

## 研究室だより

# 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所中性子科学研究施設 (KENS)

川合 將義

masayoshi.kawai@kek.jp

### はじめに

高エネルギー加速器研究機構(KEK)の中性子科学研究施設(KENS)は、物質構造研究の共同利用のために世界最初に設立されたパルス状中性子散乱施設である。1980年6月に運転を開始し、同年10月から本格的な実験が開始された。爾来、1995年11月から冷中性子実験棟建設とターゲット準備のため1年間の休止期間を含めて20年間、国内外の共同利用者に開放されてきた。陽子ビームパワーは3 kW (主要諸元は表1参照)と小粒ではあるが、効率的な減速材システムや高性能分光器を開発することにより、冷中性子の測定系はその後作られた英国ラザフォード研究所のISISの160 kWで代表される大施設にも負けず劣らずであり、多くの成果を上げる事ができた。しかし、20年間という歳月の影響は如何ともし難く、中性子強度の劣化が生じたため、今秋に線源集合体の交換工事を予定している。

施設活動としては、KENSならびに日英共同研究協定に基づいてのISISを用いた物質構造科学研究、共同利用研究所として施設の維持管理、さらに原研-KEK共同による大強度陽子加速器を用いたいわゆる統合計画における中性子散乱研究施設設計とR&Dである。jobとして核データと直接的な関係を持つところは多くないが、KENSは核データを生み出す能力を持っており、さらに施設設計では核データのユーザーでもある。以下に、中性子散乱の概要を含めて、核データとの接点を有する部分を中心に活動紹介する。

### 中性子散乱と核データ利用

熱及び冷中性子のドブロイ波長が、結晶の格子間距離から有機化合物の長さ程度であることから、X線回折同様に、中性子回折は物質の構造の有力な手段といえる。ところで、X線の散乱、吸収は核外の電子との相互作用によるので、散乱断面積は原子番号にほぼ比例し、吸収断面積は原子番号の2乗に比例する。そのためX線で化合物中の軽元素の位置を識別することは容易で無い。しかし、中性子散乱は原子核反応によるので、原子番号に対する依存性は単純では無い。即ち、水素の非干渉性散乱断面積は例外的に大きく、干渉性散乱断面積も鉄や酸素等と大きくは変わらず散乱振幅の位相が負であるという特徴がある。一方、重水素のそれは水素よりも大きく位相が正である。そのため、

水素を重水素で置換することによって、水素の位置をより良く識別できる。ちなみに、ゼオライトの  $\text{Ba}_2[\text{Al}_4\text{Si}_{12}\text{O}_{32}] \cdot 12\text{H}_2\text{O}$  を X 線および中性子で観測した場合の様子を図 1 に模式的に示す。さらに、中性子の質量は、原子核と同じオーダーであるため、散乱の前後の運動量変化を調べる事によって、物質の格子振動などのダイナミクスを知る事ができる。また、 $1/2$  の磁気量子数は、磁性材料の構造や性質を調べるための非常に良い観測子となる。

以上の長所を持つ中性子であるが、現存する中性子散乱施設での中性子源強度は、X 線に比べて数桁低いために、物質の構造の全てを解明することは容易でないといえる。従って、先ず、X 線等によって主要構造を調べてから、中性子散乱で残る軽元素の位置を同定し、また、材料のダイナミクスや磁性構造を調べることが良く行われる。

回折像から物質構造を解明する方法としてリートベルト法等が開発されている。これは、中性子散乱等のデータと結晶の対称性などの初期値から実験で得られた回折像を理論的に組み立てて構造を決めて行くものである。この方法では、中性子散乱振幅や中性子捕獲断面積、非干渉散乱断面積のエネルギー依存データが重要である。今後、これらのデータを精度が良好な JENDL から作り、データファイルにまとめることは有益と考える。

### KENS 新中性子源の設計

KENS の中性子源は、図 2 に示すようにタンタルターゲット、ベリリウム反射体 (220kg)、軽水減速材、固体メタンから成っている。また、中性子のパルス特性を確保するため、反射体から時間遅れで減速材に出てくる低エネルギー中性子を吸収するデカップラーが用いられている。最近、KENS 中性子源の中性子束を測定したところ、冷中性子の強度が本来あるべき強度の 4 分の 1 から半分しか無いことが分かった。その原因は冷中性子ビームラインの引き出し口のデカップラーとしてのカドミウム板が、膨潤して冷中性子の通り道を遮っているためであることが分かった。その改修目的のため、新中性子源の設計を行った。中性子源の基本構成は、ニュートロニクス計算によった。

ニュートロニクス計算は、ロスアラモス国立研究所で開発された LAHET Code System(LCS) 2.7、断面積データに ENDF/B-V を用いた。設計に当たっては、反射体に用いている高価なベリリウムを節約して、現状あるいはそれ以上の性能をあげることを目標とした。そのため反射体として黒鉛を用い、要所にベリリウムを置いて、さらに中性子強度とパルス特性について現中性子源の設計性能を確保するように諸パラメータの最適化を計った。

改修効果は以下の通りである。

1. 35 kg の少ないベリリウムで現在の集合体の設計仕様以上のものが得られた。
2. 冷中性子束は回復し、現状の約 4 倍になる。(図 3 参照)

3. ガドリニウムポイズニングにより、熱中性子束パルス特性は非常に良くなり、ISIS 並の時間分解能が期待できる。(図 4 参照)
4. 熱中性子デカップラー上面に SUS 板を置き、熱中性子の S/N 比を大幅に向上。
5. デカップラーの適正化により、熱外中性子束が 50%増加する。
6. ターゲットをタンタルからタングステンに変えて約 20%中性子収率が上がる。

以上の計算に基づいて、新 TMRA を設計した。改修工事は、2000 年 9 月を予定している。現在、タンタル被覆のタングステンブロックの製作を含めて工事計画を進めている。

### KENS の分光器と核データ採取の可能性

媒質原子によって散乱された中性子の分布は、散乱関数  $S(Q, \omega)$  で表される。 $Q$  は中性子の運動量変化、 $\omega$  はエネルギー変化を表す。この散乱関数を測定することによって原子配列や分子の運動を明らかにできる。分光器は、それを測定する装置である。

分光器には、大別して弾性散乱を利用したものと非弾性散乱を利用したものがある。エネルギーはパルス中性子の特性から飛行時間を測定することによって知る事ができる。弾性散乱の場合、散乱の前後でエネルギーの変化は無く、中性子の全飛行時間と飛行距離から入射中性子のエネルギー、そして対応する波数  $k_i$  が分る。そして、散乱角  $2\theta$  から運動量変化  $Q$  が、 $Q = 2k_i \sin \theta$  の関係から求まる。パルス中性子の場合には、単色化の必要が無く、一度の測定で全ての入射エネルギーに対する  $S(Q)$  を得る事ができる。

非弾性散乱の場合にはエネルギー変化が生ずるため、入射エネルギー及び散乱後のエネルギーを定める必要がある。一つは、直接配置型と呼ばれる方法で、例えばフェルミチョッパーで入射中性子を単色化する。散乱後のエネルギーは、チョッパーから検出器までの全飛行時間からチョッパーから試料に至るまでの時間を差し引く事によって評価できる。入射中性子のエネルギーは、チョッパーの回転速度を変える事によって変えられるので、広範囲のエネルギーのデータを採取できる。一方、逆転配置型と呼ばれる装置がある。この場合、入射中性子エネルギーは白色のまま使い、エネルギー解析用の結晶を用いて、ブラッグ散乱の特性を利用して、結晶の角度を調節して特定のエネルギーの中性子のみを検出器に入射させるというものである。測定効率が良いので、目的に応じて多様なものが開発されている。

KENS には、物質構造研究を目的に表 2 に示すように 17 種類もの分光器が設置されている。これらの分光器を用いて金属材料や毛髪等の構造解明、磁性材料の磁化の仕組み、ゼオライトの触媒作用、高温超伝導材料の構造、環境問題で脚光を浴びている燃料電池やリチウムイオン電池の長寿命化研究など基礎科学と工学の橋渡しの研究、液体、非晶質、有機化合物の構造解明、複雑系を表すフラクタル特性などの基礎科学研究など

多くの成果が得られている。詳細は KENS Report を参照されたい。

そして、表2の分光器の中で断面積測定に役立つようなものは、RATとPENである。RATは、特定のエネルギーで散乱してくる中性子を共鳴中性子検出器により検出する逆転配置型検出器である。共鳴検出器にはウラン238のようなeV領域に強い共鳴を持つものを使用して、中性子捕獲反応で出てくるガンマ線をシンチレータで測定する。これは、運動量変化の大きな散乱の測定が可能であり、これまでに超流動ヘリウムのボーズ凝縮の直接観測、物質中の水素の基底状態の運動量分布等の研究に利用された。また、共鳴を持つ試料からの捕獲ガンマ線を結晶方位を変えて測定して、ドップラー効果を解析することにより試料のデバイ温度を評価することに使用された。図5にTaS<sub>2</sub>中のTaの実効温度の角度依存性(北大・徳田)を例として示す。後者の測定は、中性子捕獲断面積測定の実験と殆ど同じである。eV領域の共鳴パラメータの古いデータは、原子炉とチョッパーを組み合わせて得られたエネルギー分解能の低いビームを用いたものなので、KENSでの高エネルギー分解能の測定に基づいて新たに共鳴パラメータやガンマ線スペクトル等のデータを得ることは、工学的に、原子核物理的にも益の無い事ではないと思われる。また、PENは、偏極核による時間反転の対称性のくずれの解明の研究や偏極中性子の捕獲反応の測定を通じて宇宙創成のシナリオを解明することを目的として開発された装置である。まず、偏極中性子の製法を中心に研究が行われ、偏極化率80~90%の方法が見つかった。偏極中性子を用いての核データの測定は、今後の課題でもある。

#### 大強度陽子加速器統合計画への参画

KEKと原研は、大強度の陽子加速器で生み出される多様な2次粒子を用いての原子核素粒子ならびに物質構造研究のための施設建造計画を共同で進めている。これを統合計画と称している。中性子散乱施設については、陽子ビームパワーとしてMW級のパルス中性子源を中心とした施設が計画されている。その強さは、KENSの3桁上、パルス中性子源として最大のISISの一桁上である。定常の中性子散乱施設として最大のGrenobleのILL炉とは平均中性子束で約4分の1であるが、今後の物質科学で重要な冷中性子についてパルスとしてのピーク強度は、数10倍上という凄まじいものである。米国の2MWのSNS計画との比較においては、冷中性子の強度に優位性が認められる。

この施設の設計は両機関が協議しながら行っており、KENSにおけるパルス中性子源とパルス中性子用の分光器の開発と使用経験と原研における原子力開発で培われた技術とがミックスされた形で進められている。具体的には、中性子源の熱核設計及び施設設計と分光器を中心とした施設設計に別れて行われている。これらの開発研究も並行して行われており、その中には、米国BNLのAGS加速器による中性子源モックアップ実験や遮蔽実験、PSIでの材料照射実験の国際協力も含まれる。ターゲット設計については、水銀ターゲットを第1オプションとして進められているが、固体ターゲットについても

バックアップとして検討を進めている。2 MW 以下ならば、どちらも使用できそうである。今後、技術的検討を行って決定される予定であるが、確定的なことを言うには材料の照射損傷のデータベースの拡充が必要であり、イオン照射実験も含めて研究を進めつつある。

今後、統合計画による施設が本格的に稼動するまでは、KENS は、共同利用者の便を計ると同時に、統合計画に対して先導的な役割を担っていくものとする次第である。

表1 中性子源の主要緒元

---

陽子ビーム	
エネルギー	500 MeV
時間平均電流	~6 $\mu$ A
繰り返し数	20 Hz
パルス幅	50 ns
パルス当たりの陽子数	~ $2 \times 10^{12}$ 個/パルス
中性子発生ターゲット	軽水冷却金属タンタル
中性子減速材	
冷中性子源	固体メタン (26 K)
熱中性子源	軽水 (室温)
熱中性子発生数	~ $5 \times 10^{10}$ n/cm <sup>2</sup> /sec (6 $\mu$ A 時)
(4 $\pi$ 等価時間平均中性子束)	

---

表2 KENS 中性子分光器一覧

名称 (名前の由来または装置機能を表す英語名)	和名	装置の型
熱中性子用		
FOX (Four-circle Single Crystal Diffractometer)	単結晶回折装置	散漫散乱 (単結晶)
LAM-D (Molecular Spectrometer)	分子振動分光器	非弾性散乱 (逆転配置)
HIT (High Intensity Total Scattering Spectrometer)	液体と非晶質反射率計	全散乱 (液体、非晶質)
MRP (Multi-Purpose Medium Resolution Diffractometer)	極端条件下実験回折装置	弾性散乱 (単結晶、粉末)
MAX (Multi Analyzer Crystal Spectrometer)	干渉性散乱分光器	非弾性散乱 (逆転配置)
PEN (Polarized Epithermal Neutron Spectrometer)	偏極熱外中性子分光器	弾性散乱 (透過型)
RAT (Resonance Analyzer TOF Spectrometer)	eV 分光器	非弾性散乱 (共鳴型)
CAT (Crystal Analyzer TOF Spectrometer)	準 eV 分光器	非弾性散乱 (時間焦点法)
INC (Inelastic Neutron Chopper Spectrometer)	チョッパー分光器	非弾性散乱 (direct)
冷中性子用		
LAM-40 (Latticed-crystal Analyzer Quasi-elastic Spectrometer)	準弾性散乱分光器	非弾性散乱 (逆転配置)
LAM-80ET (High Resolution Quasi-elastic Spectrometer)	高分解能準弾性散乱分光器	非弾性散乱 (逆転配置)
LAM-80cl (High Resolution Spectrometer under Extreme Conditions)	極端条件下高分解能準弾性散乱分光器	非弾性散乱 (逆転配置)
Sirius (High Resolution & High Intensity Powder Diffractometer)	高分解能粉末回折装置	弾性散乱 (粉末、多結晶)
	ISIS HPRD 級の性能	
VEGA (Versatile Neutron Diffractometer)	汎用粉末中性子回折装置	弾性散乱 (粉末、多結晶)
TOP (Time-of-flight Spectrometer with Optical Polarizer)	偏極冷中性子反射率計	弾性散乱 (磁性皮膜)
SWAN (Small/Wide-Angle Neutron Scattering Instrument)	小/広角散乱装置	全散乱 (広距離スケール)
WINK (Small/Medium-Angle Neutron Diffractometer)	小/中角散乱装置	全散乱型

cf. LAM (Low Energy Large Analyzer Mirror Spectrometer) エネルギー焦点法

# 中性子の圧倒的な軽元素識別能力

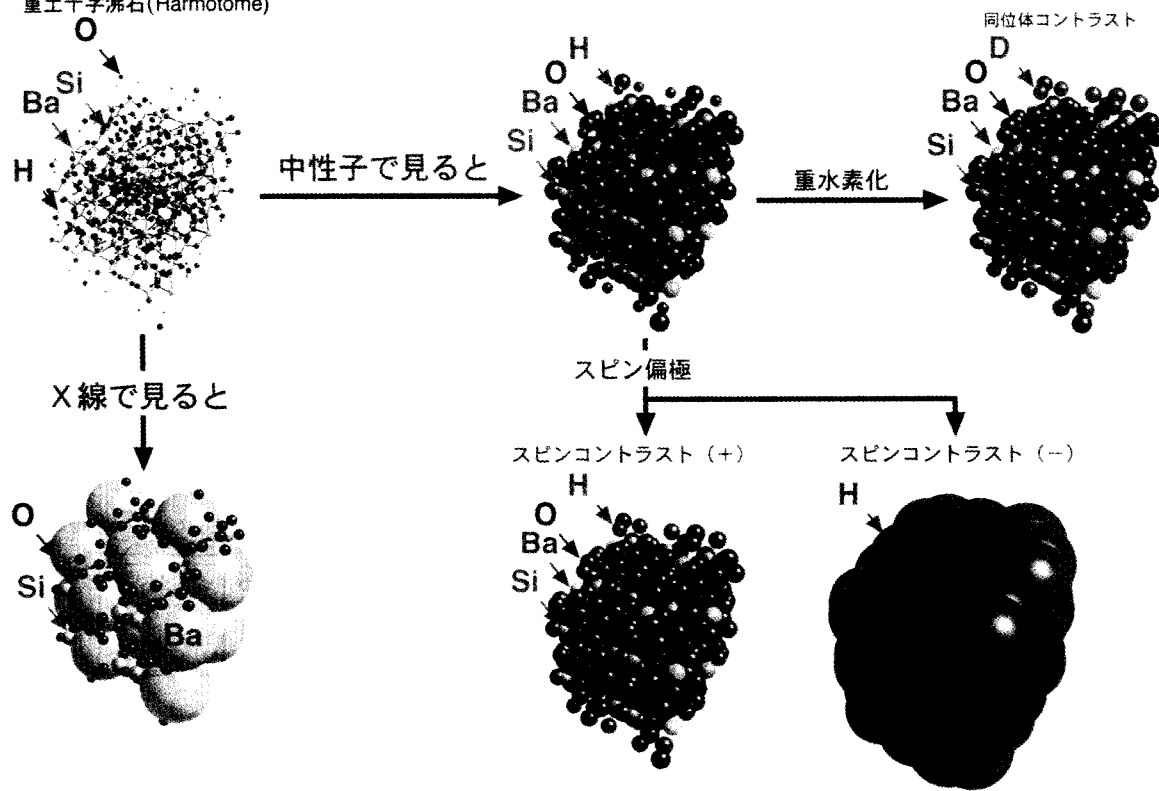
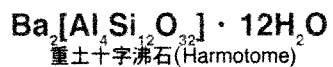


図1 X線と中性子による物質中の元素識別能力に関する模式図 (理研作)

### KENS TMRA

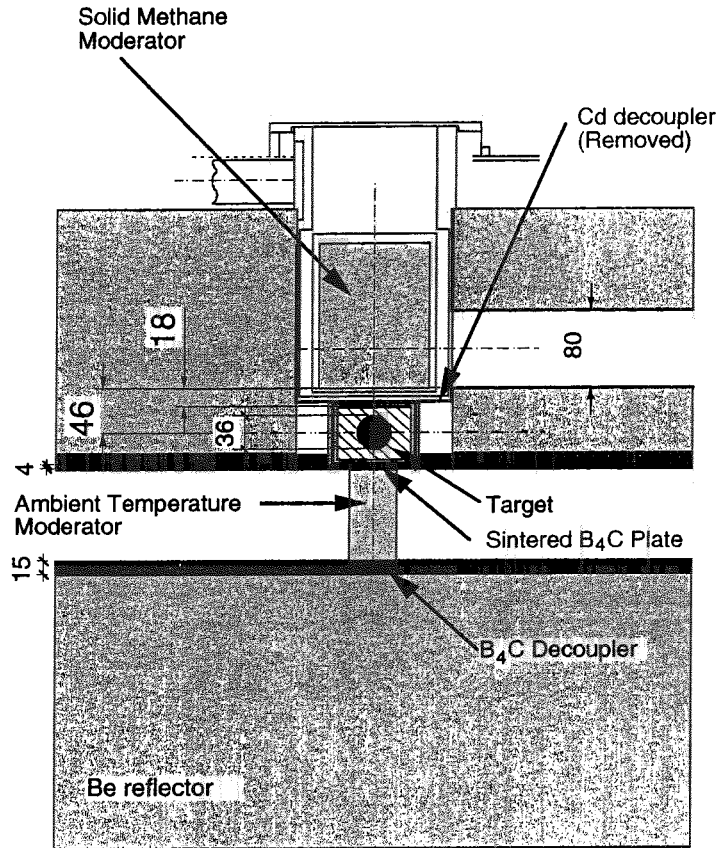


図2 KENS の中性子源の構成概念図

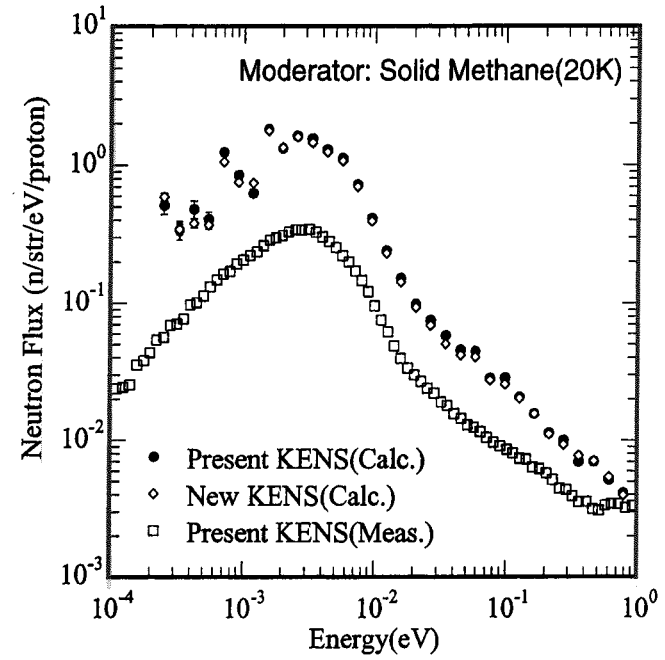


図3 固体メタン減速材から放出される冷中性子スペクトル



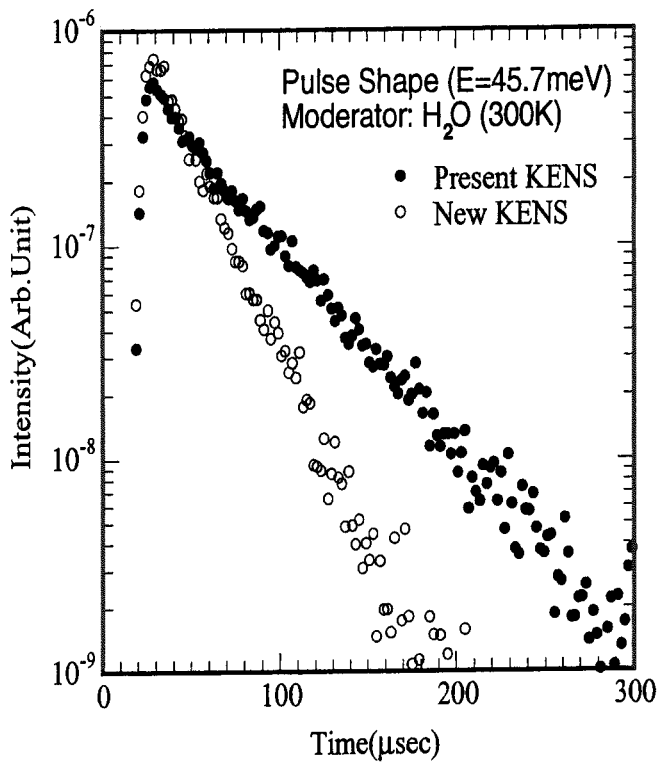


図4 軽水減速材からの45 meV中性子のパルス

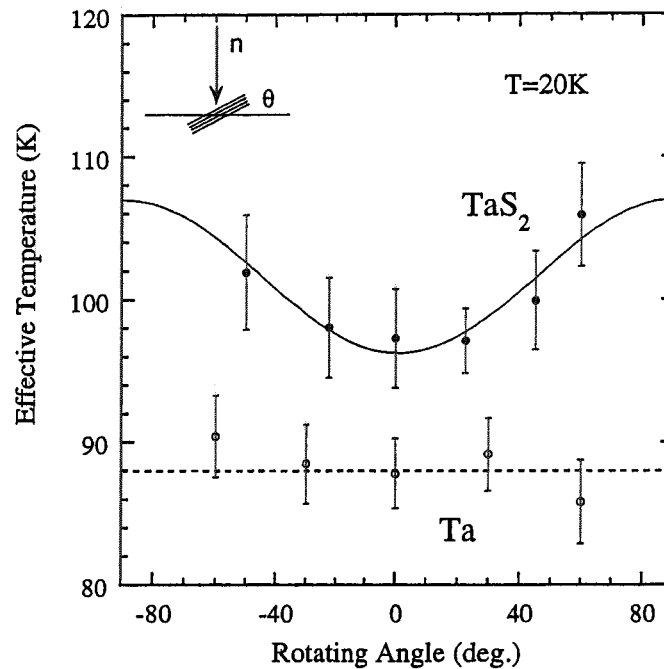


図5  $\text{TaS}_2$ 中のTaの実効温度の角度依存性