



JAEA-Review

2024-037

DOI:10.11484/jaea-review-2024-037

令和 3・4 年度 JRR-3 中性子ビーム利用における  
独自利用研究・技術開発報告

Report on Research and Development of Neutron Beam Utilization  
at JRR-3 for Internal Use in FY2021 and FY2022

物質科学研究センター

Materials Sciences Research Center

原子力科学研究所

Nuclear Science Research Institute

JAEA-Review

November 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課  
〒319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
E-mail: [ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan  
E-mail: [ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

令和 3・4 年度 JRR-3 中性子ビーム利用における独自利用研究・技術開発報告

日本原子力研究開発機構  
原子力科学研究所  
物質科学研究センター

(2024 年 7 月 1 日受理)

JRR-3 (Japan Research Reactor No.3)には、日本原子力研究開発機構（原子力機構）が所管する 15 台の中性子ビーム利用実験装置が設置されており、装置高度化を含めた原子力機構の独自利用を行うとともに施設供用装置として外部利用者に供し、様々な研究成果を創出している。

本報告書は、運転再開後の令和 3 年度、令和 4 年度の独自利用研究および中性子ビーム利用実験装置の高度化などの技術開発の進捗状況を取りまとめたものである。

**Report on Research and Development of Neutron Beam Utilization at JRR-3 for Internal Use  
in FY2021 and FY2022**

Materials Sciences Research Center  
Nuclear Science Research Institute

Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 1, 2024)

Fifteen neutron beam experimental instruments managed by JAEA are installed in JRR-3 (Japan Research Reactor No.3) and are available for internal use including upgrading of instruments and for external users to produce various research results.

This report summarizes the progress of internal application research and technical development such as upgrading of neutron beam instruments in the fiscal years 2021 and 2022 after the restart of operation.

Keywords: JRR-3, Neutron Beam, Neutron Scattering, Neutron Diffraction, Neutron Imaging,  
Neutron Activation Analysis, JAEA

## 目次

1. 概要.....	1
1.1 JRR-3 について.....	3
1.2 JRR-3 利用運転状況.....	4
1.3 JRR-3 における実験利用区分.....	5
1.4 JRR-3 における原子力機構のミッション.....	7
1.5 独自利用の課題公募について.....	7
1.6 JRR-3 申請課題傾向.....	7
2. 各装置の活動状況.....	9
2.1 HRPD 高分解能粉末中性子回折装置.....	11
2.2 TAS-1 三軸型中性子分光器.....	28
2.3 TAS-2 三軸型中性子分光器.....	48
2.4 LTAS 冷中性子三軸中性子分光器.....	59
2.5 SUIREN 偏極中性子反射率計.....	67
2.6 SANS-J 中性子小角散乱装置/ PNO 精密中性子光学装置.....	81
2.7 RESA 中性子応力測定装置.....	108
2.8 PGA 即発 $\gamma$ 線分析装置.....	120
2.9 TNRF/CNRF 中性子ラジオグラフィ装置.....	128

## Contents

1. Introduction .....	1
1.1 About JRR-3 .....	3
1.2 JRR-3 Operation Status .....	4
1.3 Classification of Experimental Use of JRR-3.....	5
1.4 JAEA's Mission in JRR-3.....	7
1.5 Call for Internal Use Proposals .....	7
1.6 Proposal Application Trends for JRR-3 .....	7
2. Use Status of Each Installation .....	9
2.1 HRPD (High Resolution Powder Diffractometer).....	11
2.2 TAS-1 (Triple-Axis Spectrometer-1).....	28
2.3 TAS-2 (Triple-Axis Spectrometer-2).....	48
2.4 LTAS (Low Energy Triple-Axis-Spectrometer).....	59
2.5 SUIREN (Apparatus for Surface and Interface Investigations with Reflection of Neutrons).....	67
2.6 SANS-J (Small-Angle Neutron Scattering)/PNO(Precise Neutron Optics) .....	81
2.7 RESA (Diffractometer for Residual Stress Analysis) .....	108
2.8 PGA (Prompt Gamma-ray Analysis System) .....	120
2.9 TNRF/CNRF (Neutron Radiography Facility) .....	128

# 1.概要

This is a blank page.



1.1 JRR-3 について

日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構または JAEA）が保有する JRR-3 (Japan Research Reactor No.3)は、熱出力 20 MW を有する我が国最大級の研究用原子炉であり、高性能汎用研究炉として学術利用から産業利用まで幅広く活用される定常中性子源である。中性子ビーム利用に関しては、原子力機構だけでなく、大学や量子科学技術研究開発機構も実験装置を設置・運用しており、近年では、J-PARC の物質・生命科学実験施設（MLF）のパルス中性子源とともに我が国の 2 大中性子源としてその中性子利用を支えている。

平成 6 年からの JRR-3 における中性子ビーム利用実績を図 1 に示す。平成 22 年までは、延べ利用日数は徐々に増加しており、利用実績は年間約 5000 日に至っていた。また平成 17 年に JAEA 施設供用制度が設けられ、平成 18 年には文部科学省の「中性子利用技術移転推進プログラム」が導入されたこともあり、産業利用にも多く活用されるようになっていた。東日本大震災を経て新規制基準への適合のために必要な対応を実施し、令和 3 年 2 月 26 日に運転再開した JRR-3 は、同 7 月 12 日から利用運転を再開し、今日までほぼ計画通りの運転を実施してきており、中性子ビーム利用者数も震災前の状況に戻りつつある。

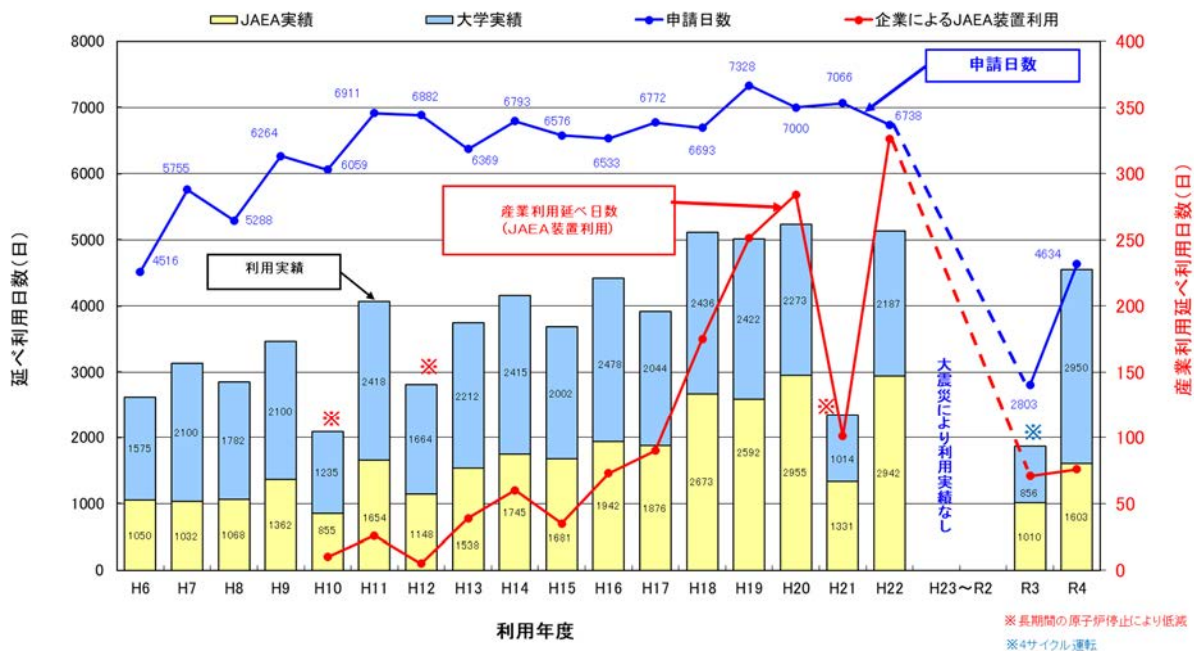


図 1 JRR-3 中性子ビーム利用実績

1.2 JRR-3 利用運転状況

令和4年度までのJRR-3利用運転スケジュールを図2に示す。令和3年度の利用運転は、R3-01サイクル～R3-04サイクルまで4サイクル、計91日を実施し、計画通り完遂した。その後、定期事業者検査を経て、令和4年度はR4-01サイクル～R4-07サイクルまで7サイクルの利用運転を実施した。ただし、R4-03サイクルにおいて、ノイズによる誤信号発生によりJRR-3は自動停止し、7/26～8/12まで17日間運転は行わなかった。結果としてR4年度の利用運転日数は152日となった。

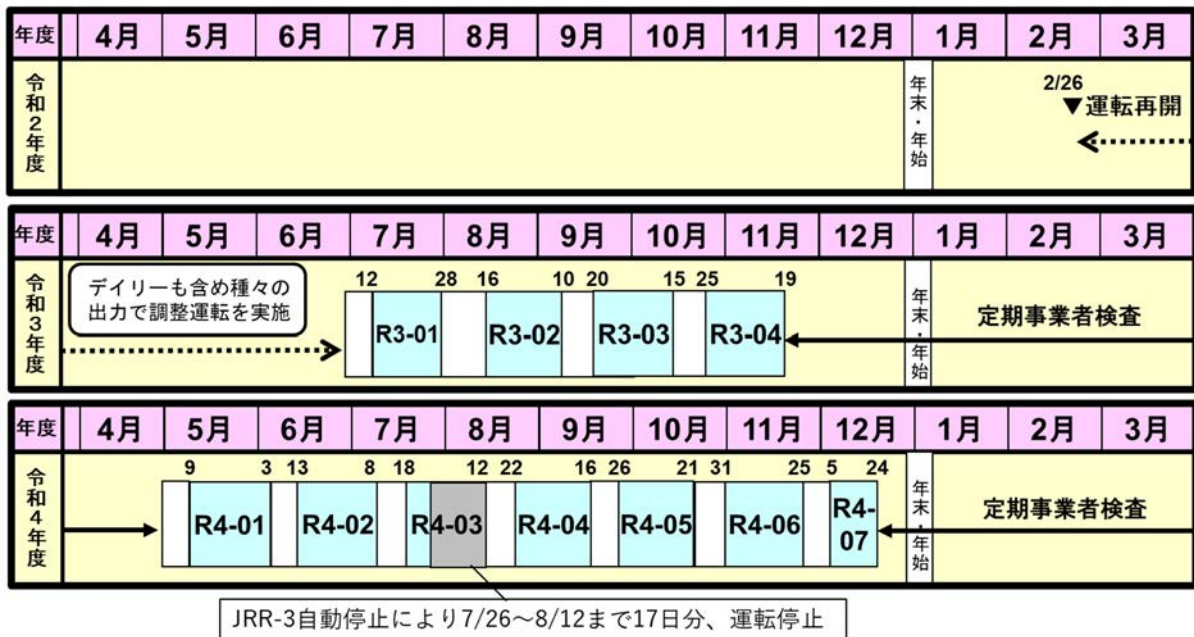


図2 JRR-3 利用運転スケジュール

### 1.3 JRR-3 における実験利用区分

JRR-3 は汎用研究炉であり様々な利用方法があるため、図 3 を用いて整理しておく。JRR-3 は中性子ビーム利用と照射利用の両方のニーズを満たす研究用原子炉である。照射利用では、医療用 RI の製造や原子炉燃料・材料の照射試験、放射化分析等を実施できる。中性子ビーム利用実験装置は、図 4 に示すように原子力機構保有の実験装置（計 15 台）と大学等が保有する実験装置（計 14 台）が設置されており、特に大学が保有する実験装置では学術的成果のみならず、将来の中性子利用技術開発を担う人材の育成に大きく貢献している。

原子力機構保有の実験装置を用いた利用形態としては、「独自利用」と「施設供用」、「大学共同利用」に大別される。「独自利用」は原子力機構職員（博士研究員含む）が課題代表者となり原子力機構のミッションを達成するために行う研究開発であり、基本的に原子力機構が単独で実施する「独自研究」、他機関と共同で実施する「共同研究」、国や企業からの受託事業を実施する「受託研究」、東京大学工学系研究科原子力専攻との連携重点研究制度により実施する「連携重点研究」の 4 つに整理している。加えて、装置調整や装置高度化に係る作業や緊急課題への対応等を行う「装置担当者枠」を設けている。本報告書にて取りまとめる範囲は、図 3 の点線で囲まれた範囲となる。

（連携重点研究制度：<https://tenkai.jaea.go.jp/agreement/link/>）。

「施設供用制度」と「大学共同利用制度」についても簡単に記載しておく。原子力機構では、保有する先端的大型研究施設・設備を公共財として位置づけ、大学・研究機関・企業等に施設を供するために「施設供用制度」を設けており、JRR-3 は施設供用施設の代表として SPring-8 JAEA 専用ビームラインとともに多くの外部利用者を抱えている。「施設供用」には、成果非占有（成果公開）と成果占有（成果非公開）及びトライアルユースの枠があり、いずれも JRR-3 ユーザーズオフィスが窓口となっている。一方で、原子力機構が保有する 4 つの装置（TNRF, CNRF, RESA, PGA）に関しては、同様の装置を大学側が保有していないことから、「大学共同利用」に供する装置としてマシンタイムを大学研究者に提供しており、JRR-3 では東京大学工学系研究科原子力専攻の中に設置されている共同利用管理本部（大学開放研）が窓口となり運営を行っている。制度は異なるが、外部研究者へマシンタイムを提供するという意味において、「大学共同利用」も「施設供用」の一環と捉えている。

（原子力機構施設供用制度：<https://tenkai.jaea.go.jp/facility/index.html>）

（JRR-3 ユーザーズオフィス：<https://jrr3uo.jaea.go.jp/index.htm>）

（東京大学開放研究室：<https://www.tokai.t.u-tokyo.ac.jp/kaihoken/>）

「独自利用」にて開発した新たな中性子利用技術や、その技術活用例としての意味もある先導的研究を成果として示すことにより、大学・研究機関・企業等の研究者から施設利用希望が集まり、「施設供用」を活用した定期公募に課題申請が行われる。利用される中性子ビーム利用実験装置側（シーズ）は、外部研究者や共同研究者から受ける装置開発への要望（ニーズ）を叶えるべく装置高度化や中性子利用技術開発を進め、更に高度な世界最先端の中性子ビーム利用実験装置へと発展させていく。「独自利用」と「施設供用」の組み合わせは、シーズとニーズのマッチングが実験を通じて行われ、社会的課題に対してリアルタイムに対応していく非常に有効な仕組みである。

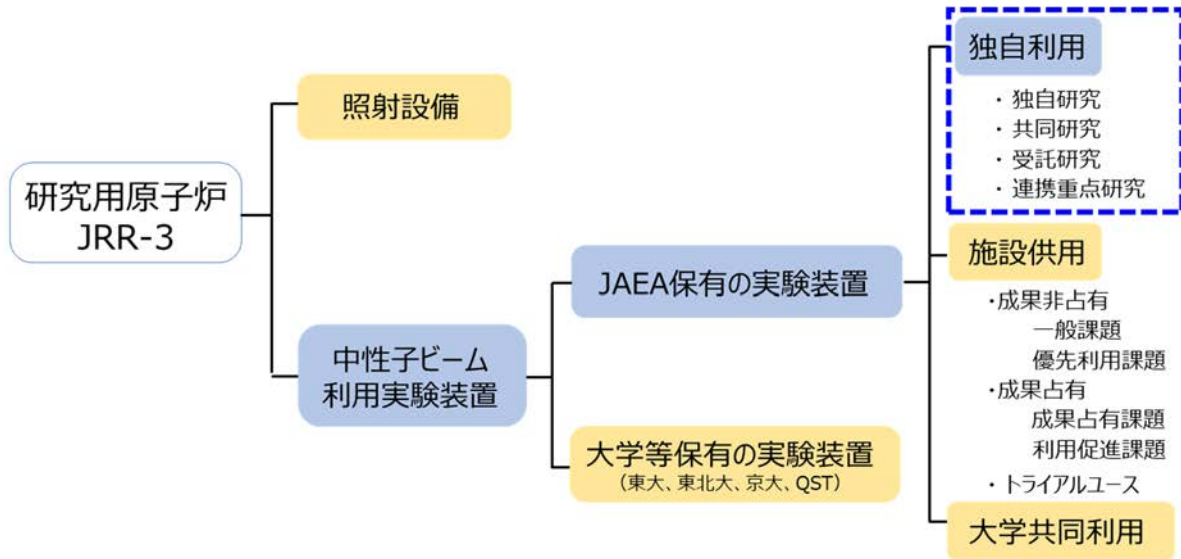


図3 JRR-3における実験利用区分

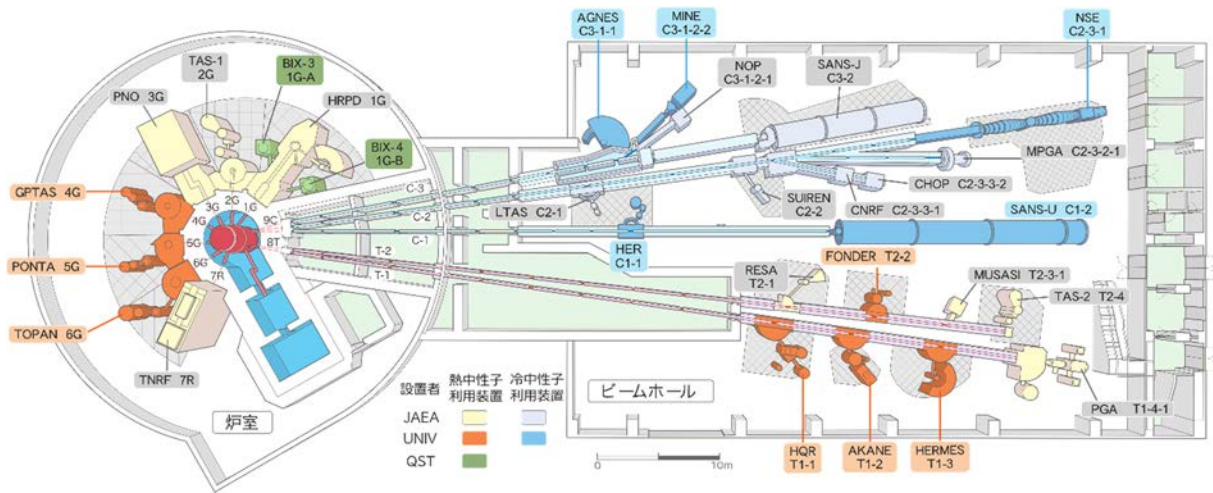


図4 JRR-3 中性子ビーム利用実験装置の配置図 (令和4年時点)

#### 1.4 JRR-3 における原子力機構のミッション

令和 10 年度までの第 4 期中長期計画において、「JRR-3 等の定常中性子源の特徴を活かした中性子利用技術を発展させ、パルス中性子との相補的・相乗的利用も推進し、先端機能性材料・エネルギー材料の開発・機構解明や社会インフラ基盤評価、アクチノイド基礎科学及び分離等のための基礎概念の構築、廃炉・廃棄物処理に資する研究開発等、基礎から応用まで幅広い研究・技術開発を行い、持続可能な社会の実現に貢献する。」と定めており、様々な分野に貢献可能な汎用性の高い JRR-3 の重要性は非常に高い。

#### 1.5 独自利用の課題公募について

独自利用研究課題の公募は、毎年 11 月の原子力機構施設供用課題公募と同時期に共通の課題申請システム（JRR-3 RING システム）を用いて実施しており、「中性子ビーム独自利用課題審査委員会」にて申請課題の審査を行っている。研究課題の目的・重要度や実験計画の妥当性、JRR-3 を用いる必然性だけでなく、原子力機構のミッションに即しているかどうか審査される。

#### 1.6 JRR-3 申請課題傾向

独自利用研究と施設供用（成果非占有、成果占有、トライアルユース、全国大学共同利用）の年度毎の課題申請件数を図 5 に示す。運転再開直後の令和 3 年度は、装置担当者枠を主とする装置調整が行われたことにより、独自研究の割合が若干少なかったが、令和 4 年度には独自研究の増加傾向が大きくなってきた。全体的な傾向は震災前とさほど変化はなく、特筆すべきは運転再開後すぐに外部利用者が戻ってきたことであり、JRR-3 の有用性が示されたと評価している。申請課題数としては、施設供用の割合が 50%以上を占めるが、施設供用課題は 1 件あたりの利用日数が独自利用と比べて少ないため、利用日数としては、50%までは至らない。

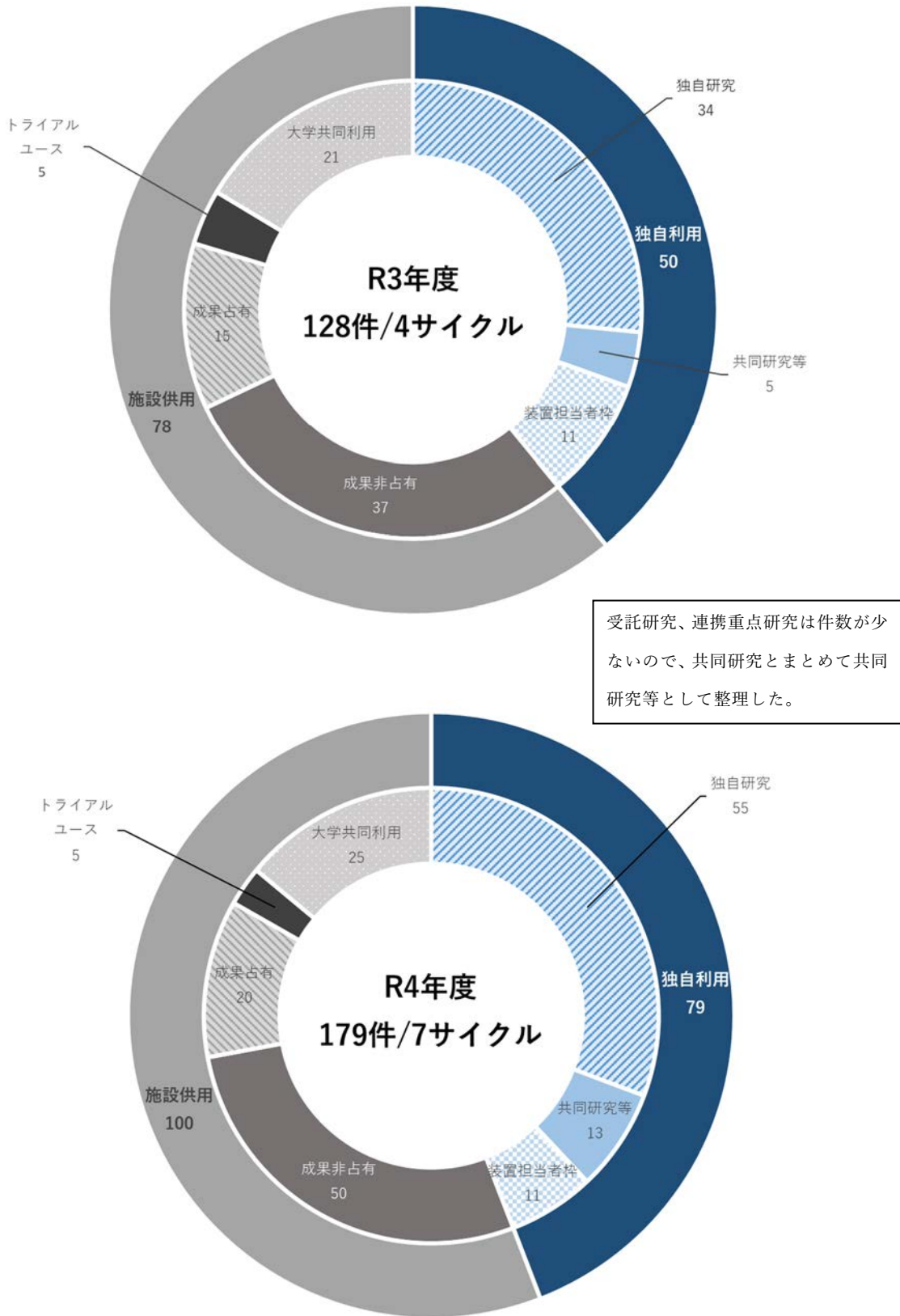


図5 JRR-3 利用課題申請数

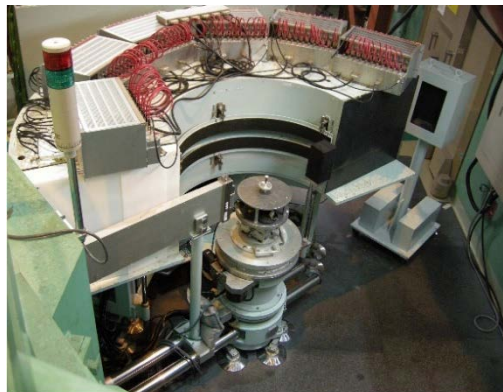
## 2.各装置の活動状況

This is a blank page.



## 2.1 HRPD 高分解能粉末中性子回折装置

装置責任者：樹神 克明、装置担当者：井川 直樹



### 概要

HRPD は粉末試料の中性子回折データを取得するための装置である。64 本の中性子検出器が回折角  $2.5^\circ$  の間隔で配置されており、回折角  $2.5^\circ$  から  $162.5^\circ$  の領域の回折データを得ることができる。通常使用する中性子の波長は  $1.82 \text{ \AA}$  で、上記の回折角は波数領域にして  $0.3 < Q < 6.8 \text{ \AA}^{-1}$  に対応する。この波数はオングストロームからナノメートルの実空間スケールに相当するため、物質の結晶構造や原子核密度分布（正確な言い方をすれば、中性子散乱長の密度分布）を精度良く決定することが可能である。特に中性子が水素やリチウムなどの軽元素に敏感であることを利用して、リチウムイオン 2 次電池の正極材料や燃料電池の固体電解質材料に用いられるイオン伝導性物質について、リチウムイオンや水素イオンの占有位置や伝導経路を調べる研究が進められている。さらに中性子の磁気散乱を利用した、磁性体の磁気構造を調べる研究も行われている。

### 装置詳細

中性子源	熱中性子源
モノクロメータ	Ge (331)面
中性子波長	$\lambda = 1.82 \text{ \AA}$
中性子検出器	6 atm- $^3\text{He}$ 検出器 64 本、 $2.5^\circ$ 間隔

## 試料環境

・ 4K 冷凍機 (-269°C~30°C)



・ 試料交換機



・ 真空電気炉 (30°C~600°C)



## 測定例

イオン伝導体は電子ではなくイオンの移動によって電気伝導が発現する物質で、特に水素やリチウムのような軽元素イオンが伝導する物質は、リチウムイオン二次電池の正極材料や燃料電池の固体電解質への応用が期待されている。イオン伝導性はその物質の結晶構造に依存する。そのためイオン伝導性を示す物質の結晶構造を決定し、さらにイオンが結晶中のどこを伝導しているのかを調べることで、より高いイオン伝導性をもつ物質を得るうえで重要になる。Fig. 1 は HRPD で測定したリチウムイオン伝導体  $\text{LiCo}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{O}_2$  の回折データである。

このデータに対してリートベルト解析および最大エントロピー法解析を行うことによって決定された原子核密度分布を Fig. 2 に示す。左図のように  $1 \text{ fm}/\text{\AA}^3$  の単位で核密度分布をみると、それぞれの原子は結晶格子点上にすることがわかる。これを右図のように  $0.05 \text{ fm}/\text{\AA}^3$  の単位まで拡大してみると、各原子のうち Li だけが 2 次的に分布しており、これが結晶中の Li イオンの伝導経路に対応していることがわかる。X 線回折でも結晶構造解析は可能であるが、Li のような軽元素を検知することが難しく、さらに原子核ではなくその周りの電子の分布を観測する。この結果は中性子の軽元素感受性と原子核による散乱という特性を生かすことで得られたものである (Igawa et al., J. Am. Ceram. Soc. 2010)。

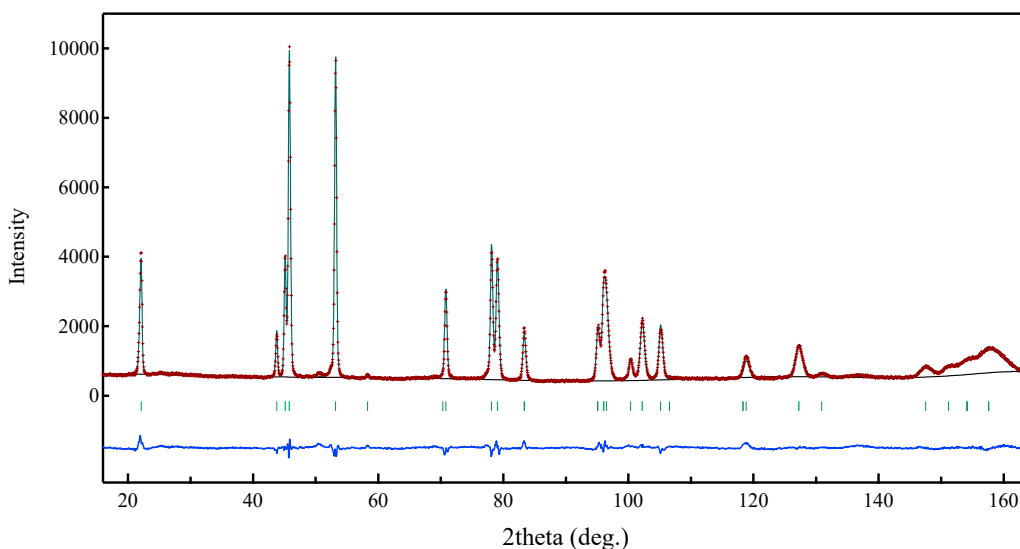


Fig. 1  $\text{LiCo}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{O}_2$  の回折データ

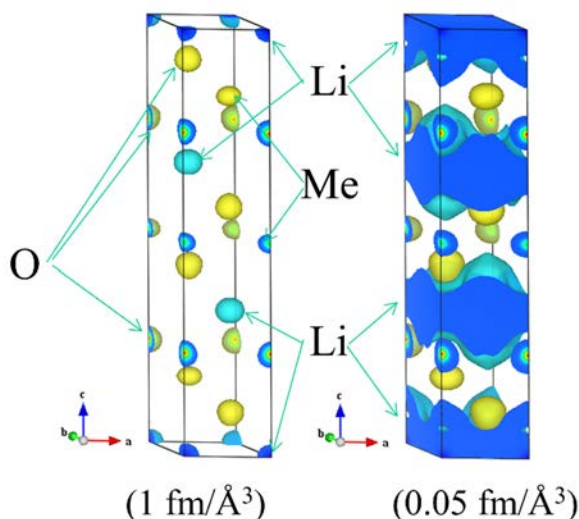


Fig. 2  $\text{LiCo}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{O}_2$  の原子核密度分布

## 粉末中性子回折による燃料電池材料等の結晶構造解析

### Crystal structural analysis of fuel cell materials using neutron powder diffraction

井川 直樹\*、樹神 克明\*、深谷 奈菜\*\*、高橋 東之\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*茨城大学大学院 理工学研究科

#### 概要

---

地球温暖化防止を目的としたカーボンニュートラルを実現するための取り組みの一つである燃料電池のさらなる普及には、出力密度の向上、耐久性の向上、高信頼性や小型化、低コスト化など利便性の向上が必要である。700 °C以下で作動する燃料電池の多くでは、イオン伝導体として液体電解質が使用されている。現在、これらの燃料電池について、安全性や信頼性の観点から全固体型電池の開発が盛んに進められている。しかしながら、全固体型電池は、固体であるがゆえにイオンを高速で伝導させることが難しく、より高いイオン伝導性を持つ固体電解質を開発することが課題となっている。イオン伝導といった材料の機能性は、結晶構造と強い関係を持つ。そこで、高伝導度材料の開発には、材料の構造変化や水素などの伝導イオンの挙動を解明することが重要である。軽元素察知能力に優れた中性子を利用した回折法はそのための有効な手法である。

本課題では、炭酸塩型燃料電池の固体電解質・CsHSO<sub>4</sub>-H<sub>3</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>に着目し、その水素イオン伝導機構の解明するためにHRPDを用いて結晶構造解析を進めている。CsHSO<sub>4</sub>:H<sub>3</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>=9:1のモル比で合成した複合体型固体電解質は、化学式はCs<sub>3</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>であり、空間群が*Pn-3m*の立方晶で、Pを中心としてP-O-W-Oから構成されるPW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>を基本単位とした構造である。また、CsはPW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>構造の中にある比較的大きな空間に配位している。一方、CsHSO<sub>4</sub>:H<sub>3</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>=3:2のモル比で合成した複合体型固体電解質は、化学式がCs<sub>2</sub>HPW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>であり、Cs<sub>3</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub>と同様な構造を有し、格子定数もほぼ同様な値を持つこと、水素はCsの結晶位置に置換して配位していることが分かった。現在、これら水素の位置や挙動を中心とした結晶構造の温度依存性などを系統的に進めている。

#### 使用装置

---

HRPD

#### 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 D403「粉末中性子回折による燃料電池材料等の結晶構造解析」

[2]令和4年度 D662「燃料電池用ペロブスカイト型固体電解質の結晶構造解析」

## Mn<sub>3</sub>CoSi で見つかった格子非整合な磁気反射 Incommensurate magnetic reflections observed in Mn<sub>3</sub>CoSi

山内 宏樹\*, 樹神 克明\*, 井川 直樹\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

### 概要

我々は三角格子の三次元鎖を持つハイパーカゴメ格子金属磁性体 Mn<sub>3</sub>RhSi の合成に世界で初めて成功し、 $T_N = 190$  K の反強磁性体であること、高温磁気散漫散乱が存在すること等を粉末中性子回折で明らかにした。一方、同型化合物 Mn<sub>3</sub>CoSi では先行研究があり、 $T_N \sim 120$  K の反強磁性体であること、中性子回折で 110, 210 周りに格子非整合な磁気反射が存在することが報告されている。今回、多結晶試料を合成し HRPD, MUSASI で中性子回折パターンを測定したところ、110-, 210+ に 120 K 以下で成長する磁気反射を捉えた (Fig. 1)。加えて、これらの反対側にはピークが見えず強度に大きな非対称性があること、100, 111, 200, 211 の周りにも格子非整合な磁気反射がある(ように見える)ことがわかった。しかし、単位胞中の Mn 原子数(12 個)が多いため、捉えたピーク数よりも磁気変調構造を記述するための変数の方がずっと多く、磁気構造の解を得るに至っていない。単結晶ではこれらの格子非整合反射が見つからないため、現状、粉末多結晶試料のデータに頼らざるを得ない状況である。令和 5 年度以降も J-PARC の高分解能粉末回折装置を用いて実験を行うなど、格子非整合な磁気構造を解明する研究を継続する。

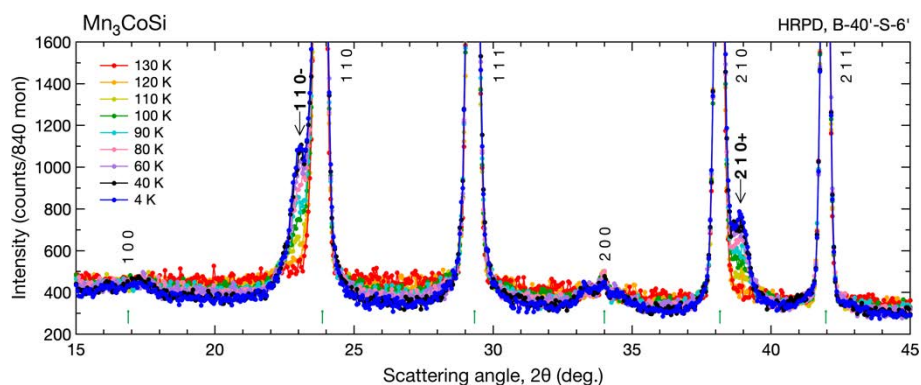


Fig. 1 HRPD で測定した Mn<sub>3</sub>CoSi の粉末中性子回折パターンの温度依存性

### 使用装置

HRPD, MUSASI-L

### 実施課題 No.

- [1]令和 3 年度 D426 「Mn<sub>3</sub>CoSi における磁気秩序および散漫散乱」
- [2]令和 4 年度 D603 「Mn<sub>3</sub>CoSi で見つかった格子非整合磁気反射」

## 最もイオウ含有率の高い硫化クロム CrS<sub>3</sub> の磁気構造の解明

### Elucidation of the magnetic structure in sulfur-richest chromium sulfide CrS<sub>3</sub>

福田 竜生\*、福岡 宏\*\*、金原 史武\*\*、樹神 克明\*\*\*、吉井 賢資\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター エネルギー材料研究グループ

\*\*広島大学 大学院先進理工系科学研究科

\*\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

---

共同研究者の一人でもある福岡らにより、高圧高温合成法によって合成に成功した硫化クロム CrS<sub>3</sub> は、Cr-S 系のこれまで知られている中で最も S/Cr 比の高い硫化物である。構造解析の結果、二つの CrS<sub>6</sub> 八面体が稜を共有してできる Cr<sub>2</sub>S<sub>10</sub> ダイマーが、頂点共有により連結した構造、見方を変えればマーカサイト (FeS<sub>2</sub>) 構造中の遷移金属サイトの 1/3 が規則的に欠損した構造であり、全ての硫黄がジスルフィドイオン ([S-S]<sup>2-</sup>) を形成する特異な新構造を持つ事が分かっている。

(H. Fukuoka, *et al.*, Inorg. Chem. 59 (2020) 13320)

本化合物は電気伝導度測定の結果から半導体であり、磁化率測定の結果から室温で強磁性を示す。しかし、化合物中の Cr イオンは全て 3 価であるが、飽和磁化から見積もった Cr イオン 1 個あたりのスピンは理論値の 1/20 しかなく、この原因解明に興味を持たれている。Cr イオンの連結形式は、稜を共有する CrS<sub>6</sub> 八面体間に見られる距離の短い Cr-Cr と、八面体の稜共有部に見られる硫黄を介した Cr-S-Cr の二種類の相互作用が考えられるが、磁気構造は分かっていない。本研究では、CrS<sub>3</sub> の磁気相転移点上下における温度での粉末中性子回折測定により磁気構造を明らかにする事で、スピン数の減少の原因を突きとめるとともに、他の構造を持つ Cr-S 系との比較により、この系の磁性の理解を深める事を目指した。

測定の結果、いくつかの温度変化する磁気ピークが観測されたが、当初の予想とは異なるものであった。現在、詳細な解析によりいくつかの磁気構造の候補が得られており、他の測定結果等とも組み合わせて CrS<sub>3</sub> の磁気構造決定を目指している。

#### 使用装置

---

HRPD

#### 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 D435 「最もイオウ含有率の高い硫化クロム CrS<sub>3</sub> の磁気構造の解明」

# グリセロール水溶液の凍結・融解・昇温結晶化における水の構造解析

## Analysis of freezing, melting and recrystallization of water in glycerol-water mixture

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

---

食品と水分子との相互作用の理解は、食品科学の研究において極めて重要である。水分活性 ( $A_w$ ) の概念は食品中の水の状態を示す指標として 60 年以上前に導入され、微生物の増殖、酵素活性、保存性、食品の品質の実用的で信頼性の高い指標として利用されてきた。グリセロール-水混合物は、その混合割合を変えることで  $A_w$  を制御できる。この系は、試料調製が容易であることから、分子構造、ダイナミクス、水素結合ネットワークなど、様々な観点から実験的、理論的に研究されてきた。最近、申請者らは水-グリセロール混合物の示差走査熱量測定 (DSC) により、グリセロール濃度が低い状態では水の凍結・融解が観測され、またグリセロール濃度の高い溶液中の水が過冷却状態になることが示され、その中間領域では昇温結晶化が観測されることを示した。

本研究では、中性子回折によってグリセロール水溶液の水の凍結・融解・昇温結晶化における水の構造状態を解析することを目的とした。水分活性が 0.83 の時にはグリセロール水溶液の冷却に伴い生成される氷の中性子回折ピークが観測され、DSC と矛盾のない結果を得た。一方、水分活性が 0.77 の場合、DSC では 5 K/min での温度変化速度で昇温結晶化がみられるが、HRPD では昇温速度が 1 K/min よりも遅く、冷却過程で氷の生成が生じてしまうことが分かった。DSC では、温度が下がった状態の炉体に試料を投入して急冷することで、その後の昇温過程で昇温結晶化がみられることが分かっている。今後は、中性子回折実験においても試料の冷却方法などを検討する必要がある。

### 使用装置

---

HRPD

### 実施課題 No.

---

[1]令和 3 年度 D459 「グリセロール水溶液の凍結・融解・昇温結晶化における水の構造解析」

## 中性子回折による澱粉の水和構造の解析 Hydration structure of starch by neutron diffraction

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

---

澱粉は穀物の主成分であり、世界中の国・地域の人々の主食となっている。そのため、古くから研究されているが、蛋白質や脂質など他の栄養素と比べてその高次構造をはじめ、その物理化学的特性の解明が遅れている。澱粉の構造物性の特徴は、分子組成は均一であるが、糊化や老化といった分子構造・形態・水分状態の変化によって、マクロな品質を変えることにある。特に、食品加工や調理科学の観点から、水の存在状態での加熱による澱粉の糊化は、澱粉を人間が食べられる状態にするために重要なプロセスである。そのため、澱粉の結晶構造のみならずその水和構造を調べることは重要である。

B型結晶である馬鈴薯澱粉の(重水/軽水)の割合を変えた試料で中性子回折実験を実施した結果、(重水/軽水)の割合に依存しない澱粉分子由来のピークに加え、(重水/軽水)の割合で強度が変化するピークの存在を確認した。中性子小角散乱ではラメラ構造に関係した水和構造がコントラスト変調法で確認されているが、中性子回折においてこのような(重水/軽水)の割合の依存性はほとんど解析されていない。中性子回折では、X線回折では解析が難しい澱粉の水和構造に関する情報を引き出せる可能性を示している。塩添加による効果なども含め、引き続き、澱粉の水和構造の詳細について解析を進める。

### 使用装置

---

HRPD

### 実施課題 No.

---

- [1] 令和3年度 D460「糊化過程における澱粉の水和構造に対する塩の影響の解析」
- [2] 令和3年度 D461「澱粉の加熱過程における水和構造の解析」



## 金属磁性体 $Mn_3CoSi$ の磁気 PDF 解析

### Magnetic pair distribution function analysis on $Mn_3CoSi$

樹神 克明\*、山内 宏樹\*、井川 直樹\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

金属磁性体  $Mn_3TX$  ( $T=Co, Rh, Ir$ ;  $X=Si, Ge$ ) は立方晶で反転対称性がない結晶構造をもつ。磁性イオンである Mn 原子は 3 種類の正三角形 Mn ユニットに共有され、それらが 3 次元的につながった構造をもつ。 $Mn_3RhSi$  では最低温から 700 K までの幅広い温度領域で磁気散漫散乱が観測され、短距離磁気秩序または動的磁気クラスターの存在が議論されている。同系の  $Mn_3CoSi$  は約 150 K で磁化率に異常が観測され、150 K 以下では核ブラッグピークの裾の格子非整合な位置にややブロードな磁気散乱ピークが観測されているが、その磁気構造は決定されていない。我々はこの系の磁気状態を局所的な観点から調べるために、HRPD を用いて粉末回折実験を行い、得られた回折データから磁気散乱成分を抽出して磁気対相関関数（磁気 PDF）を導出した。

Fig. 1 に 100 K で得られた  $Mn_3CoSi$  の磁気 PDF を赤線で、また  $Mn_3RhSi$  の磁気転移温度直下で得られた磁気 PDF を青線で示す。 $Mn_3RhSi$  の磁気 PDF の  $r > 5$  Å の領域は長距離磁気秩序状態の磁気構造で再現できるが、それより短距離領域は長距離磁気秩序では説明できず、磁気散漫散乱を示す短距離磁気秩序または磁気クラスターによる寄与である。この  $Mn_3RhSi$  の磁気 PDF と  $Mn_3CoSi$  の磁気 PDF の形状は類似している。 $Mn_3CoSi$  の回折パターンには  $Mn_3RhSi$  と同様の位置に磁気散乱が観測されていることから、両者の磁気 PDF の類似は妥当である。ただし磁気散乱ピークの幅は  $Mn_3RhSi$  と  $Mn_3CoSi$  では大きく異なっており、磁気状態には両者で違いがある。現在これらの結果をもとに  $Mn_3CoSi$  の磁気状態を調べている。

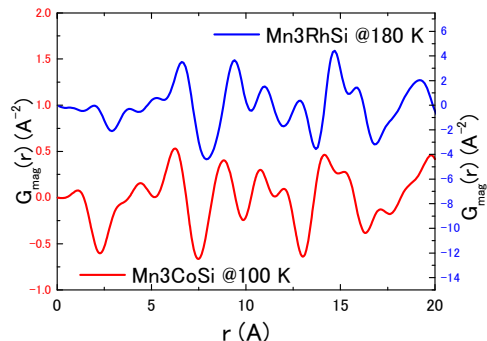


Fig. 1  $Mn_3CoSi$  (赤) および  $Mn_3RhSi$  (青) の磁気 PDF

#### 使用装置

HRPD

#### 実施課題 No.

[1]令和 3 年度 D554 「金属磁性体  $Mn_3CoSi$  の磁気 PDF 解析」

中性子粉末回折実験を用いた  
タングステンブロンズ強誘電体  $\text{Ca}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$  の酸素位置の決定  
Determination of oxygen positions in the tungsten bronze ferroelectric  $\text{Ca}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$   
using neutron powder diffraction experiments.

米田 安宏\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター エネルギー材料研究グループ

## 概要

---

タングステン型ブロンズ構造を有する一連の化合物質では「低温相領域において高温相が再び現れる」という、いわゆるリエントラント相転移が観測される。我々がリエントラント相転移の研究対象として選んだ  $\text{Ca}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$ (略称 CBN)は粉末サンプルにおいても層方向の超格子反射を観測することができることから全散乱法を用いた構造解析を行っている。これまで単結晶の育成が可能な物質でしかリエントラント相転移を議論することができなかったが、CBN においては組成を細かく調整した粉末サンプルを使うことができる。全散乱法では初期値として平均構造を用いるが、X 線では特定が困難な酸素の座標を中性子回折実験から決定することが本研究の目的である。

中性子回折実験で得られた酸素位置と放射光 X 線回折実験で得られた金属イオン位置から、実験的に得られた 2 体相関分布関数を再現することができた。よって、この構造モデルを検証するため、現在放射光を用いた分光的手法を準備中である。

## 使用装置

---

HRPD

## 実施課題 No.

---

[1]令和 3 年度 D563「中性子粉末回折実験を用いたタングステンブロンズ強誘電体  $\text{Ca}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$  の酸素位置の決定」

## メモリ機能を示すアルミ酸化物の局所構造

### Local structure of alumina with nonvolatile memory function

久保田 正人\*、樹神 克明\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

---

DRAM は、コンピュータのメインメモリとして広く活用されているが、消費電力が大きいという問題を抱えている。DRAM を不揮発メモリで置き換えられれば、消費電力を劇的に少なくできる。消費電力課題を克服できる次世代不揮発メモリには、低消費電力、高速応答性、高書き換え回数等といった特性が求められる。そうした次世代メモリの中で、抵抗変化型不揮発メモリ (ReRAM) は有力な候補である。ReRAM としては、遷移金属酸化物材料が広く研究されている。しかし、低抵抗状態と高抵抗状態が切り替わる際に、遷移金属酸化物材料では化学変化により遷移元素の価数が変わり、副生成物が生じるので劣化しやすい。そのために、書き換え回数には限界があり DRAM に置き換えることは困難である。

我々は、アモルファスアルミ酸化物抵抗変化型不揮発メモリの研究を行っているが、メモリ機能発現のメカニズムは未解決のままである。本研究では、アモルファスアルミ酸化物を用いて、HRPD で中性子回折実験を開始し、測定したデータを基に PDF 解析を試みた。測定 Q レンジが更に広い範囲で測定した方が、原子対の同定をより行い易いことが明らかとなった。この結果を踏まえ、令和 5 年度以降は、J-PARC 等も活用して、局所構造がメモリ機能に与える影響を明らかにしていく予定である。

#### 使用装置

---

HRPD

#### 実施課題 No.

---

[1] 令和 4 年度 D589「次世代不揮発メモリアルミ酸化物材料の高温下における機能と構造の相関」

## 中性子回折による結晶構造の異なる澱粉の構造解析

### Structural analysis of starch with different crystal structures by neutron diffraction

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

澱粉は穀物の主成分であり、世界中の国・地域の人々の主食となっている。そのため、古くから研究されているが、蛋白質や脂質など他の栄養素と比べてその高次構造をはじめ、その物理化学的特性の解明が遅れている。澱粉の構造物性の特徴は、分子組成は均一であるが、糊化や老化といった分子構造や水分状態の変化によって、マクロな品質を変えることにある。一方、由来植物によって A 型や B 型と呼ばれるような結晶型の違いが X 線回折で確認されており、このような取り得る結晶構造と澱粉の物性の関係性を調べることは澱粉科学の重要な課題となる。これまでの X 線回折データに基づく澱粉の結晶構造からは、A 型結晶では二重らせん間に均等に水分子が分布しているのに対して、B 型結晶では二重らせんが形成する六方体の中心部分に水分子のクラスターが存在すると推測されているが、実験的に確証は得られていない。

B 型結晶である馬鈴薯澱粉の(重水/軽水)の割合を変えた試料での中性子回折実験の結果では、(重水/軽水)の割合に依存しない澱粉分子由来のピークに加え、(重水/軽水)の割合で強度が変化するピークが存在する一方、A 型結晶を持つワキシコーンスターチでは、(重水/軽水)で強度が変化するような明瞭なピークは確認できなかった。これは、結晶構造が異なる澱粉の水和構造の違いを示唆するものであり、X 線回折では解析が難しい情報を引き出せる可能性を示している。湿熱効果なども含め、引き続き、澱粉の結晶構造と水和構造について解析を進める。

#### 使用装置

---

HRPD

#### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 D609 「湿熱処理澱粉の水和構造の解析」

[2]令和 4 年度 D610 「分子構造の異なる澱粉の水和構造の解析」

## 中性子回折による出土琥珀の産地推定

### Estimation of excavated amber by neutron diffraction

中川 洋\*、山口 繁生\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*元興寺文化財研究所 保存科学研究グループ

#### 概要

---

琥珀は縄文時代、古墳時代、奈良時代、平安時代の遺跡から多数出土する埋蔵文化財である。出土琥珀の産地を明らかにすることは、当時の交流や物流を知るうえで重要な研究である。これまでに行われてきた自然科学分析による琥珀の産地推定では、FT-IR や熱分析などが用いられてきた。ただし、文化財分析では分析対象を損なうような分析は基本的には行われず、例外的に試料採取を伴う分析を行う際も、採取量は必要最小限にとどめられる。一方、考古学的な知見からその産地に関する研究も行われており、総説も報告されている。しかし、それらの報告に記載された産地は地理的な立地から考察された結果であるため、これまでの科学分析で得られている結果と異なるものも多く、結論は得られていない。よって、より確度の高い科学的産地推定法を確立するとともに、これまでは推定が難しかった琥珀の産地推定を可能にすることは、琥珀を通じて当時の交流・物流の様相を明らかにするうえで、文化財分析の必須の課題である。

本研究では各琥珀産地の地質年代による分子構造の違いが産地推定の指標になるのではないかという作業仮説のもと、中性子回折法で琥珀試料を測定した。その結果、産地の違いなどで特に目立った中性子回折ピークは観測されなかった。このことは琥珀には結晶性の分子構造がほとんどなくアモルファス状態にあることを示している。現在、琥珀の中性子非弾性散乱スペクトルの解析を進めているが、中性子回折による結果は、数 meV のエネルギー領域で観測されるブロードなピーク(ボソンピーク)は琥珀のアモルファス構造に由来するという解釈と矛盾しない。

#### 使用装置

---

HRPD

#### 実施課題 No.

---

[1]令和4年度 D611「中性子回折による出土琥珀の産地推定」

## Structural investigation of $A_2B_2O_7$ oxide series

Yo Tokunaga\*, Ross H. Colman\*\*, Milan Klicpera\*\*, Staško Daniel\*\*, Petr Opletal\*,  
Hironori Sakai\*, Chihiro Tabata\*.,\*\*\* and Koji Kaneko\*.,\*\*\*

\*Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency

\*\*Faculty of Mathematical and Physical Sciences, Charles University, Prague, Czech Republic

\*\*\*Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

### Abstract

---

The  $A_2B_2O_7$  oxides are useful for several technological applications. Serving as solid oxide fuel cells due to their high ionic conductivity, as well as thermal barrier coatings, and nuclear waste storage. Significant effort has been dedicated to finding materials with improved thermomechanical properties and higher ionic conductivity, both tightly related to structure.

In the rare-earth zirconate series,  $A_2Zr_2O_7$ , there is a structural crossover from pyrochlore-type ( $A \leq Gd$ ), to defect-fluorite-type ( $Tb \geq A \leq Yb$ ), eventually resulting in a different rhombohedral end member structure type ( $A = Lu$ ). There is significant evolution of the local structure across the nominally defect-fluorite region, with local structure correlations that are contentiously discussed within the literature that remain important to understanding the properties of these materials.

The rare earth titanates  $A_2Ti_2O_7$  all crystallize in the pyrochlore structure type. Neutrons are needed to carefully track both the average and local structures due to the enhanced scattering contrast of the light oxygen anions, but changing the rear-earth leads to wildly varying scattering lengths from one member to the next across the zirconate or titanate series alone.

With this experiment, we use the HRPD instrument of JRR-3 to track the average crystal structure of the solid solution series  $A_2(Zr_{1-x}Ti_x)_2O_7$  for rare earth ions Er and Zr. This has allowed a complete traversal of the pyrochlore — defect-fluorite — rhombohedral structural evolution in a single substitutional series. The HRPD high-resolution reciprocal space data sets collected during this experiment time form part of a larger dataset including real-space nPDF data using also BL21 NOVA of J-PARC. Analysis and paper writing is ongoing, with expected completion within 2024.

### Instruments

---

HRPD

### Proposal No.

---

[1]FY2022 D652 “Structural investigation of  $A_2B_2O_7$  oxide series”

## HRPD を用いた磁気 PDF 解析の開発

### Magnetic pair distribution function using HRPD

樹神 克明\*、井川 直樹\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

磁気対相関関数（磁気 PDF）はある磁気モーメントからある距離に位置する磁気モーメントとの相関を表す物理量であり（Fig. 1 右）、スピングラスやスピン液体など、周期性を持たないエキゾチックな磁性状態の磁気構造を調べるうえで有効である。これまで我々は J-PARC に設置されている全散乱装置 NOVA において磁気 PDF 解析法を開発してきたが、本課題により HRPD でもそれを実施可能にする。大きな磁気モーメントをもち、さらに単純な磁気構造を持つ  $\text{MnF}_2$  を標準試料として HRPD で粉末回折実験を行った。得られたデータに対し、核ブラッグピーク、バックグラウンドおよび試料容器からの散乱を除去することにより磁気散乱強度を抽出し、さらにバナジウムの非干渉性散乱を利用して強度の絶対値化を行うことにより磁気 PDF を導出した。得られた結果は絶対値も含めて  $\text{MnF}_2$  の反強磁性磁気構造から計算される磁気 PDF とよく一致しており（Fig. 2）、HRPD でも正確な磁気 PDF が得られることがわかる。またこの過程において HRPD ではピーク形状がシャープかつ対称的のために核ブラッグピークの除去が容易であり、磁気 PDF 解析に適していることも明らかになった。

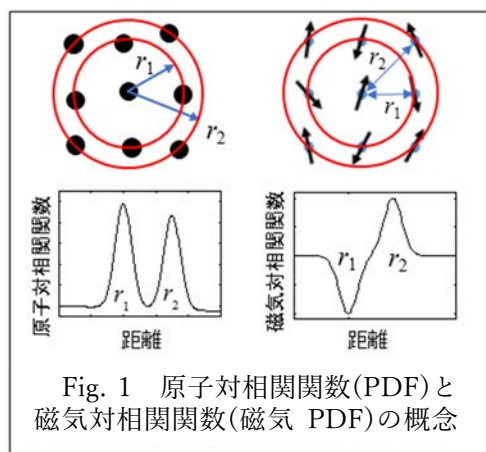


Fig. 1 原子対相関関数(PDF)と磁気対相関関数(磁気 PDF)の概念

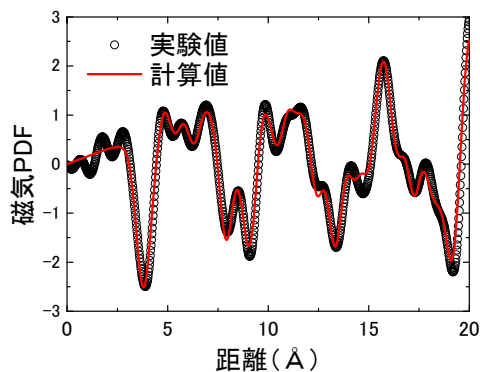


Fig. 2 HRPD を用いて得られた  $\text{MnF}_2$  の磁気 PDF (白丸) と磁気構造から計算された磁気 PDF (赤線)

#### 使用装置

HRPD

#### 実施課題 No.

[1]令和3年度 D413「HRPD を用いた磁気 PDF 解析法の開発」

#### ユーザーミーティング

- 令和5年3月9日  
TAS-1, TAS-2, LTAS, HRPD ユーザーミーティング 於：原子力科学研究所  
樹神 克明  
“装置からの報告：HRPD”

#### 学会等で発表された成果

- 令和4年9月12～15日  
日本物理学会 2022 年秋季大会 於：東京工業大学  
深谷 奈菜、樹神 克明、井川 直樹、高橋 東之  
“CsHSO<sub>4</sub>-Cs<sub>x</sub>H<sub>(3-x)</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub> 複合体の結晶構造” (口頭)
- 令和4年10月26～29日  
日本中性子科学会第22回年会 於：幕張メッセ国際会議場  
樹神 克明、山内 宏樹、本田 孝志、社本 真一、井川 直樹、池田 一貴、大友 季哉  
“磁気対相関関数を用いたフラストレート金属磁性体の局所磁気構造解析” (ポスター)
- 令和4年12月6～8日  
第48回固体イオニクス討論会 於：トークネットホール仙台  
深谷 奈菜、樹神 克明、井川 直樹、前田 知貴、能田 洋平、小泉 智、高橋 東之  
“CsHSO<sub>4</sub>-Cs<sub>x</sub>H<sub>(3-x)</sub>PW<sub>12</sub>O<sub>40</sub> 複合体のマルチスケール構造解析” (口頭)



独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…5件

    成果占有課題（トリアルユース含む）…0件

    成果非占有課題…5件

成果非占有課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
模擬酸化物デブリ固溶体の溶解挙動の理解に向けた中性子構造解析 (SANS-J)	京都大学
中性子回折による ALPS 沈殿系廃棄物のリン酸塩固化体の構造解析	東京工業大学
Ba <sub>3</sub> Zn(Ru <sub>1-y</sub> Nb <sub>y</sub> ) <sub>2</sub> O <sub>9</sub> の特異なスピン液体状態	明治大学
Sc <sub>0.6</sub> Fe <sub>2</sub> Si <sub>4.9</sub> 型構造を持つウラン系新物質の磁気構造(TAS-1)	富山大学
Ba <sub>3</sub> ZnRu <sub>2</sub> O <sub>9</sub> および関連物質が示す特異で多彩な磁気状態	明治大学

## 2.2 TAS-1 三軸型中性子分光器

装置担当者：金子 耕土、田端 千紘、萩原 雅人



### 概要

JRR-3 には TAS-1、TAS-2、LTAS の異なる特性をもった 3 台の三軸型中性子分光器が設置されている。三軸型中性子分光器は、単結晶および多結晶試料について、その結晶構造やスピン構造を決定する弾性散乱実験、格子振動やスピン波など物質内部の励起現象を観測する非弾性散乱実験を中心に、主に基礎物性研究に用いられている。これらの 3 台の装置を協奏的に利用することで、幅広い波数-エネルギー領域を網羅した特徴ある研究が展開されている。

TAS-1 は、JRR-3 炉室の 2G ビームポートに設置された熱中性子三軸型分光器である。TAS-1 の最も大きな特徴は、高強度、高エネルギー（短波長）に加え、偏極中性子実験のための豊富なオプションを備えていることである。中でも、中性子のスピン状態を 3 次元的に制御・検出出来る CRYOPAD を装備していることが世界的にも大きな特徴となっている。偏極中性子の特徴を活かして、原子が持つ磁石の性質であるスピンの構造(磁気構造)および運動(時間で揺らぐ様子)、特に最近の磁性材料の鍵となっている、掌性(右巻き、左巻き)を含む複雑な磁気構造を解明することに優れている。これに磁場、電場、高圧力を組み合わせることで、極限試料環境での物質の状態を調べることが可能である。

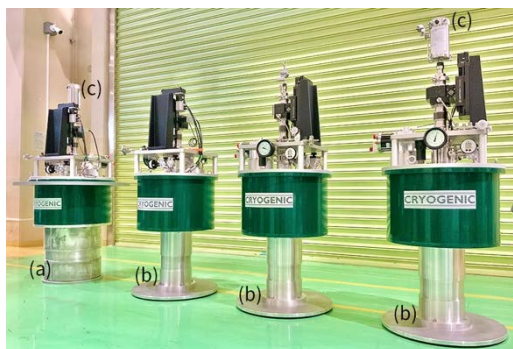
### 装置詳細

中性子源	重水タンク(炉心周囲減速材)
モノクロメータ部	(i) 非偏極用：垂直集光型 PG 結晶(002) (ii) 偏極用：水平集光型ホイスラー結晶(111) エネルギー範囲：8~100 meV
試料部	散乱角 $-10^{\circ} \sim 110^{\circ}$
アナライザ部	(i) 非偏極用：垂直集光型 PG 結晶(002)

	(ii) 偏極用：水平集光型ホイスラー結晶(111) エネルギー範囲：5～80 meV
検出器	0次元 $^3\text{He}$ ガス比例計数管 (2 inch)

### 試料環境

- 無冷媒型試料環境可変システム

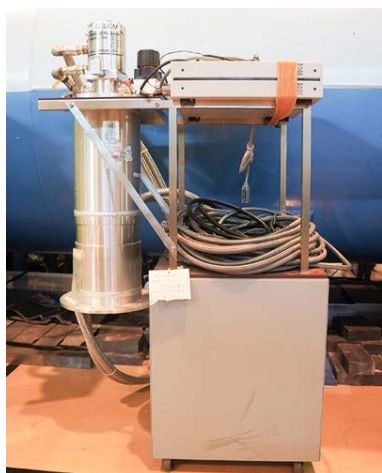


超伝導マグネット（縦磁場対称時 10 T/非対称時 8.4 T、試料空間  $\phi$  50 mm、試料温度 1.6 K ~ 375 K、試料インサート回転および上下機構付き）

トップロード式冷凍機（試料空間  $\phi$  50 mm、試料温度 1.6 K ~ 375 K、試料インサート回転および上下機構付き）

$^3\text{He}$  インサート（シングルショット型、最低試料温度 0.3 K、保持時間 ~ 6 日間、試料空間  $\phi$  35 mm）

- 800 K Displex（試料温度 3 K ~ 800 K）



- 無冷媒式超伝導マグネット（縦磁場（対称）10 T、試料空間（室温） $\phi$  50 mm）



- オレンジクライオスタット（試料温度 1.4 K ~ 室温、試料空間  $\phi$  100 mm（マキシ型））



- 無冷媒シングルショット型  $^3\text{He}$  冷凍機(最低試料温度 0.3 K、保持時間 > 50 時間)
- 4 K GM 冷凍機(試料温度 3 K ~ 室温)

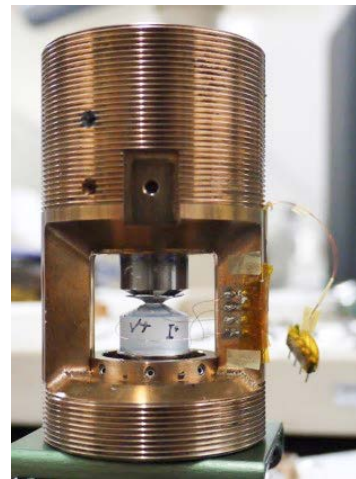


- 高圧力発生装置

(a) MacWhan セル(最大圧力 3 GPa、試料空間  $\phi 5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ )



(b) ハイブリッドアンビルセル(最大圧力 7 GPa(サファイアアンビル使用時)、10 GPa(SiC アンビル使用時)、試料空間  $\phi 1 \text{ mm} \times 0.3 \text{ mm}$ )



- 定荷重インサート(最大荷重 2 ton)+静水圧セル(最大圧力 1.5 GPa、試料空間  $\phi 3$  mm)  
および一軸加圧セル ※オレンジクライオスタット(標準型)と組み合わせて使用



定荷重インサート



静水圧セル



一軸加圧セル

## 測定例

Fig. 1 に示したのは、 $\text{Fe}_{16}\text{N}_2$  を主成分とする Fe-N 磁性微粒子に対する偏極中性子回折実験の結果である。試料の直径はラミネートを含む約 20 nm の球状微粒子で、10 kOe の外部磁場を加えて磁化を飽和させ測定を行った。結晶構造、磁気構造を反映する Bragg 散乱ピークが観測されており、中性子スピンの磁化と平行 ( $I+$ ) か反平行 ( $I-$ ) によって強度比 (反転比) が異なることがわかる。試料が強磁性成分を持つと、 $I+$  と  $I-$  に差が見られるのが偏極中性子回折法の 1 つの特徴で、非偏極中性子を用いた場合に比べて物質の磁気構造をより詳細に調べることができる。これらの強度比を解析することにより、 $\text{Fe}_{16}\text{N}_2$  の持つ磁気モーメントは純鉄とほぼ同じ大きさ ( $2.2\mu_B$ ) であり、40 年にわたり、 $\text{Fe}_{16}\text{N}_2$  薄膜試料で論争となっていた巨大磁気モーメントは微粒子の状態では存在しないこと、粒径の減少による磁気モーメントの減少はないことなどが明らかにされた。

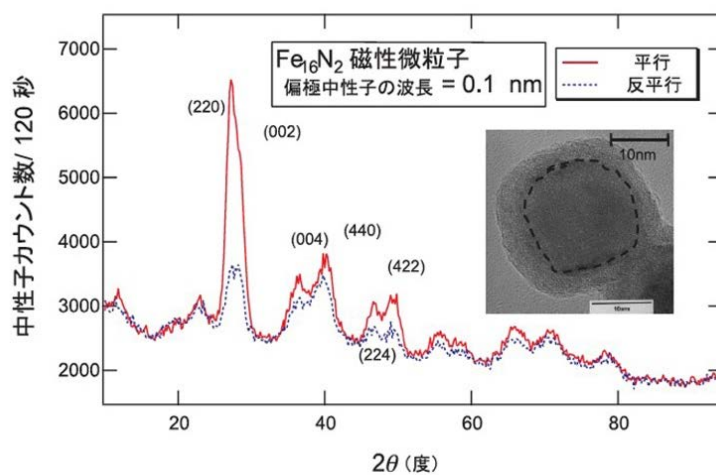


Fig. 1 Fe-N 磁性微粒子の偏極中性子回折パターン

## 非偏極中性子回折による正方晶 CeCoSi における磁気反射の探索

## Search for magnetic reflections in tetragonal CeCoSi by unpolarized neutron diffraction

山内 宏樹\*、金子 耕士\*、萩原 雅人\*、田端 千紘\*、谷田 博司\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*富山県立大学 工学部

## 概要

正方晶 CeCoSi は、 $T_N = 9.4$  K の金属反強磁性体であるが、 $T_0 = 12$  K にも起源不明な非磁性相転移が存在する。最近、放射光 X 線で  $T_0$  以下での三斜晶歪みが見つかっており、Ce 4f 電子の強四極子秩序の可能性が議論されている。一方、磁気構造は  $0.37 \mu_B/\text{Ce}^{3+}$  の磁気モーメントが a 軸に揃った強磁性(001)面が c 軸方向に交互(+ - + -)に積層する  $\mathbf{k} = (1, 0, 0)$  反強磁構造とされているものの、粉末中性子回折で唯一見えた 100 反射のみで決定されているうえに、小さ過ぎる磁気モーメント値、シンプルな磁気構造と三斜晶歪み、四極子秩序との齟齬が指摘されている。 $\mathbf{k} = (1, 0, 0)$  構造の場合、磁気反射は禁制 H 0 0 (H: 奇数)を除いて核反射と重なるため、 $1 \mu_B$  程度と予想される磁気モーメントによる磁気反射を捉えるには単結晶を用いた偏極実験が望ましい。

令和 3, 4 年度は偏極実験が実施できなかったため、非偏極中性子で単結晶 CeCoSi からどれだけ磁気シグナルが得られるか、フィジビリティスタディを実施した。試料は  $7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times$  厚み  $0.5 \text{ mm}$  (90 mg) の純良単結晶を用いた。波長  $2.44 \text{ \AA}$  (エネルギー  $13.7 \text{ meV}$ ) の中性子、水平コリメーション B-80'-S-(PGf)-80'-80' の条件で、(H, 0, L) を散乱面にとり実験を行った。

はじめに、20 K における結晶構造解析の一致度合いを示す回折強度の「実測値」-「計算値」の比較を Fig. 1 に示す。11 点の観測値 ( $I_{\text{cal}}$ ) のいずれも 1 ステップ 30 秒、トータル 25 分ほどの核反射プロファイルを積分した。正方晶  $P4/nmm$ ,  $a = 4.032 \text{ \AA}$ ,  $c = 7.007 \text{ \AA}$  でよい一致を示し ( $R^2 = 8.28\%$ ,  $R_F = 6.01\%$ )、核反射については構造解析に耐えうる十分な回折強度が得られることが確認できた。

次に、禁制反射 100 位置で測定した回折プロファイルの温度変化を Fig. 2 に示す。温度の低下に伴って強度が発達することから、反強磁性反射 (M 1 0 0) を観測していることがわかる。 $T = 10.5$  K,  $11$  K でもわずかにバックグラウンドに盛り上がりが見られるのは、非常に強い 200 核反射強度から来る  $\lambda/2$  による影響と考えられる。積分強度の温度依存性 (Fig. 3) から明らかなように、 $T_N$  直上の 10 K からピークが発達しはじめている。 $T_N$  で  $\lambda$  型の二次相転移を示す比熱でも  $T_N$  より上でピークが裾を引く構造が見られるため [H. Tanida et al., JPSJ 88, 054716 (2019)]、Ce 4f スピンの短距離秩序を反映している可能性がある。したがって、 $T_N < T < T_0$  中間相を磁気秩序相、常磁性相と明瞭に区別する必要がある場合は、設定温度に十分気を配る必要がある。M 1 0 0 の他にも、結晶構造因子がほぼ 0 になる 004 逆格子点でも温度の低下に伴って発達する明瞭な磁気反射を捉えることができたが、その他ほとんどの磁気反射は、強い核反射に重なっていることも改めて確認された。また、 $Q$  が遠い高次反射、特に H が大きい (H 0 L) では、 $T_0$  以下で起きる三斜晶歪みを反映した、L 方向のピーク分裂による幅の広がりやピーク強度の低下が観

測され、常磁性相 (20 K) の核反射強度を単純に差し引いて磁気反射強度を求めることは出来なかった。

非偏極中性子実験の結果、構造解析に耐えうる十分な回折強度が得られる純良な CeCoSi 単結晶であることが確認できた。一方で、CeCoSi における  $\mathbf{k} = (1, 0, 0)$  反強磁性の詳細な磁気構造を決めるためには、偏極中性子が必須であることがわかった。

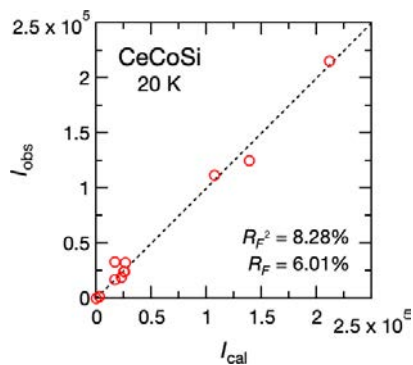


Fig. 1 20 K における核反射強度の実測値-計算値の比較

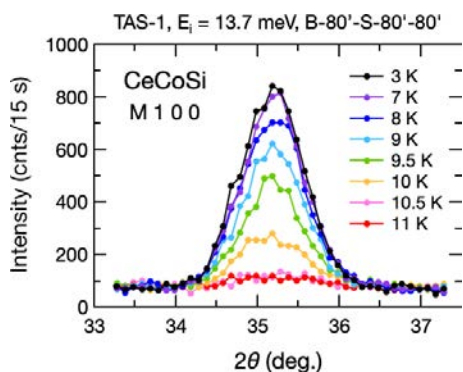


Fig. 2 100 磁気反射プロファイルの温度変化

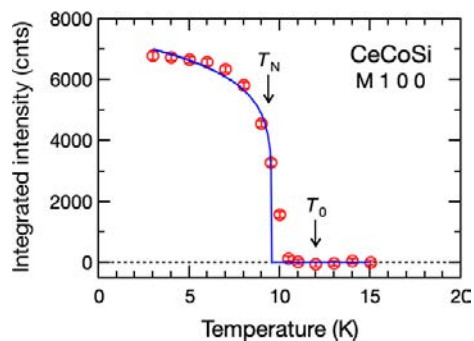


Fig. 3 100 磁気反射強度の温度依存性

## 使用装置

TAS-1

## 実施課題 No.

- [1]令和 3 年度 D433 「単結晶 CeCoSi を用いた磁気構造解析」
- [2]令和 4 年度 D592 「偏極中性子回折による CeCoSi の磁気構造決定」



## 偶パリティの化合物で実現する格子振動と電子が結合した新型 VBS の動的性質

### Dynamic properties of new type of VBS state in an even parity compound

目時 直人<sup>\*,\*\*</sup>

<sup>\*</sup>日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料研究グループ

<sup>\*\*</sup>茨城大学量子線科学専攻

#### 概要

---

これまで超伝導化合物  $\text{NpPd}_5\text{Al}_2$  の電子状態を明らかにする目的で、同じ結晶構造を有する一連の希土類及びウラン化合物の電子状態の研究を実施してきた。これらの化合物では、非常に一軸性の強い異方的な結晶場の中で、二次元的な電子状態が実現している。またウランとネプツニウム化合物の近傍で、アクチノイド元素の価数が4価から3価に変化していることを明らかにした。この仮数変化は有効磁気モーメントの測定結果にも現れている。これらの性質は  $\text{NpPd}_5\text{Al}_2$  の超伝導の発現に重要であると結論づけられた。一方、一連の研究の中で、 $\text{NpPd}_5\text{Al}_2$  と同じ偶パリティ全角運動量  $J=4$  の  $\text{PrPd}_5\text{Al}_2$  の電子状態は、結晶場ハミルトニアンだけでは説明できないことが明らかになった。J-PARC/MLF の 4-SEASONS 及び AMATERAS で測定したデータの群論的解析から、この化合物が格子振動と電子状態が結合した VBS 状態をとり、励起 VBS 状態間の遷移ではエネルギーが非保存になる可能性を示唆した。本研究では、励起ピークの角度依存性、つまり行列要素の異方性を測定することで遷移と電子状態を同定し、さらにその異方性から格子振動を媒介とした電子状態間の波動関数の混成を明らかにできることがわかった。現在解析が進行中であり、この物質の結晶場及び VBS ハミルトニアンを決定して、新奇なダイナミクスの起源を明らかにしていく予定である。

#### 使用装置

---

TAS-1、TAS-2、LTAS

#### 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 D434「偶パリティの化合物で実現する格子振動と電子が結合した新型 VBS の動的性質」

[2]令和4年度 D557「偶パリティの化合物における格子振動と電子が結合した新型 VBS の動的挙動」

[3]令和4年度 D677「偶パリティの化合物で実現する格子振動と電子が結合した新型 VBS の動的性質（装置都合未実施課題 R3\_D434）」

## トロイダル秩序を持つ UNi<sub>4</sub>B における磁気励起 Magnetic excitations in toroidal ordered state in UNi<sub>4</sub>B

常盤 欣文\*、Petr Opletal\*、田端 千紘\*\*、金子 耕士\*\*

\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 強相関アクチノイド科学研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

### 概要

本研究の目的は、磁性体 UNi<sub>4</sub>B の特異なトロイダル秩序の形成に特有な磁気励起を観測することである。これまでの実験では、Fig. 1 に示すように磁気秩序 Q ベクトルと等価な(1/3,0,-2)を中心とする連続励起が観測された。これトロイダル秩序による特異な励起の可能性があり、今後より詳細に調べる必要がある。しかし、(1/3,0,-4)を中心とする励起は性質が異なり、(1/3,0,-3)にも不明な励起がある。そして、この磁気励起は転移温度 20K 以上でも観測された。このように、興味深い連続励起は観測できたが、不明な点が多く残論文化にはさらなる実験が必要である。

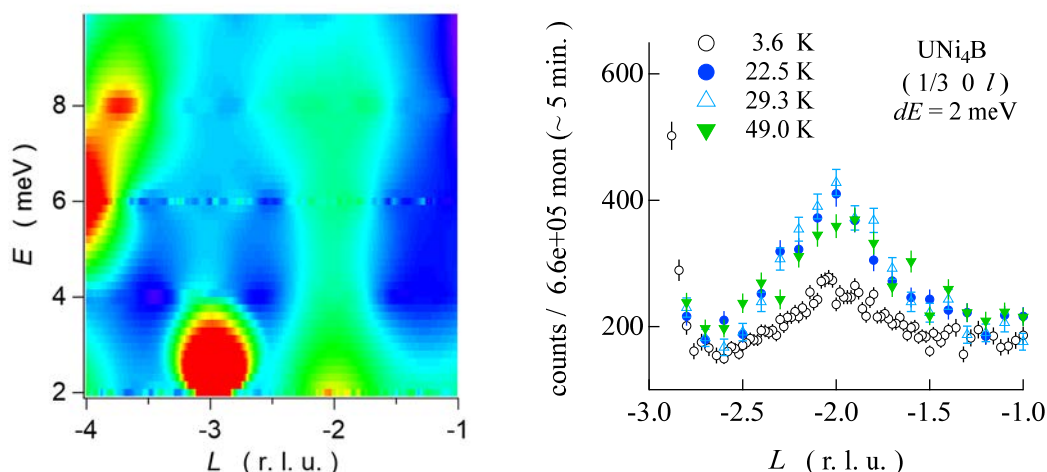


Fig. 1 (左) UNi<sub>4</sub>B の 3.6K における散乱強度の Q-E マップ。Q ベクトルは(1/3,0,L)。 (右) 異なる温度でのエネルギー2meV の L スキャン。

### 使用装置

TAS-1

### 実施課題 No.

- [1]令和 3 年度 D482 「UNi<sub>4</sub>B における磁気励起の観測」
- [2]令和 4 年度 D634 「トロイダル秩序を持つ UNi<sub>4</sub>B における磁気励起」
- [3]令和 5 年度 D676 「UNi<sub>4</sub>B における磁気励起の観測 (装置都合未実施課題 R3\_D482)」

## 磁場誘起秩序相で見られるホール異常と磁気構造

金子 耕士\*、田端 千紘\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

### 概要

外部磁場の印加により、電気分極の発現、磁気スキルミオンの形成など、物質の新たな魅力的な機能の発現が近年多く見いだされている。このうち磁気スキルミオン格子は、MnSi を代表として、磁気フラストレーションをもつ物質に空間反転対称性の破れによって生じる DM 相互作用と外部磁場が加わることで、100 Å を越える非常に長周期の渦状格子として現れる。MnSi と同じ B20 型構造での多くの物質に続き、最近の一つの大きな流れが、f 電子系での発見である。MnSi と同じ P213 に属する EuPtSi では、MnSi と比べて 1/10 と非常に短周期の磁気スキルミオン格子が発見された。さらに結晶構造に空間反転対象性をもつ Gd<sub>2</sub>PdSi<sub>3</sub> など軌道磁気モーメントを持たない物質系での発見が続いていることから、Eu, Gd 系の磁気スキルミオン格子には新たな発現機構が期待されている。一方で、Eu, Gd は強力な中性子吸収体であるために、中性子散乱実験による観測例は限られてきた。そのため、磁気秩序が未知である系が多い。

本課題では、磁性サイトに空間反転対称性のない結晶構造を有する GdCu<sub>2</sub> に注目した。本系については、すでに粉末中性子回折実験による報告が存在し、それによれば低温でらせん磁気秩序を起こすとされている。スキルミオン格子を形成する系の基底ではらせん磁性を示すことから、注目に値する。過去の研究では、Gd の吸収効果を抑えるために熱外領域の中性子を用いたために、波数空間の分解能が不十分であったため、らせんの秩序波数の詳細に疑問が残った。今後の磁場中実験に向けて、まずより高い波数空間分解能が得られる熱中性子領域での回折実験に着手し、基底状態の検証を行った。

試料は同位体置換していない Gd を用いて作製された単結晶を、薄板状に整形したものを使用した。実験は TAS-1 および TAS-2 において、 $E_i = 14.7$  meV で行った。その結果、転移温度（約 40 K）以下で、明瞭な磁気反射ピークが観測され、実験が十分に可能なことが証明された。さらに高波数分解での測定により、秩序波数が格子整合な  $(2/3, 1, 0)$  から僅かにずれた  $(\delta, 1, 0)$  ( $\delta > 0.67$ ) の値をとることを明らかにした。温度とともに  $\delta$  の値が滑らかに変化する振る舞いからも、格子非整合な秩序であることが示唆された。この成果は、同位体置換していない Gd 化合物における中性子散乱実験の可能性を拓くものであり、今後、他の Gd 系においても磁気秩序の解明が期待される。

### 使用装置

TAS-1, TAS-2

**実施課題 No.**

---

- [1]令和 3 年度 D484 「磁場誘起秩序相で現れるホール異常と磁気構造(装置都合未実施課題)」
- [2]令和 4 年度 D674 「磁場誘起秩序相で現れるホール異常と磁気構造」

## ウランカルコゲナイド半金属の磁性 Magnetism of semimetallic uranium chalcogenides

Petr Opletal\*, 酒井 宏典\*, 常盤 欣文\*, 山本 悦嗣\*, 芳賀 芳範\*

\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 強相関アクチノイド科学研究グループ

### 概要

磁性半金属は現在、電子構造におけるトポロジーの観点から再び注目を集めている。ウラン半金属は、強いスピン軌道相互作用により、ディラック点やワイル点を作るのに必要なバンド反転が起こり、強い電子相関、すなわち 5f 電子磁性をもつトポジカル物質候補である。本研究はウランカルコゲナイドおよびその関連化合物の磁気構造を系統的に理解することを目的としている。我々は最近、強磁性半金属であるウランカルコゲナイド  $U_7Te_{12}$  の単結晶を得た。 $U_7Te_{12}$  は 3 つの非等価なウランサイトをもつ六方晶の結晶構造をもつ。強磁性相転移は  $T_C=48$  K で起こり、この温度以下で面内磁化は急激に増加するが、面外磁化はあまり増加しない。一方、 $T=26$  K では面外成分磁化が伸びて、面内磁化にはほとんど変化が見られない[1]。このように  $T$ 、 $T_C$  以下の磁気構造を微視的に決定する必要がある。令和 3 年度の単結晶を用いた TAS-1 の最初の実験では、100、110、200 反射において強磁性強度の不均一な温度依存性が明らかになった。(Fig. 1)。

この結果は、3 つのサイトが異なる強磁性成分をもつことを裏付けているが、常磁性状態において、結晶モザイクによる回折ピークの分裂が見られたため、令和 4 年度、単結晶大型化に取り組み、令和 5 年度末にはモザイクの少ない結晶を得て、さらに詳細な実験に取り組みたい。

[1] P. Opletal et al., "Ferromagnetic Crossover within the Ferromagnetic Order of  $U_7Te_{12}$ ", J. Phys. Soc. Jpn. 92, 034704 (2023).

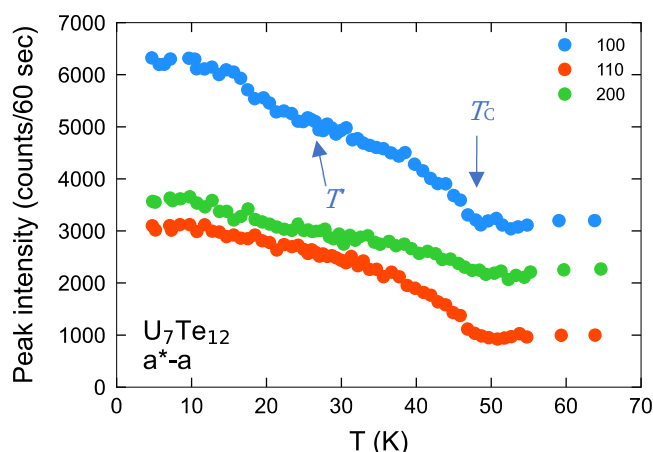


Fig. 1 Temperature dependence of the peak intensities of (100), (110), and (200) reflections in neutron diffraction.

### 使用装置

TAS-1

### 実施課題 No.

[1]令和 3 年度 D617 「ウランカルコゲナイド半金属の磁性」

[2]令和 4 年度 D836 「ウランカルコゲナイド半金属の磁性」

## 重い電子系 $\text{SmAu}_3\text{Al}_7$ における非整合磁気秩序

### Incommensurate magnetic order in heavy-electron system $\text{SmAu}_3\text{Al}_7$

伊藤 孝\*、東中 隆二\*\*、金子 耕士\*\*\*、田端 千紘\*\*\*、神戸 振作\*\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 表面界面科学研究グループ

\*\*東京都立大学 大学院 理学研究科 物理学専攻 電子物性研究室

\*\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*\*\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 強相関アクチノイド科学研究グループ

#### 概要

$\text{SmAu}_3\text{Al}_7$  はイジング的異方性を持つ反強磁性体であり、 $T_N=2.8\text{ K}$  および  $T^*=0.9\text{ K}$  において逐次相転移を示す。その比熱には重い電子的振る舞いが認められ、秩序相における電子比熱係数は  $1\text{ J/mol K}^2$  を超える。さらに、 $T_N$  以下においても磁化率に Curie-Weiss 的振る舞いが残ることから、一部の Sm スピンが無秩序状態にあり、それらが部分近藤格子を形成することにより重い電子状態が実現している可能性が議論されている [R. Higashinaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 92, 034601 (2023)]。我々はこの秩序相の詳細を明らかにするために、これまでに J-PARC においてミュオンと中性子を用いた実験を行ってきた。S1 エリアにおける  $\mu\text{SR}$  実験では反強磁性転移に伴う内部磁場の発生を確認し、さらに SENJU での中性子散乱実験ではそれに対応する超格子反射と思われるものを検出することに成功した。しかし、この超格子反射の信号強度は秩序ベクトルを精密に決定するためには不十分であり、より高い精度での測定と検証が必要とされていた。

JRR-3 TAS-1 を用いた本研究では、 $\text{SmAu}_3\text{Al}_7$  の秩序相における超格子反射をより精密に測定し、これに対応する秩序ベクトルが  $(0.3, 0, 4/3)$  であることを明らかにした。さらに、この非整合磁気秩序の秩序変数が  $\mu\text{SR}$  により観測された内部磁場と同様の温度変化を示し、 $T^*$  において明確な異常を伴わないことも明らかにした。現在、これらの結果に基づいて詳細な磁気構造モデルの検討を進めている。

#### 使用装置

TAS-1

#### 実施課題 No.

[1]令和4年度 D665 「 $\text{SmAu}_3\text{Al}_7$  の部分無秩序状態における異常な重い電子状態の起源探索」

## 微量元素置換した SrTiO<sub>3</sub> のソフトフォノンの温度変化

### Temperature dependence of the soft phonon in slightly element-substituted SrTiO<sub>3</sub>

梶本 亮一\*、中村 充孝\*、村井 直樹\*

\*日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 物質・生命科学ディビジョン 中性子利用セクション

#### 概要

---

最近、He らによって SrTiO<sub>3</sub> の低エネルギーフォノンの温度変化が詳しく調べられ、低温において従来から知られていた強誘電 TO モードのソフト化に加えて、TA モードにも温度の低下に伴うソフト化および強度の大きな変化といった異常が生じることが明らかになり、SrTiO<sub>3</sub> のフォノンの強い非調和性の証と解釈されている [X. He et al., Phys. Rev. Lett. 124, 14501 (2020)]。一方、近年、SrTiO<sub>3</sub> の Sr を La に、Ti を Mn にわずか数%置換することで熱伝導が大きく抑制されることが見出された [T. Okuda et al., J. Phys. Soc. Jpn. 85, 094717 (2016)]。この熱伝導の抑制にはフォノンが深く関わっていると考えられる [R. Kajimoto et al., Sci. Rep. 8, 9651 (2018)]。そこで、SrTiO<sub>3</sub> で異常な振る舞いを示した TO・TA フォノンが元素置換した試料ではどのような振る舞いをするか調べるため、非弾性中性子散乱により  $\Gamma$  点近傍の TO・TA フォノンの温度変化を調べた。

実験試料として熱伝導の抑制が最も大きい Sr<sub>0.95</sub>La<sub>0.05</sub>Ti<sub>0.98</sub>Mn<sub>0.02</sub>O<sub>3</sub> の単結晶を使用し、比較のために SrTiO<sub>3</sub> の単結晶試料も測定した。実験は TAS-1 において、 $E_f = 14.7$  meV、open-40'-40'-80' のコリメーションの条件で行った。SrTiO<sub>3</sub> においては、He らの報告を再現する結果が得られた。一方、Sr<sub>0.95</sub>La<sub>0.05</sub>Ti<sub>0.98</sub>Mn<sub>0.02</sub>O<sub>3</sub> においては、定性的には SrTiO<sub>3</sub> と同様のフォノンの異常が見られたものの、その温度変化は SrTiO<sub>3</sub> に比べると緩やかであることが分かった。このことは非調和性の強さが SrTiO<sub>3</sub> とは異なることを示唆していると考えている。今後、こうしたフォノンの振る舞いの違いにより熱伝導の違いがどのように説明できるか検討していく。

#### 使用装置

---

TAS-1

#### 実施課題 No.

---

[1]令和4年度 D675「微量元素置換した SrTiO<sub>3</sub> のソフトフォノンの温度変化」  
(装置都合未実施課題 R3\_D449)

## Magnetic Structure of the Heavy Fermion Compound $\text{Ce}_3\text{PtIn}_{11}$

神戸 振作\*, 金子 耕士\*\*, Jeroen Custers\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*\*Faculty of Mathematics and Physics, Charles University, Czech Republic

### 概要

One of the most intriguing challenges in contemporary condensed matter physics is to understand the mutual relationship between two many-body phenomena, *i.e.* magnetism and superconductivity (SC). Regarded in the past as definitive antagonists, the observation of SC in the vicinity of a quantum critical point (QCP) - a second order zero temperature magnetic to non-magnetic phase transition solely driven by critical quantum fluctuations - indicates an intimate relationship between magnetic fluctuations and SC as is been discussed in heavy fermion (HF) compounds, cuprates and iron-pnictides.  $\text{Ce}_3\text{PtIn}_{11}$  exhibits superconductivity in the magnetic phase and a Kondo breakdown type QCP, suggesting a possibility of a coexistence of magnetism and SC. In this proposal, a neutron experiment was performed to answer the most pressing questions: (1) The magnetic structures of the AFM phase (the AFM state exists only in a very tiny temperature interval,  $2.2 < T < 2$  K). (2) coexistence/competition of SC and magnetism, and (3) is the magnetic moment on Ce1 the same as on Ce2, which otherwise might hint to a spacial separation of magnetism and SC.

As our recent  $^{115}\text{In}$  NMR/NQR experiments suggested a magnetic propagation vector along  $(1/2 \ 1/2 \ \hbar)$ , we used a triple-axis spectrometer TAS-1 to efficiently scan a specific Q-region with high flux of neutrons. The  $^3\text{He}$  cryostat was used to cool down the sample well below 2.2 K. Within the  $(h \ h \ \hbar)$  scattering plane, reciprocal space scans, in particular along  $(1/2 \ 1/2 \ \hbar)$ , were performed at temperatures below 2.2 K. Unfortunately, no peak was found in both the coexistence phase and the AFM phases within the present experimental accuracy. This may be because the magnitude of ordered moments was too small, or neutron absorption of In was critical. We plan to retry with larger sample with thinner form, after introducing double focusing monochromator/analyzer on TAS-1.

### 使用装置

TAS-1

### 実施課題 No.

[1]令和3年度 D691 「Magnetic Structure of the Heavy Fermion Compound  $\text{Ce}_3\text{PtIn}_{11}$ 」



## TAS-1 装置担当者枠

金子 耕士\*、萩原 雅人\*、田端 千紘\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

### 概要

---

TAS-1 は JRR-3 炉室内に設置されている熱中性子三軸分光器である。炉室内という立地から、ガイドホールに比べ高いフラックスを利用できること、また短波長を利用出来る特徴がある。またその高入射フラックスを活かした偏極中性子のオプションも有していることから、非弾性散乱はもとより、微小な磁気信号の検出や高精度な秩序変数の測定を必要とする磁性の基礎研究分野において有用かつ代替不可能な装置である。震災後の長期にわたる停止期間を経て、老朽化にともない多くの機能が失われたため、TAS-1 を再び磁性研究の第一線に置くことを目標として、復旧作業を開始した。

令和 3 年度では、TAS-1 の分光器としての基礎的な機能の復旧に取り組んだ。一番の問題は、モノクロメータードラムを駆動するサーボモーターの老朽化による故障であり、入射エネルギーの変更ができなくなった点である。運転中の交換はできないため、令和 3 年度は弾性散乱に限って運用を行った。制御系更新を一新したことによる多くのトラブルを解消したことで、後半には複数のユーザー課題での実験を実施できた。<sup>3</sup>He 冷凍機を用いた 0.3 K 以下の極低温実験、吸収の大きい Sm 系の実験や、ウラン系の研究など JRR-3 の特徴を活かした実験を実施し、成果発表につなげることができた[1]。

令和 4 年度では、まず停止期間中にモノクロメータードラムの駆動モータの交換作業を完了し、非弾性散乱実験の機能を復旧した。並行して無冷媒トップロード型冷凍機の整備を進め、0.3K までの極低温試料環境を簡便に実施出来る環境を整えた。ウラン系化合物の使用を含む複数の課題において、弾性・非弾性散乱の両方の実験を実施し、成果発表につなげた[2]。

令和 5 年度からは偏極実験を可能にすべく、コイルや電源の整備を行う予定である。

[1] C. Tabata et al., Phys. Rev. B 109, 134403 (2024).

[2] K. Ota et al., New Physics: Sea Mulli 73, 1170 (2023).

[3] K. Kaneko et al., JPS Conf. Proc. 41, 011015 (2024).

### 使用装置

---

TAS-1

### 実施課題 No.

---

[1] 令和 3 年度 I666 「装置担当者枠」

[2] 令和 4 年度 D422 「装置担当者枠」

### ユーザーミーティング

- 令和5年3月9日  
TAS-1, TAS-2, LTAS, HRPD ユーザーミーティング 於：原子力科学研究所
  - 金子 耕士、萩原 雅人、田端 千紘  
“TAS-1 FY2022 と今後”
  - 常盤 欣文  
“ウラン化合物の新奇物性”
  - 荒木 新吾  
“ $\alpha$ -Mn の常圧反強磁性の磁気構造”
  - 松本 祐司  
“ $U_2Pt_6X_{15}$  ( $X=Ga, Al$ ) の中性子散乱”
  - 東中 隆二  
“ $SmAu_3Al_7$  の中性子散乱”

### 学会等で発表された成果

- 令和4年2月15、16日  
東北大学金属材料研究所ワークショップ「二大中性子源を活用する偏極中性子スピン科学の推進」  
金子 耕士  
“JRR-3 3 軸分光器における偏極中性子散乱の展望” (依頼講演)  
[https://gimrt.www.imr.tohoku.ac.jp/wp-content/uploads/2022/02/gimrt\\_ws\\_2022.2.15-16\\_2.pdf](https://gimrt.www.imr.tohoku.ac.jp/wp-content/uploads/2022/02/gimrt_ws_2022.2.15-16_2.pdf)
- 令和4年3月15~19日  
日本物理学会 第77回年次大会  
松本 裕司、太田 玖吾、田端 千紘、金子 耕士、芳賀 芳範  
“反強磁性体  $U_2Pt_6Ga_{15}$  の中性子散乱”(ポスター)  
[https://www.jps.or.jp/activities/meeting/files/1\\_77mae.pdf](https://www.jps.or.jp/activities/meeting/files/1_77mae.pdf)

- 令和4年8月28日～9月2日  
ISSE Workshop 2022 11<sup>th</sup> International Workshop on Sample Environment at Scattering Facilities 於：栃木県那須町  
Koji Kaneko, Masato Hagihala, Hiroki Yamauchi, Yojiro Oba, Takayuki Kumada, Masato Kubota, Chihiro Tabata, Yuki Kojima, Yutaka Shimojo, Katsuaki Kodama and Toyotaka Osakabe  
“NEW STANDARD FOR LOW TEMPERATURE SAMPLE ENVIRONMENT AT JAEA/JRR-3” (ポスター)
- 令和4年8月18～24日  
29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) 於：札幌市  
<https://www.lt29.jp/program.html>
  - Yuji Matsumoto, Kyugo Ota, Chihiro Tabata, Koji Kaneko, and Yoshinori Haga  
“Neutron scattering study of antiferromagnet  $U_2Pt_6Ga_{15}$ ” (ポスター)
  - Chihiro Tabata, Fusako Kon, Ryoya Murata, Hiroshi Amitsuka, Hironori Nakao, Yuji Matsumoto, Koji Kaneko, and Yoshinori Haga  
“Magnetic Order in Honeycomb Layered  $U_2Pt_6Ga_{15}$  Studied by Resonant X-ray Scattering” (口頭)
  - Koji Kaneko, Chihiro Tabata, Tetsuya Takeuchi, Matthias D. Frontzek, Masaaki Matsuda, Kazuki Ohishi, Takashi U. Ito, Koji Munakata, Ryoji Kiyonagi, Masashi Kakihina, Masato Hedo, Takao Nakama, and Yoshichika Ōnuki  
“Magnetic Skyrmion Lattice in Eu-based trillium lattice compound  $EuPtX$  ( $X=Si, Ge$ )” (ポスター)
- 令和4年9月12～15日  
日本物理学会 2022 年秋季大会 於：東京工業大学  
荒木 新吾、岩本 凱成、秋葉 和人、小林 達生、宗像 孝司、長壁 豊隆、金子 耕士  
“ $\alpha$ -Mn の圧力磁気秩序相の磁気構造”

- 令和 5 年 3 月 22～25 日  
日本物理学会 2023 年春季大会 於：オンライン  
東中 隆二、北川 紘章、金子 耕士、伊藤 孝、大原 高志、田端 千紘、鬼柳 亮嗣、  
萩原 雅人、中尾 朗子、神戸 振作、松田 達磨、青木 勇二  
“SmAu<sub>3</sub>Al<sub>7</sub> が示す重い電子状態と共存した部分無秩序相における磁気構造”（口頭）
- 令和 5 年 3 月 22～25 日  
日本物理学会 2023 年春季大会 於：オンライン  
北川 紘章、東中 隆二、金子 耕士、伊藤 孝、大原 高志、田端 千紘、鬼柳 亮嗣、  
萩原 雅人、中尾 朗子、神戸 振作、松田 達磨、青木 勇二  
“単結晶中性子回折による SmAu<sub>3</sub>Al<sub>7</sub> が示す部分無秩序相の研究”（ポスター）

**独自利用以外の課題実施状況**

○施設供用課題…2件

成果占有課題（トライアルユース含む）…0件

成果非占有課題…2件

成果非占有課題	所属機関
一軸応力下における Fe-33.2at.%Pd 単結晶の巨大弾性ひずみ	大阪大学
Sc <sub>0.6</sub> Fe <sub>2</sub> Si <sub>4.9</sub> 型構造を持つウラン系新物質の磁気構造	富山大学

## 2.3 TAS-2 三軸型中性子分光器

装置担当者：長壁 豊隆、久保田 正人



### 概要

TAS-2 は、JRR-3 ガイドホールの T2 熱中性子導管の末端に設置された熱中性子三軸型分光器である。TAS-2 の特徴は、非磁性のモノクロメータ生体遮蔽シールドを装備し、試料回転駆動のためのモータとして磁場の影響を受けない超音波モータを採用していることである。また、縦 20 cm の中性子導管から得られる巨大なサイズの中性子ビームを縦ベント集光モノクロメータで試料位置に集光することにより、炉室内の装置に匹敵する中性子ビーム強度を誇る。さらに T2 導管末端の装置であるため、装置周りのスペースに比較的余裕がある。従って、TAS-2 は、大型の試料環境機器が必要であり、測定対象試料のサイズも小さいものに限られるなど、極低温や強磁場、強電場、超高圧など極限試料環境下での実験に適している。強相関電子系化合物と呼ばれる物質群を極限試料環境下に置くことで、この物質群が持つ隠れた機能を引き出すことが出来る。基礎物性研究として重要なだけでなく、将来的に有用な機能性材料の創成にも繋がるため、TAS-2 では、極限試料環境下中性子散乱実験を推進している。

### 装置詳細

中性子源	重水タンク（炉心周囲減速材）
モノクロメータ部	PG 結晶（002）面 H 15 mm × W 120 mm、10 枚及び H 20 mm × W 120 mm、2 枚 （ビームサイズ H 200 mm × W 20 mm） 散乱角度範囲：約 26° ～ 100° エネルギー範囲：約 3 ～ 36 meV 集光方式：縦ベント型

試料部	散乱角度：約 $-5^{\circ}$ ～ $120^{\circ}$
アナライザ部	PG 結晶 (002) 面 H 15 mm × W 75 mm、8 枚 集光方式：縦ベント型
検出器	0 次元 $^3\text{He}$ ガス比例計数管 (2 inch)

## 試料環境

TAS-1 と共通設備を使用可能である。

## 測定例

図 1 は、TAS-2 においてヘリウムフリー型 10 T 超伝導マグネットを利用して実験を行っている様子を示したものである。図 2 は、 $\text{La}_{1.976}\text{Sr}_{0.024}\text{CuO}_4$  のスピングラス相における磁気弾性散乱ピークの磁場依存性を測定した結果である。外部磁場の増加とともに、磁気シグナルが次第に減少することがわかる。これは Dzyaloshinskii-Moriya 非対称性相互作用による磁気構造の変化が原因であると考えられている。(M. Matsuda *et al.*, Phys. Rev. B 66, 174508 (2002)) 図 3 は、擬一次元磁性体  $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$  におけるスピン波励起の測定例である。温度の上昇とともに励起のソフト化と励起幅の増大が見られる。(M. Matsuda *et al.*, Phys. Rev. B 71, 104414 (2005))



図 1 無冷媒式 10 T 超伝導マグネットを搭載した  
TAS-2

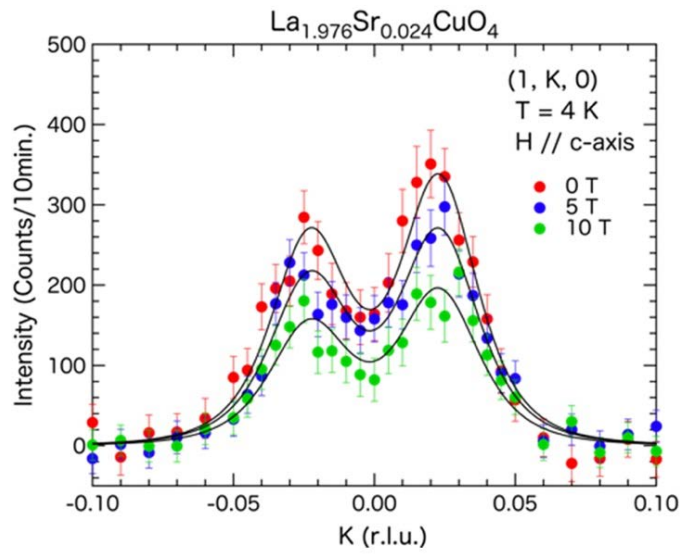


図 2  $\text{La}_{1.976}\text{Sr}_{0.024}\text{CuO}_4$  の磁気弾性散乱ピークの磁場依存

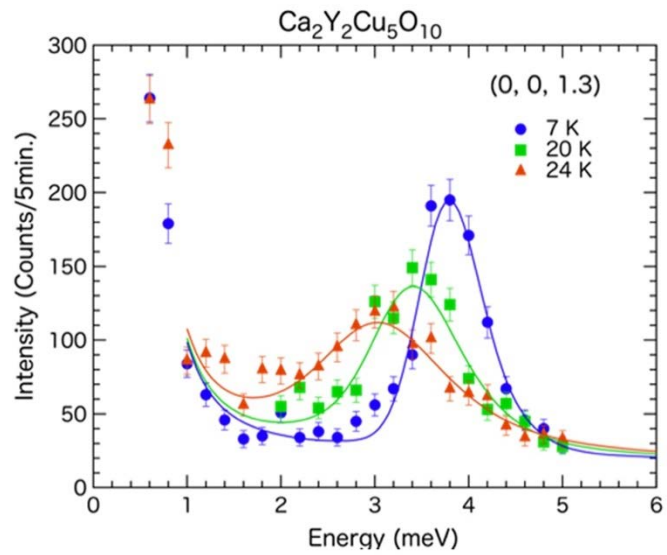


図 3  $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$  におけるスピン波励起の温度依存



## 特異な物性を示すセリウムモノプニクタイトの微視的解明

### Study of nontrivial property on cerium monopnictide

久保田 正人\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

---

少数キャリア半金属であるセリウムモノプニクタイト ( $\text{CeX}$ ;  $X=\text{P, As, Sb, Bi}$ ) は複雑な磁性を有し、温度・磁場・圧力によって多彩な長周期磁気構造が出現する。この物質群では 4f 結晶場が系統的に変化し、 $\text{CeP}$ 、 $\text{CeAs}$  と  $\text{CeSb}$ 、 $\text{CeBi}$  で常圧での 4f 基底状態が異なるものの、圧力や磁場下においてそれらの磁気相図には同様の磁気構造が現れており、こうした異常磁性の背後に共通のメカニズムの存在が示唆されている。最近、 $\text{CeSb}$  に関するバンド構造計算や角度依存磁気抵抗測定などの研究報告により、周辺物質・磁場環境下では、新たな準粒子状態やトポロジカル的な物性(特異な物性)の振る舞いが注目され、 $\text{CeSb}$  周辺関連物質の物性研究が再び脚光を浴びている。

一般的に多くのセリウム化合物において、 $\text{Ce}^{3+}$  の 4f 電子のエネルギー準位はスピン軌道相互作用により、 $J=5/2$  (6 重縮退) と励起状態  $J=7/2$  (8 重縮退) に分かれている。実際のセリウムモノプニクタイトでは、立方対称の結晶場の影響により、 $J=5/2$  は、2 重縮退の  $\Gamma_7$  と 4 重縮退の  $\Gamma_8$  に分裂する。更に、Ce 4f 電子とプニクトゲン p 電子の異方的混成 (p-f 混成) 効果を考慮する必要があることが理論的に示唆されている。従って、p-f 混成が上述した特異な物性に果たす役割を解明することは重要である。

令和 4 年度は、装置都合により磁場下における中性子回折実験を実施できていない状況であるが、無磁場下において、Ce を La で置換し、p-f 混成効果を弱めたことが磁性に与える影響の兆候を捉えることができた。令和 5 年度以降は、特異な物性を理解するために中性子回折実験を継続していく予定である。

#### 使用装置

---

TAS-2

#### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 D555 「セリウム化合物の磁性に対する乱れの影響」

[2]令和 4 年度 D588 「セリウム化合物の新規電子モード結合・準粒子の解明」

## 擬多重項 Yb 系重い電子化合物の結晶場準位と近藤温度

金子 耕士\*、北澤 崇文\*\*, \*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*東北大学 理学研究科

\*\*\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター

### 概要

---

希土類化合物において結晶場準位は、多極子秩序や量子臨界現象といった低温物性を議論する上で必要な基礎情報である。また、希土類が Ce や Yb の場合は、伝導電子と 4f 電子の混成(c-f混成)によって近藤効果が生じるため、その特性温度である近藤温度  $T_K$  も重要な基礎情報となる。 $T_K$  と結晶場エネルギーの相対的な関係により、低温下において熱励起のみでは占有できないような結晶場準位についても、c-f 混成を通じた準位の占有が可能となる。このような状況下では、縮重度の大きな近藤効果が発現することとなり、擬多重項の持つ軌道自由度により多極子が活性となるため、低温物性として多極子に由来した秩序状態を形成する可能性を持つ。また、4f 電子は c-f 混成によって遍歴的な側面も持つことから、最近では「四極子密度波」の形成といった新たな概念も提案されている。このような微視的な状態を記述する上では、結晶場レベルスキームと  $T_K$  の両方を実験的に決めることが必要であるが、定量的な決定は容易ではない。本研究では、縮重度の大きな近藤効果が実現していることが期待されている YbT<sub>2</sub>Zn<sub>20</sub> に対して、未だ決定されていない結晶場レベルスキームと  $T_K$  を決定することを目的として、多結晶試料を用いた非弾性中性子散乱実験を行った。

今回、まず YbRh<sub>2</sub>Zn<sub>20</sub> を対象として実験を行った。幅広いエネルギー領域を適切なエネルギー分解能で測定するため、高分解能熱中性子三軸分光器 TAS-2 および冷中性子三軸分光器 LTAS にて実験を行った。また精度良くパラメータを決めるためには、幅広い温度領域での測定が必要となるため、新しく導入したトップロード型冷凍機と<sup>3</sup>He スティックを用いて、0.3~100 K の範囲で測定を行った。LTAS の測定では、低エネルギー領域で顕著な温度変化をする、重い電子状態に起因した明瞭な磁気信号の観測に成功した。一方の TAS-2 では、定量的な解析に堪える信号強度は得られなかった。両者が結合したスペクトルではパラメータの相関が強く、解析が容易ではない。詳細なパラメータを得るため、解析を進めるとともに、単結晶や偏極中性子利用も含めた実験的な検討を進めている。

### 使用装置

---

TAS-2, LTAS

### 実施課題 No.

---

令和4年度 D689「擬多重項 Yb 系重い電子化合物の結晶場準位と近藤温度」

## 高圧下測定技術の開発とマルチフェロイクス物質への応用

### Development of high-pressure techniques and its application to multiferroic materials

長壁 豊隆\*、木村 宏之\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

\*\*東北大学 多元物質科学研究所

#### 概要

マルチフェロイクス物質  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  ( $\text{R}=\text{Tb}, \text{Y}$ ) において、磁気構造が高温側の格子整合構造から低温側の不整合(螺旋)構造へと変化することに対応し、電気分極メカニズムが磁気交換歪み機構から反対称相互作用機構へと変化する。これまでの 1.5 GPa までのバルク測定により低温で電気分極が急上昇することが判っており、螺旋構造から格子整合構造への変化が予想されていた。本研究では、圧力領域を拡大して上記を検証するとともに未知の強誘電強磁性相を探索した。

まず、既存のサファイア-WC ハイブリッドアンビル(HA)技術を整備し、運転再開後の JRR-3 において、7 GPa までの高圧力下单結晶中性子回折実験環境を実現した(図 1)。次に、この技術を  $\text{R}=\text{Tb}$  の単結晶試料(約  $0.6 \text{ mm} \times 0.6 \text{ mm} \times$  厚さ  $0.2 \text{ mm}$ )に適用し、代表的な磁気反射強度の温度と圧力依存性を測定した。その結果、加圧により、常圧の 2 次元インコメンシュレート磁気構造(2DICM)がコメンシュレート磁気構造(CM)に変化し、さらに CM 構造の周期が  $(1/2, 0, 1/4) \rightarrow (1/2, 0, 1/3) \rightarrow (1/2, 0, 1/2)$  と短くなることを発見した(図 2)。観測可能な磁気反射点数の制限から完全な磁気構造解析は困難だが、低温圧力下での電気分極増大が磁気構造の変化によるものであることが明らかとなった。令和 5 年度以降も本研究を継続して温度-圧力相図の全体像を調べるとともに、HA を用いた電気分極測定技術を開発し、磁性(中性子)と同じ高圧条件下での電気分極測定を実現する計画である。

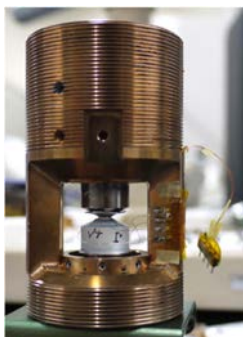


図 1 サファイア-WC HA 式高圧セル

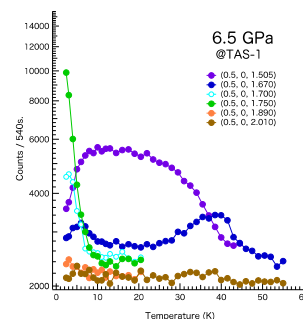


図 2 6.5 GPa における  $\text{TbMn}_2\text{O}_5$  磁気反射強度の温度依存性

#### 使用装置

TAS-1, TAS-2, LTAS

#### 実施課題 No.

[1] 令和 3 年度 K437 「単結晶中性子回折と電気伝導・電気分極の超高圧下同条件測定手法の開発と強相関電子系物質研究への応用」

[2] 令和 4 年度 D680 同上

## 充填スクッテルダイト $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の磁場誘起秩序相の研究

### Magnetic field induced order in the filled skutterudite $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$

桑原 慶太郎\*、長壁 豊隆\*\*

\*茨城大学大学院理工学研究科

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

#### 概要

---

充填スクッテルダイト化合物  $\text{RT}_4\text{X}_{12}$  (R:希土類、T:遷移金属、X:プニクトゲン) は、X 元素の作るカゴの中に R 元素が充填される特徴的な構造を持つ。この特徴的な結晶構造に起因して、構成元素の組み合わせにより、重い電子状態、非フェルミ液体異常、非従来型超伝導、多極子秩序、金属非金属転移など多彩な低温物性が出現する。その中で  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  は低温  $T = 6.5 \text{ K}$  で波数ベクトル  $q = (1, 0, 0)$  で特徴づけられるスカラー型多極子秩序を示す重い電子系化合物である。このスカラー型多極子秩序状態に圧力を加えると  $q = (1, 0, 0)$  の反強磁性秩序状態に急激に変化することがこれまでの中性子散乱実験による研究からわかっている。一方、この系に磁場を印加すると、極低温において新たな秩序相が出現する。この磁場誘起秩序相は、温度  $T = 0.7 \text{ K}$  以下、磁場  $B = 8 \text{ T}$  以上の極低温高磁場の条件下、かつ、 $[111]$  軸方向近傍の非常に限られた方向に磁場を印加したときのみ出現することがわかっているが、この秩序相の詳細は未解明のままである。

この  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  の磁場誘起秩序相を微視的に調べるため、TAS-2 において、極端条件下での単結晶中性子回折実験を行った。測定試料はスズフラックス法により作成した単結晶を用いた。中性子回折実験は、原子力機構の無冷媒  $^3\text{He}$  冷凍機と超伝導マグネットを使用し、温度  $T = 0.3 \text{ K}$  以下、磁場  $B = 9 \text{ T}$  の条件下で実施した。印加磁場方向 ( $B // [111]$ ) に垂直な水平散乱面での磁場誘起秩序相の秩序ベクトルの探索を行ったが、基本反射の約 1/10 の信号強度の範囲では磁場誘起秩序に関する明確な信号は現時点では観測されていない状況である。また、磁場誘起秩序相とスカラー型多極子秩序相において、基本反射のピーク幅に明確な違いは見られなかった。今後、統計精度をあげた実験を行い、 $B // [111]$  に垂直な水平散乱面での信号の有無について検証する必要があるだろう。

#### 使用装置

---

TAS-2

#### 実施課題 No.

---

[1] 令和 4 年度 K684 「充填スクッテルダイト  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  の磁場誘起秩序相の研究」

## TAS-2 構成機器のアップグレード

## Upgrade of TAS-2 spectrometer components

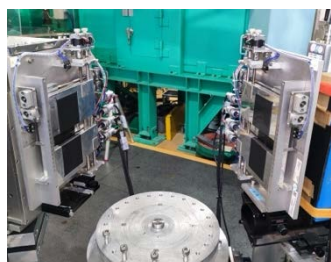
長壁 豊隆\*、久保田 正人\*\*、金子 耕士\*\*、田端 千紘\*\*、  
萩原 雅人\*\*、山内 宏樹\*\*、下条 豊\*\*、佐々木 未来\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

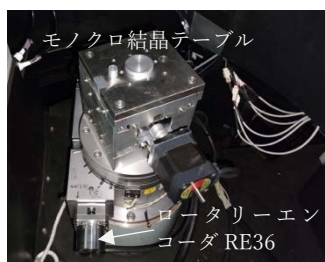
\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

## 概要

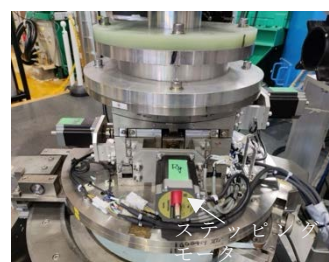
TAS-2(T2-4)は三軸型中性子分光器として必要十分な機能を持つが、不足していた(1)遠隔操作型ビームナローおよび(2)モノクロ結晶軸(M1 軸)のエンコーダを付加した。さらに、(3)故障した試料ゴニオ 4 軸の超音波モータをステッピングモータに更新した。一方、TAS-2 は T2 導管の末端に設置されており、比較的高いビームフラックスと装置周りの広いスペースが利用可能であることから、極限試料環境下の中性子散乱実験を重視している。今回、別途開発導入した無冷媒式試料環境可変システムについて、TAS-2 制御ワークステーションからシステムを運転可能な状態にまで整備が進み、令和 5 年度以降、TAS-2 において、(4)寒剤なしで 0.3K+10T という極限試料環境下での実験が可能となった。



(1)遠隔操作型ビームナロー



(2)モノクロ結晶軸エンコーダ



(3)試料ゴニオステッピングモータ



(4)無冷媒式試料環境可変システム  
(写真は、非対称 10T マグネットおよびシングルショット式  $^3\text{He}$  インサート)

## 使用装置

TAS-2

## 実施課題 No.

[1]令和 3 年度 I439 「TAS-2 装置担当者枠」

[2]令和 4 年度 I671 「TAS-2 IRT」

#### ユーザーミーティング

- 令和5年3月9日  
TAS-1, TAS-2, LTAS, HRPD ユーザーミーティング 於：原子力科学研究所  
長壁 豊隆  
“装置からの報告：TAS-2”

#### 学会等で発表された成果

- 令和3年9月20～23日  
日本物理学会 2021 秋季大会 於：オンライン  
荒木 新吾、小林 達生、西森 弘顕、秋葉 和人、岩本 凱成、宗像 孝司、長壁 豊隆、金子 耕士  
“ $\alpha$ -Mn の高圧物性”
- 令和3年12月1～3日  
第21回日本中性子科学学会年会 於：オンライン  
山内 宏樹、金子 耕士、長壁 豊隆、久保田 正人、萩原 雅人  
“JAEA の三軸分光器の現状と計画”
- 令和4年8月28日～9月1日  
ISSE workshop 2022 11th international Workshop on Sample Environment at Scattering Facilities 於：栃木県那須町  
K. Munakata, T. Osakabe  
“Development and application of techniques for low-temperature and high-pressure single crystal neutron diffraction” (口頭)
- 令和4年8月28日～9月1日  
ISSE workshop 2022 11th international Workshop on Sample Environment at Scattering Facilities 於：栃木県那須町  
K. Kaneko, M. Hagihala, H. Yamauchi, Y. Oba, T. Kumada, M. Kubota C. Tabata, Y. Kojima, Y. Shimojo, K. Kodama, T. Osakabe  
“New Standard for Low Temperature Sample Environment at JAEA/JRR-3” (口頭)
- 令和4年9月12～15日  
日本物理学会 2022 年秋季大会 於：東京工業大学  
荒木 新吾、岩本 凱成、秋葉 和人、小林 達生、宗像 孝司、長壁 豊隆、金子 耕士  
“ $\alpha$ -Mn の圧力磁気秩序相の磁気構造”

- 令和4年10月26～28日  
日本中性子科学会第22回年会 於：幕張メッセ国際会議場  
長壁 豊隆、宗像 孝司、木村 宏之  
“高圧下磁性研究における JRR-3 と J-PARC MLF の相補利用”
- 令和5年3月22～25日  
日本物理学会2023年春季大会 於：オンライン  
荒木 新吾、多田 龍輝、秋葉 和人、小林 達生、田端 千紘、金子 耕士、長壁 豊隆  
“ $\alpha$ -Mn の常圧反強磁性相の磁気構造”

**独自利用以外の課題実施状況**

○施設供用課題…1件

    成果占有課題（トライアルユース含む）…0件

    成果非占有課題…1件

成果非占有課題	所属機関
2 波長切替用モノクロメータの強度測定	量子科学技術研究開発機構



## 2.4 LTAS 冷中性子三軸中性子分光器

装置担当者：山内 宏樹、金子 耕士



### 概要

LTAS は、JRR-3 ガイドホールの C2 冷中性子導管の最上流に設置された冷中性子三軸型光器である。LTAS の特徴は、波長の長い冷中性子を用いるため、約 0.1 meV という高いエネルギー分解能による中性子非弾性散乱実験を得意とすることである。熱中性子分光器と比較して、低い波数領域を高い波数分解能で測定することも可能である。また、独立回転可能な 9 枚の PG 結晶ブレードで構成された大型アナライザ機構を採用しているため、高効率な非弾性散乱測定も可能である。これらの特色を活かし、強相関電子系化合物の低エネルギー励起現象の観測やスピン構造の決定、タンパク質などの生体関連物質の分子運動を調べる研究など、主に基礎物性研究の分野において幅広く利用されている。また、分光器の主な構造物は非磁性化されているため、TAS-2 同様、極限試料環境下での測定も可能である。

### 装置詳細

中性子源	冷中性子源 (液体水素モデレーター 20 K)
モノクロメータ部	PG 結晶(002)面 エネルギー範囲：2~10 meV 集光方式：縦ベント型
試料部	-5° ~ 115°
アナライザ部	PG 結晶(002)面 散乱角度範囲：80° ~ 110° エネルギー範囲：2.5~4.8 meV 集光方式：9 ブレード独立回転による横集光型(縦ベント固定)
検出器	0 次元 $^3\text{He}$ ガス比例計数管 (2 inch)

試料環境

TAS-1, TAS-2 と共通設備を使用可能である。

測定例

プラセオジウム (Pr) 系初の重い電子系超伝導体である充填スクッテルダイト  $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  について、LTAS で 10 T かつ 300 mK 以下の極限環境下での中性子散乱実験を行った。高エネルギー分解能の非弾性散乱実験において、0.7 meV 付近に存在する結晶場励起の観測に成功し、基底状態が非磁性一重項であることを見出した。さらに第一励起状態が磁場の印加に伴って分裂し、これにより新たに弱い反強磁性磁気反射が誘起されることを明らかにした。磁気反射強度の解析から、通常は磁場に対して垂直方向がエネルギー的に安定な誘起反強磁性モーメントが、磁場に平行な方向を向いていることが判った。この起源として、磁場誘起相の秩序変数が磁気的なものでなく、 $O_{xy}$  型の電気四極子モーメントであることが明らかになった。これらの結果は、 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  の超伝導発現機構において、従来の磁気揺らぎとは異なる電気的な四極子が重要な役割を担っていることを示している (N. Metoki, K. Kaneko *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. 2004; K. Kaneko *et al.*, Physica B: Condensed Matter, 2006)。

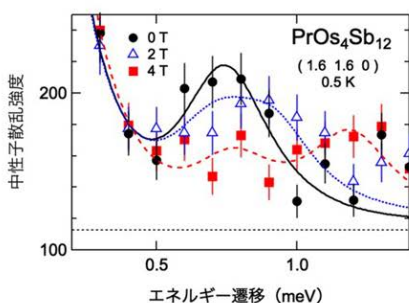


図1. 重い電子系超伝導体  $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  の結晶場励起。

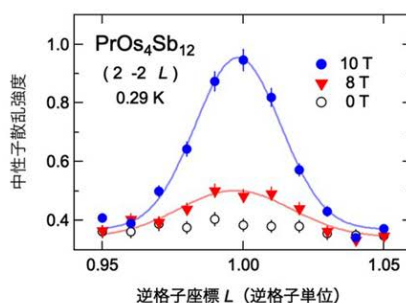
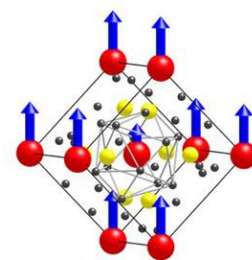


図2.  $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  で観測された磁場誘起磁気反強磁性のピークと磁気構造。



## 中性子準弾性散乱による澱粉の構造変化に伴う分子運動性の変化の解析 Analysis of Changes in Molecular Motility Associated with Structural Changes in Starch by Quasi-Elastic Neutron Scattering

中川 洋\*、平田 芳信\*\*、西津 貴久\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*岐阜大学大学院 連合農学研究科 食品加工学研究室

### 概要

デンプンの老化は、その結晶化度を推定できる X 線回折(XRD)を使用して評価でき、結晶化度その機械的特性に反映される。結晶化度はデンプンの分子運動性にも関連するが、両者の関係性については不明な点が多い。本研究では、中性子準弾性散乱 (QENS) を用いて老化中の米飯デンプンの分子運動性の変化を調べた。その結果、Elastic Incoherent Scattering Factor (EISF) の増加が観測された(Fig. 1)。これは、老化時に分子運動が空間的に抑制されることを示す。Bimodal モデルを用いた EISF の解析では、分子運動の低い成分と高い成分はそれぞれ結晶相および非晶質相に対応すると仮定され、結晶相の割合が老化とともに増加することが示された。また老化中の分子動運動の抑制は、XRD によって評価された結晶化度と相関することが分かった。糊化および老化後に現れる結晶領域の分子運動性は、生の米デンプンとは異なる。これらの結果は、分子運動性が老化の状態を反映し、デンプンの老化の状態を追跡するために使用できることを示唆する。

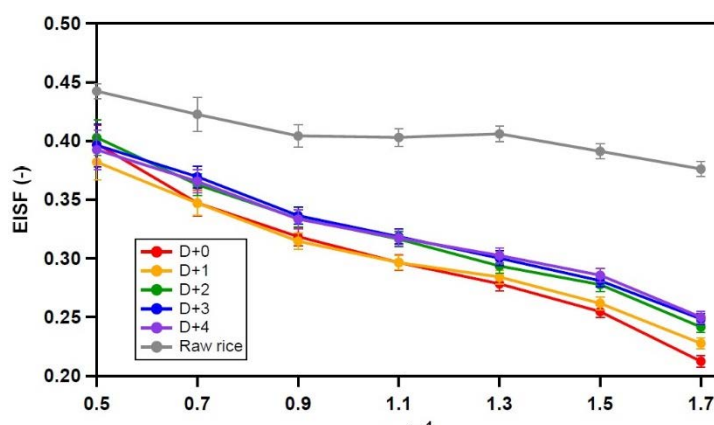


Fig. 1 老化に伴う Elastic Incoherent Scattering Factor (EISF) の経時変化(0-4 日)

### 参照

[1] Yoshinobu Hirata, Hiroshi Nakagawa et al., “Effect of starch retrogradation on molecular dynamics of cooked rice by quasi-elastic neutron scattering”, *Food Hydrocolloids*, 141, 108728 (2023).

### 使用装置

LTAS

### 実施課題 No.

- [1] 令和4年度 D613「澱粉の水和構造に対する添加物の影響の解析」
- [2] 令和4年度 D614「澱粉の加熱糊化に伴う水和構造の変化の解析」

Mn<sub>3</sub>RhSi における高温磁気散漫散乱の起源Origin of high temperature magnetic diffuse scattering in Mn<sub>3</sub>RhSi

山内 宏樹\*, 社本 真一\*\*

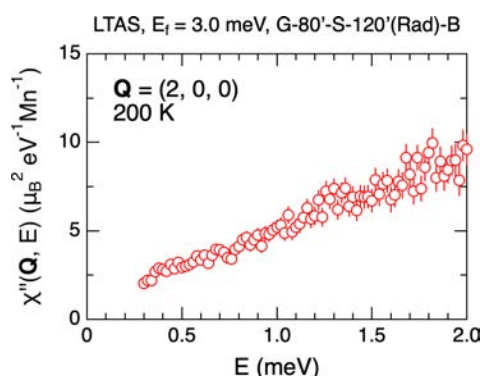
\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*総合科学研究機構 中性子科学研究センター

## 概要

我々は以前、三角格子の三次元鎖を持つハイパーカゴメ格子反強磁性体 Mn<sub>3</sub>RhSi において、4 K から TN = 190 K を大きく超えて 720 K まで散漫散乱が存在すること、この散乱が TN 以下の反強磁性秩序とは対称性が異なる短距離磁気秩序によるものであることを発見した(H. Yamauchi et al., Commun. Mater. 2020; K. Kodama et al., J. Phys. Soc. Jpn. 2021)。さらに、中性子非弾性散乱でその磁気励起スペクトルを調べ、この短距離磁気秩序がスパイラルな磁気クラスターで説明できることを示した(S. Shamoto et al., Commun. Phys. 2023)。

今回、J-PARC の高エネルギーの磁気非弾性散乱データに、LTAS で測定した低エネルギー領域のデータ(Fig. 1)を加え、動的帯磁率から TN 以上の平均磁気モーメントを見積もることに成功し、磁気散漫散乱が Mn<sup>2+</sup> の局在磁気モーメントのスピンの揺らぎによるものであることを明らかにした。この系の特異な振る舞いは、β-Mn をベースとするハイパーカゴメ格子に由来する幾何学的フラストレーションが起源と考えられる。

Fig. 1  $Q=(2, 0, 0)$ , 200 K の動的帯磁率  $\chi''(Q, E)$ 

## 参照

- [1] S. Shamoto, H. Yamauchi, K. Iida et al., “Magnetic excitation in the hyperkagome antiferromagnet Mn<sub>3</sub>RhSi”, *Physical Review Research*, 6, 033303 (2024).  
 [2] 社本 真一, 山内 宏樹, 他「ハイパーカゴメ格子反強磁性体の磁気モーメントと電子比熱係数上昇」日本物理学会 2024 年春季大会(口頭発表, 2024 年 3 月)。

## 使用装置

LTAS

## 実施課題 No.

- [1] 令和 4 年度 D681 「Mn<sub>3</sub>RhSi 単結晶における高温磁気散漫散乱」  
 [2] 令和 4 年度 I587 装置担当者枠

## ゲル・液晶相転移における生体膜の異方的ダイナミクスの変化

### Anisotropic dynamics of bio-membranes during gel/liquid-crystalline phase transition

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

生体膜はリン脂質が二分子膜を形成することでできている。またリン脂質二分子膜は生体膜のモデルとして生体系の研究によく用いられる。膜は周囲の環境変化に応じてその状態を変化させ、ゲル-液晶相転移(秩序-無秩序相転移)を起こすことが知られている。低温のゲル相では脂質が密にパッキングして流動性があまりないが、転移温度以上になると分子運動が現れ、流動的な液晶相へと転移する。液晶相では脂質膜の物質透過性がよくなるため、ゲル・液晶相転移における二分子膜の構造ダイナミクスを調べることは、脂質膜の機能性の理解や脂質膜を利用した機能性分子の開発にも重要である。2次元平面に広がった二分子膜は、異方性のある分子集団である。膜の流動性は平面方向の揺らぎが重要であるため、膜に垂直方向の揺らぎと区別して、脂質全体の分子運動から平面内の揺らぎを選択的に観測することが重要である。

本研究では、リン脂質二分子膜の平面方向と垂直方向の脂質分子の揺らぎを選択的に観測するため、分子の揺らぎの方向と散乱ベクトルの方向を制御して中性子非弾性散乱スペクトルを得ることを目的とした。リン脂質二分子膜の面内方向と面に対して垂直方向の揺らぎを解析すべく、シリコンウェハに脂質を展開する方法を検討した。現在のところ、試料の向き制御することによる異方的な分子運動性の解析には至っていないが、本提案実験は、生体膜の解析に対する3軸型分光器の活用といった計測手法の高度化にも資するものであり、今後も継続して検討を進める。

#### 使用装置

---

LTAS

#### 実施課題 No.

---

[1]令和4年度 D611「ゲル・液晶相転移における生体膜の異方的ダイナミクスの変化」

## 微生物のガラス転移に及ぼす細胞透過性溶質の影響

### Effect of cell-permeable solute on the glass transition of microorganism

中川 洋\*、川井 清司\*\*、曾我部 知史、山田 武\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*広島大学 大学院統合生命科学研究科

\*\*\*総合科学研究機構 中性子科学センター

#### 概要

---

乾燥食品の水分活性 ( $a_w$ ) は低く設定されており ( $a_w < 0.85$ )、食中毒の原因となる細菌は増殖できないため、微生物的な衛生管理はあまり重要視されてこなかった。しかし、現実には乾燥食品を原因とする食中毒事故が多発している。幾つかの食中毒細菌は乾燥食品中にて静菌状態にある (生命活動を停止するが死滅しない) ためである。細菌の細胞内部を、様々な成分から構成される混合溶液として物理化学的に捉えると、水分含量の低下によって細胞内部の粘性は上昇し、ガラス状態になると考えられる。細胞がガラス状態に陥ることで、細胞内は活動時と同じ物理状態 (溶液状態) のまま、固化する。即ち、細胞は生きた状態のまま、時間だけが停止している。これが静菌状態の本質と解釈される。この仮説にしたがうと、乾燥食品における食中毒細菌の静菌および殺菌効率の予測・制御には、細菌のガラス転移温度 ( $T_g$ ) が重要な指標になると考えられるが、実験的に証明した事例は無い。 $T_g$  を決定するために最もよく利用される技法は示差走査熱量計などの熱分析であるが、複雑系試料は熱分析に適さないためである。この様な背景の下、熱機械測定を用いることで微生物のガラス転移を力学的に捉えようという試みもあるが、力学的なガラス転移はマクロな物理情報であり、現象論的側面がある。細菌のガラス転移を別角度から支持するためには、温度並びに  $a_w$  変化に伴う分子ダイナミクス変化を評価すべきと考えられる。

本研究では、分子ダイナミクスの評価には中性子非干渉性弾性散乱による Mean Square Displacement (MSD) 測定を行った水分活性が 0.75 の微生物試料について、その温度依存性の解析から dynamical transition を確認した。中性子準弾性散乱スペクトルの分析も行っており、その水分活性依存性などを解析中である。

#### 使用装置

---

LTAS

#### 実施課題 No.

---

[1] 令和 4 年度 D687 「微生物のガラス転移に及ぼす細胞透過性溶質の影響」

#### ユーザーミーティング

- 令和5年3月9日  
TAS-1, TAS-2, LTAS, HRPD ユーザーミーティング 於：原子力科学研究所  
山内 宏樹  
“装置からの報告：L-TAS”

#### 学会等で発表された成果

- 令和5年8月24～26日  
日本食品科学工学会 第70回記念大会 於：京都女子大学  
平田 芳信、中川 洋、山内 宏樹、金子 耕士、萩原 雅人、山口 秀幸、大元 智恵、  
勝野 那嘉子、今泉 鉄平、西津 貴久  
“炊飯米の老化における澱粉の結晶構造と分子ダイナミクスの関係解明”（口頭）

**独自利用以外の課題実施状況**

○施設供用課題…1件

成果占有課題（トライアルユース含む）…0件

成果非占有課題…1件

成果非占有課題	所属機関
非干渉性中性子散乱によるココアバターの運動性と構造の相関に関する研究	大阪大学



## 2.5 SUIREN 偏極中性子反射率計

装置責任者：盛合 敦、装置担当者：武田 全康



### 概要

SUIREN は、平滑な物質界面で反射した中性子を計測することで、物質表面付近の 1 nm から数  $\mu\text{m}$  程度までの深さ方向の構造や表面に成膜した薄膜・多層膜の層構造を非破壊で解析する装置である。表面構造を知ることは、フィルムやコーティング材の透過特性、撥水性、腐食反応、機能性材料表面の反応性、吸着、生体膜の機能のメカニズムを理解することに繋がるため、様々な場面でその重要性が高まっている。中性子の特長である同位体識別能や磁気モーメントの観測能を生かすことで、軽元素だけで構成される高分子や界面活性剤等のソフトマター、磁性薄膜中の磁気界面などの研究も進めることができる。本装置は、測定面を垂直に立てる形で試料を設置するため、試料形態としては、固体試料またはセルに入れた状態の固液界面試料が対象となる。中性子反射率の角度依存性を解析することによって、各層での密度、組成、層厚、層間の界面粗さの情報などが得られる。また、偏極中性子の利用が可能であるので、磁性膜を含む多層磁気構造を解析し、磁化の深さ方向分布を同定することもできる。

### 装置詳細

形式	試料垂直配置型
中性子源	冷中性子源 (液体水素モデレーター-20 K)
中性子波長	$\lambda = 0.393 \text{ nm}$ PG(002) ( $\Delta \lambda / \lambda = 2.6\%$ )

最大ビームサイズ	80H×10W mm <sup>2</sup>
強度 ( $\Delta \theta = 0.08\text{deg}$ )	$1.8 \times 10^4$ n/cm <sup>2</sup> /s
バックグラウンド	$4.5 \times 10^{-3}$ n/s
検出器	0次元検出
到達可能反射率	10 <sup>-6</sup> 以下
偏極率 (整備中)	0.96 以上 (震災前実績)

## 周辺機器

### (1) サンプルチェンジャー (写真1)

サイズによらず (ただし、基板厚さは 5 mm 以下)、最大 10 個のサンプルを遠隔で切り替えることができる。

### (2) 真空フライトパス移動ステージ (写真2)

SUIREN では中性子反射率測定に必要な光学反射条件 (入射角=反射角) を決めるために、可視光レーザーを用いた試料のアライメント作業を測定前に行っている。その際、フライトパスが定位置 (測定のための位置) にあると Al 窓がレーザーの光路を妨げるので、それを安全に光路から外すことのできる手動ステージ。

### (3) 測量機 (写真3)

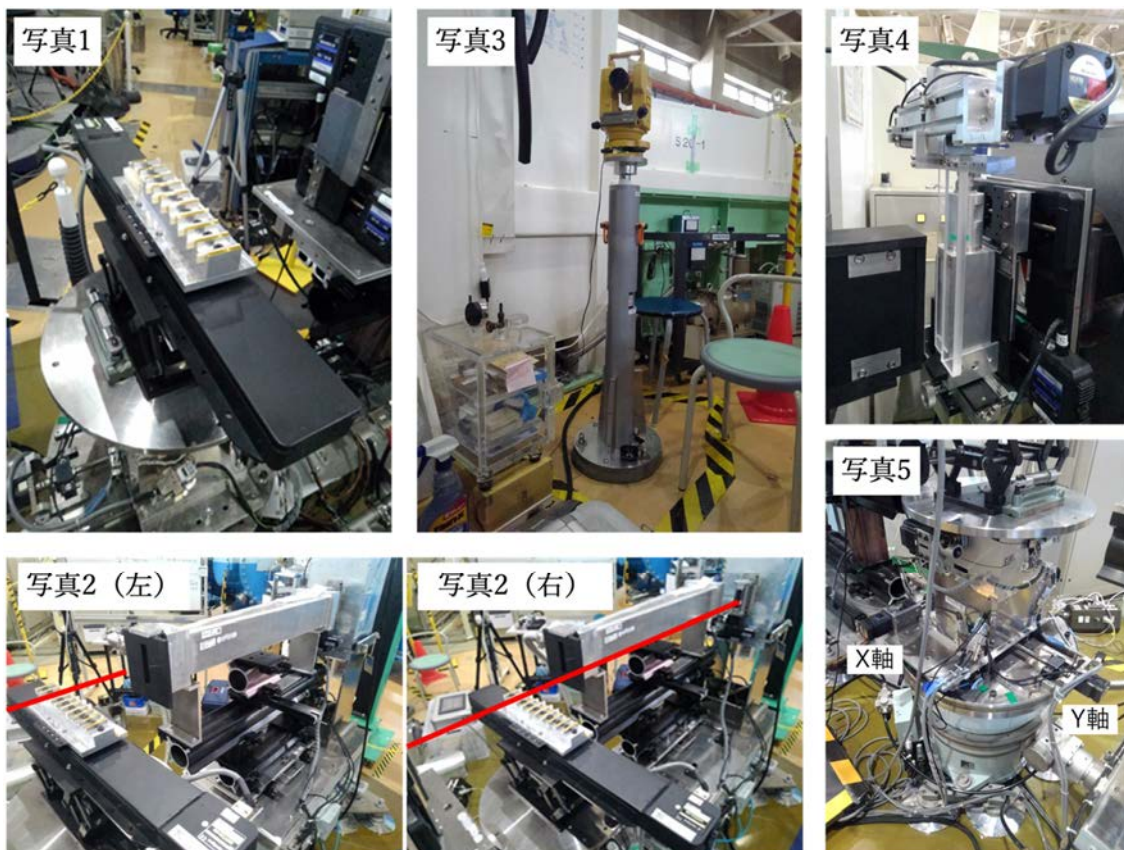
試料回転ステージと後述の 4 軸ゴニオメータに取り付けられた試料の中心位置が一致するように調整するための測量機。

### (4) アッテネータ自動交換機 (写真4)

カウントレートが高い時、検出器の数え落としを避けるために挿入されるアッテネータを遠隔で切り替えることのできる交換機。アッテネータ (アクリル板) の厚さは 5 mm と 10 mm であるが、必要に応じて更に厚いアクリル板や他の材質でも装着可能である。

### (5) 4 軸ゴニオメータ (写真5)

直交する 2 軸の平行移動とその移動方向に対する傾き (ティルト) を遠隔で変えることのできる 4 軸ゴニオメータ。耐荷重は 6.865 kN (=700 kgf)、試料テーブル上面の直径は 400 mm。



周辺機器の写真

写真 1：自動ステージ、写真 2 (左)：フライトパスが定位置（反射率測定時）の状態、写真 2 (右)：フライトパスがレーザー光の光路の外に移動した状態、写真 3：常設された測量機、写真 4：アッテネータ自動交換機（アクリル板 5mm<sup>t</sup>、10mm<sup>t</sup>）、写真 5：4 軸ゴニオメータ [平行移動 2 軸 ( $X$ - $Y$ 軸) + ティルト 2 軸 ( $R_x$ - $R_y$ 軸)]。

## 測定例

図 1 と 2 は SUIREN で得られた標準試料の反射率曲線である。参考のために両方ともにバックグラウンドレベルとそれを差し引かない場合の反射率曲線も同時に示してある。図 1 に示すのはシリコン基板、図 2 は Si 基板上に成膜した Ni/Ti 多層膜ミラーの測定結果である。Si 基板からの反射率はどこまで小さな反射率の値にまで到達できるかの指標として良く使われ、基板の厚さが 3 mm であるため、実質的に基板の厚さを無限大と見なして良く、実際に低い  $q$  領域で全反射した後、 $q$  が大きくなるにつれて単調に減衰する、表面反射のみの反射率曲線が得られている。この例から  $10^{-6}$  領域までの反射率測定が可能なのがわかる。次の例である Ni/Ti 多層膜ミラーでは、それぞれ 5.0 nm の厚さの Ni と Ti を重ねた一組の 2 層膜が 20 回繰り返されたものである。この例では Si 基板と同じように  $q$  の小さな領域で全反射が観測されている他に、Ni と Ti の 2 層膜が 20 回繰り返されていることによる、周期的なピーク構造が見えている。さらに周期構造を示す最初のピーク ( $0.6 \text{ nm}^{-1}$  付近) と全反射領域との間に、表面で反射した中性子と、多層膜の中を反射と屈

折を繰り返しながら基板界面で反射して戻ってきた中性子の波が干渉する事によって生じる干渉縞が図 2 にきれいに観測されている。これらの周期的なピーク構造や干渉縞の間隔、さらに反射率曲線の減衰の度合いから、厚さ方向の膜を構成する物質の変化や膜厚だけでなく表面や界面の構造の乱れ（ラフネス）を非破壊的に知ることが可能となる。

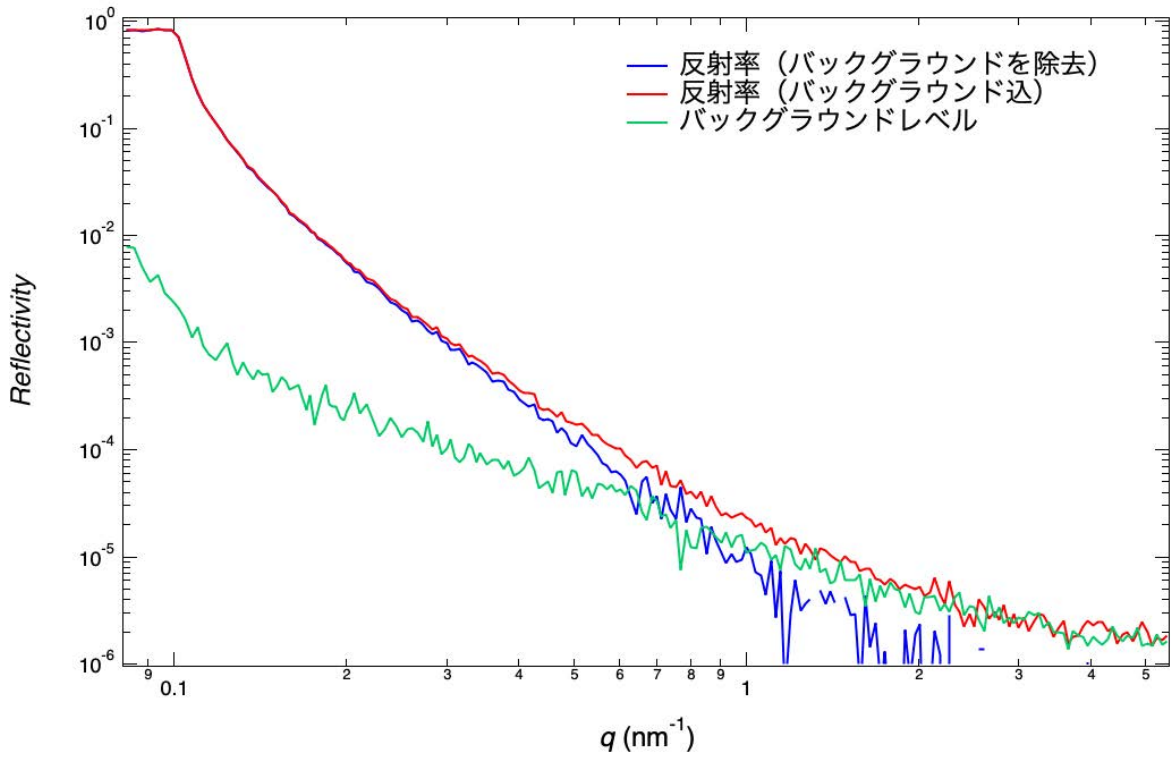


図 1 Si 基板の中性子反射率

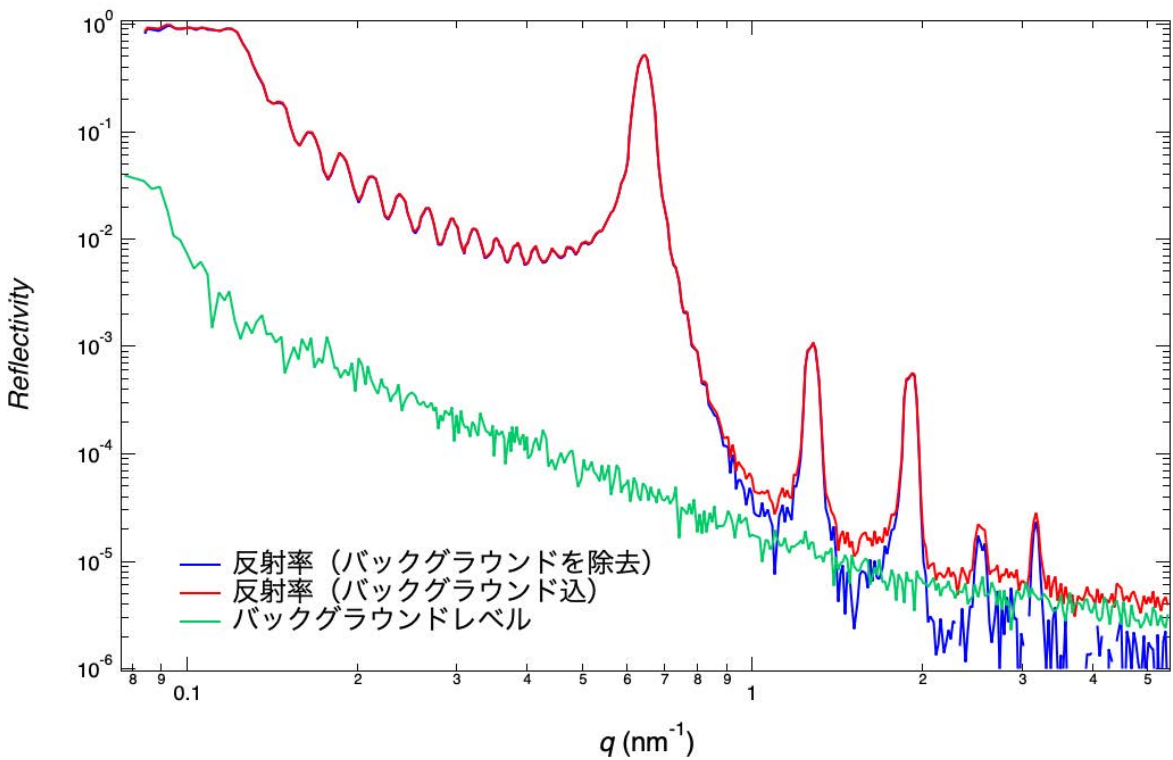


図 2 Ni/Ti 多層膜ミラーの中性子反射

## 斜入射中性子を照射した InP 基板からの $^{115}\text{In}$ ガンマ線の入射角度依存性

### Gamma-ray intensity from $^{115}\text{In}$ induced by grazing-incidence neutrons on an InP substrate measured as a function of neutron glancing angle

山崎 大\*、水沢 まり\*\*、桜井 健次\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 物質・生命科学ディビジョン 中性子基盤セクション

\*\*総合科学研究機構 東海事業センター、\*\*\*イメージング物理研究所

#### 概要

---

ナノテクノロジーにおいては埋もれた界面の機能が非常に重要な役割を果たしている。界面の機能を理解するには、界面の構造とともに化学組成、元素分布を知ることが必須である。中性子反射率測定はそのための強力な実験手段であるが、化学組成と密度の両方を独立に求めることはできない。そこで我々は、中性子反射率と同時に測定できる表面・界面に適用可能な元素分析法として、全反射中性子を利用したガンマ線分析法を開発している。この手法は、全反射臨界角近傍の斜入射で中性子を試料に照射する中性子反射法の実験体系で、同時に表面・界面にふくまれる元素からの中性子捕捉ガンマ線を観測・分析するものである。

本研究では、中性子捕獲断面積の比較的大きい  $^{115}\text{In}$  を含む InP 基板を試料として、In 起因ガンマ線信号強度の中性子入射角依存性を観測した。ガンマ線スペクトルでは 162 keV, 186 keV, 273 keV, 417 keV などのエネルギーを持つ  $^{115}\text{In}$  からのガンマ線ピークを観測できた。そして、そのピーク強度の中性子入射角依存性を調べたところ、InP 基板の中性子全反射臨界角を境にして明確に信号強度が変化することが分かった。これは、モデル計算によっても概ね再現された。ただ、全反射臨界角以下での信号強度が計算よりも大きくなっており、この原因について現在調査中である。また、この測定後の遮蔽構造の検討により、300 keV 以下のガンマ線バックグラウンドを大きく低減できるめどが立った。これにより、さらに精度をあげたガンマ線ピーク強度測定が可能になると期待される。

本課題では、実験セットアップなどについての初期の試行錯誤等もあり、課題名に挙げた凝固 InGa の表面密着性検討まで到達することはできなかった。これについては令和 5 年度以降の課題で取り組みたい。

#### 使用装置

---

SUIREN

#### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 D547 「斜入射中性子即発ガンマ線分析法による凝固 InGa の表面密着性の検討」

## 中性子反射率測定を用いたアモルファス材料の表面損傷評価

### Surface Damage Evaluation of Amorphous Materials Using Neutron Reflectivity Measurement

諸岡 聡\*、栗田 圭輔\*、佐々木 未来\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

近年、高出力レーザーや高輝度ランプ、LED等の高出力光源を用いた加工・露光分野において、寸法の微細化に伴い、光源の短波長化、高出力化が進展している。一方で、それら光源の高い光エネルギー密度による、ミラーやレンズ等の光学素子の劣化や損傷が問題となっている。光学素子の劣化や損傷の要因の一つとして、光学素子の表面粗さに起因する入射光の散乱・吸収が挙げられ、高出力光においてはその影響が無視できない水準に達する。一般的に、光学素子の表面粗さを低減することにより、光学素子表面の凹凸による散乱損失が低減され、光利用効率が向上し、耐パワー性が向上することが確認されている。しかしながら、光学ガラス基板や結晶などの表面状態を非破壊で検証できる方法が確立されていない。

本研究は、JRR-3 ビームホールの C2-2 に設置された中性子反射率測定装置 SUIREN を用いて、光学素子に使用されるガラス基板の表面状態を調査することを目的とする。中性子反射率測定装置 SUIREN は、材料中の密度変化から見えない界面を特定することに優れた装置であるため、本研究課題を解決することができる可能性があるため、本装置を選択した。

測定試料は  $\phi 30$  mm の合成石英ガラスであり、それぞれ化学研磨前 (No.1)、化学研磨後 (No.2, No.3) である (図 1)。中性子反射率測定装置 SUIREN で得られた反射率 (R)-波数 (q) プロファイル (raw data - B.G.) を見ると、No.1 と No.2, No.3 では表面粗さに起因したプロファイルの変化が見られることから、ガラスの大きな損傷を識別することができる可能性が示唆される。一方で、No.2 と No.3 ではプロファイルに大きな変化が見られないことから、ガラスの小さな損傷を識別することが困難であることがわかる。引き続き、詳細な解析を進め、ガラスの損傷度の識別限界等を調査する。

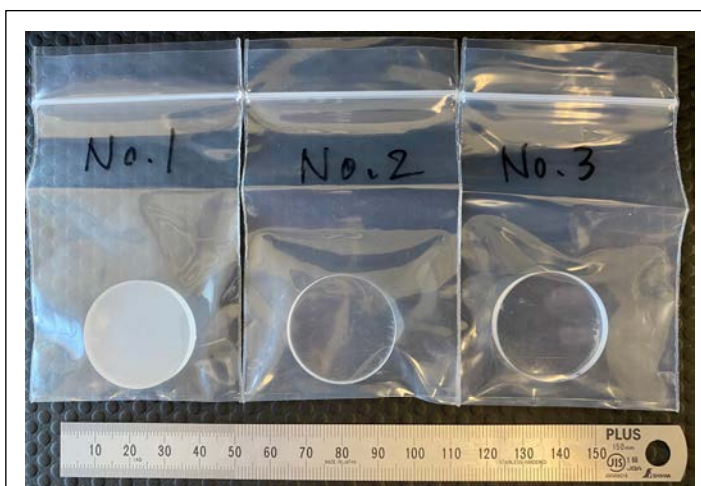


図 1 合成石英ガラス：化学研磨前 (No.1)、化学研磨後 (No.2, No.3)。

**使用装置**

---

SUIREN

**実施課題 No.**

---

[1]令和4年度 D582「中性子反射率測定を用いたアモルファス材料の表面損傷評価」



## 制御・測定制御機器及びソフトウェアの更新

### Update of hardware and software of controlling devices and data acquisition system

盛合 敦\*、武田 全康\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

#### 概要

震災前に使っていた装置の制御機器は保守期間が終了しているため、PLC(Programmable Logic Controller) を使ったものに更新した。また、これに伴い制御用のソフトウェアの書き換えが必要となったため、ドライバーも含めて制御・測定ソフトウェアも一新した。ソフトウェアの更新に際しては、GUI (Graphical User Interface) による制御を意識しながら、まずはキーボードからの入力だけでの制御 CUI (Character User Interface) によるものとした。更新にあたっては今後の保守が容易になるように、グラフ表示、最小自乗法による fitting などは、ある条件の下で自由に使うことのできる既存のソフトウェアを利用する事とした。具体的には gnuplot (<http://www.gnuplot.info>)、levmar (<https://users.ics.forth.gr/~lourakis/levmar/>)などである。また、測定の効率化、自動化を進めるために周辺機器の整備を行った。

#### ○制御・測定ソフトウェアの整備

ソフトウェアは関連するものをすべて書き直した。最初のステップとして CUI による制御を可能として、将来的にはそのソフトウェアを GUI から起動できるように設計をした。以下はメニュー画面である。数値で項目を選ぶとさらに、その項目を実行するのに必要な入力を求められる。下記は 16: Scan Axis を選択して、指定した軸を一定の間隔で動かし、各点での中性子強度の変化を測定するものである。

\$ suiren\_menu

```

////////////////////////////////////
/////// suiren control menu ver.0.1 2022.11.18  //////////
////////////////////////////////////
0: Back to Local
1: Go to Remote
2: Reset PLC
-----
3: Shutter
-----
4: Change Display Axis
5: Read Position
-----

```

- 6 : Lock or Unlock Axis
- 7 : Move One Axis
- 8 : Move Multiple Axes

- 
- 9 : Read Memory Map
  - 10: Read Air Status
  - 11: Read Axis Status
  - 12: Read Parameters
  - 13: Write Parameter

- 
- 14: Redefine Position of One Axis
  - 15: Redefine Positions of Multiple Axes

- 
- 16: Scan Axis

- 
- 17: Scan Slit Width
  - 18: Set Slit Width (mm)

- 
- 19: Insert Attenuator
  - 20: Count

- 
- 21: Cal S1 Offest by **S1 Scan** and goto specular position
  - 22: Cal S1 Offest by **S2 Scan** and goto specular position
  - 23: Set Offest

- 
- 24: Axis Monitor

- 
- 25: Quit

////////////////////////////////////

16

---

Input axis name to be scanned > S2  
Input start position [-0.781861] (mm/deg.) > -0.3  
Input end position [1.218139] (mm/deg.) > 0.3  
Input step value [0.2] (mm/deg.) > 0.02  
Set accumulation time [10] (sec.) > 1  
Input fitting function ('G' for Gauss or 'T' for trapezoid) > G  
Set fitting function G

Would you like to go to the position defined by the fitting ? Y/N [N] > N

OK ! stay at the end position.

(この後、軸のスキャンが始まる)

なお、メニューを経なくても、パラメータを引数としてコマンドラインからの実行からも可能である。上記の場合には以下のようなになる。

```
$ scan_axis S2 -0.3 0.3 0.02 1 G N
```

#### ○周辺機器の整備

##### ・サンプルチェンジャーの導入 (写真 1)

パルスモータ駆動の可動範囲±250mm のリニアステージをサンプルチェンジャーとして導入するとともに、このチェンジャーと組み合わせて使用するサンプルホルダーを整備した。ホルダーには、サイズによらず (ただし、基板厚さは 5mm 以下)、最大 10 個のサンプルをセットできるため、試料のアライメントを行った後は複数のサンプルの自動測定が可能となっている。

##### ・フライトパス移動ステージの設置 (写真 2)

中性子反射率測定を行う前には、ビームラインに対してサンプルの中心位置を合わせるとともに、鏡面反射条件 (入射角と反射角が等しい条件) にビームラインに対する試料の角度を合わせる必要がある (アライメント)。中性子は眼で見る事ができないので、SUIREN では可視光レーザーを用いてアライメントを行うが、サンプルと検出器の間に設置した真空フライトパスがレーザーの光路を遮ることから、アライメントの度に重いフライトパスを一時的に取り外しする必要がある。作業を効率良く、かつ安全に行うために、フライトパスを取り外さずに、レーザーの光路から外す事のできる移動ステージを整備した。

##### ・測量機の常設化 (写真 3)

上記のレーザーを使ったアライメントを行うためには、試料回転ステージの回転中心軸上にレーザーの光路を一致させる必要がある。これまでは、その作業の都度、測量機器を三脚上に設置して、作業後に撤去していたが、設置に手間がかかる事、三脚は設置場所の自由度が高い一方で剛性や安定性に欠け、測量精度等に悪影響を及ぼす事から、写真 3 のように、ビームホールの床に金属アンカーで据付ける堅牢な架台を整備し、測量機を常設した。

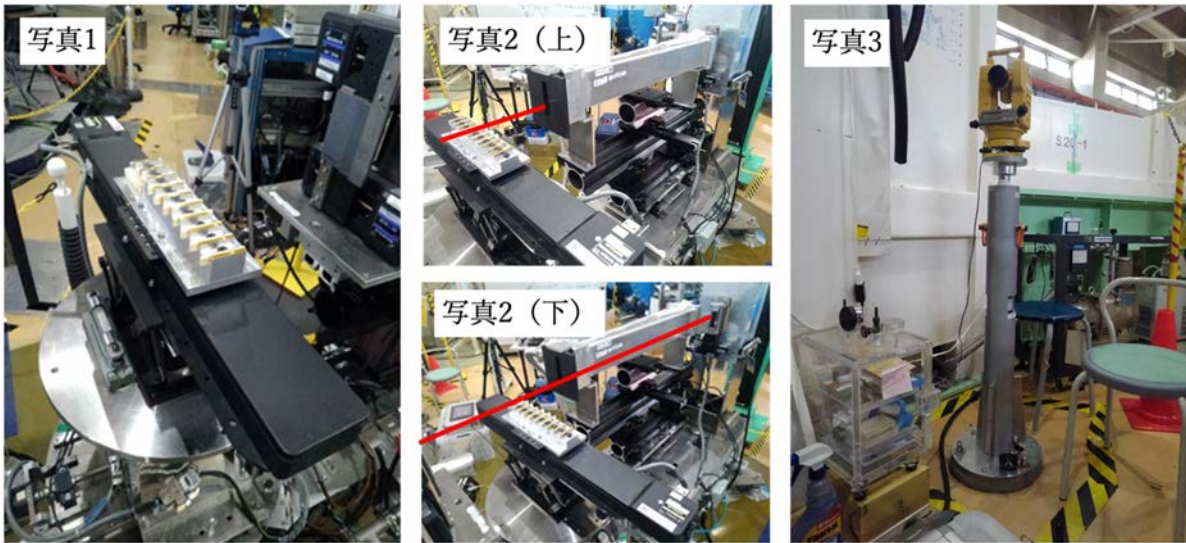


写真1：サンプルホルダーが取り付けられたサンプルチェンジャー、写真2（左）：フライトパスが定位置（反射率測定時）の状態（この状態だと赤線で示したアライメント用のレーザー光がフライトパスの窓材（Al製の真空封止板）で遮られて検出器まで達しない）、写真2（右）：フライトパスごと移動ステージで横にスライドさせた状態（レーザー光が検出器まで届く）、写真3：常設されたアライメント用測量機。

## 使用装置

---

SUIREN

## 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 I477「SUIREN 装置課題」

[2]令和4年度 I669「装置担当者枠」

**ユーザミーティング**

**学会等で発表された成果**

- 令和5年3月16日  
第70回応用物理学会春季学術講演会 於：上智大学  
山崎 大、水沢 まり、桜井 健次  
“斜入射中性子を照射した InP 基板から放出される  $^{115}\text{In}$  ガンマ線の入射角度依存性”  
(口頭)

**独自利用以外の課題実施状況**

○施設供用課題…6件

    成果占有課題（トライアルユース含む）…6件

    成果非占有課題…0件

## 2.6 SANS-J 中性子小角散乱装置/ PNO 精密中性子光学装置

装置担当者：元川 竜平、熊田 高之



### 概要

SANS-J は、試料から散乱された中性子のうち散乱角  $0.001^\circ$  から  $30^\circ$  の領域 ( $0.003 \text{ nm}^{-1} < Q < 6.0 \text{ nm}^{-1}$ ) を精度良く計測する装置である。この散乱角は、ナノからマイクロメートルの実空間スケールに相当するため、物質の階層構造を明らかにすることが可能である。階層構造を知るとは、それぞれの物質が示す特徴や機能発現のメカニズムを理解することに繋がるため、様々な場面でその重要性が高まっている。高分子、無機材料、磁性材料等、幅広い研究テーマが取り扱われており、その利用は多岐に亘っている。また、核燃料物質（ウラン、トリウム）を試料に扱えるため原子力科学に関連する多くの研究開発が進められている。さらに、SANS-J の特徴として偏極中性子ビームとして利用できる点が挙げられる。近年では、この特長を生かした測定手法として「動的核スピンコントラスト法」の開発が進められている。本手法は、入射中性子線のスピンのソフトマテリアルの主成分である水素の核スピンを制御して構造解析を行うもので、従来の重水素ラベルとは異なり、試料を重水素化することなく多成分で構成される複合材料の構造を成分毎に決定する技術として注目を集めている。

PNO は、最小散乱角  $2 \times 10^{-4}^\circ$  ( $Q = 0.0002 \text{ nm}^{-1}$ ) までの極小角散乱を測定することにより、数百 nm から数十  $\mu\text{m}$  までの構造を決定する装置である。SANS-J と併用することにより、より広い空間スケールの構造情報を得ることができる。

### 装置詳細

#### SANS-J

中性子源	冷中性子源 (液体水素モデレーター20K)
モノクロメータ	速度選別器 (透過率 75%)

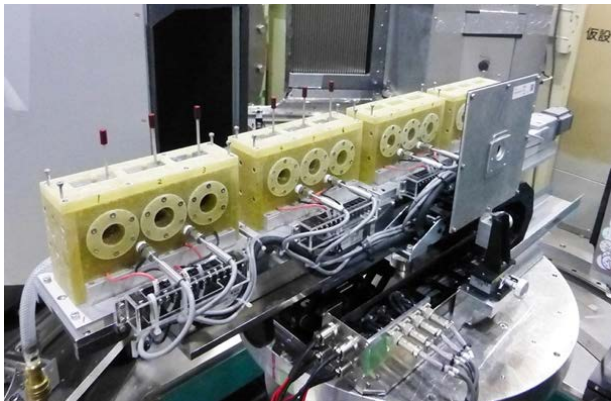
中性子波長	$\lambda = 0.65 \text{ nm}$ ( $\Delta\lambda/\lambda = 0.15$ )
光学機器	中性子レンズ 偏極ミラー 偏極アナライザ
$^3\text{He}$ 検出器(Qレンジ)	前面検出器( $1 - 6 \text{ nm}^{-1}$ ) 主検出器( $0.02 - 2 \text{ nm}^{-1}$ ) フォトマル検出器( $0.003 - 0.05 \text{ nm}^{-1}$ )

**PNO**

中性子源	熱中性子源
モノクロメータ	シリコン結晶 3 回反射
中性子波長	$\lambda = 0.2 \text{ nm}$
光学機器	超精密制御回転ステージ
検出器	$^3\text{He}$ 検出器

**試料環境**

- ・ サンプルチェンジャー



- ・ 常伝導マグネット (1-T)

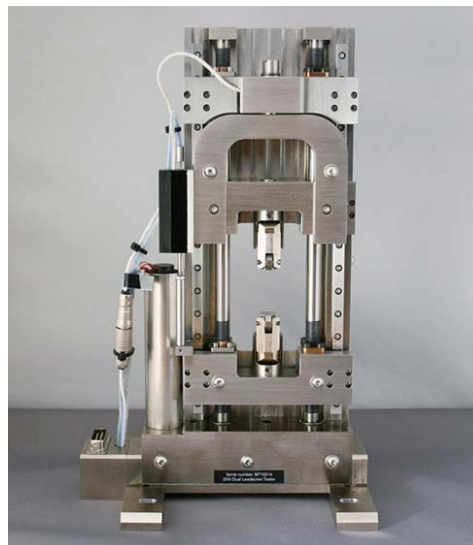




・超伝導マグネット (50 T)



・引っ張り試験器



## 測定例

ブロック共重合体は、全体の分子量と各ブロック鎖の分子量比に応じて様々な周期対称性を持つマイクロ相分離構造を形成する。従来そのマイクロ相分離構造は、ブロック共重合体が溶解した溶液をゆっくりと乾燥させる溶媒キャスト法によってつくられてきた。ところが、フォトニック結晶に用いる分子量が大きなブロック共重合体（約 30 万以上）では、高分子鎖どうしの強い絡み合いにより構造緩和が阻害されるため、周期性の高いマイクロ相分離構造をつくらせることは難しいとされてきた。これに対して本研究では、重合後ではなく分子量がまだ小さい重合の初期段階でマイクロ相分離を起こさせる重合誘起相分離法を考案している。スチレンモノマー溶液中で、ポリメタクリル酸メチル (PMMA) の反応活性末端からポリスチレン (PS) 鎖を重合すると (Fig. 1 a,b)、反応生成物であるブロック共重合体 (PMMA-block-PS) はある分子量を境に自発的にマイクロ相分離を引き起こして周期構造を形成する (Fig. 1 c)。マイクロ相分離後もさらに重合を進行させると、PS 鎖の成長に合わせて周期構造を変化させながら PMMA ドメイン間の距離を拡大させ、サブミクロンスケールの周期構造を形成する (Fig. 1 c-g)。Fig. 2 は、このプロセスを SANS-J でその場観察した結果で、実際に Fig.1 のスキームに従ってフォトニック結晶がつくられることを確認している (R.Motokawa, T.Kumada et al., *Macromolecules*, 2016)。

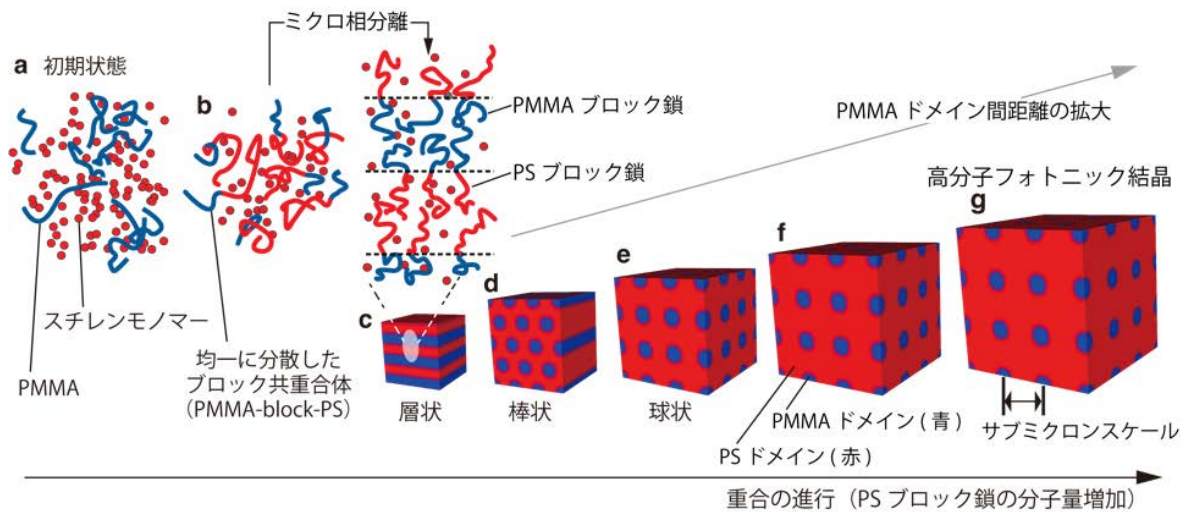


Fig. 1 ブロック共重合体の重合誘起相分離を利用した高分子フォトニック結晶の作製スキーム

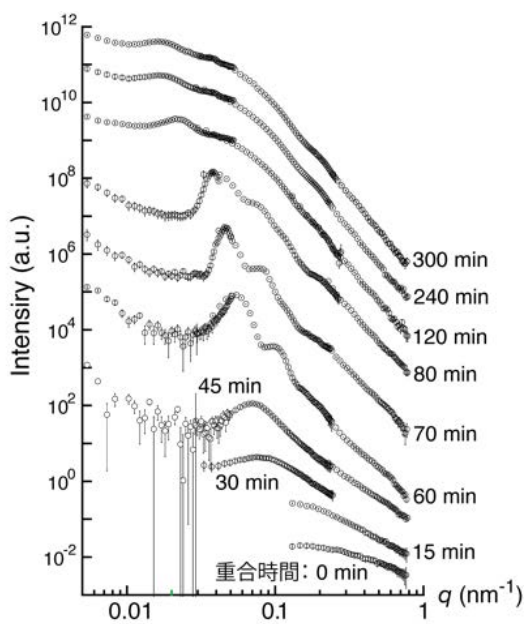


Fig. 2 Fig. 1 のプロセスを SANS-J で追跡した結果

## ガラス固化技術の高度化研究

## Research on advanced vitrification technology

元川 竜平\*、金子 耕士\*\*、大場 洋次郎\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性グループ

\*\*\*豊橋技術科学大学 機械工学系

## 概要

放射性廃棄物のガラス固化研究は長年継続されているが、主として減容化、安定性・耐久性の観点から作製条件の最適化が進められてきた。その一方で、ガラス化処理過程で現れる白金族元素の析出やモリブデン酸塩による結晶相の発生等が顕在化した問題として残されており、さらなる高度化が求められている。今回、ガラス固化用のホウケイ酸ガラスに含まれる添加剤 ( $\text{Na}_2\text{O}$ 、及び  $\text{ZnO}/\text{CaO}/\text{Li}_2\text{O}$ ) がナノ構造に与える影響を中性子小角散乱法で解析したところ (Fig. 1)、ホウ素とケイ素をリッチに含む2種類のドメインには、それぞれ取り込まれ易い放射性核種が偏在する可能性が高いこと、添加剤の種類により析出物の有無に差異が現れることを明らかにした。

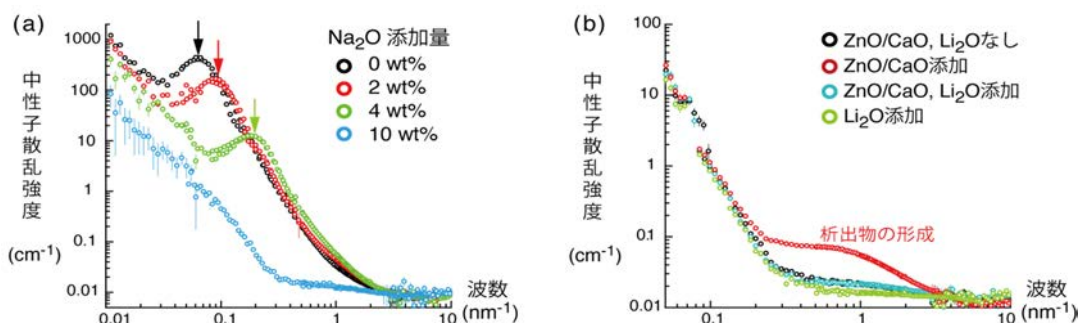


Fig. 1 ガラス固化用ホウケイ酸ガラスで得られた中性子小角散乱 (SANS) 測定の結果

## 参照

[1] Ryuhei Motokawa, Koji Kaneko et al., "Nanoscopic structure of borosilicate glass with additives for nuclear waste vitrification", *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol.578, (2022).

[2] 元川 竜平, 「中性子散乱が拓くガラス固化技術の高度化研究 -添加剤に誘起されるホウケイ酸ガラスのナノ構造変化を解明-」 成果普及情報誌・原子力機構の研究開発成果(2022-2023).

## 使用装置

SANS-J

## 実施課題 No.

[1]令和 3 年度 D420 「高レベル放射性廃棄物を溶かし込むガラス固化用ホウケイ酸ガラスの構造解析研究」

[2]令和 4 年度 D688 「高レベル放射性廃棄物ガラス固化体用ガラスの構造解析」

## HPT 加工した鉄の磁気異方性における高密度格子欠陥の効果

## Effect of high-density lattice defects on magnetic anisotropy of iron strained via HPT

大場 洋次郎\*、足立 望\*、戸高 義一\*

\*豊橋技術科学大学 機械工学系

## 概要

近年、高圧下ねじり（HPT）加工した鉄において、格子欠陥に起因して局所的に磁気異方性が増大することが明らかになった。この増大メカニズムを解明し、制御できるようになれば、磁性材料開発において有益な知見となることが期待される。今回、HPT 加工した後に熱処理を施した鉄の中性子小角散乱（SANS）測定を行うことにより、格子欠陥が磁気異方性に及ぼす影響を検討した。その結果、HPT 加工によって増大した磁気異方性は、熱処理温度が高くなるにつれて減少し、1273 K での熱処理においては消失することを確認した（Fig. 1）。

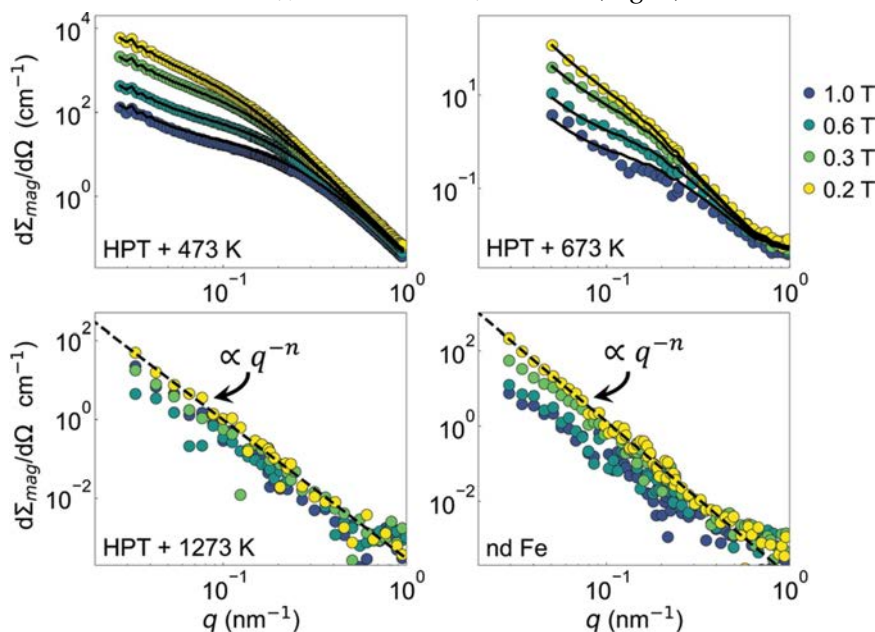


Fig. 1 HPT 加工と熱処理を加えた鉄で得られた中性子小角散乱（SANS）測定の結果

## 参照

[1] Mathias Bersweiler, Hirokazu Sato, Nozomu Adachi, Yoshikazu Todaka, Inma Peral, Joachim Kohlbrecher, Vladislav D. Zaporozhets, Konstantin L. Metlov, Andreas Michels and Yojiro Oba, “Effect of annealing on the magnetic microstructure of high-pressure torsion iron: the relevance of higher-order contributions to the magnetic small-angle neutron scattering cross section”, *IUCr*, vol.10, (2023) 411-419.

**使用装置**

---

SANS-J

**実施課題 No.**

---

[1]令和3年度 D422 「HPT 加工した鉄の磁気異方性における高密度格子欠陥の効果」

[2]令和4年度 D548 「鉄の磁気異方性における HPT 加工の効果」

## 二官能性アミン界面活性剤を用いた粘土粒子の泡沫浮選

### Foam flotation of clay particles using a bifunctional amine surfactant

Micheau Cyril\*、元川 竜平\*、上田 祐生\*、Pierre Bauduin\*\*、Diat Olivier\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*フランス原子力・代替エネルギー庁 マルクール分離化学研究所

#### 概要

重金属や放射性核種による土壌や地下水の環境汚染を回復させる技術の高度化が求められている。その中で、有機溶剤を必要としない粘土鉱物の浮遊分離法は二次的な汚染物質を出さない方法として期待されており、分子レベルでの詳細なプロセスの理解が喫緊の課題とされている。粘土微粒子は、浮遊分離プロセスで金属を間接的に抽出するための吸着剤として使用されるが、同時に消泡剤としても機能する。しかし、泡の生成と安定性が粘土微粒子と界面活性剤の相互作用に対してどのように影響を与えるかについてはこれまでに明らかにされていなかった。本研究では、アミン系界面活性剤を用いた浮遊分離プロセスについて、中性子小角散乱 (SANS) 法を用い、泡の膜厚、界面活性剤と粘土粒子がつくる複合構造を明らかにしている。この知見から、pH に依存して変化する粘土微粒子の分離メカニズム (Fig. 1) を系統的に示すことに成功している。

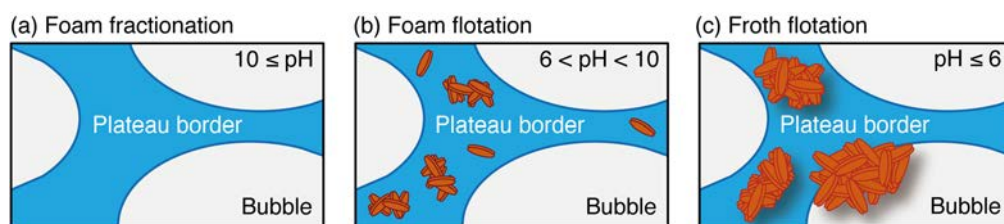


Fig. 1 pH に依存する泡界面と粘土ナノ微粒子との相互作用によって生じる 3 つの異なる発泡分離プロセス。

(a)  $10 \leq \text{pH}$  での泡沫分画、(b)  $6 < \text{pH} < 10$  での泡沫浮遊、(c)  $\text{pH} \leq 6$  での泡沫浮遊。

#### 参照

[1] Cyril Micheau, Yuki Ueda, Ryuhei Motokawa, Pierre Bauduin, Luc Girard, and Olivier Diat, "Foam Flotation of Clay Particles Using a Bifunctional Amine Surfactant", *Langmuir*, vol.39, (2023) 10965-10977.

#### 使用装置

SANS-J

#### 実施課題 No.

[1]令和 4 年度 D556「浮遊選鉱における抽出種とアミン系界面活性剤がつくるバブル膜厚の関係」

## 三級アミンウラン抽出において希釈剤アルキル鎖長が相安定性に与える影響の解明 Understanding diluent chain lengths on phase stability for uranium extraction by tertiary amines in sulfuric environment

元川 竜平\*、上田 祐生\*、青柳 登\*\*、Elise Guerinoni\*\*\*、Sandrine Dourdain\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 耐環境性機能材料科学研究グループ

\*\*\*フランス原子力・代替エネルギー庁 マルクール分離化学研究所

### 概要

---

本研究の目的は、抽出剤分子がつくる超分子的な凝集構造を制御することが、ウランの溶媒抽出プロセスの最適化にどのように役立つかを明らかにすることである。アミン抽出分離 (AMEX) プロセスは、三級アミンを抽出剤として鉱山でのウラン生産に利用されるなど、その利用はウランに留まらず様々な元素の分離において広範な応用が進められている。ところが AMEX プロセスでは、有機相の相分離による重有機相 (第三相) と軽有機相の生成を防ぐために脂肪族アルコールを添加しており、これが原因でアミン抽出剤が劣化 (分解等) することが大きな問題として取り上げられている。第三相の生成は、複数のアミン抽出剤分子の集合によってつくられる逆ミセル的な凝集構造どうしの相互作用によって誘起されると考えられているため、アルコール添加を必要としない AMEX プロセスの開発が求められている。

そこで我々は、様々な分子構造を有する三級アミンについて、有機相中で作られる凝集構造を中性子小角散乱法で観察するとともに第三相生成との関係性を明らかにする検討を行った。その結果、いくつかの三級アミンで第三相生成せずに必要十分な効率でウランを分離できる抽出剤分子を発見した。現在も引き続き精密な構造解析が進められており、その詳細は原子力機構とフランス原子力・代替エネルギー庁マルクール分離化学研究所との国際共同研究による成果として公開される予定である。

### 使用装置

---

SANS-J

### 参照

---

[1] E. Guerinoni, F. Giusti, S. Dourdain, J. F. Dufreche, R. Motokawa, Y. Ueda, N. Aoyagi, T. Zemb, S. Pellet-Rostaing, "Impact of branching position and degree on uranium extraction by amines: A supramolecular and thermodynamic study" *J. Mol. Liq.*, 403, 124820, (2024).

### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 K543「三級アミンウラン抽出において希釈剤アルキル鎖長が相安定性に与える影響の解明」

## 中性子多成分階層構造解析による持続可能社会に向けた材料開発

Analyses of multicomponent hierarchical structures in soft materials  
using neutron for a sustainable society

熊田 高之\*、元川 竜平\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

## 概要

近年、タイヤの廃棄による環境破壊が問題になってきており、タイヤの長寿命化による廃棄量の削減は喫緊の課題である。タイヤの物性を大きく左右する構造は、充填系の形成する階層構造、ゴムの架橋構造、ゴム充填剤とゴム界面の界面におけるゴムの吸着層である。シリカ充填剤を用いたゴム充填系においては、シランカップリング剤を用いることにより、ゴムとシリカ粒子の親和性をあげることによってゴム吸着層の改質を試みている。しかし、シランカップリング剤によってゴム吸着層がどのように変化しているかをこれまでは定量的に観測されてこなかった。

SANS-J では、中性子を用いたコントラスト変調中性子散乱 (CV-SANS) 法を用いて、シリカ充填剤を用いたゴム充填系におけるゴム吸着層のシランカップリング剤による変化を明らかにすることにした。解析の結果、ゴムの膨潤の程度はシランカップリング剤処理の有無で変化は見られず、厚み 3~4 nm 程度の高密度ポリマー層がシリカ粒子表面に存在することが確認できた。ただし、シランカップリング剤処理によってシリカ粒子表面にポリマーがより高密度に存在することが明らかになった (Fig. 1)。

TNRF ではスチレン-ブタジエン(SBR)、重水素化ブタジエン(dPB)、カーボンブラッグ(CB)の混練状態の可視化に成功した。Fig. 2 において、混練回数が5回の SBR/dPB (水準 1) および SBR/dPB/CB (水準 3) どちらの系においても、ものには不均一な構造が観測され、混練が不十分であることが見出された。それに対して、充分混練した SBR/dPB(水準 2)SBR/dPB/CB (水準 4) は、混練の少ないものに比べて混練が充分進んでおり、不均一性がかなり抑えられているのがわ

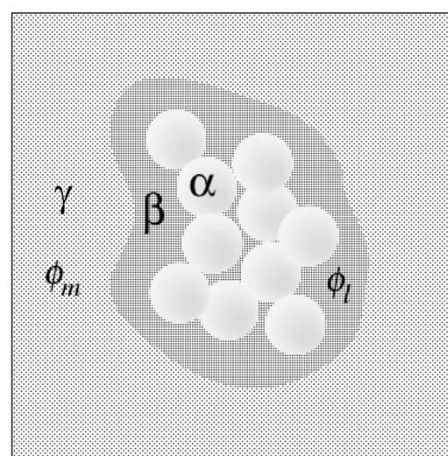


Fig. 1 シリカ ( $\alpha$ ) ゴム ( $\gamma$ ) 複合材料における吸着層 ( $\beta$ )

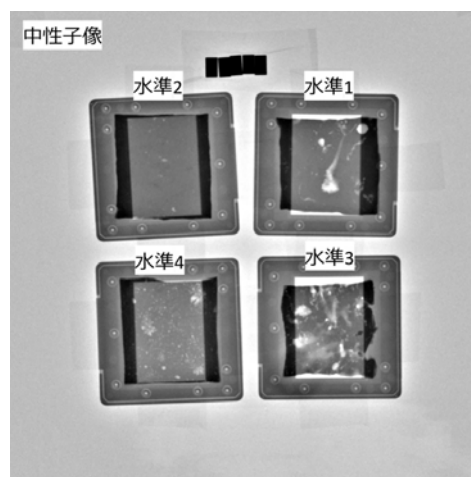


Fig. 2 TNRF を用いた SBR/dPB (水準 1,2) と SBR/dPB/CB(水準 3,4)における混練状態のイメージ図



かる。しかし、SBR/dPB/CB（水準4）においては、不均一性が観測されており、これがCB そのものなのか、あるいはCB 存在下でのゴム材料の混練の不完全さによるdPB の不均一性なのかについて今後検討していく必要がある。

令和3年度の本研究の知見に基づき、令和5年には超臨界状態におけるこれらの研究成果を発展した [1]。今後、これらの解析方法を発展させることにより我々が目指す、持続可能社会に向けた材料開発への寄与を目指していく。

## 参照

---

[1] M. Shibata, R. Motokawa, T. Kumada et al., “Structural changes of polystyrene particles in subcritical and supercritical water revealed by in situ small-angle neutron scattering”, *Polymer Journal*, 55, 1165-1170 (2023).

## 使用装置

---

SANS-J, PNO, TNRF

## 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 R432「中性子多成分階層構造解析による持続可能社会に向けた材料開発」

## 第三相を生成しない抽出系における分散・凝集構造の解析

### Differences in extraction mechanisms between fluoros and organic extraction systems: structuring extractants in the bulk extracting phase

上田 祐生\*、元川 竜平\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

金属資源のリサイクル技術の向上は、鉱物資源に乏しい我が国の重要課題である。なかでも湿式分離法の1つである溶媒抽出法は、広範な産業プロセスにおいて利用されている主要な分離技術であるが、金属イオンや抽出剤などの溶質濃度が高い実用プロセスでは、有機相にも水相にも溶解しない不溶性の第三相（スラッジ）を生成するという問題がある。ごく最近まで、第三相の生成を根本的に克服した抽出系はなかったが、申請者らの研究で強力な疎水性を有するフッ素原子を含有したフルオラス溶媒を用いた抽出系により、金属イオンの高い抽出能力および分離能力を保持しつつも第三相を生成させない抽出系の開発に至った。金属イオンを抽出したあとのフルオラス相の成分解析や<sup>31</sup>P-核磁気共鳴スペクトル解析から、一般のアルカン系溶媒とは異なるフルオラス溶媒に特有の凝集構造が形成され、その結果として、第三相の生成が抑制されたと考えられるが、これらの凝集構造に関する直接的な証拠は得られていない。この実験的な証拠を得るためには、数ナノから数十ナノメートルスケールの構造情報が不可欠であり、そのためには中性子小角散乱法でのナノ構造解析が必要不可欠である。

本研究では、金属イオンの高い抽出能力および分離能力を保持しつつも第三相を生成させないフルオラス抽出系における、フルオラス抽出剤、金属イオン、水分子および酸分子が形成するナノスケールの構造を観察するために、中性子小角散乱測定（SANS）を実施した。SANSの結果から、フルオラス抽出系では一般のアルカン系溶媒を用いた抽出系と比較して、異なる凝集構造を形成していた。今後、詳細な解析を進めることで、溶媒抽出における長年の課題であった第三相の生成を克服するための抽出系の設計概念を確立することができると考えられる。

#### 使用装置

---

SANS-J

#### 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 D390「フルオラス抽出系による金属イオン抽出時の凝集構造解析」

[2]令和4年度 D568「第三相を生成しない抽出系における分散・凝集構造の解析」

## マルテンサイト鋼の非破壊ナノ構造解析

## Nondestructive Nanostructure Analysis of Martensitic Steels

諸岡 聡\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

## 概要

鉄鋼材料の代表的な微視組織の1つであるマルテンサイト( $\alpha'$ Fe)は、炭素固溶強化、析出分散強化、転位強化、結晶粒微細化強化等を満足するため、高強度鋼材の作製に必要不可欠な微視組織である。この $\alpha'$ Fe組織は合金化もしくは、炭素を含んだ鋼を900°C以上に加熱し、オーステナイト( $\gamma$ Fe)単相組織にした後、水焼入れや液体窒素によるサブゼロ処理等の急冷によって形成される。一方で、高温域から急冷した $\alpha'$ Fe組織は、冷却及び室温保持中に自然時効が生じ、Cクラスターを形成するため、 $\alpha'$ Fe組織の強度が低下すると考えられる。本研究は中性子小角散乱法を用いて、自然時効に伴う炭素クラスター形成・成長プロセスを観測し、鋼材強度とCクラスター形成メカニズムの関係を把握することを目的とする。

中性子小角散乱測定には日本原子力研究開発機構の研究用原子炉施設JRR-3のC-2ポートに設置された集光型偏極中性子超小角散乱装置SANS-Jを使用した。測定条件は波長0.65 nm、中性子照射領域10 mm $\phi$ 、 $^3$ He二次元検出器位置を2 m及び10 mとした。標準試料はガラス状炭素(Glassy carbon)を用いた。測定試料は高-Ni-C合金(Fe-25Ni-0.5C (mass%))であり、試料寸法は15 mm $^w$ ×15 mm $^h$ ×1.5 mm $^t$ である。本試料はニッケル及び炭素を含有させることにより $\gamma$ Fe組織を非常に安定にし、室温でも $\gamma$ Fe単一組織を再現した鋼である。この状態の試料に対して、Fig.1に示すように、液体窒素を用いて、77 Kで1.8 ks間の焼入れ処理( $\gamma$ Fe+ $\alpha'$ Fe)及びウォーターバスを用いて、353 Kで1.0, 10, 100 ks間の低温焼戻し処理( $\gamma$ Fe+ $\alpha'$ Fe+Cクラスター)と中性子小角散乱測定を繰り返し行った。また、本検討で用いた鋼は焼入れ処理後、 $\alpha'$ Fe組織が強磁性を示すため、Cクラスター情報を包含する核散乱の他に磁性体である $\alpha'$ Fe組織の磁気散乱の影響を受ける。この影響を排除して核散乱のみを抽出するため、試料に0.3 T以上の磁場(本実験では1 Tの磁場を印加)を印加し、試料を磁氣的に飽和させることで単一磁区組織とし、核散乱と磁気散乱を分離して解析する。この条件下では磁場印加方向と散乱ベクトルとのなす角を $\alpha$ とすると以下の関係が成立する。

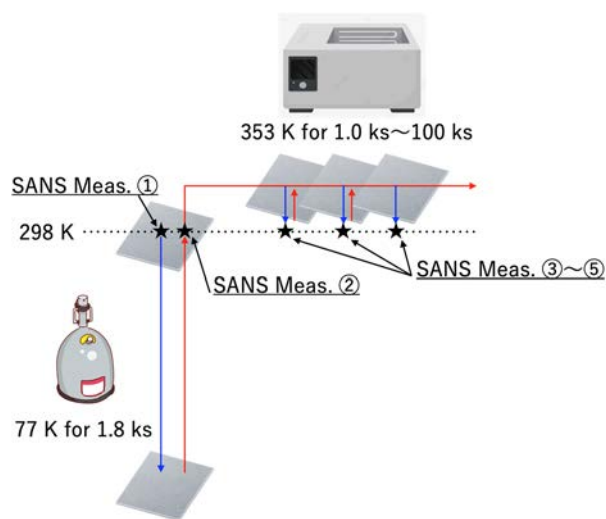


Fig. 1 実験手順

$$I(q) = I_N(q) + \langle \sin^2 \alpha \rangle I_M(q) \quad (1)$$

ここで、 $q$ 値は散乱ベクトルの大きさ、 $I_N(q)$ は核散乱成分、 $I_M(q)$ は磁気散乱成分である。したがって、磁場に対して並行な成分( $\alpha = 0^\circ$ )では核散乱成分のみだが、垂直成分( $\alpha = 90^\circ$ )には核散乱成分と磁気散乱成分の両方が含まれる。

中性子小角散乱測定で得られた高-Ni-C合金の核散乱プロファイルを図2に示す。まず、黒プロットは $\gamma$ Fe単一組織の核散乱プロファイルであり、赤プロットは $\gamma$ Fe+ $\alpha'$ Fe組織の核散乱プロファイルである。これらの関係を見ると、 $\gamma$ Fe単一組織中に何らかのナノ構造が存在している結果を示しているが、透過型電子顕微鏡TEM観察等では何も見られない。したがって、現段階では1Tの磁場印加では飽和しきれない磁気ドメイン等が存在していると考えている。次に、焼入れ後、低温焼戻し処理を行うことで、赤→橙→緑→青プロットの順に散乱強度の増加が見られる。しかしながら、353Kで低温焼戻し処理を行うだけでは、 $\gamma$ Fe+ $\alpha'$ Fe組織を変化させるための駆動力が得られないので、微視組織変化が生じているとは考えにくい。したがって、これらのプロファイルの変化は、 $\alpha'$ Fe組織中にCクラスターが形成し、その数密度を増加させたことによる影響であると示唆される。引き続き、詳細な解析を進め、Cクラスターの組織因子を定量し、鋼材強度とCクラスター形成メカニズムの関係を明らかにする。

#### 使用装置

SANS-J

#### 実施課題 No.

[1]令和3年度 D393「マルテンサイト鋼の応力解析」

[2]令和4年度 D539「マルテンサイト鋼の応力解析」

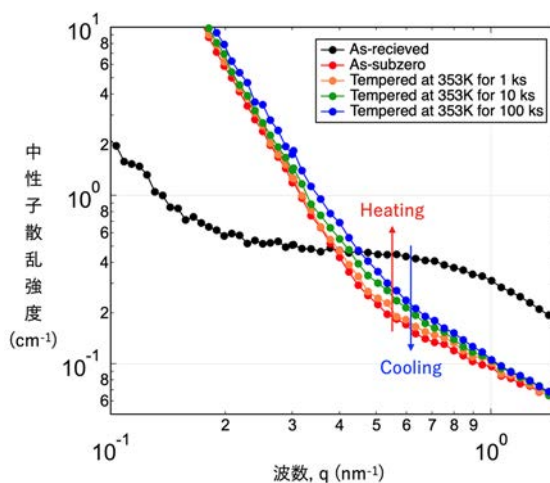


Fig. 2 高-Ni-C合金で得られた中性子小角散乱(SANS)測定の結果

## 相互作用が先か階層構造が先か

### Interaction first or hierarchy?

青柳 登\*

\*日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 耐環境性機能材料科学研究グループ

#### 概要

---

複雑液体の相転移現象は、凝縮系物理における古典的題材である。長年にわたり、多成分の液体中の構造化を主軸とした非平衡系の新たな物性理論が提唱されてきた。しかし、複数成分が液体中で象る階層構造と散逸構造の関係はそれらの構成成分と反応系に依存しており、普遍的理解がなされたと見なすにはほど遠いのが現状である。代表者らは包括的な理論的枠組みを見出すべく、階層構造と散逸構造の関係を切り出し、その一部を数理的に理解することを最初のステップと捉えている。当該実験課題では、ナノスケールで階層構造を有するセリア ( $\text{CeO}_2$ ) の凝集・分散に係る非平衡反応の振る舞いを解明することを目指す。特に、IV 価金属の分子集合体を作る凝集構造を原子からナノスケールに至る幅広い空間スケールの非平衡モデルで明らかにする。こうして、分子集合体同士に働く相互作用を明確にして、凝縮相で秩序と散逸構造が生まれ競合する起源に迫ることを目的とした。相互作用がマクロイオンの形を決めるのか、マクロイオンの階層構造が相互作用を決めるのかという一見すると堂々巡りに見える考察が、ゆらぎと不安定性に対する理解を進めることになるからである。

本実験課題では、自己集合するマクロイオン特有の階層構造のうち、カウンターの小カチオンが形成する表面構造を液体中で中性子小角散乱法によって観測した。また、SAXS の観測結果と対比することで、1 次粒子の結晶構造と明らかにするとともにこれらが集合し 2 次粒子として凝集することを確認した。凝集・分散の相互作用を Sogami-Ise 理論で考察することにより、マクロイオンと液体界面の電気二重層を形成するカウンターカチオン表面で凝縮し、2 次粒子の構造に関与をもたらすことが示唆された。R3~4 年度の SANS 試験では、これらの負に帯電したマクロイオンの成長機序に、カチオンが明示的に働かないことを示すことができた。令和 5 年度は別のマクロイオン種で界面近傍のカウンターイオン凝集構造を研究する。

#### 使用装置

---

SANS-J

#### 実施課題 No.

---

- [1]令和 3 年度 D400 「散逸構造と競合する階層構造の非線形数理」
- [2]令和 4 年度 D586 「相分離する膜界面の散逸構造とダイナミクス」

## SANS-J における偏極度解析に基づいた非干渉性散乱分離手法の確立

### Development of polarization analysis method for removing incoherent scattering component

廣井 孝介\*

\*日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 物質・生命科学ディビジョン 中性子利用セクション

#### 概要

中性子小角散乱法はソフトマター材料の構造解析を行う上で非常に強力な手法であるが、主要な構成元素である軽水素の大きな非干渉性散乱成分が干渉性散乱成分を見積もる上で大きな不定性に繋がる。非干渉性散乱では散乱時に中性子のスピン極性が反転するため、偏極ビームとスピン検極素子を利用した偏極度解析を行うことで、非干渉性散乱成分を試料の干渉性散乱成分から分離可能であり、偏極ビームオプションを有する SANS-J であれば、この考え方を基に、非干渉性散乱成分と干渉性散乱成分を高精度に分離し、高い確度でソフトマター材料の構造解析が行える環境を実現し得る。申請者は装置グループと共同で、SANS-J の広角検出器前に磁気ミラー検極素子を配置した実験体系を構築した(Fig. 1)。装置の中性子偏極度や、スピン反転機の反転効率の定量評価が完了し、偏極度解析により試料からの非干渉性散乱成分の評価が可能になっていることは確認できたが、論文化できるほど先鋭的な性能を得るには至っていない。今後、より実用的な時間スケールでの測定を可能にするため、光学系の改良を進めている。

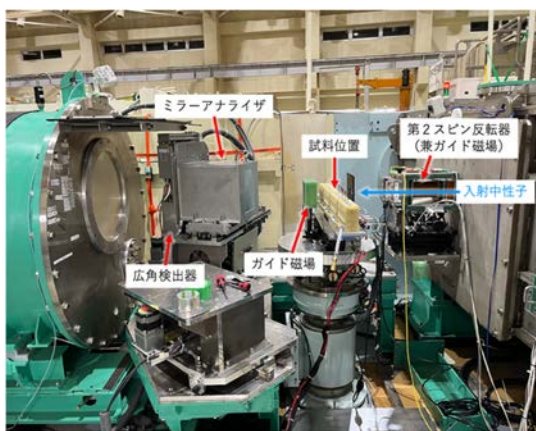


Fig. 1 SANS-J に構築した偏極度解析実験体系

#### 使用装置

SANS-J

#### 実施課題 No.

[1]令和3年度 D414「SANS-J における偏極度解析に基づいた非干渉性散乱分離手法の確立」

[2]令和4年度 D593「SANS-J における偏極度解析に基づいた非干渉性散乱分離手法の確立」

## 澱粉の階層構造と水和構造の解析

### Analysis of Hierarchical Structure and Hydration Structure of Starch

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

澱粉は穀物の主成分であり、世界中の国・地域の人々の主食である。そのため、古くから研究されているが、蛋白質や脂質など他の栄養素と比べてその高次構造をはじめ、その物理化学的特性の解明が遅れている。澱粉の構造物性の特徴は、分子組成は均一であるが、糊化や老化といった分子構造・形態・水分状態の変化によって、マクロな品質を変えることにある。食品の物性は、食品の製造、品質管理、保存、流通、調理のあらゆる場面に関わっており、その理解は、食品の生産性や品質、環境耐性の向上に重要な基盤となる。澱粉は水との反応により糊化することで、可食状態となる。しかし、糊化することで得られる澱粉加工食品の特性は、その糊化プロセスによって大きく変化する。糊化が始まる温度と得られる粘度は澱粉の化学構造と高次構造に依るが、糊化における澱粉の階層構造や水の状態には不明な点が多い。

澱粉食品の研究においては各種の顕微鏡観察や IR、XRD を用いた澱粉の結晶性の解析等が多く報告されているが、広い空間スケールで階層構造を持つ澱粉の構造解析には小角散乱が有効である。また、澱粉は結晶相と非晶質相、そしてそれらの間に水のドメイン領域があるとされているため、その構造は複雑である。本研究では、重水と軽水の割合を変化させたコントラスト変調法を利用した中性子小角散乱法により、澱粉の構造解析を行った。澱粉分子のラメラ層の間の距離に対応する回折ピークを観測し、ラメラ層の間に水のドメイン領域が存在することを示した。またこのようなピークは干し芋のような糊化した澱粉では観測できなかった。さらに、老化現象に伴い、ピークが経時的に回復することを確認した。このような結果に基づき、澱粉の状態変化に伴う階層構造や水和構造の変化を分析中である。

#### 使用装置

---

SANS-J

#### 実施課題 No.

---

- [1] 令和3年度 D458 「食品産業で用いられる加工澱粉の階層構造と水の分布状態の解析」
- [2] 令和3年度 D463 「干し芋の乾燥過程における澱粉の階層構造および水和状態の解析」
- [3] 令和4年度 D615 「機能特性の異なる澱粉中の分子配列と水の分布状態の違いの解析」

## LEA 蛋白質の乾燥誘導折り畳みの 3 次元構造の変化

### Change of 3D structure upon dehydration-induced folding of LEA protein

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

生物の環境適応における脱水ストレス応答は、細胞内の生体分子の水和状態の変化やガラス化といったバイオマテリアルの化学的な状態変化によってコントロールされている。乾燥耐性生物が乾燥した環境下で体内に分泌する天然変性蛋白質である Late Embryogenesis Abundant (LEA) 蛋白質は、乾燥ストレスにより変性状態から規則的な立体構造に折り畳む。蛋白質の折り畳み研究において、折り畳み過程における球状性の程度など、低分解能の立体構造の変化の追跡は重要であり、小角散乱はそのような解析に不可欠である。しかし、LEA 蛋白質の 3 次元構造立の変化については、これまで実験的に明らかにされていない。一方、脱水誘起折り畳みは、脱水と水和によって可逆的に制御されることが知られている。この結果は、蛋白質と水の相互作用がフォールディング/アンフォールディングに関係していることを示唆している。一方、溶液中の水和/脱水状態がグリセロールと水の混合物によって制御できるため、グリセロール水溶液のグリセロール濃度を高濃度にする事で蛋白質の脱水和状態を模倣できる可能性がある。

本研究では、グリセロール濃度を制御することによる LEA 蛋白質の脱水誘導折り畳みを中性子小角散乱によって解析することを目的とした。蛋白質濃度は約 5mg/mL で、グリセロール濃度が 0%(w/w) と 30%(w/w) に調製した試料について、カメラ長 2m と 10m で測定した。現在までの解析では、両者には顕著な違いは確認されていないが、バックグラウンド減算の方法など検討を進めておりデータ解析中である。

#### 使用装置

---

SANS-J

#### 実施課題 No.

---

[1] 令和 3 年度 D462 「LEA 蛋白質の乾燥誘導折り畳みの 3 次元構造の変化」



感熱性ポリマーブラシを担持するシリカ微粒子：  
ランタノイド/アクチノイドの相互分離を目指したナノ構造解析

Thermosensitive polymer brushes supported on silica particles:  
Nanostructural analysis for lanthanide/actinide separation.

元川 竜平\*、塚原 剛彦\*\*、\*\*\*、Nutthon Yokajaksusri\*\*\*、上田 祐生\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター 燃料デブリ取扱技術開発グループ

\*\*\*東京工業大学 科学技術創成研究院 ゼロカーボンエネルギー研究所

## 概要

放射性廃液の処理技術確立は、我が国の原子力科学研究における主要課題の一つとして位置付けられる。その中で、液-液抽出用の分離試薬や分離カラム用の充填剤の開発等は、高レベル放射性廃棄物の放射能低減と減容化に繋がるだけでなく、含有する希少元素を再資源化し得ることに繋がるため原子力機構が積極的に取り組むべき課題と言える。塚原らは、感熱応答性を示す *N*-イソプロピルアクリルアミド(NIPAAm)とランタノイド元素と吸着するトリアゾール (TZ) をシリカ微粒子表面からランダム共重合した固体分離試薬を開発している。シリカ微粒子表面から生えたポリマーブラシ(poly(NIPAAm-co-TZ))は、水中で高温不溶型の性質を示し、約 40°C を境界に収縮状態と膨潤状態を形成する。このとき、膨潤状態ではランタノイド元素がブラシに吸着する一方、収縮状態ではランタノイド元素が脱離することがこれまでの研究で明らかにされている。しかしながら、温度変化に応答したポリマーブラシの形態変化については理解されておらず、吸脱離メカニズムへの関与にも不明な点が多い。ポリマーブラシのナノ構造変化を明らかにすることで吸着特性を向上させるための知見を得ることが求められていた。そこで、本研究では中性子小角散乱法を用いてシリカ粒子の細孔（拘束ナノ空間）におけるポリマーブラシのナノ構造が温度変化に応答してどのように変化するかを明らかにする実験を行った。現在、ポリマーブラシの水和状態の変化が誘起する構造変化とランタノイド元素の分離特性との関係性が明らかになりつつあり、引き続き詳細な分析を進めている。

## 使用装置

SANS-J

## 実施課題 No.

- [1]令和 4 年度 D685 「相転移性ポリマーゲル化法による核種分離メカニズム解明に資する Poly(NIPAAm)-金属錯体のマイクロ構造解析」  
[2]令和 4 年度 D545 「感熱性ポリマーブラシを担持するシリカ微粒子：ランタノイド/アクチノイドの相互分離を目指したナノ構造解析」

## エマルション液滴の膜厚及び液膜内における抽出剤の観察

### Observation of emulsion droplet film thickness and extractant in the liquid film

上田 祐生\*、Micheau Cyril \*、永野 哲志\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

我が国の最重要課題の1つである貴金属資源の安定確保(資源セキュリティの強化)のために、貴金属元素の精錬・リサイクル技術の更なる向上が求められている。湿式分離法の1つである溶媒抽出法は、金属リサイクルにおいて利用されている主要な分離技術である。なかでもエマルションフロー(EF)法は、その優れた性能により、幾つかの抽出系において社会実装が進められているが、EF法の優れた抽出分離性能の起源は明らかになっておらず、現状、EF法の改良は油相と水相の流入速度を変化させるなど、技術者らの経験と勘に大きく依存している。また、EF法に限らず、油相と水相を混合する溶媒抽出法では、油相中の水滴(もしくは水相中の油滴)が抽出反応場であると考えられているものの、エマルション液滴の状態と抽出分離性能の関係性を詳細に調べた例はない。申請者は、これらの課題の根本的な解決には、油相/水相の混合状態と抽出分離性能の関係を、分子レベルで本質的に理解する必要があると考えている。このような背景を鑑み、数～数百ナノメートルの幅広い空間スケールを観察することに長けた中性子小角散乱法(SANS)を用い、抽出装置で生成したエマルション液滴の「その場観察」を実施することで、液滴の液膜厚、液滴内の抽出剤の凝集・会合状態を定量的に評価し、抽出分離性能との相関を取ることが可能となる。

本研究では、EF装置を稼働させながら2相混合部で生成する液滴の大きさ、液膜厚、液滴内の抽出剤の凝集・会合状態を評価することを目的として、SANS実験を行なった。今回の実験では、中性子小角散乱測定用に小型化したEF装置を作製し、SANS-Jにおいて幾つかの予備試験を実施した。予備試験の結果、長すぎる中性子ビーム光路長による低い透過率などの課題はあるものの、改良を重ねることで十分に測定可能であることを確認した。今後、試験を重ねることでエマルション液滴の構造情報を取得出来ると考えられる。

#### 使用装置

---

SANS-J

#### 実施課題 No.

---

[1]令和4年度 D569「エマルション液滴の膜厚及び液膜内における抽出剤の観察」

## マクロな物性の異なる卵白ゲルのナノ構造解析

### Structural Analysis of Egg White Gel with Different Macroscopic Properties in nano-meter scale

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

卵白は、ゲルの形成、保水性、発泡性、乳化能などの様々な機能特性を有するため、食品加工において重要な素材である。卵白の加熱ゲルは、多量の水分を保持することができる三次元網状構造を形成する。このゲル構造は、卵白の構成分子であるタンパク質が変性して凝集体を作ったり、ネットワーク構造を作ったりすることで形成されると考えられている。このような卵白ゲルの破断特性、保水特性、透明性等のマクロな物性は、ゲルの微細構造に大きく依存する。このようなゲルの微細構造は、走査型電子顕微鏡（SEM）で解析されることもあるが、タンパク質分子レベルでの凝集構造やネットワーク構造の解析には、ナノスケールの空間分解能を有する小角散乱が有効である。また、ゲルの保水状態を調べるには、重水/軽水のコントラストが活用できる中性子小角散乱が有効である。

本研究では、マクロな物性が異なることが分かっている 3 つの卵白ゲルについて、それらの力学特性や保水性などのマクロな物性発現を支える構造基盤を解明するため、中性子小角散乱により卵白ゲルのナノ構造や水和状態を解析した。卵白を構成するタンパク質は分子量が数万オーダーであるため、その凝集体やネットワーク構造を観測するには、 $0.01 \sim 1 \text{ nm}^{-1}$  程度の Q 領域をカバーする SANS-J 装置は有効である。その結果、力学特性なマクロな物性を反映した中性子小角散乱の変化を見出した。比較的透明感のある卵白ゲルに比べ、白濁した卵白ゲルは凝集構造の存在が示唆された。現在、水和構造もふくめ詳細な解析を行っている。

#### 使用装置

---

SANS-J

#### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 D616 「マクロな物性の異なる卵白ゲルのナノ構造解析」

## 地層処分環境におけるウラン水酸化物コロイドの 凝集分散挙動の理解に向けた中性子散乱分析

### Neutron scattering analysis to understand the aggregation behavior of uranium hydroxide colloids under relevant conditions of radioactive waste disposal

小林 大志\*、南上 玲央\*、好川 祐樹\*、元川 竜平\*\*、樹神 克明\*\*\*、金子 耕士\*\*\*

\*京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

---

放射性廃棄物の地層処分の安全評価では、放射性廃棄物に含まれる様々な核種の地下環境中での移行挙動を長期に亘って予測する必要がある。高レベル放射性廃棄物や TRU 廃棄物に含まれるウランやトリウムは深地層の還元的な環境では、4 価金属イオンとして振る舞い、地下水中では強い加水分解反応により、水酸化物錯体やコロイド、さらにコロイドが凝集することによる難溶性のアモルファス水酸化物沈殿を形成し、地下水への溶解度を定める溶解度制限固相となる。一方、近年、固相の粒子サイズがナノメートルスケールになると、粒子サイズ効果によって、粒子サイズの減少とともに溶解度が急激に上昇することが実験的に確かめられている。ウランやトリウムの地下水への溶解度を把握するためには、アモルファス水酸化物沈殿の構造を解明するとともに、溶解度制限固相となる粒子のサイズを明らかにする必要がある。そこで、本研究では中性子回折法 (HRPD) および中性子小角散乱法 (SANS-J) を用いて、4 価ウランやトリウムの化学アナログとされるジルコニウムのアモルファス水酸化物沈殿を測定した。ジルコニウムのアモルファス水酸化物沈殿は、数 nm の一次粒子および数百 nm の凝集体から構成される階層構造を持つことを明らかにし、さらにジルコニウム周辺の酸素や水素などの相互の原子間距離が pH や共存イオン、温度などの条件によってどのように変化するのかを明らかにしつつある。これらジルコニウムでの結果を参考に、今後、ウランやトリウムの水酸化物沈殿の測定および解析を進めていく。

#### 使用装置

---

SANS-J, HRPD

#### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 K584「地層処分環境におけるウラン水酸化物コロイドの凝集分散挙動の理解に向けた中性子散乱分析」

## SANS-J フライトチューブ前方への $^3\text{He}$ 二次元検出器導入 Installation of $^3\text{He}$ -2D detector in front of SANS-J flight tube

元川 竜平\*、熊田 高之\*、大場 洋次郎\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

以前の中性子小角散乱装置 SANS-J (C3-2) では、高波数領域 ( $Q > 1.5 \text{ nm}^{-1}$ ) の中性子散乱成分を観測することができず、精密なナノ構造解析を困難にする場合が多く見受けられていた。そのため、実空間で数 nm のサイズに相当する波数領域、 $1 \text{ nm}^{-1} < Q < 6 \text{ nm}^{-1}$  を効率的に測定できる環境の整備が求められていた。これに対して我々は、長さ 600 mm、直径 8 mm の  $^3\text{He}$  1次元検出器 (ガス圧: 10 気圧) 48 本をフライトチューブ前方に並列させた二次元検出器 (Fig. 1) を導入することでこの問題を解決した。フライトチューブ内に設置された既存の  $^3\text{He}$  二次元検出器と  $\text{ZnS}/^6\text{LiF}$  シンチレータによる高分解能フォトマル検出器を併用することで  $0.003 \text{ nm}^{-1} < Q < 7 \text{ nm}^{-1}$  の波数領域を観察することができる。

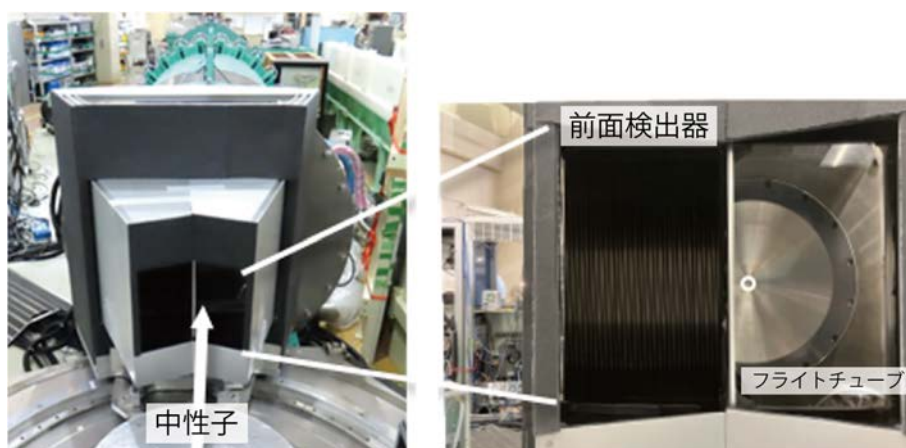


Fig. 1 フライトチューブ前方に設置された  $^3\text{He}$  二次元検出器 (波数領域  $1 \text{ nm}^{-1} < Q < 7 \text{ nm}^{-1}$  を観測)。矢印と丸印は入射中性子ビームの方向とフライトチューブ前のアルミフランジ上の中性子ビームの位置を示す。

### 使用装置

SANS-J

### 参照

[1] T. Kumada, R. Motokawa, Y. Oba, H. Nakagawa, Y. Sekine, C. Micheau, Y. Ueda, T. Sugita, A. Birumachi, M. Sasaki, K. Hiroi, H. Iwase, “Upgrade of the small-angle neutron scattering diffractometer SANS-J at JRR-3” *J. Appl. Crystallogr.*, 56, 1776–1783, (2023).

**実施課題 No.**

---

[1]令和3年度 I408 「SANS-J および PNO の高度化と整備」

[2]令和4年度 I564 「SANS-J と PNO と整備」

## ユーザーズミーティング

### 学会等で発表された成果

- 令和3年12月1～3日  
日本中性子科学会第21回年会 於：オンライン  
廣井 孝介、元川 竜平、大場 洋次郎、熊田 高之、奥平 琢也、奥 隆之、鈴木 淳  
市  
“MLF BL15 大観と JRR-3 SANS-J における偏極度解析による非干渉性散乱成分分離手法の開発” (ポスター)
- 令和4年9月26～30日  
International Solvent Extraction Conference 2022 (ISEC 2022) 於：ヨーテボリ  
Yuki Ueda, Cyril Micheau, Kohei Tokunaga, Tsuyoshi Sugita, Kazuhiro Akutsu, Ryuhei Motokawa  
“A Fluorous Phosphate for the Effective Extraction of Zr(IV) from HNO<sub>3</sub> Solution: Comparison with a Conventional Organic Phosphate” (口頭)
- 令和4年10月  
日本中性子科学会第22回年会 於：幕張メッセ国際会議場  
大場 洋次郎、足立 望、廣井 孝介、戸高 義一  
“高圧下ねじり加工した鉄内部のスピンミスアライメントの磁場依存性” (ポスター)

## 独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…54件

成果占有課題（トリアルユース含む）…20件

成果非占有課題…34件

成果非占有課題名	所属機関
中性子小角散乱によるパワーエレクトロニクス用軟磁性材料の磁気構造解析	物質・材料研究機構
相互作用パラメータに基づく高分子/疎水性イオン液体/水の共良溶媒性の解明	岡山理科大学
塩化金酸液一液抽出系における有機相中の凝集構造解析	産業技術総合研究所
コントラスト変調法を用いた架橋ポリエチレンの結晶高次構造および架橋構造解析	山形大学
中性子小角散乱による天然有機物の凝集構造評価	東京大学
広Q範囲測定による燃料電池触媒層内の水分布の解析	総合科学研究機構
中性子小角散乱を用いた笠間焼陶器の気孔サイズ評価	茨城県産業技術イノベーションセンター
白金族金属に対する選択的吸着能を有する高分子ミセルの開発	千葉大学大学院
コントラスト変調小角中性子散乱法を用いたシリカ配合ゴムの耐摩耗性向上手法に関する研究	横浜ゴム株式会社
泡沫分離法による重金属イオンの分離のための泡沫の構造評価	奈良女子大学
中性子小角散乱を用いた笠間焼陶器の気孔サイズ評価	茨城県産業技術イノベーションセンター
相互作用パラメータから理解する高分子/疎水性イオン液体/水の共良溶媒性	岡山理科大学
中性子小角散乱による脂質膜中カベオリン C 末端領域の構造解析	量子科学技術研究開発機構
セルロースカルバメート誘導体の塩素系有機溶媒中での分子形態	京都大学
中性子小角散乱による天然有機物の凝集構造評価	東京大学
白金族金属に対する選択的吸着能を有する高分子材料の開発	千葉大学大学院
セメント系材料に対する天然有機物の作用の評価	東京大学



成果非占有課題名	所属機関
高強度マルテンサイト鋼におけるセメンタイト粒子の定量評価	兵庫県立大学
小角中性子散乱による超臨界水中でのプラスチック分解過程のその場観察	総合科学研究機構
滞留水中微粒子捕集のための曇点抽出とその相構造の解明	福島大学
カーボンナノ試験内に内包したビリルビンオキシダーゼの構造解析	総合科学研究機構
逆転コントラスト同調中性子小角散乱による時計蛋白質複合体の部分構造解明	京都大学
コントラスト変調小角中性子散乱法を用いたゴム/リサイクルカーボンブラック充填系におけるゴム吸着層の解明	京都大学
スルホン化ブロック共重合体の含水状態におけるモルフォロジーと水分布状態	名古屋工業大学
炭化水素系電解質膜の前処理過程におけるプロトン伝導パスの形成メカニズム	高エネルギー加速器研究機構
中性子小角散乱による塩化金酸液一液抽出系における凝集構造解析	産業技術総合研究所
Contrast variation study of protein/polyelectrolytes complexes with encapsulated drug	Forschungszentrum Juelich
広Q範囲測定による酸化グラフェン層間内の水分布の解析	岡山大学
中性子小角散乱によるパワーエレクトロニクス用軟磁性材料の磁気構造解析	物質・材料研究機構
コントラスト変調小角中性子散乱法を用いたタイヤ用ゴムの分子内相分離構造と力学特性との相関に関する研究	横浜ゴム株式会社
泡沫分離法による重金属イオンの分離のための泡沫の構造評価 (装置都合未実施課題 R3_2021A-A33)	奈良女子大学
SANS/偏光 FTIR ATR 同時測定システムによる合成および天然高分子系の構造化学的研究	大阪大学
水/THF 混合溶媒中への疎水性有機発光分子の分散挙動の研究	神奈川大学
中性子散乱によるデュアルクロスネットワーク構造の変形挙動追跡	山形大学

## 2.7 RESA 中性子応力測定装置

装置管理者：菖蒲 敬久、装置担当者：諸岡 聡、徐 平光



### 概要

中性子応力測定装置 RESA は、角度分散型中性子回折装置であり、JRR-3 ビームホールの T2-1 ポートに設置されている。角度分散型中性子回折装置は、任意の回折面  $hkl$  の格子面間隔を  $d_{hkl}$ 、入射中性子の波長を  $\lambda$  とすれば、Bragg の回折条件 ( $2d_{hkl}\sin\theta = n\lambda$ ) により決定される回折角  $2\theta$  を測定するための装置であり、この回折角  $2\theta$  の変化を測定することで、格子面間隔  $d_{hkl}$  の変化、すなわち、格子ひずみ  $\varepsilon_{hkl}$  を測定することができる。したがって、中性子応力測定は、原子間を評点間距離とする物理的な応力計測法であり、中性子の優れた透過能を生かすことで、数 mm から数十 mm オーダーの材料内部のひずみ・応力状態を非破壊・非接触で測定することができる唯一の測定技術として知られている。さらに、この種々の機械構造物を対象とした残留応力測定を通して、高性能、高信頼性、長寿命化を目指した製品開発や構造設計に大きく貢献している。一方で、材料強度や破壊メカニズムを議論するうえでは、単に残留応力を測定するだけでなく、弾性ひずみ（応力）や集合組織、転位密度等の微視組織因子を定量的に評価することも重要である。これらの情報を得るうえで、中性子回折法は有効な手段であり、その優れた透過能から、微視組織因子のバルク平均と力学特性との関係を求めて、材料の変形メカニズムや強度発現メカニズムを議論するのに適している。このように、中性子回折法は、残留応力に基づく機械部品等の健全性を評価する応力評価研究だけでなく、材料の機械的特性や機能性向上を目指した材料工学研究などへの応用が期待されている。

## 装置詳細

中性子ビーム	<ul style="list-style-type: none"> <li>・最大強度 0.13 nm のマクスウェル分布</li> <li>・波長範囲：0.155～0.19 nm</li> <li>・Take-off 角度範囲：70～90°</li> <li>・最大ビームサイズ：20×20 mm<sup>2</sup></li> </ul>
モノクロメータ	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ダブルベント集光完全結晶 Si モノクロメータ</li> <li>・[110]垂直に切断した Si(400)</li> <li>・15 枚の Si ウエハーからなる 7 つのパケット構成</li> <li>・ウエハー寸法：250 mm<sup>L</sup>×15 mm<sup>w</sup>×0.7 mm<sup>t</sup></li> <li>・パケット厚さ：10.5 mm<sup>t</sup></li> <li>・利用可能な反射：(004)</li> </ul>
検出器	<ul style="list-style-type: none"> <li>・<sup>3</sup>He1 次元検出器</li> <li>・検出領域：100×100 mm<sup>2</sup></li> <li>・検出器範囲：6°</li> <li>・角度範囲：0～120°</li> </ul>
試料ステージ	<ul style="list-style-type: none"> <li>・耐荷重：≦ 700 kg</li> <li>・X-Y 移動量：±200 mm</li> <li>・Z 移動量：±300 mm</li> </ul>
装置性能	<ul style="list-style-type: none"> <li>・中性子束強度：4.9×10<sup>5</sup> n/cm<sup>2</sup>・s (試料位置)</li> <li>・回折線分解能 (Δd/d)：4.6×10<sup>-3</sup></li> <li>・測定体積規定方法：Cd スリット (入射側) ：ラジアルコリメータ (受光側)</li> <li>・測定体積：2×2×2 mm<sup>3</sup>～10×10×10 mm<sup>3</sup></li> </ul>

## 試料環境

ラジアルコリメータ (0.5 mm、1.0 mm、2.0 mm、3.0 mm、5.0 mm、10.0 mm)

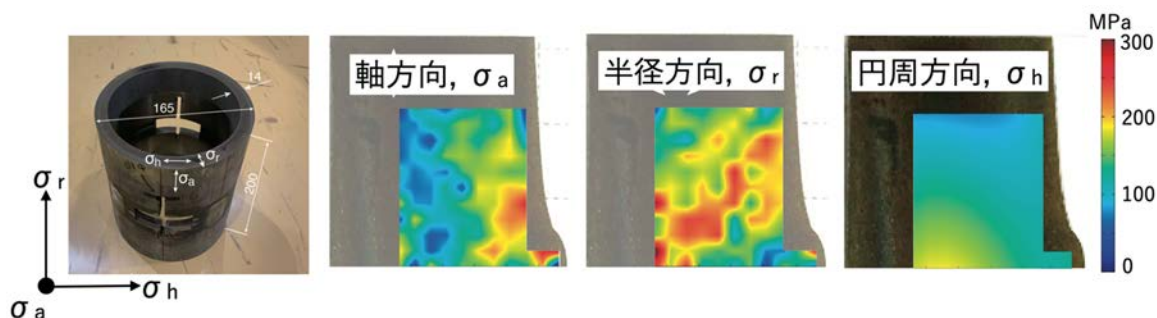
オイラークレイドル

小型引張試験機 (最大荷重：5 kN)

## 測定例

### 放射光 X 線と中性子を相補的に用いた小口径突合せ溶接配管の実応力解析

これまで、オーステナイト系ステンレス鋼 (SUS316L) の小口径突合せ溶接配管の残留応力は測定されたことがない。その理由は、中性子回折測定技術の場合、照射体積が大きいため、ルート溶接部の詳細な残留応力分布を取得することが困難であったためである。また、放射光 X 線測定技術の場合、溶接部が樹枝状組織のため応力評価が困難であった。本研究では、高エネルギー放射光 X 線による二重露光法 (DEM) を用いて、溶接部の残留応力分布を詳細に測定した。その結果ルート溶接部の配管軸方向及び配管半径方向の応力評価 (平面応力仮定) に成功した。また、中性子によるひずみスキニング法を用いて、三軸応力状態下の配管円周方向の応力評価にも成功した。これらの測定結果をもとに三軸応力状態下の配管軸方向及び配管半径方向の残留応力分布を導き出した。その結果、突合せ溶接配管のルート溶接部の詳細な応力分布が明らかになり、応力腐食割れ (SCC) の開始と伝播について説明することが可能となった。

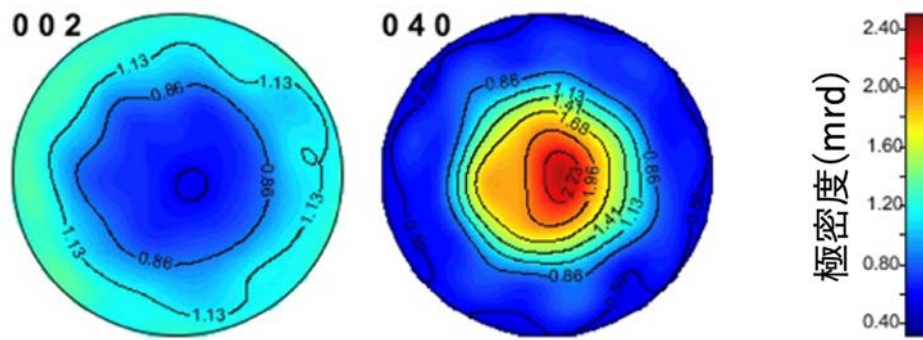


オーステナイト系ステンレス鋼の小口径突合せ溶接配管の 3 軸応力分布

参考文献：鈴木 賢治、三浦 靖史、城 鮎美、豊川 秀訓、佐治 超爾、菖蒲 敬久、諸岡 聡：材料, 72(4), 316-323, 2023, DOI : <https://doi.org/10.2472/jsms.72.316>

### バルクセメンタイトの集合組織解析

鉄鋼材料の構成相の一つであるセメンタイト ( $\text{Fe}_3\text{C}$ ) 変形メカニズムを理解することは、鋼の機械的特性を明らかにし、改善することに関して非常に重要である。しかしながら、セメンタイトの単相構造を考えるにあたり、試料調整の困難さがあるため、セメンタイトの変形挙動は十分に調査されていなかった。本研究では、著者らによって開発された方法を使用して、単相構造のバルクセメンタイトを製造し、EBSD (電子後方散乱回折) 法と中性子回折法を相補利用することで、一軸圧縮によって形成される変形集合組織 (変形によって結晶が任意の結晶方向に配列する組織のこと) を調査した。製造されたままの試料はランダムな集合組織だった。これに対して、833K で 50% の圧縮ひずみを加えると、圧縮軸に沿って、(010) 繊維集合組織が形成された。その結果、セメンタイトの主すべり面は (010) である可能性を導き出した。



バルクセメンタイトの変形集合組織

参考文献 : Nozomu Adachi, Haruki Ueno, Satoshi Morooka, Pingguang Xu and Yoshikazu Todaka : Materials, 15, 4485, 2022, DOI : <https://doi.org/10.3390/ma15134485>

## 中性子回折法による接着系あと施工アンカー負荷中内部ひずみ分布 Internal strain distribution of adhesive type post-installed anchors under loading

菖蒲 敬久\*、栗田 圭輔\*、飯倉 寛\*、諸岡 聡\*、向井 智久\*\*、有木 克良\*\*、  
坂下 雅信\*\*、中村 聡宏\*\*、チェ ホンボク\*\*\*、高野 慶貴\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*国立研究開発法人建築研究所 構造研究グループ

\*\*\*東京理科大学 理工学部建築学科

### 概要

接着系あと施工アンカーは既存鉄筋コンクリート造建築物の補強・増築時に有効な接合技術であるが、引張荷重を受ける際の接着系アンカーのひずみ分布精度良く計測できる手法は確立していない。本研究では、材料に対する透過力が非常に高い中性子を利用し、鉄筋に引張荷重を加えた時のコンクリート内部の鉄筋のひずみ分布計測を実施した。

Fig. 1 は、20 kN の引張荷重を加えた時の 3 種類の接着剤であと施工された  $\phi 65$  mm コンクリート内部の  $\phi 14$  mm 鉄筋のひずみ分布である。0 mm が荷側側の鉄筋がコンクリートに覆われはじめる位置を示している。参考として、コンクリートの代わりにタップを切ったアルミ合金にはめ込んだ鉄筋に 40kN を加えた時のひずみ分布を示しているが、荷側側でしっかり固定されている場合には内部のひずみはほとんど発生しない。一方、異なる接着剤で固体下 3 体についてはアルミ合金とは異なる挙動を示しており、接着剤の性質、コンクリート及び鉄筋との相性、さらには接着剤内部欠陥など、非常に有益な結果を得ることに成功した。

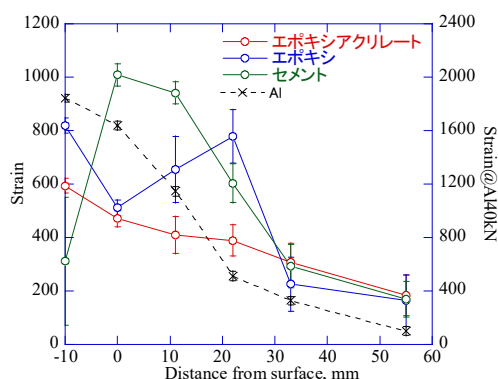


Fig. 1 鉄筋に荷重を加えた時のコンクリート内部鉄筋のひずみ分布

### 参照

- [1] 崔 烘福、向井 智久、菖蒲 敬久、有木 克良、高野 慶貴、坂下 雅信、中村 聡宏、衣笠 秀行、中性子回折法による接着系あと施工アンカーの歪み分布の測定精度に関する基礎的研究、日本建築学会学術講演梗概集， pp.51-52， 2023.09.

### 使用装置

TNRF, RESA

### 実施課題 No.

- [1] 令和 4 度 K621「施工条件の違いがアンカー筋のひずみ分布性状に及ぼす影響に関する基礎研究」

## 角度分散型中性子回折による複雑結晶材料の集合組織測定

### Texture measurement of complex materials using angle dispersive neutron diffraction

徐 平光\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

高フラックス中性子実験施設の開発が加速される中、JRR-3 研究炉に設置される中性子回折装置は幅広い材料評価への応用に期待されている。回折装置 RESA は、単一波長のビームを試料に照射し、試料から回折されたビームの回折角を位置敏感検出器 (PSD) で測定する角度分散型回折装置である。 $\chi$ と $\phi$ 回転軸で測定試料を回転させながら、異なる試料方位から回折プロファイルを取得し、ピークの積分強度を求めることで、極点図を得ることができる測定環境は確立された。一方、結晶優先方位の対称性が高い材料であっても、多くの試料方位を走査するため、測定時間が長くなる傾向がある。また、対称性の低い結晶や多数の結晶相を含む複雑な試料では、回折ピークが重なり合うことがあり、積分強度を求める際に必要なピーク分離が上手くいかないことが多い。そこで、波長や回折角度を変えて重ならない回折ピークを選択する方法がよく用いられているが、モノクロメータの回転角度の調整範囲に限界があり、角度を調整しても中性子強度の関係で測定時間が長くなる傾向がある。長時間測定を回避するため、通常では 2 次元大面積の曲面中性子検出器を用いることで、多数の回折ピークを同時に捉える測定技術の集合組織開発が開発されている。RESA は検出角度範囲が狭いため、複雑な結晶材料の集合組織測定に適されないことが昔から指摘された。

最近の RESA 技術開発では、 $\chi$ と $\phi$ の 2 軸走査ルートを最適化し、Rietveld 結晶解析技術を取り入れることで、重なり合った回折ピークに含まれる結晶構造情報を得ることができた。また、各試料方位からの回折プロファイルに含まれる結晶方位情報を同時に解析することで、六方晶系方解石( $\text{CaCO}_3$ 、空間群  $R\bar{3}2/c$ )標準試料の集合組織を測定することに成功した。今後、他の複雑な結晶試料や非規則形状試料を用いてこの手法を最適化し、幅広い材料の研究に応用していく。

#### 使用装置

---

RESA

#### 実施課題 No.

---

- [1]令和 3 年度 D487 「角度分散型中性子回折による石灰岩試料の集合組織測定」
- [2]令和 3 年度 K448 「金属試料の集合組織測定に及ぼす試料形状の影響」
- [3]令和 4 年度 D595 「曲げ変形したハイマンガン鋼のせん断応力分布及び集合組織勾配の評価」

## 制御システムの導入

### Introduction of controlled systems

諸岡 聡\*、徐 平光\*、佐々木 未来\*、菖蒲 敬久\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

#### 概要

中性子応力測定装置 RESA (Fig. 1) は原子炉停止期間中のパーソナルコンピュータ (PC) OS のバージョンアップに伴い、制御計の動作不良に陥っていた。我々は、制御システム(制御計(TNB-10)、ドライバーボックス (SD-8000) および RESA 専用制御ソフトウェア (Fig. 2)) を新たに製作し、概ね原子炉停止前の状態に復旧した。

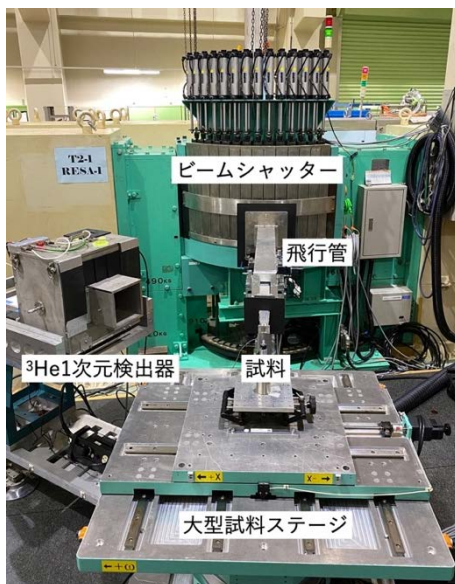


Fig. 1 中性子応力測定装置 RESA



Fig. 2 制御システムとソフトウェア

#### 使用装置

RESA

#### 実施課題 No.

[1] 令和3年度 I395 「RESA-1 の保守管理」



## 高強度モノクロメータの導入

### Introduction of high intensity monochromator

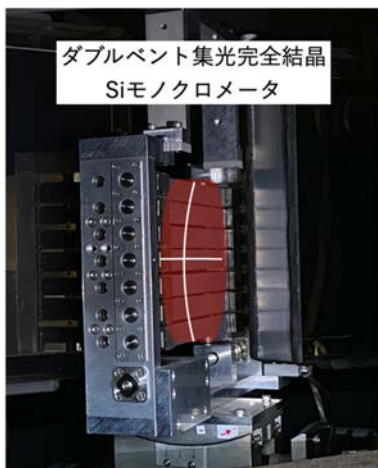
諸岡 聡\*、徐 平光\*、佐々木 未来\*\*、菖蒲 敬久\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関材料物性研究グループ

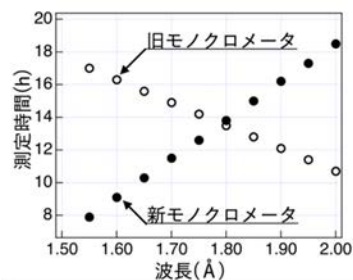
#### 概要

JRR-3 ビームホールの T2-1 ポートでは、モノクロメータ位置における中性子強度が原子炉停止前と比較して、およそ 25%減少した。中性子応力測定装置 RESA はゲージ体積を規定して回折測定を行う点から、中性子強度の減少は侵入深さや測定効率に影響を及ぼす。そこで、我々は高強度モノクロメータ (Fig. 1) を開発し、令和 4 年度より導入に至った。その結果、新モノクロメータから発生する中性子強度は 1.8Å以下の波長で増加し、最大で 2 倍にすることに成功した (Fig. 2)。



構成	Siウエハー(15枚)×7バケット
ウエハー寸法	250 mm <sup>L</sup> ×15 mm <sup>W</sup> ×0.7 mm <sup>t</sup>
バケット厚さ	10.5 mm <sup>t</sup>
利用可能な反射	(004)回折面

Fig. 1 高強度モノクロメータ



【測定条件】 300カウント×6 peaks測定  
 試料：Si粉末 (φ6mmバナジウム管)  
 Cd スリット：3×15 mm  
 ラジアルコリメータ：3 mm

Fig. 2 測定時間と波長の関係

#### 使用装置

RESA

#### 実施課題 No.

- [1] 令和 4 年度 I537 「中性子応力測定装置 RESA の調整及び保守」
- [2] 令和 4 年度 D538 「中性子応力測定装置 RESA のモノクロメータ及び検出器の高度化研究」

## ユーザーズミーティング

### 学会等で発表された成果

- 令和3年10月7～8日  
第55回X線材料強度に関するシンポジウム 於：オンライン  
諸岡 聡、徐 平光、菖蒲 敬久、鈴木 裕士  
“中性子応力測定装置 RESA の現状”（口頭）
- 令和3年10月14～15日  
日本金属学会第4回金属・無機・有機材料の結晶方位解析と応用技術研究会  
於：オンライン  
P.G. Xu, S. Morooka, T. Shobu  
“Current state of bulk texture measurement technique using angle dispersive neutron diffraction at RESA”（口頭）
- 令和3年12月1～3日  
日本中性子科学会第21回年会 於：オンライン  
諸岡 聡、徐 平光、菖蒲 敬久  
“中性子応力測定装置 RESA による応力測定の現状”（ポスター）
- 令和3年12月1～3日  
日本中性子科学会第21回年会 於：オンライン  
P.G. Xu, S. Morooka, W. Gong, T. Suzuki, S. Harjo, T. Shobu  
“Round robin texture measurement of standard limestone sample”（ポスター）
- 令和4年7月27～31日  
14th National Conference on X-ray Diffraction and the ICDD workshop, Kaifeng, Henan, China.  
P.G. Xu  
“Development of bulk texture measurement techniques using various neutron sources towards widespread materials evaluation”（Invited talk, Online）
- 令和4年9月21～23日  
日本鉄鋼協会第184回秋季講演大会、於：福岡工業大学  
P.G. Xu, S. Morooka, K. Yamamoto, S.C. Vogel, L. Lutterotti, T. Shobu  
“Texture measurement of round robin limestone using angle dispersive neutron diffraction”, CAMP-ISIJ, Vol.35 (2022): 635.（口頭）

- 令和4年10月26～28日  
日本中性子科学会第22回年会 於：幕張メッセ国際会議場  
諸岡 聡、徐 平光、柴山 由樹、佐々木 未来、菖蒲 敬久  
“JRR-3における中性子応力測定の実状”（ポスター）
- 令和4年10月26～28日  
日本中性子科学会第22回年会 於：幕張メッセ国際会議場  
徐 平光、山本 和喜、岩本 ちひろ、高村 正人  
“角度分散型中性子回折による金属材料の集合組織測定に及ぼす試料形状の影響”、  
Poster No.29: pp.92.（ポスター）
- 令和4年11月30日  
2022年度RANSシンポジウム 於：理化学研究所  
諸岡 聡、徐 平光、柴山 由樹、佐々木 未来、菖蒲 敬久  
“JRR-3における中性子応力測定装置 RESA を用いた応力測定の実状”（口頭）
- 令和5年3月8～10日  
日本鉄鋼協会第185回春季講演大会 於：東京大学  
徐 平光、山本 和喜、Harjo, S.、菖蒲 敬久、岩本 ちひろ、高村 正人、大竹 淑  
恵、小貫 祐介、佐藤 成男、Liss, K.-D.  
“幅広い材料評価に向けた各種中性子源を用いた集合組織測定技術の進捗”、CAMP-  
ISIJ, Vol.36 (2023): p.288.（口頭）
- 令和5年3月13～15日  
2022年度量子ビームサイエンスフェスタ 於：つくば国際会議場  
諸岡 聡、徐 平光、柴山 由樹、佐々木 未来、菖蒲 敬久  
“JRR-3における中性子応力測定装置 RESA の実状 2022”（ポスター）

独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…11件

成果占有課題（トライアルユース含む）…2件

成果非占有課題…9件

成果非占有課題名	所属機関
Microstructure and residual strain in induction-hardened high-railway S38C steel axle using neutron diffraction	Chinese Academy of Sciences
Structure and damping capacity of TRIP high-Mn steel	Guangdong Academy of Sciences
Residual strain and texture evaluation for high entropy alloys with different initial lattice distortions after various tensile deformation	Hebei University of Technology
中性子線回折法による航空機部品用素材の残留応力測定	アイコクアルファ株式会社
中性子線回折法による SCr420 自動車部品の残留応力測定	アイコクアルファ株式会社
旋回ベアリングの高周波焼き入れ部品における焼き入れ深さと内部残留応力測定	株式会社アンテックス
浸炭材表面層の残留応力分布測定技術の開発	川崎重工業株式会社
浸炭材表面層の残留応力分布測定技術の開発(再計測)	川崎重工業株式会社
中性子回折法を用いたマグネシウム合金/アルミニウム合金爆発圧着材における残留応力解析	名古屋工業大学

○全国大学共同利用課題…12件

課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
高窒素オーステナイト鋼の加工硬化挙動の温度依存性に関する研究	九州大学
節形状の異なるあと施工アンカーの歪み分布特性評価	建築研究所
小口径配管の溶接残留応力の解析	新潟大学
高エネルギー放射光と中性子との相補的応力測定	新潟大学
粗大集合組織を持つアルミニウム鋳造合金の中性子応力測定(TNRF)	神戸市立工業高等専門学校
新 LTT 溶接材料による 3次元圧縮残留応力の実験測定と数値解析	大阪大学
第2世代 LTT 溶接ワイヤーによる積層造形材の残留応力測定	大阪大学
軽量構造用マグネシウム合金押し出し管材のマイクロ組織がプレス成形性に及ぼす影響に関する基礎研究	東京都立産業技術高等専門学校
応力測定技術に基づくコンクリート用補強材の形態最適化	東京理科大学

課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
バルクセメントイトの変形解析	豊橋技術科学大学
構造材料における新規結晶相の変形解析	豊橋技術科学大学
小型中性子源RANSにおける応力測定評価比較のための系統的精密応力測定	理化学研究所

## 2.8 PGA 即発 $\gamma$ 線分析装置

装置責任者：大澤 崇人



### 概要

PGA は、試料に中性子を当てた際に放出される即発  $\gamma$  線をゲルマニウム検出器で測定することにより、試料中の元素組成を非破壊で分析できる装置である。PGA は様々な元素を同時に検出できる強力な分析装置で、極めて高い分析確度を誇る。即発  $\gamma$  線分析が行える施設は世界に数カ所しかなく、中でも本装置は世界で最もバックグラウンドの低い優れた分析装置である。試料は固体だけでなく液体にも対応でき、1 g 程度の比較的大きい試料のバルク分析にも柔軟に対応できる。そのため PGA の応用範囲は広く、岩石、考古遺物、環境試料、食品、材料など、分野を問わず利用できる。

東日本大震災後には多関節ロボットを用いた完全自動分析システムが導入され、最大 14 個の試料を全自動で分析可能になった。これによりユーザーの負担は大幅に低減された。

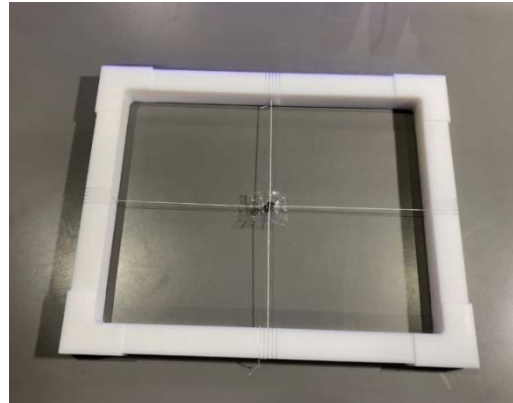
### 装置詳細

中性子源	熱中性子源
中性子波長	$\lambda = 0.145 \text{ nm}$
$\gamma$ 線スペクトロメーター	Ge 検出器 n 型 HPGe, FWHM 1.75 keV, 相対検出効率 23.8% BGO 検出器 測定モード シングル、コンプトンサプレッション、ペアー
照射雰囲気	He, CO <sub>2</sub>

試料環境



自動分析システム



テフロンフレーム中央に吊り下げられた試料。試料は FEP フィルムで密封している。

測定例

図 1 はフィリピンの採鉱くず (Tailing) 中の水銀分析の例である。矢印は水銀のピークを示し、鉄のピークと重なるため、その影響を除去することで正確な水銀濃度が得られる。開発途上国では金の小規模採鉱で多量の水銀が使用されており、その環境汚染が深刻な問題となっている。しかし汚染のひどい地域で科学的調査が行われていることは稀で、汚染の全容はわかっていない。高濃度の水銀に汚染された地域の試料は、高すぎる水銀濃度のため冷原子吸光法で測定することが難しく、PGA の方が適している (Osawa et al., 2011)。

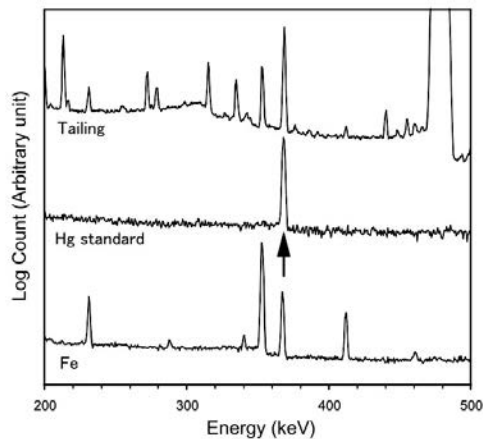


図 1 フィリピンの採鉱くず (Tailing) 中の水銀分析の例

## 高精度かつ簡便な金属系燃料デブリ中ホウ素濃度定量法の開発

### Development of accurate and simple method for determination of boron concentration in metallic fuel debris

墨田 岳大\*、大澤 崇人\*\*

\*九州大学大学院工学研究院 材料工学部門

\*\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

本研究は、原子炉過酷事故研究を推進する上で重要となる金属系燃料デブリ中ホウ素の分析に関する研究である。炉内材料が溶融固化した“燃料デブリ”の物理的・化学的性状を把握することは事故炉の廃炉のみならず、燃料デブリの性状から過酷事故進展状況を予測し、その知見を高速炉などの安全に活かす上で重要である。未だ燃料デブリの正体は不明だが、これまでの研究により、炭化ホウ素 ( $B_4C$ ) を制御材として使用する原子炉 (沸騰水型軽水炉や高速炉) の場合、燃料デブリ中には高濃度のホウ素成分が含まれていると考えられている [Sumita et al., *J. Nucl. Mater.*, 2021]。ホウ素は燃料デブリの物理的・化学的特性に大きな影響を及ぼすため、燃料デブリ中ホウ素濃度を高信頼度で分析する手法が求められている [Sumita et al., *Materialia*, 2021]。ところがホウ素は軽元素であるために、既存の濃度定量法では精度よく定量することが困難であり、既存の過酷事故研究の多くが、ブラックボックス的に定量し、分析・測定精度を検討していないのが現状である。そこで本研究では燃料デブリ中ホウ素の新規濃度定量法の開発を行った。

令和3年度は JRR-3 に設置されている PGA におけるホウ素分析確度を評価した。種々のホウ素含有標準試料を系統的に測定し、PGA にて分析可能な試料条件を決定した。令和4年度はステンレス鋼粉末と炭化ホウ素粉末を混合溶融後冷却して得られた燃料デブリ要素成分試料中ホウ素を PGA で決定した後、汎用分析手法である ICP-OES における燃料デブリ要素成分試料中ホウ素分析確度を評価した。現在当該研究成果に関して投稿論文を執筆中である。

#### 使用装置

---

PGA

#### 実施課題 No.

---

- [1] 令和3年度 D399 「高精度かつ簡便な金属系燃料デブリ中ホウ素濃度定量法の開発」
- [2] 令和4年度 D553 上記継続課題



## 地球外物質の即発 $\gamma$ 線分析

### Prompt $\gamma$ -ray analysis of extraterrestrial materials

大澤 崇人\*、白井 直樹\*\*、海老原 充\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*神奈川大学、\*\*\*東京都立大学

#### 概要

---

小惑星探査機はやぶさ2が小惑星リュウグウから多量の小惑星試料を人類にもたらした。はやぶさ2初期分析は各地の研究機関で行われ、研究代表者を含む「石の分析チーム」では、初期分析の一環としてミュオン捕獲特性 X 線分析を行い、炭素などの元素の非破壊検出に成功し、リュウグウがCIコンドライトに近い組成であることを明らかにした一方で、酸素濃度がCIコンドライトより明確に低いことを発見している。CIコンドライトは、太陽系の平均的元素組成 (Solar Abundance) を決定するための基準としてこれまで利用されてきたが、今後はリュウグウ試料がそれに替わる試料となるかもしれない。よって、Solar Abundanceを再決定する上でリュウグウ試料に含まれる各元素の濃度を正確に決定することは極めて重要である。

本研究では、リュウグウ試料の水素濃度を正確に決定するためにPGAを用いて分析を行っている。はやぶさ2国際公募によりJAXAから提供されたリュウグウ試料は数mgとわずかなサイズのため測定には長時間を要する。令和3年度は比較対象となる既存の隕石CIコンドライトを用いて分析を行い、令和4年度は国際公募により入手したリュウグウ試料の分析を行った。再公募により追加の試料を確保できたこともあり、令和5年度も引き続きリュウグウ試料の分析を継続する。

#### 使用装置

---

PGA

#### 実施課題 No.

---

[1]令和3年度 D402 「即発 $\gamma$ 線を用いた地球外物質の分析」

[2]令和4年度 I562 装置担当者枠

## 即発 $\gamma$ 線分析を用いた非破壊同位体比分析

### Isotopic ratio analysis using prompt $\gamma$ -ray analysis

大澤 崇人\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

同位体比分析は通常質量分析計で行われているため、試料を破壊する必要がある。一方、放射化学的手法を用いることで非破壊同位体比分析を行える可能性がある。そこで PGA を用いることで非破壊同位体比分析が可能かどうかを検証した。対象元素として銀を選択した。その理由は、銀は安定同位体が2つしかなく両者の存在度が近いこと、2つの安定同位体それぞれから即発 $\gamma$ 線が放出されるからである。濃縮同位体を用いて同位体比を任意に調整した試料に対して分析を行ったところ、 $^{107}\text{Ag}$  および  $^{109}\text{Ag}$  から放出される $\gamma$ 線のピーク面積比は同位体に比例していることが判明した。この結果、原理的にはPGAで同位体比分析が可能であることが判明した一方、自然界では極めて僅かしか同位体変動を示さない銀の同位体比分析に応用することは極めて困難であることも判明した。

#### 使用装置

---

PGA

#### 実施課題 No.

---

[1]令和4年度 I585「即発 $\gamma$ 線分析を用いた非破壊同位体比分析」

## 即発 $\gamma$ 線分析装置の保守点検・高度化 Maintenance and upgrading of prompt $\gamma$ -ray analysis system

大澤 崇人\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

---

即発 $\gamma$ 線分析は中性子を利用した元素分析法であり、極めて高い分析確度を有している。ガイドホールに設置された即発 $\gamma$ 線分析装置 (PGA) はすでに建設から 30 年が経っていたが、多関節ロボットを導入し、LabVIEW で開発した制御プログラムによって完全な分析の自動化を達成している。

PGA は令和 3 年度以降も非常に頻繁なアップグレードが重ねられ、信頼性の向上を達成している。JRR-3 再稼働後に発生した老朽化と初期設計不良に起因した数多くの不具合は数年がかりで補修が行われており、補修箇所は装置のほぼ全域に及んでいる。まず、高電圧に上がらなくなっていた Ge 検出器は長期間の真空引きによって復活したが、数回の真空引きの度にやり方に改良が加えられ、現在では液体窒素容器内にヒーターを仕込んで 70°C 程度に加熱する方法を確立した。動作しなくなっていた中性子導管の移動用モータードライバや、老朽化で駆動しなくなったインターロック用のソレノイドは交換された。故障していた NIM モジュール、例えば TAC や BGO 検出器用高圧電源などは全て修理した。中性子導管に接続されていたヘリウムガス用チューブや、試料ボックスに接続されていたチューブと配管も全て更新した。設計不良のビームシャッターは応急的に対処した。制御プログラムは 100 回以上のアップデートによって動作の安定性を向上しただけでなく、新機能が次々と導入された。

### 使用装置

---

PGA

### 実施課題 No.

---

- [1] 令和 3 年度 I409 「即発 $\gamma$ 線分析装置の保守点検・高度化」
- [2] 令和 4 年度 I562 「即発 $\gamma$ 線分析装置の保守点検・高度化」

ユーザーズミーティング

学会等で発表された成果

- 令和3年9月23日  
日本放射化学会第65回討論会 於：オンライン  
大澤 崇人  
“JRR-3 即発ガンマ線分装置(PGA)の現状” (口頭)
- 令和4年10月7日  
日本 MRS 水素科学技術連携研究会 第5回トピックス研究会(物理学分科会) 於：オンライン  
大澤 崇人  
“ミュオン並びに中性子を用いた小惑星リュウグウ試料分析への挑戦”(口頭 招待講演)
- 令和4年2月26日  
第14回 日本ホウ素・ホウ化物研究会 於：オンライン  
墨田 岳大、大澤 崇人、池田 篤史  
“即発 $\gamma$ 線分析を利用したホウ素濃度の精密決定”(ポスター)

独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…8件

成果占有課題（トリアルユース含む）…0件

成果非占有課題…8件

成果非占有課題名	所属機関
中性子誘起即発ガンマ線分析を用いたメソポタミア土器の微量重元素定量評価	茨城県産業技術イノベーションセンター
絹および染色剤・媒染剤の中性子即発ガンマ線分析	茨城大学
中性子インビームメスバウアー分光法のノイズ低減	国際基督教大学
即発γ線分析による日本の金工品（自在海老置物）に使用されている接着剤（金属製ロウ材）の同定	昭和女子大学
お茶の即発γ線分析	大妻女子大学
PGAによるセミ抜け殻中有害金属元素分析に基づく環境中分布測定	大妻女子大学
高効率コンプトンカメラを用いた即発ガンマ線イメージング	東京大学
全固体電池関連物質中のリチウム深度分布測定	理化学研究所

○全国大学共同利用課題…10件

課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
中性子インビームメスバウアー分光法のノイズ低減	国際基督教大学
海洋プレートと環太平洋火山岩の即発ガンマ線分析	国立科学博物館
内標準比を用いた中性子放射化分析法の開発	産業技術総合研究所
中性子放射化分析法による隕石の元素組成に関する研究	早稲田大学
南米アンデス弧火山岩のスラブ由来成分の推定	東京経済大学
アンデス弧および西南日本弧の火山岩のスラブ由来成分の検討	東京経済大学
全固体電池関連物質中のリチウムイオンの深度分布測定(CNRF)	東京工業大学
放射化分析法による環境試料の元素組成定量	東京都立大学
PGAを用いた原始惑星の形成過程の解明	東京都立大学
即発ガンマ線分析装置を用いた隕石の元素組成に関する研究	東京都立大学

## 2.9 TNRF/CNRF 中性子ラジオグラフィ装置

装置責任者：栗田 圭輔、装置担当者：飯倉 寛

### 概要

中性子ラジオグラフィは試料内部の構造や状態を非破壊で観察できる技術である。この技術では、元素に対する中性子の反応断面積の差を利用する。中性子は一般に、重元素に対して透過性が良く、逆に H や Li、B 等の軽元素と相互作用しやすい。このため、他の手法では計測が難しい水の様子を捉えられることが特徴の一つである。JRR-3 には 2 つの中性子イメージング装置があり、それぞれの装置の特徴については以下で詳細を述べる。



### TNRF（熱中性子ラジオグラフィ装置）

#### 概要

TNRF は、JRR-3 の炉室内に設置されている熱中性子を利用する中性子ラジオグラフィ装置である。広い照射面積と高い中性子束を持ち、単純な 2 次元の透過像を取得できるだけでなく、流体のダイナミクス観察や三次元可視化（CT 計測）など、多種多様なニーズに対応できる汎用性の高い装置である。

#### 装置詳細

中性子エネルギー（Beam Spectrum）	熱中性子（Thermal Neutron）
中性子束（Beam Flux）	$1.0 \times 10^8$ n/cm <sup>2</sup> /sec
ビームサイズ（Beam Size）	H 305 mm × W 255 mm
コリメータ比（L/D）	176

検出器 (Detector)	シンチレータ - ZnS(Li)シンチレータ カメラ - 冷却 CCD カメラ (Cooled-CCD Camera) - EM-CCD カメラ (EM-CCD Camera) - 高速度カメラ (High-Speed Digital Video Camera)
----------------	--

### 試料環境

- 駆動ステージ (回転・直動・スィベル)
- 圧縮空気
- 循環水
- 200 V 電源
- 乾燥機

### 測定例

図1は、土壌中に伸長する植物の根を撮像したものである。対象を回転させながら撮像し、画像処理することで、このような三次元の画像が得られる。

図2は、動作中のエンジン内部のオイル挙動を可視化したものである。高速度カメラを活用することより毎秒数千コマの撮像も可能となり、オイル飛沫の様子を観察することができる。

図3は、コンクリートのひび割れから水が浸入する様子を経時的に観察したものである。中性子は水に敏感なため、X線では見にくい水の動きもこのように捉えることができる。



図1 土壌中に存在する植物の根の3次元画像

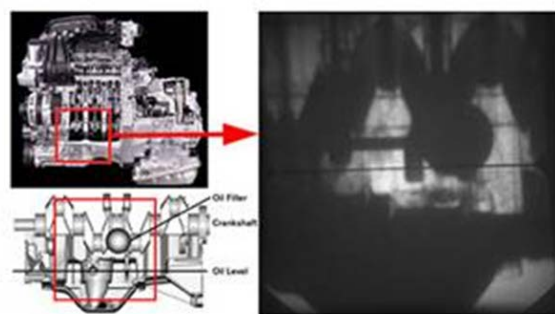


図2 エンジン内部の潤滑オイル挙動の撮像例  
(2008年11月プレス資料より)

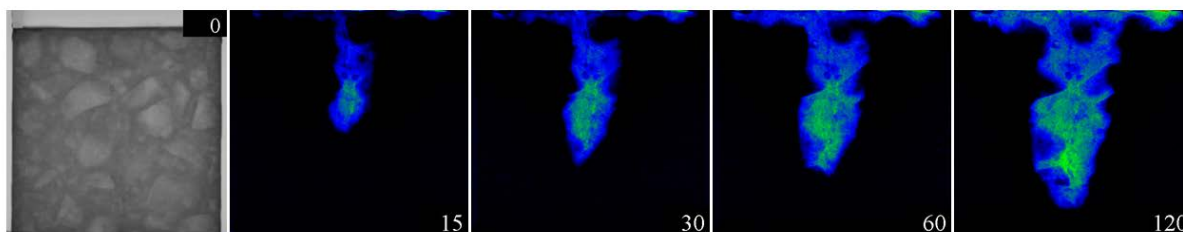


図3 コンクリートの中性子透過像（白黒）、及びコンクリートのひび割れから浸入する水の経時変化（カラー、図の数字単位は分）

### CNRF（冷中性子ラジオグラフィ装置）



#### 概要

CNRFはJRR-3のガイドホールに設置されており、冷中性子を利用する。熱中性子よりエネルギーの低い冷中性子を利用すると、厚い試料の測定は困難になるが、コントラストの高い画像が得られる。このためCNRFでは、物質の濃淡（濃度差）をより詳細に調べたい場合や、薄い試料中の分布を調べたい場合など、冷中性子の特性を生かした研究が行える。

#### 装置詳細

中性子エネルギー（Beam Spectrum）	冷中性子（Cold Neutron）
中性子束（Beam Flux）	$1.7 \times 10^7$ n/cm <sup>2</sup> /sec
ビームサイズ（Beam Size）	H 30 mm × W 20 mm
検出器（Detector）	イメージングプレート



## あと施工アンカーの長期付着特性評価に向けた基礎研究

### Basic study for evaluation of long-term adhesion characteristics in post-installed anchors

菖蒲 敬久\*、栗田 圭輔\*、飯倉 寛\*、諸岡 聡\*、向井 智久\*\*、  
有木 克良\*\*、チェ ホンボク\*\*\*、山本 慎\*\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*国立研究開発法人建築研究所 構造研究グループ

\*\*\*東京理科大学 理工学部建築学科

#### 概要

接着系あと施工アンカーの施工品質確認における内部状況評価のために、本研究では JRR-3 に設置されている熱中性子ラジオグラフィ装置 TNRF を用いて、あと施工アンカー試験体の透過画像を非破壊、非接触で撮影し、接着剤未充填部の特定に要する撮影条件及び定量評価のための指標の検討を行った。Fig. 1 に  $0.5^\circ$  ピッチ 360 枚、 $0.3^\circ$  ピッチ 600 枚及び  $0.1^\circ$  ピッチ 1800 枚の透過イメージング像を画像再構成し、作成した鉄筋コンクリート内部断面画像を示す。枚数を増やすことで細かいところまで鮮明な画像取得ができていることがわかる。また図では示していないが、600 枚以上ではアーチファクトがほぼ見えない画像取得ができていた。詳細に評価した結果、撮影条件において、回転角度間隔を小さくし、TNRF では合計画像枚数が 600 枚程度あればその評価を十分に行えることがわかった。

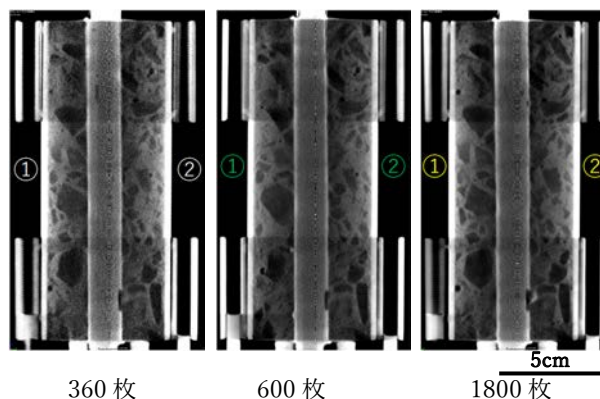


Fig. 1 鉄筋コンクリートの断面画像

#### 参照

- [1] 崔 烘福、向井 智久、菖蒲 敬久、有木 克良、衣笠 秀行、中性子イメージング技術を用いた接着系あと施工アンカーにおける接着剤未充填部の特定手法、日本地震工学会・大会、2022.12
- [2] 向井 智久、菖蒲 敬久、中性子線を活用したあと施工アンカーの品質確保に資する実験研究の現状、建築防災, 553, (2024), pp.6-10.

#### 使用装置

TNRF, RESA

#### 実施課題 No.

- [1] 令和3年度 K464「長期荷重を負担するあと施工アンカーが安定的な定着性状を示す条件に関する基礎研究」

## マルチピンホールコリメータを使った高分解能中性子イメージング法の開発 Development of high-resolution neutron imaging using multi-pinhole collimator

大澤 崇人\*、栗田 圭輔\*、飯倉 寛\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

### 概要

中性子線は X 線等の電磁波とは物質との相互作用が異なるため、それを利用したラジオグラフィは独特の透過画像が取得可能である。しかし中性子線を制御することは簡単ではないため、中性子イメージングの空間分解能はそれほど高くない。そこでガドリニウム板に複数の直径 100 ミクロンの微小な穴を開けたものを 2 枚平行に並べることで、極めて高い L/D 比の平行ビームを生成する手法を提案した。2 枚のガドリニウム板に放電細穴加工で 8×8 個の穴を開けた。加工が非常に困難であったため貫通前にワイヤーが断裂してしまった穴が 2 つできてしまったが、62 個の穴を開けることに成功した。ただし穴にはテーパがかかってしまった。これを完全に平行に設置するために金型加工の技術を応用し、板をミクロン単位で正確な位置に固定することに成功した。よって 2 枚のコリメータの相対位置は全く調整する必要がない。これを TNRF に持ち込んで中性子が透過するかどうかの実験を行った。その結果、中性子が 2 枚のガドリニウムの穴を通して高い平行度で透過していることが確認された。

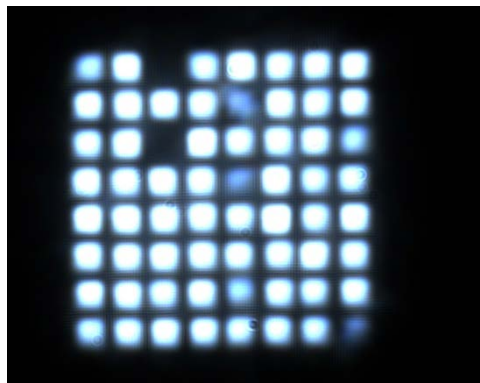


図 マルチピンホールを透過させた中性子イメージ

### 使用装置

TNRF

### 実施課題 No.

[1]令和 3 年度 D406 「マルチピンホールコリメータを使った高分解能中性子イメージング法の開発」

## 中性子イメージング用検出器の開発 Development of neutron imaging detectors

栗田 圭輔\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

---

中性子イメージング装置 TNRF・CNRF において、試料を透過してきた中性子を可視光へと変換するシンチレータは、装置の空間分解能や時間分解能、感度を決める重要な要素の一つである。このシンチレータの性能を向上させることができれば、撮像時間の短縮等や高空間分解能撮像が可能となる。

中性子イメージングで使用されるシンチレータは、ホウ素やリチウム等の中性子を捕獲して荷電粒子を放出する核種と蛍光材料を組み合わせることにより、中性子を可視光へと変換している。現在、この蛍光材料として一般的に使用されているのは LiF/ZnS(Ag)蛍光体であるが、本実験課題ではサイアロン蛍光体が中性子イメージング用の検出器に利用可能かを評価した。また、J-PARC MLF (螺鈿チーム) にて検討されている各種シンチレータに関しても、TNRF においてテスト撮像を行い、輝度値などの評価も行っている。現在これらの結果についてまとめているところである。

一方、CNRF ではイメージングプレートを用いた間接的な撮像系が実装されている中、カメラシステムの導入が R5 年度になったこともあり、CNRF におけるシンチレータ評価は行っていない。

### 使用装置

---

TNRF

### 実施課題 No.

---

- [1]令和3年度 D446「中性子イメージング用検出器の開発」
- [2]令和4年度 D642「中性子イメージング用検出器の開発」

## イメージング用画像解析手法の開発 Development of Image Analysis Methods for Neutron Radiography

栗田 圭輔\*、飯倉 寛\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

---

イメージング装置においては、空間分解能は重要な技術開発要素の一つであり、外部ユーザーからも空間分解能向上のニーズは高い。

空間分解能を向上するためには、まずはビーム並行度（ $L/D$ 、 $L$ ：光源から検出器までの距離、 $D$ ：光源のサイズ）を上げることが一般的である。TNRF は、JRR-3 の炉室に設置されている装置であるため、 $L$  を大きくすることはできない。また、 $D$  を小さくすることは、JRR-3 本体の改造に該当するため現実的ではない。ビームライン上にスリットを設置して  $D$  を小さくする設備も保有しているが、特に TNRF は高い中性子フラックスのビームを大面積に照射できることが最大の特長であるため、スリット導入により利用できる中性子数を減らし、照射面積を減らすことは TNRF の特長を失うこととなる。そのため、ビーム並行度の改善以外の手法で空間分解能を向上させることを考えなくてはならない。

本課題では、サブピクセル処理（sub-pixel classification）を試みた。サブピクセル処理とは、撮像するカメラの 1 画素よりも細かくサンプルの位置を変えて撮像した画像を解析することにより、空間分解能向上を狙うものである。カメラは冷却 CCD カメラ iKon-L 936（Andor 製）を用い、J-PARC で作製された Gd インジケータを試料として用いた。まずは 1 次元の空間分解能向上を評価することとし、Z ステージ ZA16A-32F（神津精機製）を用いて  $2\ \mu\text{m}$ （20 pulse）移動毎に撮像した。現在画像解析を進めているところである。

### 使用装置

---

TNRF

### 実施課題 No.

---

[1]令和 3 年度 D447 「イメージング用画像解析手法の開発」

[2]令和 4 年度 D641 「イメージング用画像解析手法の開発」

## 干し芋の乾燥過程における水の分布状態の変化の解析

### Analysis of Changes in the Distribution of Water during the Drying Process of Dried Sweet Potatoes

中川 洋\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

---

干し芋のしっとりとした食感は嗜好品として好まれ1年の中でも冬場だけの食品として食される。しかし、以前の干し芋は保存食としての役割に重点が置かれ、現在のものより乾燥度合いが強かった。乾燥した干し芋はしっとりとした食感は失われ硬くなるが、カビや腐敗に強くなる。一般的に、水は微生物の増殖により食品を腐敗させる。魚の干物など多くの伝統的な乾燥食品は、乾燥により食品の水分含有量が減少し、また脱水和に伴う食品自体のガラス化により保存性が増す。しかし、これらの食品保存の加工技術は伝統的な知恵によるもので、その科学的なメカニズムは未解明な点が多い。乾燥過程における干し芋の水分の分布状態の変化を調べることは、干し芋の品質を決める重要なプロセスの一つである乾燥処理の理解に重要である。

本研究では、干し芋の中性子イメージング測定を行い、水分の分布状態の変化を調べることを目的とした。試料の干し芋は、近年市場流通の主流となっている干し芋加工用サツマイモ主要品種「べにはるか」を用いた。試料調製では、乾燥プロセスを制御して干し芋を作製するために低温恒温恒湿器を活用することで、干し芋を作製した。透過画像を取得した結果、サツマイモの成長方向に沿った繊維状の透過画像が見られたが、水の分布状態については解析中である。また、干し芋は平たい形状をしているため、透過厚が大きくなる方向の画像は、CT再構成に必要な指数関数的減衰特性が損なわれており、断面の情報の再現が難しいことが分かった。そのため、CT画像については、現状では水の分布を推定することが難しいことが分かった。現在、これらの問題点を解決すべく、試料調製法などの検討を進めている。

#### 使用装置

---

TNRF

#### 実施課題 No.

---

[1] 令和4年度 D633「干し芋の乾燥過程における水の分布状態の変化の解析」

## テレヘルツ波イメージング技術検証のための模擬コンクリート材料評価 Evaluation of simulated concrete material for verification of THz wave imaging technology

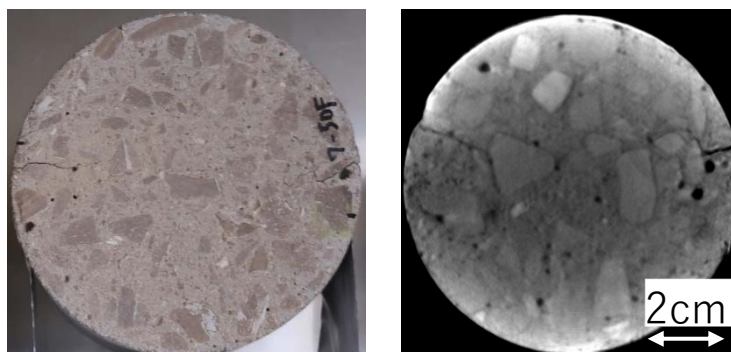
菖蒲 敬久\*、栗田 圭輔\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

### 概要

福島第一原子力発電所廃炉作業は数十年を要すると言われている燃料デブリ取り出し後も除染・解体撤去のため、長期に亘って原子炉建屋の安全機能（特に構造強度）が期待されている事業であり、完了するまでの期間、継続的に建屋を直接、検査・モニタリングし、その結果を用いて健全性を評価・確認するとともに、必要に応じて補修等を実施することによって安全機能を確保することは保全学が求める鉄則であり、困難な状況の中でもこれを可能な限り踏襲することが極めて重要である。本研究では、コンクリート構造物の損傷検知技術として、遠隔かつ非破壊で内部観察が期待される電磁波、特にテラヘルツ波を利用したイメージング技術に着目し、当該技術の検証のための模擬コンクリート材料に関する内部観察を TNRF で実施した。

Fig. 1 は  $\Phi 100$  mm  $\times$  50 mm 厚のコンクリートを 600 度で熱処理した試験体の外観と CT 画像より中央断面を切り出したものを示している。中央部断面像では、粗細骨材及びセメントがはっきりと観察できる。また黒い点は空隙を示している。そして表面から内部にいたるところに幅 1mm 程度のき裂が複数観察されている。これは熱処理により、内部の水分が抜けた際に発生したものであると推察され、mm オーダーの幅のき裂については非破壊でしっかり観察できることを確認した。



(a) 試験体 (b) 中央部断面像

Fig. 1 試験体（左）及び中央部断面像（右）

### 使用装置

TNRF

### 実施課題 No.

[1] 令和 4 年度 J623 「電磁波を用いたコンクリート構造物の損傷検知技術開発のための模擬コンクリート材料評価」

## 中性子ラジオグラフィによる根圏構造の可視化

### Visualization of rhizosphere structure by neutron radiography

栗田 圭輔\*、尹 永根\*\*、鈴木 伸郎\*\*、三好 悠太\*\*、野田 祐作\*\*、河地 有木\*\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

\*\*量子科学技術研究開発機構 量子バイオ基盤研究部 R I イメージングプロジェクト

#### 概要

---

根圏とは、植物の根とその周辺の環境が互いに影響し合う空間を指す。根圏では、根が分泌物を介して土と微生物に働きかけ、自身の生育環境を最適化しながら養分を獲得することが知られており、根圏における植物と微生物の相互作用を理解することは食糧危機を解決する上で必須である。

本実験課題では、植物の根圏構造、特にクラスター根の形成過程を中性子ラジオグラフィで可視化し、得られる構造情報とポジトロンイメージング装置 (PETIS) を用いた分泌物の分布パターンと比較することにより、ルーピンの栄養獲得メカニズムを明らかにすることを目的としている。

令和 4 年度は生きた植物の土壌中の根の可視化を試みた。イネを測定対象とし、適切な砂を選択することにより、CT 撮像による根の可視化に成功した。

#### 使用装置

---

TNRF

#### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 K645 「中性子ラジオグラフィによる根圏構造の可視化」

## マルチアノード光電子増倍管を用いた高計数率中性子検出器開発 Development of high-counting rate neutron detector using multi-anode PMT

土川 雄介\*

\*日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 物質・生命科学ディビジョン 中性子利用セクション

### 概要

---

中性子イメージングは、学術研究（工学、物理学、農学、医学等）や産業応用、文化財分析といった実に幅広い分野で用いられる可視化手法であり、20 世紀後期における研究用原子炉黎明期から今日に至るまで利用され続けている。中性子ビームを用いた研究の高度化は著しく、昨今では大強度中性子ビームに耐えうる高計数率計測と、特に定量的な画像の取得が重要な課題となってきた。

リチウムガラスシンチレータは、信号の時定数が短く高計数率測定に適した検出器の一つである。また近年ヘリウムガスが高騰している状況を受けて、シンチレータ検出器を見直す機運が高まっている背景もあり、本課題では  ${}^6\text{Li}$  ガラスシンチレータを用いた高計数率中性子検出器の基礎開発を行った。16x16 チャンネルマルチアノード光電子増倍管との組み合わせで重心計算により検出位置を再構築する。マルチアノード型光電子増倍管は、隣り合うピクセルの中間で検出感度が低下する。ピクセル中心/端における検出効率の違いはシンチレータやその厚さ、即ちシンチレーション光の量や広がりによって決まるため、正確なマップを得るためにはシンチレータ-光電子増倍管システム毎に確認する必要がある。ピクセル端の不感領域の影響等を調査することで、現状の検出位置分解能(700  $\mu\text{m}$ )を向上することを目的とし、基礎データを収集した。当初使用予定であった検出器が放射化により MLF から持ち出せなかったことや、CNRF における電源ラインの不足（現在は解消されている）、自動ステージ類の制御等に予定より大幅な時間を要したものの、有意義なデータを取得することができた。加えて JRR-3 再稼働後の CNRF のビームプロパティを確認することも行い、ビーム強度やダイバージェンス等に関するデータを取得し提供することもできた。リチウムガラスの他にも、ホウ素入りシンチレータ等、シンチレータ種や厚さに関するスタディも含めて、引き続き研究開発を継続していく。

### 使用装置

---

CNRF

### 実施課題 No.

---

[1]令和 4 年度 D682 「マルチアノード光電子増倍管を用いた高計数率中性子検出器開発」



## CT 撮像用システムの導入

### Introduction of CT imaging system

栗田 圭輔\*、飯倉 寛\*

\*日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

#### 概要

CT 画像構築を行うための撮像は、試料を一定角度毎に回転させながら撮像を行う。よく用いられる撮像条件を例にすると、0.6 度ずつ回転させ 300 回の撮像を行うため、1 時間近く中性子ビームを試料に照射し続けることとなり、試料の放射化が十分に低減するまで更に 1 時間近く待った後によく試料交換ができるという環境であった。

今回 TNRF において、回転用の  $\theta$  ステージ RA05A-W02（神津精機製）を 4 つと X ステージ SGSP46-300（シグマ光機製）を組み合わせることにより、4 つの試料を連続して撮像することを可能とした。更に、撮像状況の確認を可能としたことも TNRF の利便性向上に大きく寄与した。概要を図 1 に示す。

これにより従来の方法では 4 つの試料の CT 用撮像を行うためには、（上記条件の場合）1 試料 2 時間（撮像 1 時間、放射化低減 1 時間） $\times$  4 個 = 8 時間かかっていたものが、2 試料 1 時間 $\times$  2 回（X ステージによる遠隔的試料位置交換） = 2 時間で実施できることとなったため、利用者の実験機会は飛躍的に増加することとなる。

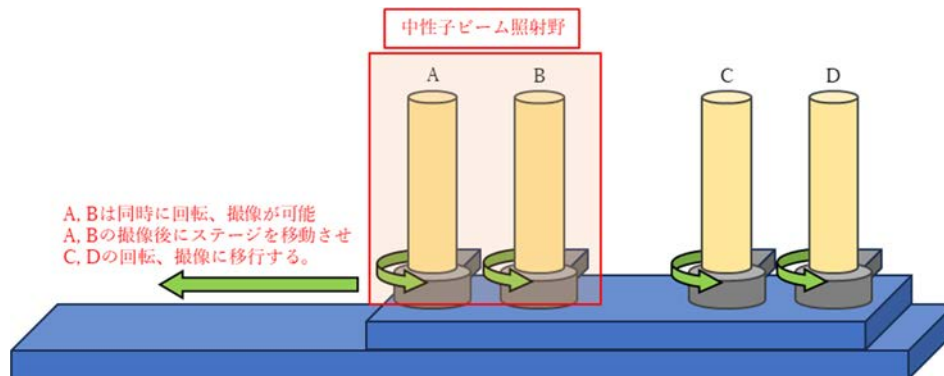


図 1 導入した連続 CT 撮像用システムの概要

#### 使用装置

TNRF

#### 関連課題 No.

[1]令和 3 年度 I445 「TNRF・CNRF 装置担当者枠」

[2]令和 4 年度 I631 「TNRF・CNRF 装置担当者枠」

#### ユーザズミーティング

- 令和3年12月28日  
令和3年度 中性子イメージング専門研究会 於：オンライン  
栗田 圭輔、飯倉 寛  
“10年ぶりに再開したJRR-3の中性子イメージング装置について”
- 令和5年1月5日  
令和4年度 中性子イメージング専門研究会 於：京都大学複合原子力科学研究所  
栗田 圭輔、飯倉 寛  
“JRR-3の中性子イメージング装置について”

#### 学会等で発表された成果

- 令和3年12月1～3日  
日本中性子科学会第21回年会 於：オンライン  
栗田 圭輔、飯倉 寛、菖蒲 敬久  
“JRR-3における熱中性子ラジオグラフィ装置 (TNRF) の現状” (ポスター)
- 令和4年10月17～21日  
International Topical Meeting on Neutron Radiography (ITMNR-9) (ブエノスアイレス)  
K Kurita, H Iikura, Y Tsuchikawa, T Kai, T Shinohara. et al.  
“Introduction to Neutron Radiography Facilities at the Japan Research Reactor-3” (ポスター)
- 令和4年10月26～28日  
日本中性子科学会 第22回年会 於：幕張メッセ国際会議場  
栗田 圭輔、飯倉 寛、松林 政仁、菖蒲 敬久、篠原 武尚、他3名  
“JRR-3における中性子ラジオグラフィ装置の現状” (ポスター)

独自利用以外の課題実施状況

TNRF

○施設供用課題…16件

成果占有課題（トライアルユース含む）…15件

成果非占有課題…1件

成果非占有課題名	所属機関
放射性廃棄物の埋設のための砂・ベントナイト混合土の透水可視化	岩手大学

○全国大学共同利用課題…8件

課題名	所属機関
特殊流路内の気液二相流のボイド率分布計測	関西大学
中性子ラジオグラフィを用いた着霜・除霜のメカニズムの解明	関西大学
定常中性子を用いた混相流ダイナミックスの革新的計測法の開発	京都大学
中性子ラジオグラフィによる混相流機器内熱流動の可視化・計測に基づく現象解明と性能評価	神戸大学
中性子ラジオグラフィによる固体高分子型燃料電池内の水分分布の可視化と性能評価	神戸大学
中性子ラジオグラフィを用いたボロンデリバリシシステムの癌集積性の解析	東京大学
中性子ラジオグラフィによるコンクリート中の局所状態評価	東京理科大学
中性子ラジオグラフィによる超臨界水熱合成場の解析	名古屋大学

CNRF

○施設供用課題…3件

成果占有課題（トライアルユース含む）…1件

成果非占有課題…2件

成果非占有課題名	所属機関
量子ビーム分析アライアンスでの冷中性子ラジオグラフィ	総合科学研究 機構
全固体電池開発のためのリチウム分析	東京工業大学

○全国大学共同利用課題…1件

課題名	所属機関
NRGを用いたLATP系固体電解質のトレーサー拡散測定	京都大学

This is a blank page.



