工夫が求められる。そこで、より多彩な減速材物質(低温及び高温減速材や構造材など)について、散乱と減速・熱化の物理的な特性を検討し、パルス状低エネルギー中性子源(target-moderator-reflector)の最適化を図ることが求められている。

本稿では加速器中性子源の核特性、特に中性子散乱断面積、について記したが、日米欧で計画中の大型加速器(出力が MW クラス)に関しては熱的、材料的、維持管理面などの工学的緒条件の検討が必要になると思われる/12/。このような様々な観点からの研究開発を進めることにより高輝度中性子源が実現されるであろう。他方、今後は物質・材料科学を中心に低エネルギー中性子が広くそして活発に利用されると思われるが、そのための新しい原理と具体的方法(装置開発)の開発も大切である。放射光や強力X線源など新しい量子ビームが利用に供されるなかで中性子の相補的利用を一層進め、その独自性を理工学の諸分野で広く発揮することが期待される/1-4/。まさに“Neutrons for Science, Technology and Energy”である/4/。

参考文献

- /1/ 池田宏信、永嶺謙忠、野村 亨、“大強度陽子加速器(JHF)による学際研究”
日本物理学会誌、Vol. 52, No. 6, pp. 430 (1997).
- /2/ 鈴木康夫、“中性子科学研究構想について”核データニュース、No. 52、pp. 14
(1995).
- /3/ J. Baruchel et al, ed. “Neutron and Synchrotron Radiation for Condensed
Matter Studies—Theory, Instruments and Methods” Vol. I, Springer-
Verlag (1993); *ibid.* “—Applications to Solid State Physics and
Chemistry” Vol. II (1994); *ibid.* “—Applications to Soft Condensed
Matter and Biology” Vol. III (1994).
- /4/ Megascience: the OECD Forum “Neutron Beams and Synchrotron Radiation
Sources” OECD (1994).
- /5/ J. M. Carpenter and W. B. Yelon, “Neutron Sources” in K. Skold and D. L. Price,
ed.: “Method of Experimental Physics: Neutron Scattering” Vol. 23,
pp. 99, Academic Press (1986).
- /6/ R. E. MacFarlane et al, “The ENDF/B-6 Thermal Neutron Scattering Sub-
library, Release 2” IAEA-NDS-197 (1995).
- /7/ N. Morishima and Y. Aoki, “Evaluation of Cold Neutron Scattering Cross
Sections for Light and Heavy Water” Ann. Nucl. Energy, Vol. 22, pp. 147
(1995).
- /8/ N. Morishima and D. Mizobuchi, “Cross Section Models for Cold Neutron
Scattering from Liquid Hydrogen and Liquid Deuterium” Nucl. Instr. Meth.,
A, Vol. 350, pp. 275 (1994).
- /9/ I. S. Altarev et al, “Universal Liquid-Hydrogen Source of Polarized
Cold Neutrons at the VVR-M Reactor of the Leningrad Institute of
Nuclear Physics” JETP Lett. Vol. 44, pp. 344 (1986).
- /10/ N. Morishima and Y. Abe, “Evaluation of Cold-Neutron Scattering Cross
Sections for Liquid ^4He at Temperatures between 1 and 4.2 K, Nucl.
Instr and Meth., A, Vol. 397, pp. 354 (1997).
- /11/ R. Golub, D. Richardson and S. K. Lamoreaux, “Ultra Cold Neutrons” Chap. 3,
Adam Hilger (1991).
- /12/ 向山武彦、“中性子科学研究計画—(1)概要、日本原子力学会「1998春の年会」、
D21 (1998); 大山幸夫他、“(2)研究施設計画”、D22; 水本元治他、“(3)加速
器開発計画”、D23; 日野竜太郎他、“(4)ターゲット開発”、D24; 滝塚貴和他、
“(5)加速器消滅処理実験計画”、D25.