



JAEA-Review

2025-058

DOI:10.11484/jaea-review-2025-058

令和5・6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 FY2023 and FY2024

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

March 2026

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

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

令和 5・6 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

(2025 年 12 月 2 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 5 年度、令和 6 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。

JAEA-Review 2025-058

**Report on Research and Development of Neutron Beam Utilization at JRR-3 for Internal Use
in FY2023 and FY2024**

Materials Sciences Research Center
Nuclear Science Research Institute

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

(Received December 2, 2025)

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 2023 and 2024 after the restart of operation.

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

(Eds.) Nozomi NABATAME and Miki SASAKI

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	49
2.4 LTAS 冷中性子三軸中性子分光器.....	64
2.5 SUIREN 偏極中性子反射率計	73
2.6 SANS-J 中性子小角散乱装置/ PNO 精密中性子光学装置	89
2.7 RESA 中性子応力測定装置.....	125
2.8 PGA 即発 γ 線分析装置	145
2.9 TNRF/CNRF 中性子ラジオグラフィ装置.....	158

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)	49
2.4 LTAS (Low Energy Triple-Axis-Spectrometer).....	64
2.5 SUIREN (Apparatus for Surface and Interface Investigations with Reflection of Neutrons)	73
2.6 SANS-J (Small-Angle Neutron Scattering) /PNO (Precise Neutron Optics)	89
2.7 RESA (Diffractometer for Residual Stress Analysis)	125
2.8 PGA (Prompt Gamma-ray Analysis System)	145
2.9 TNRF/CNRF (Neutron Radiography Facility)	158

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てい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二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傾向にあり、利用実績は年間約 5000 日に達していた。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、以降は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回復しつつある。

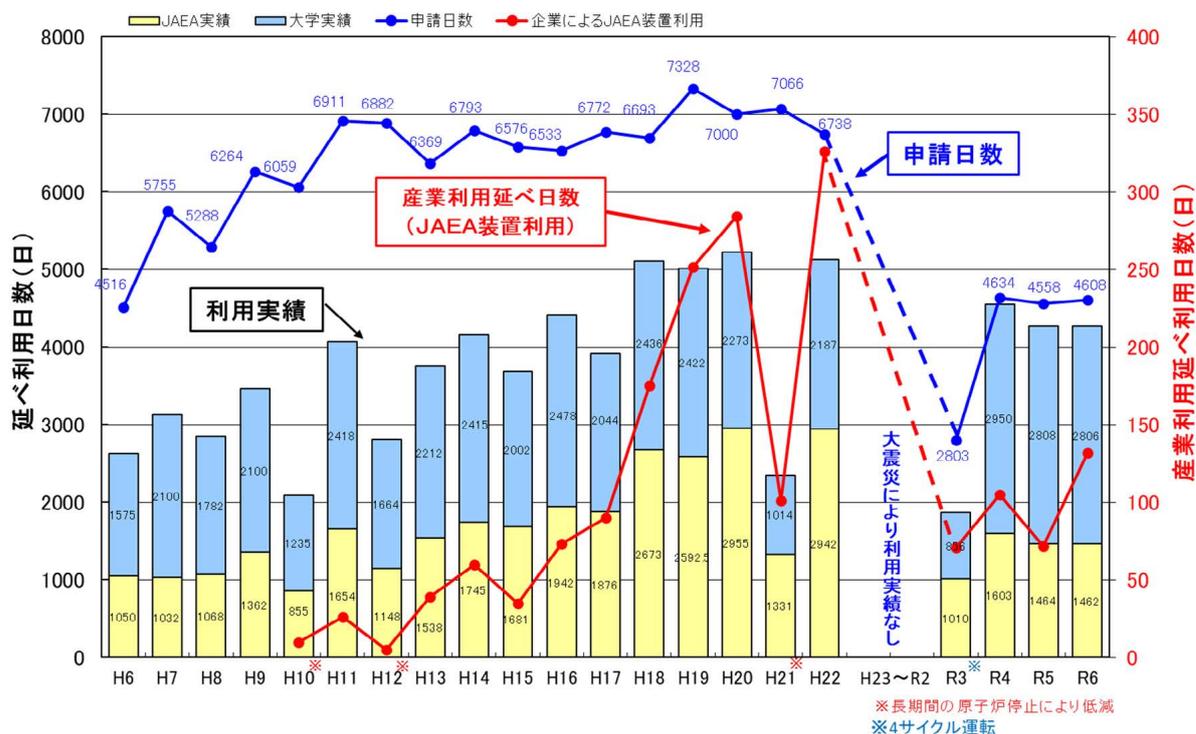


図 1 JRR-3 中性子ビーム利用実績

1.2 JRR-3 利用運転状況

令和5年度と6年度のJRR-3利用運転スケジュールを図2に示す。令和5年度はR5-01サイクルからR5-07サイクルまで7サイクルの利用運転を予定していた。しかしながら、R5-07サイクル開始直前にJRR-3に設置されている地震計の故障が確認されたため、当該サイクルの運転を取り止めることとなった。したがって、令和5年度の利用運転日数は143日となった。令和6年度は、R6-01サイクルからR6-03サイクルまで3サイクルの利用運転を完遂後、定時業者検査を経てR6-04サイクルからR6-07サイクルまで4サイクルの利用運転を実施した。ただしR6-04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、11/25から12/8まで14日間運転は行わなかった。結果として令和6年度の利用運転日数は139日となった。

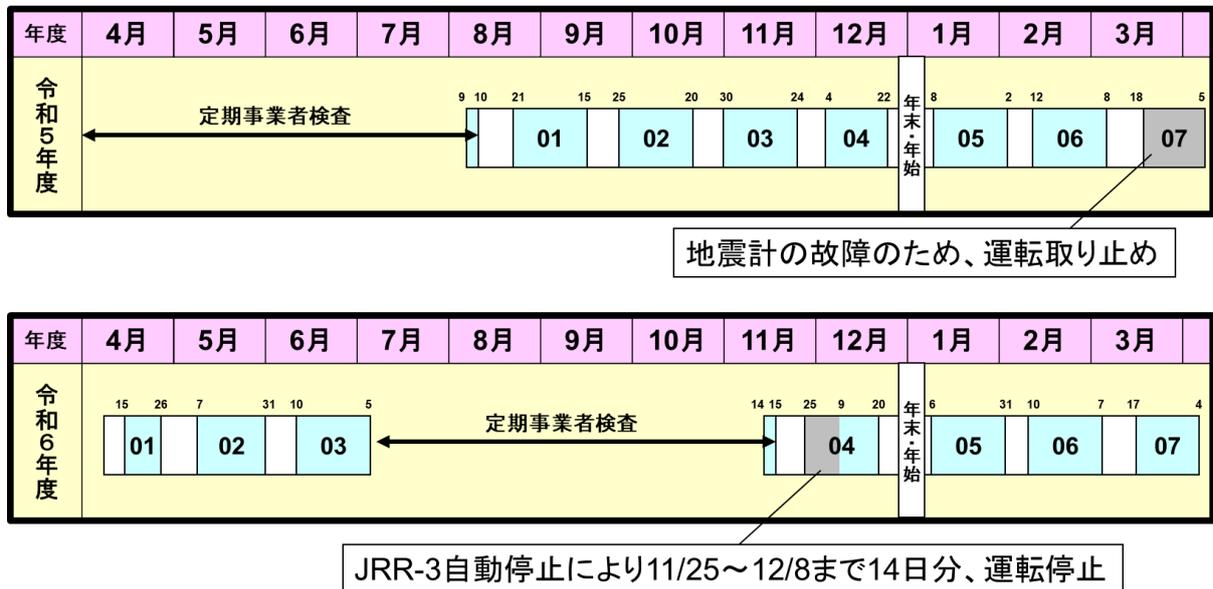


図2 JRR-3 利用運転スケジュール

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 14 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」「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る。これには、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 形態がある。加えて、装置調整や装置高度化作業、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」を通じて定期公募への課題申請が行われる。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。

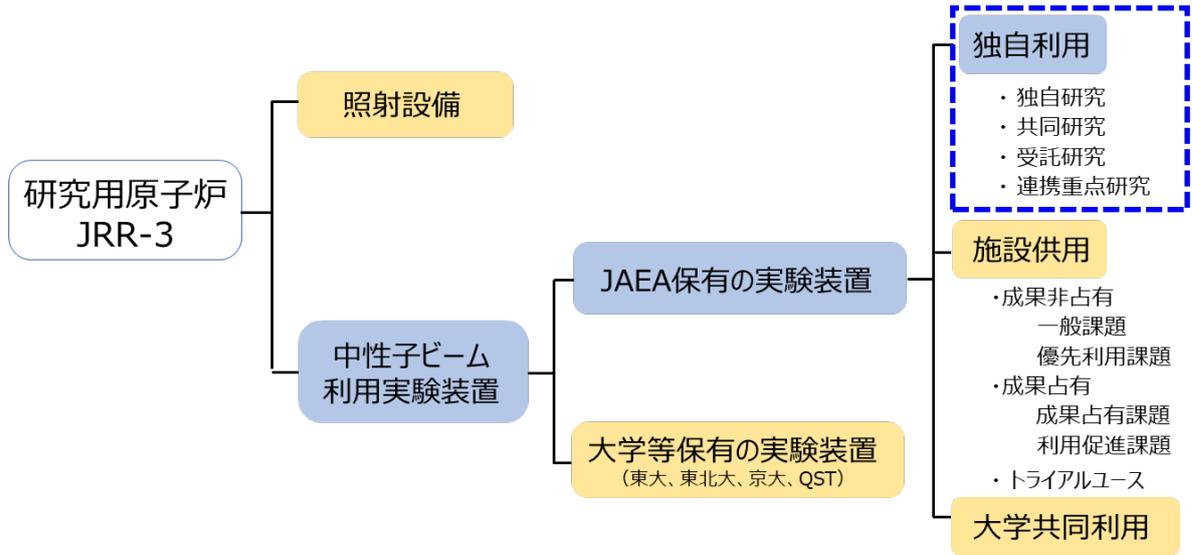


図3 JRR-3における実験利用区分

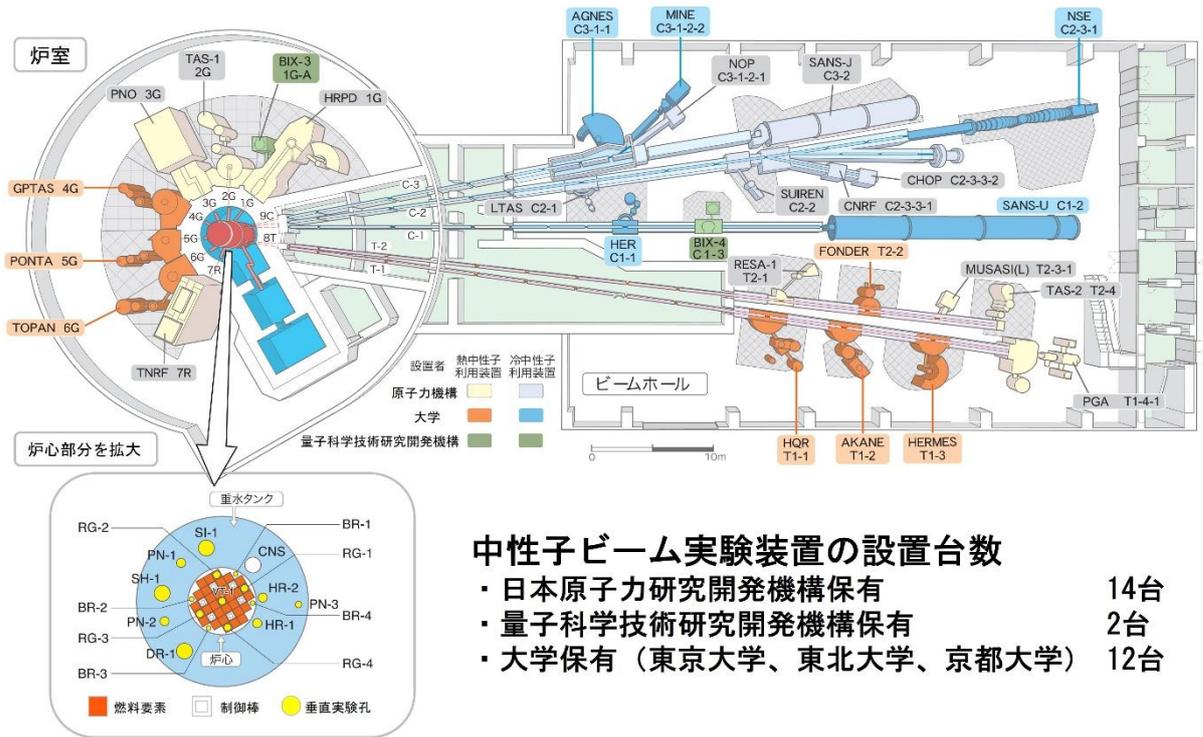


図4 JRR-3 中性子ビーム利用実験装置の配置図 (令和6年時点)

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も審査される。

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。運転再開後 3～4 年が経過し、震災前の外部利用者も戻りつつあり、定常状態に落ち着いてきたと見受けられる。それぞれの利用枠の割合としては大きな変化はない。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短いため、利用日数としては 50%までは至らない。

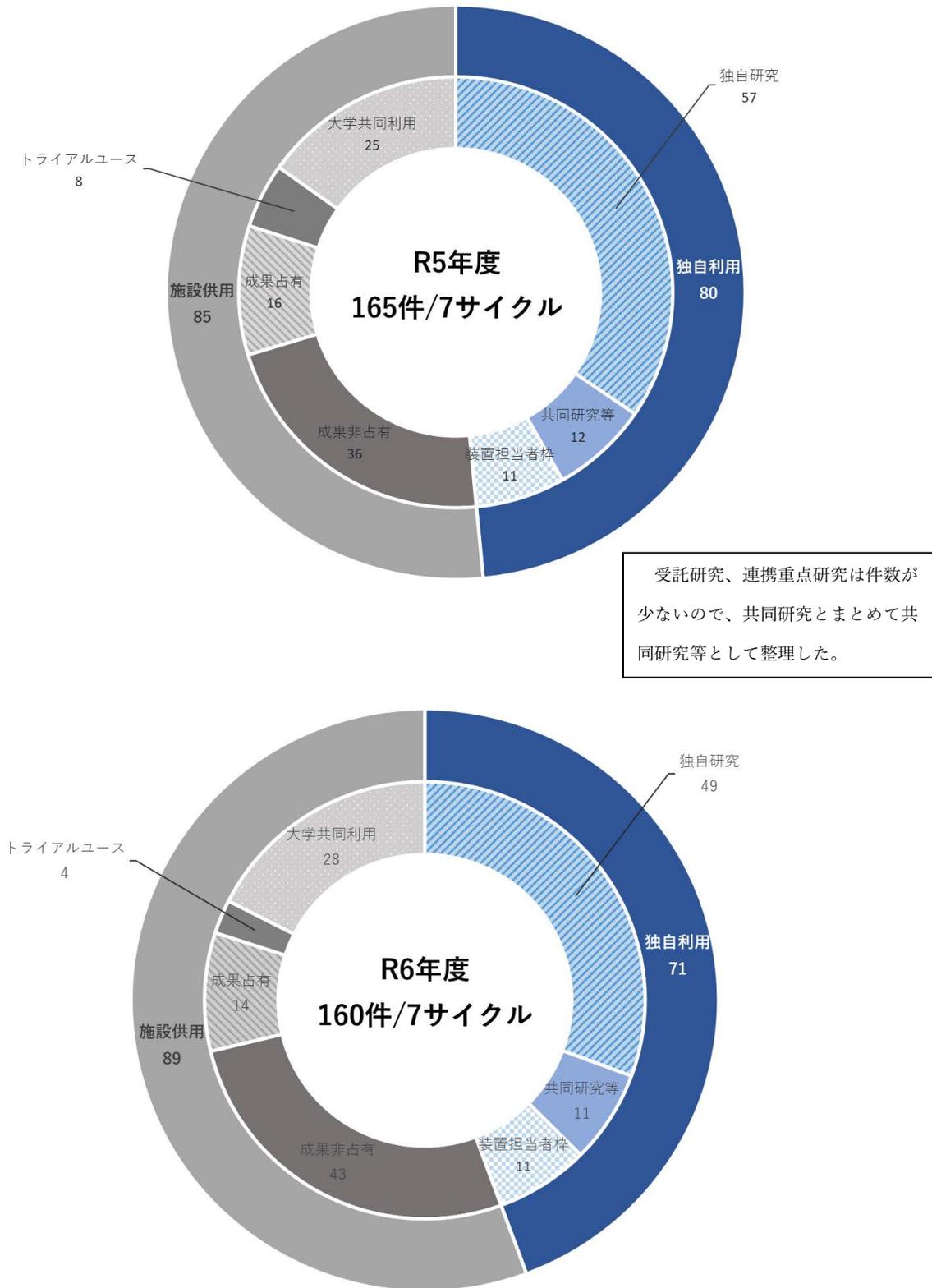


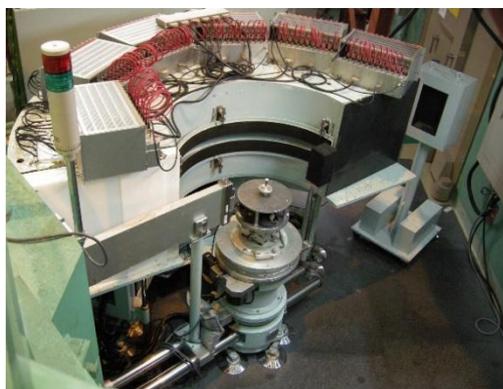
図5 JRR-3 利用課題申請数

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



概要

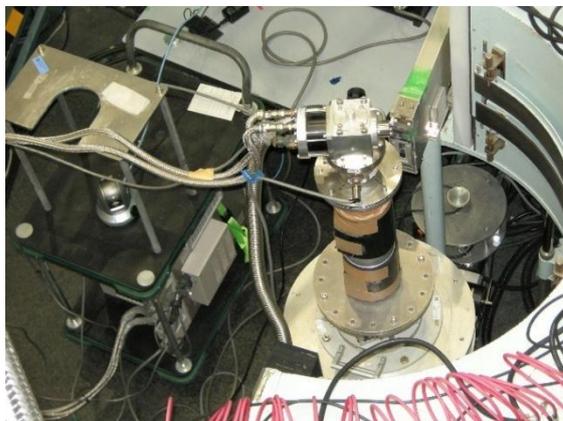
HRPD は粉末試料の中性子回折データを取得するための装置である。64 本の中性子検出器が回折角 2.5° の間隔で配置されており、回折角 2.5° から 162.5° の領域の回折データを得ることができる。通常使用する中性子の波長は 1.82 \AA で、上記の回折角は波数領域にして $0.3 < Q < 6.8 \text{ \AA}^{-1}$ に対応する。この波数はオングストロームからナノメートルの実空間スケールに相当するため、物質の結晶構造や原子核密度分布（正確な言い方をすれば、中性子散乱長の密度分布）を精度良く決定することが可能である。特に中性子が水素やリチウムなどの軽元素に敏感で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
モノクロメーター	Ge (331)面
中性子波長	$\lambda = 1.82 \text{ \AA}$
中性子検出器	6 atm- ^3He 検出器 64 本、 2.5° 間隔

試料環境

・ 4K 冷凍機 (-269°C~30°C)



・ 室温用試料交換機



・ 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2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。図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図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)

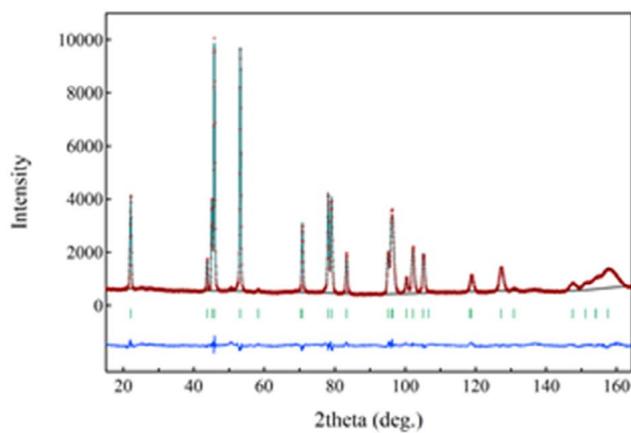


図1 $\text{LiCo}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{O}_2$ の回折データ

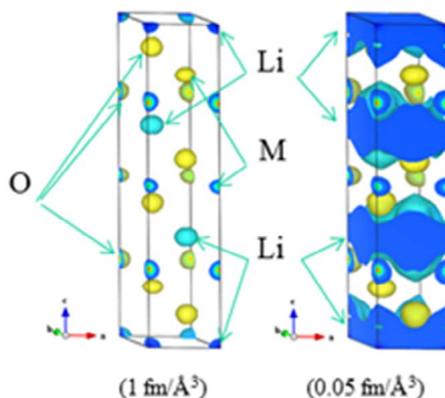


図2 $\text{LiCo}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{O}_2$ の原子核密度分布

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。本研究において、HRPD を用いたアルミ酸化物材料の PDF 解析により、抵抗変化型不揮発性メモリ機能を示すアルミ酸化物とメモリ機能を示さないアルミ酸化物の局所構造に相違がある可能性が見出された。より定量的で詳細な局所構造を明らかにするために、放射光を用いた PDF 解析を相補的に実施した。その結果、構成元素の原子間距離や酸素空孔の有無など微細構造に違いがあることを明らかにした。

参照

M. Kubota and S. Kato, "Influence of local structures on amorphous alumina exhibiting resistance random-access memory function", *J. Appl. Phys.* 136, 025102 (2024).

使用装置

HRPD

実施課題 No.

[1]令和5年度D794 「不揮発メモリ効果を示すアルミ酸化物の局所構造の酸素欠損量依存性」

[2]令和6年度D1011 「アルミ酸化物の局所構造のメモリ機能への影響」

フラストレート磁性体 Mn_3CoSi における量子臨界的振る舞い

Quantum critical behavior of the frustrated magnet Mn_3CoSi

山内 宏樹*、樹神 克明*、井川 直樹*、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 中性子科学センター

概要

立方晶合金 Mn_3TSi ($T = Co, Rh, Ir$) は、反強磁性 (AFM) 三角副格子が 3 次的に頂点を共有する結晶構造を持つ。 Mn_3RhSi の粉末中性子回折では磁気散漫散乱が観測され、ネール温度 $T_N \sim 190$ K を超えて約 500 K の広い温度範囲にわたって短距離磁気秩序 (SRO) が見られる。常磁性状態における SRO は、磁気フラストレーションによるスピクラスターの低エネルギースピンの揺らぎが起源と考えられている。

本研究で Mn_3CoSi に対し中性子、ミュオン、帯磁率、比熱の測定を行った結果、 Mn_3TSi 系では、格子定数が減少すると T_N 、SRO の発生温度、磁気モーメントの大きさが低下することがわかった。 Mn_3CoSi は格子定数が最も小さく (6.21 \AA @ 4 K)、 T_N も約 140 K と最も低い。格子定数がさらに減少する $a = 6.15 \text{ \AA}$ では長距離磁気秩序の消失が予想され、電子比熱係数 γ はこの点に向かって増加することがわかった。これらの結果は、 $a = 6.15 \text{ \AA}$ に量子臨界点があることを示唆しており、 Mn_3CoSi が量子臨界点に近い合金であることを意味している [1]。

一方、粉末多結晶で見られた Mn_3CoSi の格子非整合な磁気反射は単結晶では出現せず、低温における長距離磁気秩序は Mn_3RhSi と同じ $\mathbf{q} = 0$ 反強磁性構造だった [1]。多結晶、単結晶ともに構造解析において格子変形や欠損、置換は認められないため、格子の乱れが非整合反射の原因とは考えにくい。令和 6 年度以降も非整合反射の起源とその磁気構造を解明する研究を継続する。

参照

[1] H. Yamauchi, K. Kodama, N. Igawa et al., “Quantum critical behavior of the hyperkagome magnet Mn_3CoSi ”, *Physical Review Research*, 6, 013144 (2024).

使用装置

HRPD、LTAS

実施課題 No.

[1] 令和 5 年度 I849 「HRPD の調整と高度化」

[2] 令和 5 年度 D881 「 Mn_3CoSi で見つかった格子非整合磁気反射」

中性子回折による凍結架橋セルロースゲルの形成メカニズムの解明
Elucidation of the Formation Mechanism of Freeze-Crosslinked Cellulose Gels
by Neutron Diffraction

関根 由莉奈*

*日本原子力研究開発機構 プロモーション・オフィス

概要

本研究では、凍結架橋過程におけるセルロースナノファイバー（CNF）および複合成分の構造変化を、中性子回折により in-situ で観察することを試みた。HRPD ビームラインにおいて温度制御下で測定を行い、凍結前後の CNF 結晶や銀粒子、多糖類の配列変化の可視化を目指した。しかしながら、実際の回折データにおいては氷結晶のピーク強度が極めて支配的であり、CNF 由来の構造ピークが顕著に埋もれてしまう結果となった。そのため、CNF と氷の構造を明確に分離して解析することは困難であると判断された。氷の散乱断面積の大きさや CNF の濃度・配向の影響が要因と考えられる。今回の結果は、凍結架橋系における中性子線構造解析の制限を示す重要な知見であり、今後は重水素置換や非凍結状態での比較測定など、測定設計の工夫が必要とされる。

使用装置

HRPD

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D776「中性子回折による凍結架橋セルロースナノコンポジットゲルの形成メカニズムの解明」
- [2]令和6年度 D1051「中性子回折による凍結架橋セルロースナノコンポジットゲルの形成メカニズムの解明」

磁気 PDF 解析と用いた金属磁性体 β -Mn の局所磁気構造解析 Local magnetic structural analysis on β -Mn using mPDF analysis

樹神 克明*、田端 千紘*、金子 耕士*

*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

β -Mn は典型的なフラストレート金属磁性体として知られ、低温まで長距離磁気秩序を示さずスピン液体状態の候補物質として古くから研究が行われている。磁性を持つ Mn サイトは正三角形のユニットを形成し、それが頂点を共有して 3 次元的につながっている。この磁性イオンの配列は、最近我々が磁気 PDF 解析法を用いてその短距離磁気秩序相の磁気構造を決定した Mn_3RhSi と類似していることから (図 1)、同様の局所磁気構造をもっている可能性が高い。この局所磁気構造は 6 重に縮退しているため、系全体で同様の磁気構造を取っていれば、低温まで長距離磁気秩序を示さないのは妥当である。そこで本課題では β -Mn 低温まで長距離磁気秩序を持たない原因を明らかにするために、磁気 PDF 解析法を用いて低温での局所磁気構造を調べた。

まず HRPD で得られた粉末回折データから核ブラッグピークやバックグラウンド成分等を除去し、磁気散乱成分だけを抽出して磁気 PDF を導出した。得られた磁気 PDF は Mn_3RhSi の短距離秩序相で得られた磁気 PDF と似た特徴をもっており、やはり類似の局所磁気構造をもつことが示唆される。さらに TAS-1 を用いて偏極中性子による磁気 PDF の導出を試みたところ、HRPD と同様の磁気 PDF が得られることを確認できた。現在得られた磁気 PDF を用いて β -Mn 系の局所磁気構造の詳細を調べている。

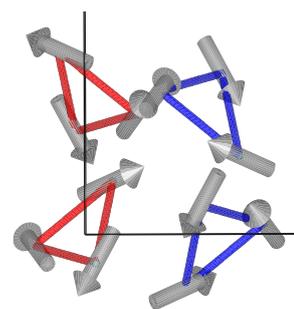


図 1 磁気 PDF を用いて決定した Mn_3RhSi の短距離磁気秩序相の磁気構造。赤と青の三角形上の磁気モーメントは互いに反転している。

使用装置

HRPD, TAS-1

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D786 「磁気 PDF 解析を用いた金属磁性体 β -Mn の局所磁気構造解析」

応力発光物質の発光性能向上のための格子欠陥の評価

Evaluation of lattice defect for improved performance on stress-luminescent materials

萩原 雅人*、鄭 旭光**、徐 超男***

*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

**佐賀大学理工学部 物理学部門

***東北大学大学院 工学系研究科

概要

機械的な作用（力学エネルギー）によって発光する現象の観察は、古くからの地震時の閃光現象で知られているが、以降非破壊領域での現象としては発光強度は微弱であった。1999年に共同研究者のグループが、弾性変形域でも強発光する応力発光材料Eu:SrAl₂O₄ (SAO)を報告した。以降圧電相と電場発光相の混相系で圧電性と応力発光性の同時発現を実現させ、元素置換により微弱な力でも強発光することを示した。応力発光物質は、バイオイメージングから巨大建造物の健全性診断まで様々な応用が考えられる。中でも圧電体を母体材料とした応力発光材料は電子制御が可能になることから幅広い応用が期待されている。一方で応力発光物質の元素置換による発光現象の変化については、一部物質で格子定数の変化以外、応力発光効率とミクロな結晶構造の関連性がわかっていない。

本研究課題では酸素欠陥などを検出するために、中性子回折実験が行われた。以前に J-PARC・MLF の SuperHRPD で測定を行っているが、発光効率を上げるための Eu などの希土類元素が、ホワイトビームを用いた際の正確な吸収補正が困難であった。そこでモノクロ結晶で単色化した中性子ビームを用いた HRPD において、Eu ドープされた置換量の異なる 3 つの試料の測定を行なった。HRPD のプロファイルから試料の吸収を見積もり SuperHRPD のプロファイルを解析することで、Eu が Sr サイトに置換されていることが分かった。またピークブロードニングを検出しており、ミクロな結晶歪みが示唆されている。一方で構造解析結果については改善の余地があり、酸素欠損等は正確に見積もることができていない。その原因は、SAO 系の結晶構造は空間群 $P2_1$ に属しており対称性が低く、また実材料を用いたので不純物を含むことで、解析パラメータを多くしており、現状の解析ソフトウェアおよび通常の Rietveld 法の最小二乗法では最適解に辿り着くのが困難であるためである。今後は開発中の剛体モデル等を取り入れた改善された Rietveld 解析により、詳細な結晶構造パラメータを明らかにする予定である。

使用装置

HRPD

実施課題 No.

[1]令和5年度 D818「応力発光物質の発光性能向上のための格子欠陥の評価」

中性子散乱による三角格子磁性体 NbMnGe 及び関連物質の磁気秩序の観測

Magnetic order in novel triangular lattice system NbMnGe and its related compounds

田端 千紘*、金子 耕士*、小手川 恒**

*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

**神戸大学 大学院理学研究科

概要

幾何学的フラストレーションを内包する三角格子磁性体は、フラストレーションに起因した磁場誘起相転移、非共線・非共面な磁気秩序、量子揺らぎが加わることによって発現する量子スピン液体などの多彩な磁気現象の舞台として関心を集めている。近年はさらに、空間反転と時間反転の破れに伴う交差相関現象、トポロジカルな磁気秩序の研究対象としても注目されている。

我々は最近、カゴメ格子化合物 NbMnGe の単結晶作製に成功し、電気抵抗および磁化測定から 165 K に磁気相転移と思しき異常を発見した。この物質の構造は六方晶 Fe_2P 型構造（空間群 $P-62m$; No. 189）で、Mn 原子の三角形クラスターと Nb 原子のカゴメ構造からなる [1]。Mn の三角格子を含む反転中心の無い結晶構造は、非共線な新奇磁気秩序の実現を期待させる。一方、類似構造の Co_2P 構造（空間群 $Pnma$; No. 62）には NbMnP、TaMnP が存在する。この構造は空間反転対称性を有し、磁性イオンの三角格子は失われるが、NbMnP では近接イオン間のフラストレーションによって $q=0$ の非共線の反強磁性構造が実現する [2]。

我々は NbMnGe および TaMnP の磁気秩序を明らかにするために粉末中性子回折実験を行った。TaMnP については $T_N \sim 234$ K 以下で $q=0$ で説明される磁気反射が観測され（図 1）、規約表現解析から絞り込んだ磁気構造モデルのうち、 B_{3g} 既約表現のモデルで輸送特性異常を説明できることが明らかになった。この成果は Physical Review B 誌に出版された [3]。NbMnGe についても磁気構造の検討を行っており [4]、論文化を進めている。

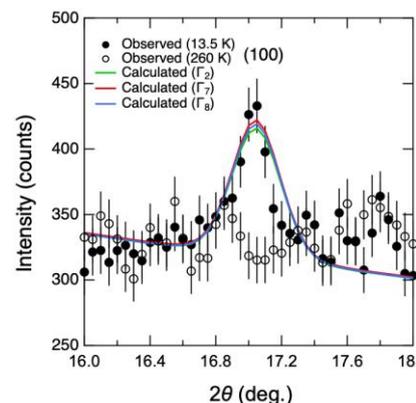


図 1 TaMnP の中性子磁気散乱ピーク

[1] D. Deyris et al., Bull. Soc. Chim. Fr., **4**, 1303 (1968).

[2] M. Matsuda et al., Phys. Rev. B **104**, 174413 (2021).

[3] H. Kotegawa et al., Phys. Rev. B **110**, 214417 (2024).

[4] 高木悠人 他, 日本物理学会第 80 回年次大会(2025 年) 16pSK303-1.

使用装置

HRPD, TAS-1

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D829 「中性子散乱による三角格子磁性体 NbMnGe 及び関連物質の磁気秩序の観測」

燃料電池用プロトン伝導体の結晶構造解析

Crystal structure analysis of proton conduction for fuel cell

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

現代社会ではカーボンニュートラルの取り組みの一つとして、燃料電池の開発が盛んに行われている。水素を燃料とし、排出物が水だけと環境に低負荷な電池として注目されているが、耐久性、安全性の向上や、小型化等、様々な課題が挙げられる。一般に普及するために必要な室温以上 300°C以下の稼働温度帯では、プロトンを伝導する液体電解質が多く用いられているが、上記観点から、電解質の固体化が強く求められている。一部化合物は、固体でありながら物質内を液体と同程度までプロトンを伝導する特徴を有している。本課題で着目した硫酸水素セシウム(CsHSO₄)もその一つである。単体では稼働温度領域が 141°Cから 200°C程度までと限定的であるが、室温付近で高プロトン伝導を示すリンタングステン酸(H₃PW₁₂O₄₀)と複合化することで、室温から 200°Cまでの広範囲な温度での高いプロトン伝導を示すことが報告されている。この複合体におけるプロトン伝導のメカニズムを明らかにすることは、新規固体電解質材料の開発および高性能化に向けた重要な知見となる。また、固体電解質の結晶構造はプロトン伝導の特性と密接に関連しており、その解明には軽元素察知能力に優れた中性子回折法が有用な手段である。

本研究では、CsHSO₄ : H₃PW₁₂O₄₀ = 9 : 1 のモル比複合化した際に得られた、リンタングステン酸セシウム(Cs₃PW₁₂O₄₀)について、HRPD を用いた結晶構造解析を進めている。Cs₃PW₁₂O₄₀ は空間群 *Pn-3m* の立方晶で PW₁₂O₄₀³⁻ の Keggin 構造が対角に配位し、他の空間に Cs⁺が配位している。基本構造は H₃PW₁₂O₄₀ と同様であるが、水素イオンがセシウムイオンに置換されているだけでなく、格子定数や原子位置にも違いが確認されている。更に、Cs₃PW₁₂O₄₀ には複合体中に共存する CsHSO₄ の結晶相を減少させる効果があり、その減少量とプロトン伝導との間に相関が見られた。現在は Cs₃PW₁₂O₄₀ の Cs 置換量を変更し、CsHSO₄ の結晶相が減少する最適な組成と、そのメカニズム解明に向けた研究を進めている。

使用装置

HRPD

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 D835 「燃料電池用プロトン伝導体の結晶構造解析」
- [2]令和 6 年度 D1031 「燃料電池用プロトン伝導体の結晶構造解析」

高レベル放射性廃棄物ガラス固化体の構造解析

Structural analysis on vitrified high-level radioactive waste

金子 耕士*、元川 竜平**、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 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 階層構造研究グループ

***豊橋技術科学大学

概要

使用済み核燃料の再処理では、PUREX と呼ばれる工程においてウランやプルトニウムが抽出されるが、これと合わせて核分裂生成物を含む高レベル放射性廃棄物も同時に生じる。この高レベル放射性廃棄物は、ホウケイ酸ガラスを用いたガラス固化により安定化され処分されるため、ガラス固化体の特性が、貯蔵時の安全性と密接に関連する重要な要素となっている。核分裂生成物は、ガラス中で数十の核種を含む酸化物として存在しているが、分相や結晶化のような構造の不均一により、力学特性や耐環境性の劣化を引き起こす。例えばパラジウムのような白金族元素は、ガラス固化体の製造過程において結晶化して沈降・堆積し、製造を阻害し得る要因となる。したがって、このようなガラス固化体中の不均一構造を精密に評価し、その形成を抑制するための指針を得ることが機能の改善に重要となる。

我々は中性子回折測定から、ガラス相と析出物である結晶の情報を得ることを目的とし、ガラスの原料、製法による違いによる析出物の種類や量に加え、ガラス構造への影響を調べてきた。今回原料ガラスと MOX 廃液模擬ガラスのパターンを測定し、廃液ガラスの結果からは、析出物の存在を示す鋭いブラッグピークを複数本観測した。またこの析出物のパターンは、原料ガラスにより変化することを明らかにした。また廃液の混入により、ガラス由来のハローパターンについても、ピークおよびその強度比が変化することを確認した。これは廃液が単に析出するだけでなく、ガラス構造に入り込んでいることを示している。溶融条件や許容廃液量などの判断の指針となる準定量化を目指した解析を進めている。

使用装置

HRPD

実施課題 No.

[1]令和5年度 D897「高レベル放射性廃棄物ガラス固化体の構造解析」

急冷糖溶液中に生成する氷微結晶のナノサイズと生成量の評価 Size and concentration determination of nano-ice crystals in frozen sugar solution

熊田 高之*、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 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

水は 0°C以下に冷やすと一旦過冷却状態になり、その中で偶発的に生成した種結晶から氷結晶は一気に成長する。水を多く含む食品、医薬品、生体組織を冷凍保存する際には、凍結保護剤を添加して細胞膜や細胞小器官などが破壊されないように氷結晶の成長を食い止める必要がある。そのなかでも、糖は毒性の低い凍結保護剤の一つとして注目されている。

そこで我々は、これまで J-PARC MLF TAIKAN で測定したスピコントラスト変調中性子小角散乱 SANS と HRPD による中性子結晶粉末構造解析実験から、構造科学の観点から糖による氷結晶成長の阻害メカニズムを解明できないかと考えた。試料は TAIKAN で測定した時と同様に、減圧して生成した固体窒素に糖溶液を滴下して作ったビーズ状試料を ESR 測定で用いる石英セルに液体窒素を充填し、その中にビーズ状のガラス化糖溶液を入れ散乱測定を行った。

実験の結果、グルコース、フルクトース、トレハロース、マルトース水溶液において I_{sd} もしくは I_h の氷の散乱が現れ、Sherrer の式に従い、線幅から結晶ドメインのサイズを見積もることができた。現在、本結果は TAIKAN の結果と合わせて論文としてまとめているところである。

使用装置

HRPD, SANS-J

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D899 「急冷糖溶液中に生成する氷微結晶のナノサイズと生成量の評価」

重い電子的ふるまいを示す C15 型ラーベス相(Y,Sc)Mn₂の局所磁気構造解析

Local magnetic structural analysis on C15 type Lave phase material (Y,Sc)Mn₂ exhibiting heavy fermion like behavior

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

幾何学的フラストレーションをもち、低温まで長距離磁気秩序を示さない遷移金属磁性体のなかには、低温で大きな電子比熱係数を示し、いわゆる重い電子的ふるまいを示すものが存在する。従来の希土類化合物でみられる重い電子は局在性の強い f 電子と伝導電子の近藤相互作用がその原因であるが、上記のフラストレート遷移金属磁性体では局在電子は存在しないため、その重い電子的ふるまいのメカニズムは希土類化合物とは異なる。これらの物質系での重い電子的ふるまいの直感的な理解として、「フラストレーションにより伝導電子のスピンのエントロピーが低温まで存在し、それが電子比熱として放出される」という描像がある。しかし伝導電子のエントロピーが残留していることは電子比熱係数の増大から確かであるが、それがスピンの自由度によるものかは明らかになっていない。申請者は磁気 PDF 解析法を用いて金属磁性体 Mn₃RhSi の短距離磁気秩序相において 6 重縮退した磁気構造が実現していることを示したが、上記の重い電子的ふるまいを示す物質においても同様に縮退をもつ磁気構造が低温で実現し、そのために伝導電子のスピントロピーが残存している可能性がある。

本研究では重い電子的ふるまいを示す遷移金属磁性体として C15 型ラーベス相(YSc)Mn₂を取り上げた。Y_{0.95}Sc_{0.05}Mn₂について HRPD で粉末回折実験を行い、回折データから磁気散乱成分だけを抽出して磁気 PDF を導出することを試みた。しかし予想以上に磁気散乱強度が弱く、精度の良い磁気 PDF の導出が困難だったことから、より Sc 濃度が少なく磁気散乱強度が大きい試料での再測定を検討中である。

使用装置

HRPD

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 D974 「重い電子的ふるまいを示す C15 型ラーベス相(Y,Sc)Mn₂の局所磁気構造解析」

燃料電池用プロトン伝導体の結晶構造解析 Structural analysis on proton conductors for fuel cells

樹神 克明*、井川 直樹*、芳賀 奈菜*

*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

カーボンニュートラルの社会の実現のために、水素や酸素を発電に用いる燃料電池の普及が急がれている。その中でも 100~200°C程度で動作する燃料電池は、白金触媒の効率の上昇や発電で発生した水を気体として容易に排出できるなどそのメリットは大きい。現在までのところ家庭用の普及までには至っていない。この温度領域で作動する燃料電池としてリン酸塩型電池があるが、これは電解質に液体を使用しており、社会に広く普及させるためには安全性の向上や効率の上昇のために電解質の固体化が必要である。そこで固体電解質の候補材料として 141~200°Cの温度領域で高プロトン伝導を示す硫酸水素セシウム (CsHSO_4) が注目され、様々な物質との複合化することで高プロトン伝導度を 141°C以下まで広げる試みが行われている。これまでセシウムリンタングステン酸 ($\text{Cs}_x\text{H}_{(3-x)}\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$) を複合化させることで 141°C以下において高いプロトン伝導が実現されること、さらに 141°C以下の伝導度がセシウムリンタングステン酸中のセシウム濃度 x に依存することを明らかにしている。

我々は 141°C以下のプロトン伝導度がセシウムリンタングステン酸中のセシウム濃度 x に依存する原因を調べる目的で、 $\text{Cs}_x\text{H}_{(3-x)}\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ ($x=1.5, 3.0$) およびこれらと CsHSO_4 との複合体について HRPD を用いて粉末回折実験を行った。複合体については結晶相として残る CsHSO_4 の量が x の違いによって有意に異なることがわかった。現在 $\text{Cs}_x\text{H}_{(3-x)}\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ ($x=1.5, 3.0$) の詳細な結晶構造解析を行っており、この結晶構造パラメータに何らかの違いがないか、それが結晶相として残る CsHSO_4 の量と相関していないかどうか調べている。

使用装置

HRPD

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 D1031 「燃料電池用プロトン伝導体の結晶構造解析」

[2]令和 6 年度 I1055 「HRPD の調整と高度化」

フラストレート金属磁性体 Mn_3CoSi における格子非整合な磁気反射 Incommensurate magnetic reflections in frustrated metallic magnet Mn_3CoSi

山内 宏樹*、萩原 雅人*、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

立方晶 Mn_3TSi ($T = Co, Rh, Ir$) は、Mn 三角副格子が頂点を共有し 3 次元ネットワークを形成しているため、フラストレーションの影響が無視できない系である。 $T = Rh, Ir$ では 120° 配列を含む $\mathbf{q} = 0$ の反強磁性秩序が見つまっている。一方、 Mn_3CoSi では $\mathbf{q} = 0$ と異なる格子非整合な磁気反射が出現する (図 1, -)。110, 210 周りの明瞭なピークは、核 Bragg ピークの半値全幅よりも有意に広く、完全な長距離磁気秩序 (MLRO) でないことを示唆している。その起源や磁気構造を解明するため、本研究では Co サイトの Ni 置換効果を調べた。Ni 5% 置換 (図 1, -) の非整合反射は、強度の減少とともに核 Bragg ピークへ近づいているように見える。Ni 10% 置換 (図 1, -) では、非整合反射の消失と入れ替わるように禁制 100 ピークが出現し、 $\mathbf{q} = 0$ 磁気反射の成長もみられた。 $Mn_3Co_{0.9}Ni_{0.1}Si$ の磁気ピークの線幅は核 Bragg ピークのそれと一致するので、MLRO の発達は明らかである。この結果は、 Mn_3CoSi の磁気秩序状態が構造の乱れ等に起因するものではなく、クリーンな系で自発的に生じる本質的なものであることを示唆している。

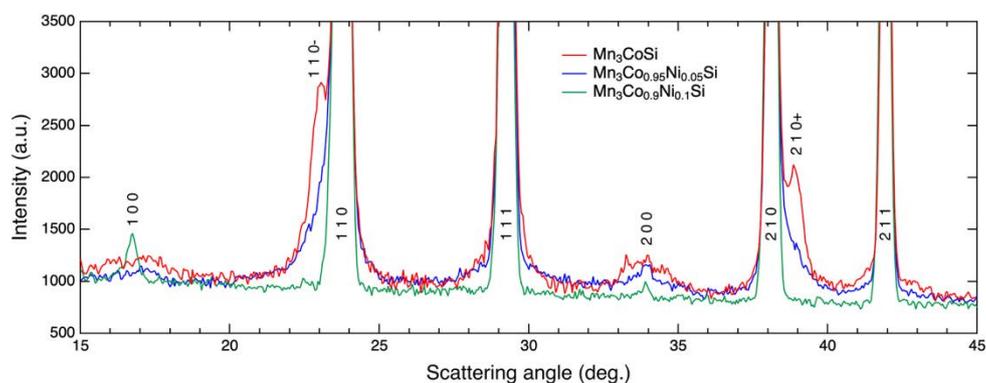


図 1 Mn_3CoSi (5 K, -), $Mn_3Co_{0.95}Ni_{0.05}Si$ (10 K, -), $Mn_3Co_{0.9}Ni_{0.1}Si$ (5 K, -) の粉末中性子回折パターン

使用装置

HRPD

実施課題 No.

- [1]令和 6 年度 D1087 「フラストレート金属磁性体 Mn_3CoSi の格子非整合磁気構造の解明」
- [2]令和 6 年度 I1055 「HRPD の調整と高度化」

学会等で発表された成果

- 令和6年9月13~14日
日本中性子科学会第23回年会 於：札幌
樹神 克明、井川 直樹、生田目 望、佐々木 未来、下条 豊
“高分解能粉末中性子回折装置 HRPD” (ポスター)
- 令和6年10月13日
19th Korea-Japan meeting on Neutron Science 於：東海
K. Kodama, Y. Yamauchi, N. Igawa, T. Honda, T. Otomo, K. Ikeda, S. Shamoto
“Local magnetic structural analysis on frustrated magnets using magnetic pair distribution function” (口頭発表)
- 令和6年10月21~22日
Workshop on Polarized Neutron Sciences and Technology 於：仙台
K. Kodama
“Magnetic pair distribution function (mPDF) analysis on short-range ordering state in frustrated metallic magnets” (口頭発表)
- 令和6年11月13~15日
第65回高圧討論会 於：盛岡
福岡 宏、遠藤 涼平、金原 史武、樽谷 直紀、犬丸 啓、福田 竜生、吉井 賢
資、樹神 克明、山内 宏樹、萩原 雅人、辻 卓也、松村 大樹
“高圧化で生成する $\text{CrS}_3 \cdot \text{VS}_3$ の結晶構造と物性” (口頭発表)
- 令和6年12月4~6日
日本中性子科学会第24回年会 於：名古屋
樹神 克明、井川 直樹、芳賀 奈菜、生田目 望、佐々木 未来、下条 豊
“高分解能粉末中性子回折装置 HRPD の現状” (ポスター)
- 令和6年12月5日
日本中性子科学会第24回年会 於：名古屋国際会議場
芳賀 奈菜、井川 直樹、樹神 克明、高橋 東之
“CHS- Cs_xWPA 複合体の結晶構造とプロトン伝導へ及ぼす効果” (ポスター)
- 令和6年12月9日
第50回固体イオニクス討論会 於：大阪千里ライフセンター
芳賀 奈菜、井川 直樹、樹神 克明、高橋 東之
“ $\text{Cs}_3\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ 複合体の合成とプロトン伝導の特性” (口頭)

独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…4件

 成果占有課題（トリアルユース含む）…2件

 成果非占有課題…2件

成果非占有課題名	所属機関
LBE（鉛ビスマス共晶合金）の結晶構造解析	京都大学
Ba ₃ Zn _{1-x} Ca _x Ru ₂ O ₉ の特異な磁気状態	明治大学

2.2 TAS-1 三軸型中性子分光器

装置担当者：金子 耕士、田端 千紘、廣瀬 雄介



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、その高い自由度を活かして、単結晶および多結晶試料について、結晶や磁気(スピン)の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目的として、主に基礎物性研究に用いられている。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。

この内 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、炉室設置による高強度を活かした偏極中性子利用で、加えて非偏極でも高強度、高エネルギー（短波長）を実現している。偏極中性子では、水平・垂直集光モノクロメーターにより高強度を実現し、これに最新の試料環境機器を組み合わせることで、極低温・強磁場下での多彩な偏極中性子散乱実験が可能である。さらに中性子のスピン状態を 3 次元的に制御・検出出来る CRYOPAD も装備されていることが世界的にも特徴となっている。

偏極中性子により精密な磁気構造解析が可能で、近年の磁性材料の機能発現の鍵を担う掌性（右巻き、左巻き）の解明や核散乱と磁気散乱の分離、通常の構造解析が難しい Eu や Dy など吸収体や水素含有による高いノイズの物質での磁気構造決定などの弾性散乱に加え、ダイナミクスの研究にも活用されている。また非偏極においてもその高い強度を活かして、高圧下など微小試料における極限環境下での物性や、アクチノイド化合物の研究で成果をあげている。

装置詳細

中性子源	重水タンク(炉心周囲減速材)
モノクロメーター部	(i) 非偏極用：垂直集光型 PG 結晶(002) (ii) 偏極用：縦横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 $-10^{\circ} \sim 115^{\circ}$
アナライザー部	(i) 非偏極用：垂直集光型 PG 結晶(002) (ii) 偏極用：縦横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 ^3He ガス比例計数管 (2 inch)

試料環境

無冷媒型トップロード試料環境機器群



- 超伝導マグネット付トップロード冷凍機
縦磁場：対称 10 T/非対称 8.4 T
試料空間 ϕ 50 mm
試料温度 1.6 K ~ 375 K、
試料回転および上下ステージ付
- トップロード冷凍機
試料空間は上記と共通
- ^3He インサート (上記試料空間で使用)
試料空間 ϕ 35 mm
最低試料温度 0.28 K (single shot, ~150 hrs)

- 無冷媒式超伝導マグネット
縦磁場(対称)10 T
室温ボア ϕ 50 mm (専用冷凍機使用)



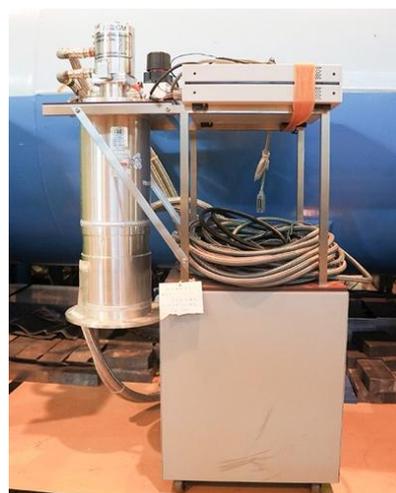
- オレンジクライオスタット(試料温度 1.4 K~室温、試料空間 ϕ 100 mm(マキシ型) および ϕ 70 mm(標準型))



- 4 K GM 冷凍機(試料温度 3 K~室温)



- 800 K Displex (試料温度 3 K~800 K)



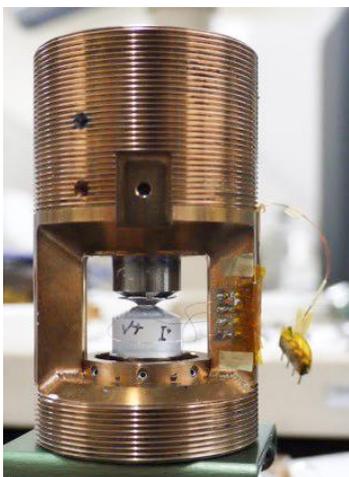
- 無冷媒シングルショット型 ^3He 冷凍機 (最低試料温度 0.3 K、保持時間 > 50 時間)



- 高圧力発生装置
(a)MacWhan セル(最大圧力 3 GPa、試料空間 ϕ 5 mm \times 5 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 $\phi 3 \text{ mm}$)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



- 静水圧インサート



- 一軸加圧インサート

測定例

偏極中性子の利用例として、EuPtSiにおける掌性（巻き方，カイラリティ）をもつらせん磁気構造での偏極中性子回折パターンを示す（図1左）。EuPtSiは磁場中で磁気スキルミオン格子という渦状の磁気構造を示す物質で、高い注目を集めている。無磁場下でらせん磁気秩序を示すが、このらせんの詳細を偏極中性子により調べた。磁気構造の周期を反映した磁気ブラッグ点 $(0.2, 0.3, 0)$ において、中性子スピンを散乱ベクトル Q に平行・反平行とした2条件について測定したところ、反平行の条件下でのみピークが観測されることを明らかにした。この結果は、らせん磁気構造が秩序波数 $q = (0.2, 0.3, 0)$ に垂直な面で回転していること、またその回転が反時計周りであることを示している。Euは中性子の強力な吸収体で、定量的な磁気構造解析は容易ではないが、偏極中性子を利用することで、磁気構造がらせんであること（図1右）、またその掌性まで明らかにした。

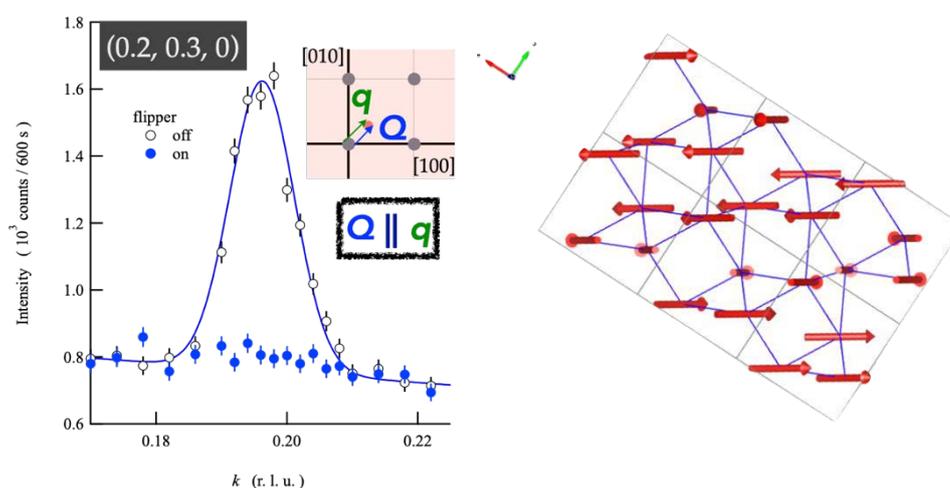


図1 EuPtSiにおけるカイラル磁気秩序下での偏極中性子回折パターンと導かれたらせん磁気構造

四面体構造を持つ銅化合物 clinoatacamite の基底状態の解明 Study of the ground state of tetrahedral copper compound clinoatacamite

萩原 雅人*、鄭 旭光**

*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

**佐賀大学理工学部 物理学部門

概要

幾何学的フラストレーションを持つ量子磁性体は、基底状態においてスピン液体状態など新奇的な磁性を示すことが予想されている。有名なスピン液体候補物質であるカゴメ格子 herbertsmithite の母物質であり、 $S = 1/2$ 量子磁性体で歪んだパイロクロア構造をもつ clinoatacamite(空間群 $P2_1/n$, $a = 6.18 \text{ \AA}$, $b = 6.81 \text{ \AA}$, $c = 9.11 \text{ \AA}$, $\beta = 99.65^\circ$)は、マクロ測定や量子ビームを用いた測定により磁気状態が検証されてきたが、いまだに解決されていない問題が多い。磁化率測定から $T_N = 18.1 \text{ K}$ でわずかな異常がみられ、6 K 付近の複数の異常を通して最低温度では残留磁化 $0.2 \mu_B$ 程度の弱強磁性相が現れる。 μSR 測定からは T_N 以下ではっきりとしたミュオン回転および $1/3$ ベースラインが見られる。中間相から低温相に移る際にミュオン回転は完全に消失してミュオン緩和のみがみられたことから disorder を起こしており、低温相ではミュオン回転が見られるものの、ベースラインは $1/3$ より低く、強いスピン揺らぎが観測されている。この低温相の磁気構造について、過去に粉末中性子回折により 2 本程度の $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ の磁気反射から磁気構造が報告されているが証拠が乏しく、一方で、 μSR 測定で見られた揺らぎとの関連を含めて興味を持たれる。今回は単結晶試料を用いて TAS-1 で偏極中性子を用いて低温相の磁気構造解析を試みた。最初に数ガウスの磁場を弱強磁性が見られる b 軸方向に印加した状態で field cooling(FC)により実験を試みたところ、中性子の偏極率に変化がみられてしまうことが分かった。これはおそらく試料が単結晶ではなくドメイン構造を持っており、偏極を保つ垂直方向と異なる方向の磁化が偏極率を下げたことが予想される。マクロ測定においては Zero field cooling(ZFC)では磁化が表れないことが分かっており、実際に ZFC では偏極率は変化せずに実験を進めることができた。現状ドメイン構造により磁気構造は明らかにできていないが、試料の改善により磁気構造を明らかにする予定である。

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

[1]令和5年度 D816「四面体構造を持つ銅化合物 clinoatacamite の基底状態の解明」

ファン・デル・ワールス磁性体 α -UTe₃ の磁性
Magnetism of van der Waals magnetic material α -UTe₃

酒井 宏典*、田端 千紘**、金子 耕士**、
常盤 欣文*、北澤 崇文*、神戸 振作*、徳永 陽*、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

**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

ファン・デル・ワールス型アクチノイド化合物 α -UTe₃ の磁気基底状態を、単結晶合成、輸送特性、熱力学測定、¹²⁵Te 核磁気共鳴 (NMR)、および中性子回折実験を通じて総合的に研究している。本化合物はナローバンドギャップ半導体的な挙動を示し、室温付近における帯磁率の温度依存性から得られる有効磁気モーメントは、U⁴⁺自由イオンの値に近く、局在した 5f 電子による磁性を示す。NMR 測定では、およそ 20 K 以下で異方的なスピン揺らぎが顕著に発達し、5f 電子モーメントが一軸異方性を有することが示唆された。ネール温度 $T_N \approx 5$ K 付近では、スピン揺らぎの増大により NMR 信号が消失する一方で、中性子回折実験により不整合な波数ベクトルを観測することに成功した。現在、NMR の結果と整合する妥当な磁気構造の検討を進めており、構造候補が得られ次第、NMR 実験結果と併せて外部発表を行う予定である。

使用装置

TAS-1, TAS-2

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 D836 「ウランカルコゲナイド半金属の磁性」
[2]令和 6 年度 D1053 「半金属ウランカルコゲナイドの磁性」

トロイダル秩序を持つ UNi_4B における磁気励起 Magnetic excitations in UNi_4B with toroidal order

常盤 欣文*、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

UNi_4B は約 20K で反強磁性秩序を示す物質であり、この秩序相において、ウランの磁気モーメントが渦状のループ構造を形成することが知られている。ループ状の磁気モーメント構造を持つ磁性体としては、パイロクロア型スピニアイスが代表的であり、これはそのハミルトニアンが量子電磁気学と対応し、創発電磁気学における疑似フォトンなどの励起の観測対象として注目されている。 UNi_4B においてもスピニアイスと同様に、ループを反転させるような励起が存在し得る。反転ループの境界には磁気ドメイン壁が定義でき、既存の研究からは再隣接および第二隣接相互作用が見積もられており、ドメイン壁の移動にかかるエネルギーコストは小さいことが示唆されている。したがって、ドメイン壁が比較的自由に動き得るような連続的励起の存在が期待される。本研究の目的は、ドメイン壁による連続励起を中性子散乱により検出することである。

申請者らは過去の JRR-3 における実験により、磁気秩序 Q ベクトルに等価な $(1/3, 0, -2)$ 付近において連続的な励起を観測している。しかし同時に、起源不明の散乱成分も検出されており、その解明が課題となっていた。この問題の原因を調査するため、室温において冷凍機のみを変更した状態で $(1/3, 0, L)$ の L 方向スキャンを行ったところ、 L に対して強度が単調減少する異常な L 依存性が観測された。この異常な振る舞いは低温でも残存し、従来の連続励起の再現には至らなかった。この原因として、当時用いていた異なる方位を持つ 3 つの単結晶インゴットを三次元的に組み合わせ配置していた試料構成が、干渉的な散乱や誤った結晶対称性を導入していた可能性が考えられている。そのため、試料の向きを調整して再測定を行ったが、改善は見られなかった。以上の結果を踏まえ、今後は方位の揃った単結晶試料を複数用意し、2 次元平面上に並べる構成で再実験を行う必要があると考えている。令和 6 年度には本来そのための試料を作製する計画であったが、作製が間に合わず、現時点では実験は未実施となっている。

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 D837 「トロイダル秩序を持つ UNi_4B における磁気励起」
- [2]令和 5 年度 D905 「 UNi_4B における磁気励起の観測 (装置都合未実施課題 R4_D676)」
- [3]令和 6 年度 D1054 「トロイダル秩序を持つ UNi_4B における磁気励起」

Topological Properties of Rare Earth Intermetallic Compounds

Koji Kaneko*, Chihiro Tabata*, Andrew D. Christianson**

* Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

**Oak Ridge National Laboratory

概要

Topological transport properties are now widely held to be critical for the development of next generation microelectronic devices. The key factor for such transport properties are topological invariants, which can be in "real space" as for a skyrmion, or in "k-space" as for a Weyl semimetal. Rare earth intermetallic compounds have recently emerged as hosts for an ever-growing list of topological phenomena, providing an important testbed for fundamental concepts about coupling between magnetism and a topological band structure. The overarching goal of this research proposal is to use neutron scattering measurements to examine rare earth intermetallic compounds from the two dual topological behaviors: (i) Complex spin textures and (ii) the coupling of magnetism to an electronic structure with nontrivial topology.

Among several candidate model materials, $\text{Eu}_2\text{CuZn}_2\text{P}_3$, a newly synthesized intergrowth compound, was selected as the first target material. This compound crystallizes in a hexagonal layered structure composed of EuCuP and EuZn_2P_2 motifs stacked in a one-to-one ratio. Thermodynamic measurements revealed an antiferromagnetic transition driven by divalent Eu ions at $T_N = 40.3$ K. Transport measurements showed an unconventional contribution to the Hall effect near T_N , resembling the topological Hall effect in appearance [1].

To unravel the interplay between magnetism and potential topological phenomena, neutron diffraction experiments were conducted using BL18 (SENJU) at J-PARC and TAS-1 at JRR-3. First, a survey over wide reciprocal space on SENJU identified that magnetic reflections appeared at $\mathbf{q} = (0,0,1)$. Based on the determined \mathbf{q} , the temperature dependence of the magnetic reflections was subsequently measured in detail at TAS-1. Strong magnetic intensities were observed at $\mathbf{Q} = (0,0,l)$ with $l = 2n + 1$, ruling out a simple A-type magnetic structure. The remaining possible magnetic structures were examined by representation analysis. The model that best reproduces the observed intensity ratios is the "uudd" structure, in which in-plane magnetic moments stack along the c -axis in an up–up–down–down sequence. This collinear magnetic order cannot account for the Hall anomaly within the framework of the conventional topological Hall effect, suggesting that further investigation is required to elucidate the nontrivial transport phenomena in this material.

[1] A. F. May et al., Phys. Rev. Mater. 9, 024406 (2025).

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D900 「Topological Properties of Rare Earth Intermetallic Compounds」

[2]令和 6 年度 D1097 「Topological Properties of Rare Earth Intermetallic Compounds」

偏極中性子回折法による CeCoSi の磁気構造の検証

Magnetic structure of CeCoSi – Verification by polarized neutron diffraction

山内 宏樹*、金子 耕士*、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 の反強磁性 (AFM) 体だが、 $T_0 = 12$ K に存在する非磁性相転移の起源に注目が集まっている。 T_0 、 T_N 以下においてそれぞれ単斜晶歪み、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存在が示唆されているが、粉末中性子回折で決定された磁気構造は c 軸方向に成分を持たず、歪み、四極子秩序の対称性と整合しない問題があった。CeCoSi の $\mathbf{q} = 0$ 構造は $0.37 \mu_B/\text{Ce}^{3+}$ の磁気モーメントが a 軸方向に揃った強磁性(0 0 1)面が c 軸方向に交互(+ - + -)に積層するシンプルな構造とされていて、磁気反射は禁制 H 0 0 (H: 奇数)を除いて強い核反射と重なってしまう。そこで、弱い磁気反射を高精度で分離できる偏極中性子回折法で単結晶を用いて磁気構造を検証した。実験は \mathbf{P}_z 、 \mathbf{P}_x 偏極で行い、 a^* - c^* 散乱面において 1 0 0 反射から b 軸, c 軸方向の、0 0 4 反射から a 軸, b 軸方向の磁気成分を抽出することにした。

その結果、1 0 0 反射の Spin-flip チャンネルで明瞭な磁気反射を見出し、c 軸方向にも AFM 成分が存在する新たな証拠を得た。図 1 に修正された磁気構造を示す。1.6 K で c 軸方向に $0.09(2) \mu_B$ の成分を持つ磁気モーメントは ab 面と $15(3)^\circ$ の角度を成している。この自明でない AFM 構造は、背後の隠れた秩序変数の存在を強く支持するものである。現在、磁気モーメントの ab 面内における向きの精密化とともに論文化を進めている。

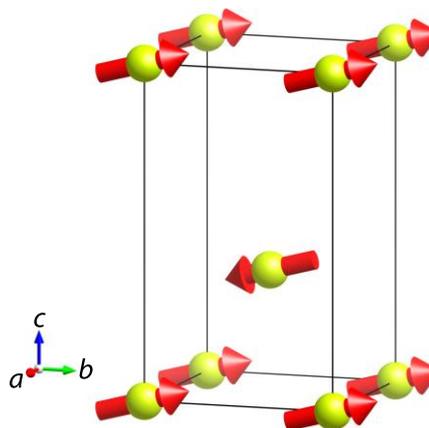


図 1 偏極中性子で得た CeCoSi の磁気構造

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D903 「偏極中性子回折による CeCoSi の磁気構造決定」

[2]令和 5 年度 I892 「TAS-1 装置担当者枠」

A new form of magnetic correlation in Yb(Co, Rh)₂Si₂

Koji Kaneko*, Chihiro Tabata*, M. Brando**, O. Stockert**, C. Geibel**, C. Krellner***

* Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

**Max Planck Institute for Chemical Physics of Solids

***University of Frankfurt

概要

Novel physical phenomena such as superconductivity and non-Fermi liquid behavior often emerge in the vicinity of a quantum critical point (QCP). The relatively small energy scale of *f*-electron systems allows one to approach QCPs by tuning external parameters such as chemical and physical pressure and magnetic field. In this context, YbRh₂Si₂ has been extensively studied owing to its proximity to an antiferromagnetic (AFM) QCP at ambient pressure [1]. However, detecting an AFM signal in YbRh₂Si₂ has been extremely challenging due to its very low Néel temperature of $T_N \sim 70$ mK and correspondingly small ordered moments estimated as the order of $10^{-3} \mu_B$.

To overcome these difficulties, we have carried out a systematic investigation of Yb(Co_xRh_{1-x})₂Si₂, where substituting Rh with Co stabilizes the AFM order. Complementary neutron diffraction measurements using BL18 (SENJU) at J-PARC and TAS-1 at JRR-3 revealed the AFM order of Yb(Co_{0.18}Rh_{0.82})₂Si₂, which exhibits two successive phase transitions at $T_{N1} \sim 1.1$ K and $T_{N2} \sim 0.7$ K. The low-temperature phase below T_{N2} was identified as an AFM state with the new incommensurate propagation vector, whereas the order parameter of the intermediate phase between T_{N1} and T_{N2} remains unidentified. Magnetic structure analysis at the low-temperature phase is currently progress.

[1] P. Gegenwart *et al.*, Nature Physics **4**, 186 (2008), and reference therein.

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D910 「Nature of the magnetic transition in the vicinity of the quantum critical point in YbRh₂Si₂」

[2]令和 6 年度 D1095 「A new form of magnetic correlation in Yb(Co,Rh)₂Si₂」

磁場で誘起される f 電子系における特異な輸送特性の微視的解明

Microscopic Elucidation of Unique Transport Properties in f -Electron Systems Induced by Magnetic Fields

金子 耕士*、田端 千紘*、常盤 欣文**

*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

**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

近年の f 電子系では、リエントラント超伝導相や磁気スキルミオン相など、外部磁場の印加により発現する新規物性が注目を集めている。磁気スキルミオン格子はトポロジカルに特徴づけられる渦状のスピントクスチャで、MnSi を代表とする 3d 電子系で先駆的に発見されてきた[1]。空間反転対称性の破れに起因する DM 相互作用とスピン間交換相互作用が競合する系において、外部磁場が加わることで発現するとされている。この際の構造は DM 相互作用とスピン間交換相互作用の比で特徴づけられた周期をもち、多くの場合 100 Å 超の長周期のスピンの渦状構造である。

最近では磁気スキルミオンの研究は異なる晶系や薄膜物質などへと展開し、秩序構造や発現機構にも大きな広がりが見られている。新たな一つの流れとして f 電子系への発展が挙げられる。MnSi と同じ空間群 P213 に属する EuPtSi では MnSi と比べて 1/10 程度の非常に短周期の磁気スキルミオンが見つまっている [2]。この系では、スキルミオンの空間密度の高さに起因して顕著な輸送係数の異常が現れる。続いて、空間反転対称性を破らない結晶構造の Gd₂PdSi₃ などでも磁気スキルミオンが発現することが明らかとなり [3]、反転対称性の破れや DM 相互作用を伴わない発現機構に注目が集まっている。マクロ物性の観点からは、磁気スキルミオン相で顕著なホール抵抗の異常が見られることが注目に値する点であり、微視的メカニズム解明に向けて多くの研究が行われている。

本課題では、ホール異常を伴う多段磁気相転移を示す化合物群について系統的に単結晶中性子回折実験を行い、その秩序構造を明らかにすることで、相転移の発現メカニズムおよびホール異常の起源を明らかにすることを目的とした。EuPtSi については、TAS-1 における片側偏極の中性子散乱実験から、磁気スキルミオンのもとになるヘリカル磁気秩序のカイラルドメインの検出に成功した。ErGa₂ については TAS-2 で磁場中中性子散乱実験を行い、磁気反射の詳細な温度・磁場依存性を明らかにした。現在、磁場中における磁気構造解析とともに論文化を進めている。

[1] S. Mühlbauer et al., Science **323**, 915 (2009).

[2] K. Kaneko et al., J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 013702 (2019).

[3] T. Kurumaji et al., Science **365**, 914 (2019).

使用装置

TAS-1, TAS-2, LTAS

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D911「磁場で誘起されるf電子系における特異な輸送特性の微視的解明」
- [2]令和6年度 D1099「磁場で誘起される輸送異常の微視的解明」

強相関アクチノイド系準結晶・近似結晶の構造と磁性

Structure and Magnetism of Strongly Correlated Actinide Quasicrystals and Approximate Crystals

芳賀 芳範*、常盤 欣文*、酒井 宏典*、徳永 陽*、
室 裕司**、金子 耕士***、田端 千紘***

* 日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター

**富山県立大学 工学部

***日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

概要

1984年に最初の準結晶が報告されて以来、物質探索により多くの準結晶相が発見され、現在では準結晶は物質の安定相のひとつとして認識されている[1]。中でも、Tsai型と呼ばれる準結晶は、正十二面体を形成する原子クラスターを基本として、正二十面体、菱形三十面体がそれを取り囲む最密充填構造をとり、原子配列が精密に決定された系であるとともに、物性研究の舞台としての準結晶研究が展開された系である[2]。特に近年では、希土類二十面体を含む準結晶・近似結晶において磁気秩序が次々に見つかり、クラスター上、あるいは非周期磁性イオンの相互作用の基本的性質に大きな関心が集まっている。

これまでの研究で希土類 Tsai 型準結晶相では局在 4f 電子が磁性を担うことが知られてきたが、より遍歴性の高いアクチノイド 5f 電子が準結晶内の伝導電子とどのような相互作用をし、磁性に寄与するのかは全く未知の領域である。そこで本研究では、我々が最近発見した初の Tsai 型ウラン準結晶の磁気的性質を明らかにすることを目的とし、粉末中性子回折実験を行った。

図1に観測された中性子回折パターンを示す。準結晶の構造由来の明瞭なピークが観測されている。一方で比熱、磁化、電気抵抗で相転移と見られる異常が観測された4 Kを挟んだ低温側と高温側で、中性子粉末パターンに明瞭な差は見られず、有意な磁気反射ピークは測定精度内で観測されなかった。現在、結晶構造の詳細な解析を進めている。

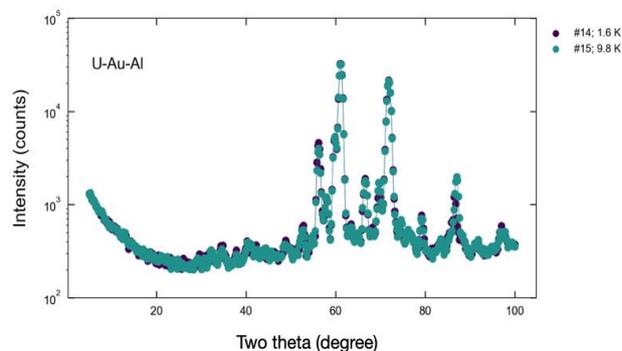


図1 TAS-1で測定したウラン準結晶の粉末中性子パターン

[1] Shechtman et al., Phys. Rev. Lett. 53, 1951 (1984).

[2] A. P. Tsai et al., Phil. Mag. Lett. 61, 9 (1990).

使用装置

TAS-1, HRPD

実施課題 No.

[1] 令和6年度 D1063 「強相関アクチノイド系準結晶・近似結晶の構造と磁性」

Revisit multipolar order in prototypical compound (Ce, La)B₆

Koji Kaneko*, Chihiro Tabata*, Keitaro Kuwahara**

* Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

**Ibaraki University

概要

As a consequence of strong spin-orbit coupling, the multipolar degree of freedom and their mutual coupling give rise to a variety of exotic order parameters. While such multipolar orders have been extensively investigated in *f*-electron systems, the concept has recently been extended to *d*-electron compounds as well. The sensitivity of experimental probes to multipoles depends critically on their parity. Neutron scattering serves as a definitive probe for magnetic dipoles. In contrast, because neutrons carry no electric charge, they have no direct cross section for electric multipoles. Nevertheless, when a magnetic field is applied, neutrons can detect an underlying quadrupolar order indirectly through the induced magnetic dipoles coupled to the quadrupoles. For higher-rank multipoles, neutron scattering can, in principle, detect magnetic octupoles via the magnetic form factor, which exhibits a characteristic Q -dependence distinct from that of dipoles. However, experimental observations of such effects remain limited.

(Ce_{1-x}La_x)B₆ represents a prototypical system exhibiting magnetic octupole order. In the present study, we investigated the Q -dependence of its magnetic reflections up to the high- Q region using polarized neutrons with an incident energy of 80 meV on TAS-1. A high flipping ratio of approximately 20 was achieved for reference nuclear reflections. Measurements of magnetic superlattice reflections described by the propagation vector $q = (1/2, 1/2, 1/2)$ were, however, affected by higher-order contamination originating from intense nuclear reflections. Despite this difficulty, we detected a temperature-dependent variation in the magnetic intensity associated with the octupole phase transition. Further investigations using a time-of-flight diffractometer are planned to elucidate the detailed Q -dependence of the magnetic factor.

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 K1096 「Revisit multipolar order in prototypical compound (Ce, La)B₆」

TAS-1 装置担当者枠

金子 耕士*、田端 千紘*、廣瀬 雄介*

*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。令和3年度と令和4年度にかけて、震災後の長期にわたる停止期間を経て老朽化により失われた機能の復旧に取り組み、非偏極散乱実験を弾性・非弾性の両条件にて実施可能な状態まで整備を進めた。

TAS-1を再び磁性研究の第一線に置くことを目標とすべく、令和5年度・令和6年度では偏極散乱の環境整備に取り組んだ。令和5年度では、各偏極デバイスの整線作業をはじめ、ソフトウェア・ハードウェア両面からの動作テストを中心に、基本的な偏極実験の機能の回復を行った。機器の動作を確立した後、中性子散乱パスの磁場環境の最適化を実施した。これにより、低温（～2 K）での偏極中性子散乱実験を実施するにあたり必要な環境が整った。

令和6年度では、外部ユーザーによるものを含め、多くの課題で偏極散乱実験を本格化した。並行して、コイル電流の調整精度や偏極解析精度を向上させるべく偏極コイルの電源系を更新した。令和7年度では、偏極度向上のための各種偏極デバイスの評価のほか、磁場中偏極散乱実験の実施に向けて超伝導マグネットを導入した実験環境の整備に取り組む予定である。

使用装置

TAS-1

実施課題 No.

- [1]令和5年度 I892「TAS-1 装置担当者枠」
- [2]令和6年度 I1100「TAS-1 装置担当者枠」

学会等で発表された成果

- 令和5年7月3日
International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2023)
於：Incheon, Korea
K. Kaneko, O. Stockert, C. Tabata, R. Kiyonagi, A. Nakao, K. Kuwahara, C. Krellner, and C. Geibel
"A New Form of Magnetic Correlation in Co Doped YbRh₂Si₂" (ポスター講演)
- 令和5年7月3日
International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2023)
於：Incheon, Korea
K. Ota, Y. Watabe, Y. Matsumoto, C. Tabata, K. Kaneko, and Y. Haga
"Neutron Scattering Study of U₂Pt₆X₁₅ (X = Al, Ga) with Honeycomb Structure" (ポスター講演)
- 令和5年6月28日
The 10th International Workshop on the Dual Nature of f-Electrons
於：姫路市
K. Ota, Y. Matsumoto, Y. Watabe, K. Kaneko, C. Tabata, and Y. Haga
"Neutron scattering study of antiferromagnet U₂Pt₆X₁₅ (X = Al, Ga)" (ポスター講演)
- 令和5年9月13~14日
日本中性子科学会第23回年会 (JSNS2023) 於：札幌
金子 耕士、萩原 雅人、田端 千紘、山内 宏樹、久保田 正人、長壁 豊隆
"JAEA の三軸型中性子分光器群の現状と計画" (ポスター)
- 令和5年9月16~19日
日本物理学会第78回年次大会 (2023) 於：仙台
社本 真一、山内 宏樹、飯田 一樹、池内 和彦、アメリカ・ホール、陳 育聖、李 民楷、ジータ・バラクリシュナン、張 烈錚
"ハイパーカゴメ格子反強磁性体 Mn₃RhSi の螺旋スピクラスター" (口頭)
- 令和6年3月20日
日本物理学会2024年春季大会 於：オンライン
金子 耕士
"特殊試料環境でみる f 電子系化合物における新奇な磁気秩序" (シンポジウム講演)

- 令和 6 年 9 月 16 日
12th International Workshop on Sample Environments at Scattering Facilities
於：Båstad, Sweden
C. Tabata, S. Takada, Y. Shimojo, M. Ohkawara, Y. Ikeda, T. Ino, S. Ohira-Kawamura, T. Oku, M. Fujita, and K. Kaneko
"Advanced Sample Environment for Neutron Scattering at JRR-3: A Cryogen-Free Horizontal Magnetic Field System" (ポスター講演)
- 令和 6 年 9 月 18 日
日本物理学会第 79 回年次大会 於：北海道大学
芳賀 芳範、常盤 欣文、酒井 宏典、北澤 崇文、神戸 振作、徳永 陽、
田端 千紘、金子 耕士、五十木 理子、室 裕司
“ウランを含む Tsai 型近似結晶 Al-Au-U 系の結晶構造評価と低温物性” (口頭講演)
- 令和 6 年 9 月 18 日
日本物理学会第 79 回年次大会 於：北海道大学
酒井 宏典、田端 千紘、金子 耕士、北澤 崇文、山本 悦嗣、常盤 欣文、
神戸 振作、徳永 陽、芳賀 芳範
“ウラン系ファンデルワールス化合物 UTe_3 の磁性” (口頭講演)
- 令和 6 年 9 月 18 日
日本物理学会第 79 回年次大会
於：北海道大学
山内 宏樹、金子 耕士、田端 千紘、谷田 博司
“偏極中性子を用いた $CeCoSi$ の磁気構造に関する研究” (口頭講演)
- 令和 6 年 10 月 21 日
GIMRT Workshop 2024: Workshop on Polarized Neutron Sciences and Technology
於：東北大学
C. Tabata, S. Takada, Y. Shimojo, M. Ohkawara, Y. Ikeda, T. Ino, S. Ohira-Kawamura,
T. Oku, M. Fujita, and K. Kaneko
"The Superconducting Magnet Suite for Polarized Neutrons at JRR-3: Horizontal-Field Magnet" (ポスター講演)
- 令和 6 年 11 月 27 日
Summit of Materials Science 2024 and GIMRT User Meeting 2024 於：東北大学
O. Prokhnenko, S. Nikitin, A. Gazizulina, T. Xie, B. Ouladdiaf, J. A. Rodríguez
Velamazán, A. Hiess, P. Steffens, M. Akaki, I. F. Díaz-Ortega, T. Yamanaka, K. Kaneko,

C. Tabata, L. M. Anovitz, M. Fujita, H. Nojiri, and A. Podlesnyak

"Magnetic order and spin dynamics in natural mineral brochantite $\text{Cu}_4\text{SO}_4(\text{OH})_6$ " (ポスター講演)

- 令和6年12月4～6日
日本中性子科学会 第24回年次大会 於：名古屋
萩原 雅人、金子 耕士、田端 千紘、廣瀬 雄介、久保田 正人、山内 宏樹、
長壁 豊隆
“JAEAの三軸分光器群の現状と計画”(ポスター)

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）…0件

成果非占有課題…6件

成果非占有課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
ハニカム構造を持つ $R_2Pt_6X_{15}$ 系化合物の磁気構造(TAS-2)	富山大学
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
偏極中性子を用いた SrR_2O_4 (R = Nd, Ho) の磁場誘起モーメントの決定	物質材料研究機構
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
ハニカム構造を持つ $R_2Pt_6X_{15}$ 系化合物の磁気構造(TAS-2)	富山大学
パルス中性子を用いた偏極中性子回折実験手法確立に向けた ^3He spin filter の開発と性能評価実験	茨城大学

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ー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ー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事で、この物質群が持つ隠れた機能を引き出す事が出来る。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）
モノクロメーター部	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° ～ 120°

アナライザー部	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 ^3He 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。外部磁場の増加と共に、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

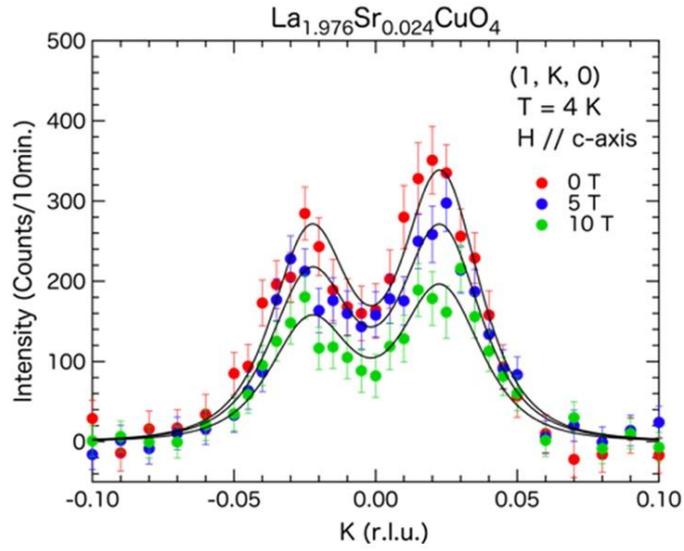


図2 $\text{La}_{1.976}\text{Sr}_{0.024}\text{CuO}_4$ の磁気弾性散乱ピークの磁場依存

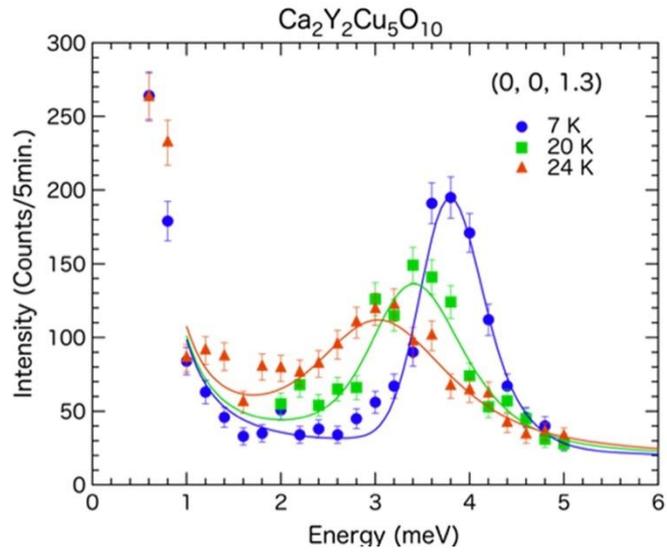


図3 $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$ におけるスピン波励起の温度依存

菱形格子反強磁性体 $\text{KCoPO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ における磁場誘起相転移と磁気励起

Magnetic field induced phase transitions in rhombic lattice antiferromagnet

藤原 理賀*、萩原 雅人**、金子 耕士**、田端 千紘**

*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

**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

二次元フラストレート量子磁性体は、量子状態を探究するためのプラットフォームとなり得る。本研究では、菱形格子反強磁性体 $\text{KCoPO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の磁性を調査した。菱形格子は、2種類の対角成分を持つ正方格子モデルと等価であり、量子状態が実現し得る系である。本物質の磁気的・熱力学的性質は有効スピン $J_{\text{eff}} = 1/2$ によってよく記述される。2.8 K で反強磁性転移が観測され、磁気構造は、 a 軸に沿って磁気モーメントが回転する非整合な螺旋構造であり、磁気伝搬ベクトル $\mathbf{k} = (0.1747 \ 0 \ 0)$ によって特徴づけられる。約 1 T の磁場を印加すると磁気秩序の形成が抑制され、磁場誘起相転移が観測された (Fig.1)。我々の実験結果は、容易面異方性を持つスピン $1/2$ ハイゼンベルク菱形格子反強磁性体の基底状態相図において量子相の存在を示唆している。

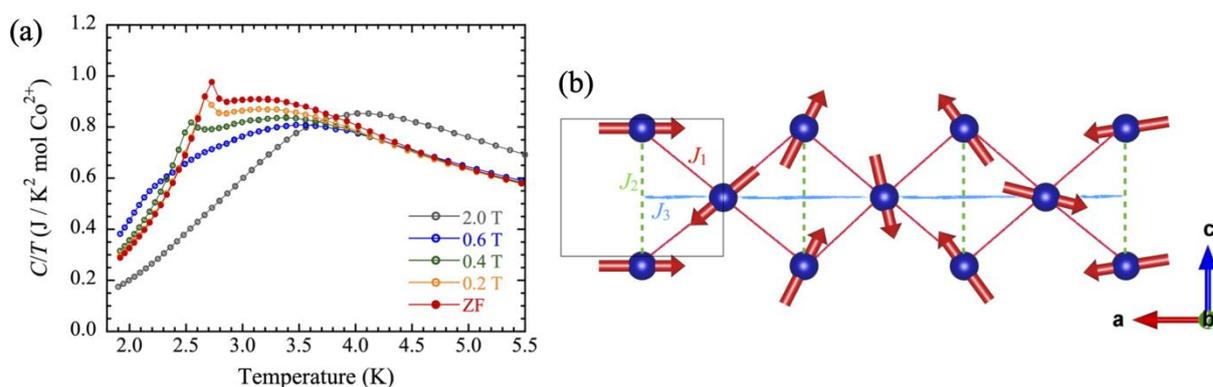


Fig.1 $\text{KCoPO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の(a)比熱測定の結果と(b)中性子回折実験により決定した磁気構造

参照

[1] Masayoshi Fujihala, Masato Hagihala, et al., “Possible field-induced quantum state in a rhombic lattice antiferromagnet”, *Physical Review Materials*, 9, 014406 (2022).

使用装置

TAS-2

実施課題 No.

[1]令和6年度 D962「菱形格子反強磁性体 $\text{KCoPO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ における磁場誘起スピン液体状態」

カゴメ磁性体 URhSn の 5f 電子秩序の研究 Neutron diffraction study of 5f-electron order in the Kagome magnet URhSn

田端 千紘*、金子 耕士*、芳賀 芳範**

*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

近年、カゴメ格子磁性体における磁気フラストレーション起源の特異な秩序状態が注目を集めている。URhSn は歪んだカゴメ構造からなる結晶構造（六方晶、空間群 $P\bar{6}2m$ ）を有し、 $T_c = 54$ K と $T_c = 16$ K で2段の相転移を起こすことが知られている[1]。低温相は強磁性秩序であるとされている一方、高温相については粉末中性子回折、 ^{119}Sn メスバウアー分光といった微視的測定によって対称性の破れが検出されず、秩序変数が長らく不明のままであった[2,3]。この秩序変数を明らかにするために、最近我々は共鳴X線散乱（RXS）実験によって、秩序波数 $q = 0$ の秩序を観測した。一般に RXS 信号には磁気双極子、電気四極子の両方の寄与が含まれ得るが、秩序に伴って内部磁場が発生しないという ^{119}Sn メスバウアーおよび ^{119}Sn -NMR の報告を鑑みると[3,4]、電気四極子秩序が発現していると考えられる。

そこで、JRR-3 の TAS-2 で磁場中中性子散乱実験を行ったところ、 T_c 以下で磁場印加による散乱強度の増大が観測され、四極子秩序相において磁気秩序が誘起される兆候が確認できた（図1）。しかし $q = 0$ 秩序で本質的に生じる核反射と磁気反射の重畳により、正確な磁気信号の抽出には至っていない。今後、磁場中偏極中性子散乱実験によって両者を分離することを計画している。

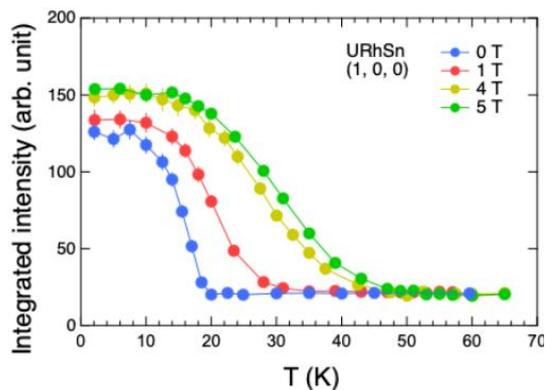


図1 URhSn の中性子散乱強度の温度・磁場依存

参考文献

- [1] Y. Shimizu et al., Phys. Rev. B 102, 134411 (2020).
- [2] F. Mirambet et al., J. Magn. Magn. Mater. 140-144, 1387 (1995).
- [3] R. Kruk et al., Phys. Rev. B 55, 5851 (1997).
- [4] C. Tabata et al., J. Phys. Soc. Jpn. 94, 083701 (2025).

使用装置

TAS-2

実施課題 No.

- [1] 令和 5 年度 D779 「擬カゴメ磁性体 URhSn の 5f 電子秩序の研究」
- [2] 令和 6 年度 D1092 「擬カゴメ磁性体 URhSn の 5f 電子秩序の研究」

Field-induced magnetic order in HoAgGe studied by neutron diffraction under magnetic field

Chihiro Tabata*, Koji Kaneko*

*Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

概要

Topological magnetic order has attracted great attention owing to its diverse magnetic textures and associated anomalous transport phenomena, such as the topological Hall effect that cannot be explained by the conventional anomalous Hall mechanism. Early studies mainly focused on 3d-electron systems typified by MnSi [1,2], while recent work has revealed topological magnetic orders in several 4f-electron compounds. For instance, EuPtSi, a divalent Eu compound with a chiral structure analogous to MnSi, hosts a skyrmion lattice with an unusually short periodicity [3,4].

Remarkably, a pronounced enhancement of Hall resistivity was recently discovered even in systems with strong spin-orbit coupling and Ising-type anisotropy [5]. One such example is HoAgGe, which crystallizes in a hexagonal noncentrosymmetric structure (*P*-62*m*, No. 189). Our recent transport studies uncovered a current-induced Hall effect independent of external magnetic fields. Previous neutron diffraction work reported several magnetic phases and proposed a spin-ice-like scenario [6]; however, the magnetic structures responsible for the transport anomalies remain unresolved. To address this issue, we aimed to determine the detailed field-induced magnetic structures of HoAgGe by neutron diffraction, focusing on fields applied along, where the anomalous transport is most pronounced.

Elastic neutron scattering experiments under magnetic fields were performed at TAS-2. In the magnetic-field range where the anomalous Hall effect appears, we observed enhancements of several magnetic reflections with different propagation vectors. These wave vectors differ from the principal one previously reported, $q = (1/3, 1/3, 0)$, suggesting a rearrangement of the magnetic structure across the metamagnetic transition. This rearrangement is likely related to the emergence of the Hall anomaly. A detailed magnetic-structure analysis is currently underway toward publication.

- [1] S. Mühlbauer et al., *Science* **323**, 915 (2009).
- [2] X. Z. Yu et al., *Nat. Mater.* **10**, 106 (2011).
- [3] M. Kakihana et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 023701 (2018).
- [4] K. Kaneko et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013702 (2019).
- [5] Y. Ōnuki, private communication.
- [6] K. Zhao et al., *Science* **367**, 1218 (2020).

使用装置

TAS-2

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 D830 「Field-induced magnetic order in HoAgGe studied by neutron diffraction under magnetic field」

3 本足リボン鎖をもつ $S=1/2$ 量子磁性体の磁気構造解明

Magnetic structure analysis of $S = 1/2$ three-legged chain quantum magnet

萩原 雅人*

*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

3 本足リボン鎖に XXZ スピンが置かれた時に、3 本の鎖間相互作用が小さい時は symmetry protected topological (SPT) 相が出現するとされている。具体的には中央の鎖が分離され、かつ両端の鎖間に有効的な強磁性相関が働く時に中央の鎖が Tomonaga-Luttinger 液体、両端の鎖が Haldane 状態を示すとされる。両端と中央の相互作用が十分強い領域から十分弱くなるにつれてフェリ磁性、gapless 相、gapless SPT 相となることが予想されている。Cu₃(OH)₄SO₄ は $S = 1/2$ による 3 本足リボン鎖が b 軸方向に繋がり、またリボン鎖内は三角形を形成しており、上記の理論モデル物質として特異な磁気相の検証が期待される。ただし鎖間相互作用により零磁場では $T = 5$ K 付近の複数の異常を経て、低温相では $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ の磁気秩序が粉末中性子回折で確認されている。また $T = 2$ K においてリボン鎖に垂直の a および c 軸に磁場を印加した時、強制強磁性相までに 4 回の磁場誘起相転移が確認されている。これらの磁場誘起磁気相の磁気構造を明らかにするために、TAS-2 において無冷媒 10T マグネットを用いて、 $H = 8$ T までの中性子回折測定を行なった。 $H = 1.2$ T では $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ の磁気反射とともに、 $\mathbf{k} = (d\ 0\ 0)$ の非整合磁気秩序が観測された。この磁気相での伝搬ベクトルは温度や磁場に依存しない。 $H = 2.5$ T では非整合磁気秩序が消失し、 $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ の磁気反射のみが残った。さらに磁場を印加すると、 $H = 6.2$ T においては、今度は波数が温度依存する $\mathbf{k} = (d\ 0\ 0)$ の磁気反射のみが観測された。今回の実験では詳細な磁気構造解析は困難であったことから、今後結晶サイズアップを図り、各相の磁気構造を明らかにする予定である。

使用装置

TAS-2、MUSASI

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D852 「強磁性・反強磁性鎖の 3 本足磁性体の磁気励起の観測」

非磁性元素が CeSb の磁性に与える影響に関する研究 Influence of nonmagnetic element on magnetism in CeSb

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

強相関電子系セリウムモノプニクタイトド (CeX; プニクトゲン X=P, As, Sb, Bi) はキャリア数が極端に少ない半金属であり、非常に長い周期の磁気構造が出現する。しかも温度・磁場・圧力により、悪魔の階段として知られる多彩な磁気相を示す。この物質群は 4f 結晶場が系統的に変化し、外場により異なる物質群の磁気相には類似の長周期磁気構造が現れることが知られている。最近、CeSb において、角度分解光電子分光実験 (ARPES) で各磁気相の長周期構造に連動したバンド構造の変化を観測し、新規な準粒子状態が形成されていることが明らかになった。更に、バンド構造計算や負の磁気抵抗測定角度依存性などが報告されている。この様に、CeSb の周辺物質・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の振る舞いの可能性が注目され、再び脚光を浴びている。しかし、これらの特異な振る舞いは、電子状態や輸送現象に関する実験報告に限られている。また、母物質 CeSb の従来の磁場下の磁気構造に関する情報だけでは、上述した特異な物性のメカニズムを解明できていない。

非磁性元素 La が CeSb に与える影響を明らかにすることが本研究課題の目的である。現在、無磁場下において、Ce を La で置換することが磁性に与える影響として、複数の長周期構造が競合することや新たな磁気構造が出現することを明らかにしている。今後、磁場下における磁気構造・磁性に関しても明らかにしていく予定である。

使用装置

TAS-2

実施課題 No.

[1]令和5年度 D895 「セリウム化合物の磁性に対する乱れの影響 (装置都合未実施課題 R4_D555)」

特異な電子状態を示す Ce 化合物における磁性の微視的解明 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

Ce 化合物 CeX ($X=P, As, Sb, Bi$) 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。少数キャリア半金属である CeX は、セリウムモノプニクタイトと称される物質群である。一般的に多くのセリウム化合物において、 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 Γ_7 と 4 重縮退の Γ_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。

セリウムモノプニクタイトでは、4f 結晶場が系統的に変化し、 CeP 、 $CeAs$ と $CeSb$ 、 $CeBi$ 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、 $CeSb$ 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、 $CeSb$ 周辺関連物質の物性研究が再び脚光を浴びている。

非磁性元素 La が $CeSb$ に与える影響を明らかにすることが本研究課題の目的である。装置都合により D1010 課題での中性子回折実験を実施できていない。令和 7 年度以降、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 6 年度 D1010 「特異な電子状態を示す Ce 化合物における磁性の微視的解明」

Buckled honeycomb 格子における多段の磁場誘起相の研究

Study of multiple field-induced magnetic phase on Buckled honeycomb lattice

萩原 雅人*、石井 裕人**

*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

**東京大学物性研究所 附属国際強磁場科学研究施設

概要

六方晶(空間群 $P6_3/mmc$)の結晶構造をとり $3d$ 磁性イオンをもつアルカリハロゲン化物 $A_3M_2X_9$ (A : アルカリイオン、 M : $3d$ 金属イオン、 X : ハロゲンイオン)は、2つの磁性イオンが接近しておりスピンドイマー系として研究が行われてきた。特に Cr^{3+} イオンによる $S = 3/2$ を持つ $Cs_3Cr_2Cl_9$ はダイマー内の反強磁性相互作用が強く、基底状態は $S = 0$ 非磁性状態であり、磁場をスピンドイマーと平行方向の c 軸方向に印加すると、磁化過程において $1/3$ および $2/3$ プラトーが観測された。 $Cs_3Fe_2Cl_9$ は $S = 5/2$ で $T_N = 5.3K$ で反強磁性転移を示すが、他の化合物と比べダイマー内相互作用が弱く、第 2 近接相互作用を結ぶと三角格子、第 3 近接相互作用を結ぶと buckled honeycomb 格子と見ることができる。以前ゼロ磁場の中性子回折測定をオークリッジ国立研究所の研究用原子炉 HFIR の HB-3A で行なっており、 T_N 以下で $\mathbf{k} = (1/2\ 0\ 0)$ の磁気ブラッグが観測した。磁気構造解析により c 軸方向を向いた磁気モーメントが、ダイマー内強磁性で honeycomb 格子上では stripe 秩序を取ることを明らかにした。一方で磁化過程において $1/2$ プラトー相を含む、複数の磁場誘起相転移がみられていることから、TAS-2 において磁場誘起磁気相の中性子回折測定が行われた。

零磁場の $T = 1.9 K$ において磁場を c 軸方向すると $\mathbf{k} = (1/2\ 0\ 0)$ の stripe 秩序が、 $H = 3.1 T$ で消失し、新たに非整合磁気秩序相が現れた。さらに磁場を印加すると、 $H = 6.3 T$ で非整合秩序は消失し、再び $\mathbf{k} = (1/2\ 0\ 0)$ および $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ の磁気反射が現れた。ただし $H = 7.2 T$ の $1/2$ プラトー領域での磁気構造解析により、磁気モーメントが上向き:下向き = 3:1 になるような磁気構造より、上向き:0 モーメント = 1:1 になるような構造の方が良い一致が見られた。 ab 面内成分などを取り入れたモデルを検討するとともに、非整合秩序が見られた磁場中間相の磁気構造解析を含めて、磁気構造が複雑に変化する理由を解明する予定である。

使用装置

TAS-2

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 D1024 「Buckled honeycomb 格子の多段の磁場誘起相の研究」

Magnetic field response in natural mineral pyroxene

Koji Kaneko*, Chihiro Tabata*, Oleksandr Prokhnenko**, Andrey Podlesnyak***

* Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency

** Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie

***Oak Ridge National Laboratory

概要

Antiferromagnets with competing interactions provide a rich platform for studying diverse quantum phenomena such as magnetization plateaus, unconventional excitations, quantum criticality, and multiferroicity. Among them, the pyroxene family (ATX_2O_6 , $A = \text{Sr, Li, Na, Ca}$; $X = \text{Ge, Si}$; $T = \text{magnetic transition metal}$) serves as a representative example, where chains of $3d$ ions form quasi-triangular motifs that lead to frustrated magnetism. Several pyroxenes display magnetoelectric effects [1,2], and the Co-based compound $\text{SrCoGe}_2\text{O}_6$ has recently been proposed as a promising candidate for realizing the Kitaev model [3]. Natural single crystals of aegirine $\text{NaFeSi}_2\text{O}_6$, which crystallize in the monoclinic space group $C2/c$, exhibit multiferroicity. The structure consists of zigzag chains of edge-sharing FeO_6 octahedra and corner-sharing SiO_4 tetrahedra running along c , forming a triangular magnetic lattice within the (110) plane that causes frustration. The spin network, characterized by one intrachain coupling (J) and two interchain couplings (J_1, J_2), realizes a triangular topology. Although theoretical studies have highlighted the possible role of frustrated interchain interactions, their microscopic nature remains insufficiently explored.

Our single-crystal neutron diffraction experiment using TAS-2 revealed magnetic reflections appearing below the antiferromagnetic ordering temperature, $T_N = 8.8$ K. These magnetic peaks are indexed with a single incommensurate propagation vector, $\mathbf{q} = (0, 0.77, 0)$, which is consistent to the previous report. We also investigated the magnetic-field response of these magnetic peaks and established a well-defined magnetic phase of this compound. The characterization of the magnetic ordered state by neutron diffraction was crucial and highly beneficial for the subsequent analysis of spin dynamics in inelastic scattering experiments[4].

[1] G. Nénert et al., Phys. Rev. B 79, 064416 (2009).

[2] O. Janson et al., Phys. Rev. B 90, 214424 (2014).

[3] P. A. Maksimov et al., Proc. Natl. Acad. Sci. USA 121, e2409154121 (2024).

[4] O. Prokhnenko et al., Phys. Rev. B 112, 094402 (2025).

使用装置

TAS-2

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 D1101 「Magnetic field response in natural mineral brochantite」

学会等で発表された成果

- 令和5年9月13~14日
日本中性子科学会第23回年会(JSNS2023) 於：札幌
金子 耕士、萩原 雅人、田端 千紘、山内 宏樹、久保田 正人、長壁 豊隆
“JAEAの三軸型中性子分光器群の現状と計画”(ポスター)
- 令和5年9月16~19日
日本物理学会第78回年次大会(2023) 於：仙台
社本 真一、山内 宏樹、飯田 一樹、池内 和彦、アメリカ・ホール、陳 育聖、
李 民楷、ジータ・バラクリシュナン、張 烈錚
“ハイパーカゴメ格子反強磁性体 Mn_3RhSi の螺旋スピクラスター”(口頭)
- 令和6年9月16日
12th International Workshop on Sample Environments at Scattering Facilities
於：Båstad, Sweden
C. Tabata, S. Takada, Y. Shimojo, M. Ohkawara, Y. Ikeda, T. Ino, S. Ohira-Kawamura, T.
Oku, M. Fujita, and K. Kaneko
"Advanced Sample Environment for Neutron Scattering at JRR-3: A Cryogen-Free
Horizontal Magnetic Field System" (ポスター講演)
- 令和6年10月21日
GIMRT Workshop 2024: Workshop on Polarized Neutron Sciences and Technology
於：東北大学
C. Tabata, S. Takada, Y. Shimojo, M. Ohkawara, Y. Ikeda, T. Ino, S. Ohira-Kawamura, T.
Oku, M. Fujita, and K. Kaneko
"The Superconducting Magnet Suite for Polarized Neutrons at JRR-3: Horizontal-Field
Magnet" (ポスター講演)
- 令和6年11月27日
Summit of Materials Science 2024 and GIMRT User Meeting 2024 於：東北大学
O. Prokhnenko, S. Nikitin, A. Gazizulina, T. Xie, B. Ouladdiaf, J. A. Rodríguez
Velamazán, A. Hiess, P. Steffens, M. Akaki, I. F. Díaz-Ortega, T. Yamanaka, K. Kaneko,
C. Tabata, L. M. Anovitz, M. Fujita, H. Nojiri, and A. Podlesnyak
"Magnetic order and spin dynamics in natural mineral brochantite $Cu_4SO_4(OH)_6$ " (ポ
スター講演)

- 令和6年12月4～6日
日本中性子科学会 第24回年次大会 於：名古屋
萩原 雅人、金子 耕士、田端 千紘、廣瀬 雄介、久保田 正人、山内 宏樹、
長壁 豊隆
“JAEAの三軸分光器群の現状と計画”(ポスター)

独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…0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…0件

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 C2 冷中性子導管の最上流にある C2-1 ビーム孔に設置された冷中性子三軸型光器である。冷中性子源から得られる長波長の冷中性子ビームを用いるため、0.1 meV 前後の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している。また、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。大型アナライザー機構は、熱分解グラファイト (PG) 結晶を配した 9 本のブレードで構成され、独立した鉛直軸まわりの回転による横集光を可能とし、高効率な非弾性散乱測定を実現する。試料環境設備は TAS-1、TAS-2 と共通のものが利用可能であり、複合極限環境に対応するため、分光器や遮蔽体の主要な構造物などは非磁性化がなされている。これらの特色を活かし、本装置の利用範囲は、基礎物性研究から生体高分子、食品科学の分野まで多岐にわたる。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を決定する研究、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、干し芋や炊飯米の保存性と水分活性、分子運動性の繋がりを調べる研究などの利用例がある。

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)
モノクロメーター部	PG 結晶(002)面 H 15 mm × W 75 mm、7 枚 (ビームサイズ：H 120 mm × W 20 mm) エネルギー範囲：2 ~ 9.8 meV 集光方式：縦ベント型
中性子束	試料位置： $1.8 \times 10^7 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($E_i = 3.5 \text{ meV}$)

試料部	散乱角範囲： $-5^{\circ} \sim 110^{\circ}$
アナライザー部	PG 結晶(002)面 散乱角度範囲： $80^{\circ} \sim 110^{\circ}$ エネルギー範囲： $2.5 \sim 4.8 \text{ meV}$ 集光方式：9 ブレード独立回転による横ベント型 (縦ベント固定)
検出器	0 次元 ^3He ガス比例計数管 (2 inch)

試料環境

TAS-1, TAS-2 と共通の設備が使用可能である。

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(図 1)、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(図 2)。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はずの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(図 2)。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.)

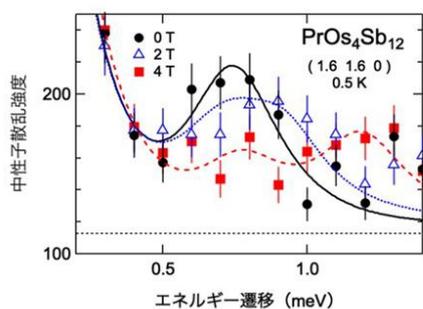


図1 重い電子系超伝導体 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ の結晶場励起。

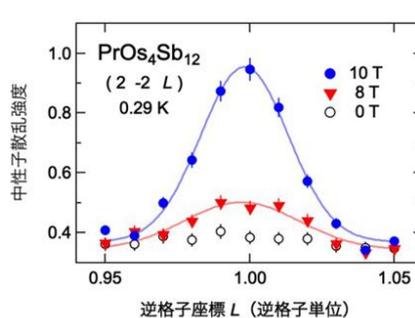
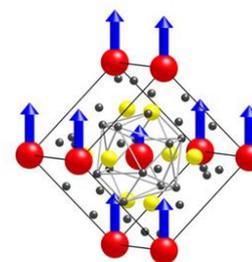


図2 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ で観測された磁場誘起磁気反強磁性のピークと磁気構造。



加水量の違いが老化に伴う澱粉の動的挙動に及ぼす影響

Effect of the ratio of water to rice on the molecular dynamics of cooked rice starch during retrogradation

平田 芳信^{*,**}、中川 洋^{**}、山内 宏樹^{***}^{*}岐阜大学大学院 連合農学研究科^{**}日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 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 強相関物性材料研究グループ

概要

澱粉老化は澱粉性食品（米、麺、パン等）の食感劣化（ボソボソとした食感）を引き起こす。その為、食品加工においてフードロスに関わる澱粉老化機構の解明が求められている。米飯は炊飯時の加水量が多いと澱粉老化が抑制されることが知られているが、従来の構造解析手法では糊化澱粉（非晶質）の構造解析が困難であり、加水量が糊化澱粉の状態にどのような影響をもたらすのか明らかにされていない。本研究では加水量の異なる炊飯米（1.3倍加水及び2倍加水）をX線回折（XRD）法で解析したところ、加水量の増加によって老化速度が減少することが確認された（Fig.1）。また、中性子準弾性散乱（QENS）法で解析したところ、加水量が増加することで糊化澱粉の弾性非干渉性構造因子（EISF）が増加し、糊化澱粉の空間的な分子運動が増加することが明らかになった（Fig.2）。以上より、糊化澱粉の分子運動の違いが老化速度に影響している可能性が示唆された。

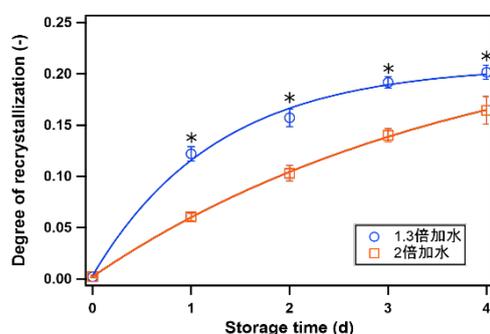


Fig.1 XRD で得られた澱粉老化度の結果

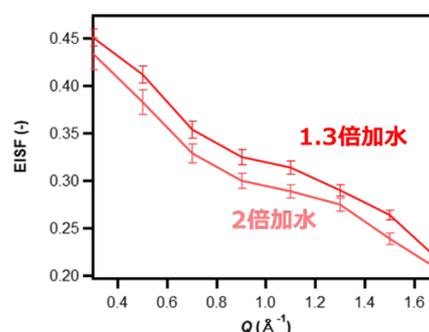


Fig.2 QENS で得られた糊化澱粉の EISF の結果

参照

[1] Y. Hirata et al., "Effect of the ratio of water to rice on the molecular dynamics of cooked rice starch during retrogradation: Implications for amorphous structure in gelatinized state", *International Journal of Biological Macromolecules*, 306, 141668 (2025).

使用装置

LTAS

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D819「米飯の老化耐性を付与する酵素的手法の作用機序の解明」
- [2]令和5年度 I883「LTASの調整・高度化（LTAS装置担当者枠）」

アミロース含量の違いが老化に伴う米飯中の澱粉の動的挙動に及ぼす影響

Effect of amylose content on the molecular dynamics of cooked rice starch during retrogradation

平田 芳信^{*,**}、中川 洋^{**}、山内 宏樹^{***}

^{*}岐阜大学大学院 連合農学研究科

^{**}日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 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 強相関物性材料研究グループ

概要

澱粉は穀物の主成分であり、構成単位であるグルコースが多数つながった生体高分子である。澱粉は水と加熱されると糊化し、糊化した澱粉は時間が経過するにつれて再結晶化する。この過程を老化と呼ぶ。老化による澱粉の構造変化は澱粉性食品（米、麺、パン等）の品質（食味、外観等）に影響を及ぼすことから、澱粉老化は食品加工における重要な過程だと考えられている。澱粉はグルコースが α -1,4グリコシド結合でつながった直鎖状のアミロースと α -1,6グリコシド結合によって分岐したアミロペクチンによって構成される。アミロース含量は澱粉の老化速度を決定する一つの要因とされているが、そのメカニズムは明らかにされていない。

本研究ではアミロース含量の異なる炊飯米として、ホシユタカ（高アミロース米）、ひとめぼれ（中アミロース米）、ヒメノモチ（アミロースを含まない）を用いた。X線回折（XRD）法で解析したところ、ホシユタカ、ひとめぼれ、ヒメノモチの順に老化速度定数が大きくなり、アミロース含量が多いほど老化が速くなることが確認された。また、中性子準弾性散乱（QENS）法で解析したところ、全品種で保存により弾性非干渉性構造因子（EISF）が増加したことから、老化により澱粉の分子運動の空間的な広がりが減少することが確認された。さらに、糊化澱粉のEISFがホシユタカ、ひとめぼれ、ヒメノモチの順に大きく、アミロース含量が多いほど炊飯直後の澱粉の分子運動の空間的な広がりが減少することが明らかになった。以上より、アミロース含量が多いほど糊化澱粉の分子運動が抑制され、老化速度が大きくなる可能性が示唆された。本研究に関して、現在論文を執筆中であり、2025年度中の論文投稿を予定している。

使用装置

LTAS

実施課題 No.

[1]令和5年度 D819「米飯の老化耐性を付与する酵素的手法の作用機序の解明」

[2]令和5年度 I883「LTASの調整・高度化（LTAS装置担当者枠）」

酵素添加炊飯米の澱粉構造と老化速度の関係について

Relations between starch structure and retrogradation rate for rice cooked with added enzyme

平田 芳信^{*,**}、隠岐 優佳^{***}、中川 洋^{**}、山内 宏樹^{****}、西津 貴久^{***}

*岐阜大学大学院 連合農学研究科

**日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

***岐阜大学 応用生物科学部 応用生物科学科 応用生命科学課程 食品生命科学コース

****日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 強相関物性材料研究グループ

概要

おにぎり、お弁当などの加工米飯食品は国内生産量が右肩上がりでも拡大しており、日本国内において非常に需要が高まっている。しかし、これらの加工米飯食品は、生産から販売、消費者が喫食するまでの時間経過による品質劣化が課題となっている。これは米飯の主成分である澱粉老化が原因であり、加工米飯は保存中の品質保持のために澱粉老化を抑制することが求められている。澱粉加水分解酵素の添加は、炊飯後の澱粉分子の再結晶化を抑制することが知られており、老化抑制手段の一つと考えられている。本研究ではエンド型の α -アミラーゼを添加した炊飯米の保存中の澱粉老化度、澱粉分子のダイナミクス、アミロペクチン鎖長構造の変化を測定し、澱粉構造と老化速度の関係について検討した。

X線回折(XRD)法で解析したところ、 α -アミラーゼ添加区では無添加区よりも老化速度定数が大きくなり、 α -アミラーゼ添加により澱粉老化が速くなることが確認された。また、中性子準弾性散乱(QENS)法で解析したところ、全保存期間を通して α -アミラーゼ添加区の方が弾性非干渉性構造因子(EISF)値は大きく、 α -アミラーゼ添加により炊飯直後の澱粉の分子運動の空間的な広がりが減少することが明らかになった。さらに、鎖長分布測定により、 α -アミラーゼ添加区では重合度6-12の鎖長割合が無添加区と比べ大きいことが明らかになった。以上のことから、 α -アミラーゼによって分解された澱粉鎖の鎖長の違いが澱粉の分子ダイナミクスに変化をもたらし、それが老化速度に影響を与えることが示唆された。

使用装置

LTAS

実施課題 No.

[1]令和6年度 D992「結晶構造の異なる澱粉の老化に伴う分子ダイナミクスの変化の解析」

[2]令和6年度 I990「LTASの調整・高度化(LTAS装置担当者枠)」

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
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 智絵、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）
- 令和5年9月13～14日
日本中性子科学会第23回年会（JSNS2023） 於：札幌
社本 真一、山内 宏樹、飯田 一樹、池内 和彦、アメリカ・ホール、
ジータ・バラクリシュナン、陳 育聖、李 民楷、張 烈錚
“ハイパーカゴメ格子反強磁性体 Mn_3RhSi の螺旋スピクラスター”（口頭）
- 令和5年9月13～14日
日本中性子科学会第23回年会（JSNS2023） 於：札幌
金子 耕士、萩原 雅人、田端 千紘、山内 宏樹、久保田 正人、長壁 豊隆
“JAEA の三軸型中性子分光器群の現状と計画”（ポスター）
- 令和5年9月16～19日
日本物理学会第78回年次大会（2023） 於：仙台
社本 真一、山内 宏樹、飯田 一樹、池内 和彦、アメリカ・ホール、陳 育聖、
李 民楷、ジータ・バラクリシュナン、張 烈錚
“ハイパーカゴメ格子反強磁性体 Mn_3RhSi の螺旋スピクラスター”（口頭）
- 令和5年12月4～6日
第52回結晶成長国内会議（JCCG-52） 於：名古屋
金子 文俊、大西 清美、中川 洋
“ココアバターの多形構造と分子運動性の相関：中性子準弾性散乱による研究”（口頭）
- 令和6年3月18～21日
日本物理学会 2024年春季大会 於：オンライン
社本 真一、山内 宏樹、飯田 一樹、池内 和彦、Amelia Elisabeth Hall、
Geetha Balakrishnan、Yu-Sheng Chen、Min Kai Lee、Lieh-Jeng Chang
“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”（口頭）

- 令和6年6月10～14日
Neutrons and Food 7 於：Newark, Delaware (USA)
Yoshinobu Hirata, Hiroshi Nakagawa, Hiroki Yamauchi, Koji Kaneko, Masato Hagihala,
Hideyuki Yamaguchi, Teppei Imaizumi, Takahisa Nishizu
“Changes in the molecular dynamics of cooked rice starch during retrogradation when rice
is cooked with different amounts of water.” (招待講演)
- 令和6年9月25～27日
日本応用糖質科学会 2024年度(第73回)大会 於：京都
平田 芳信、中川 洋、山内 宏樹、金子 耕士、萩原 雅人、山口 秀幸、
今泉 鉄平、西津 貴久
“アミロース含量の違いが老化に伴う米飯中の澱粉の動的挙動に及ぼす影響” (口頭及び
ポスター)
- 令和6年12月4～6日
日本中性子科学会 第24回年次大会 於：名古屋
萩原 雅人、金子 耕士、田端 千紘、廣瀬 雄介、久保田 正人、山内 宏樹、
長壁 豊隆
“JAEAの三軸分光器群の現状と計画” (ポスター)

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）…2件

 成果非占有課題…3件

成果非占有課題名	所属機関
新規反強磁性ダイマー物質 Yb_2SiO_5 のスピン・ギャップ励起の観測	物質材料研究機構
非干渉性中性子散乱と振動分光法による食品関連油脂の運動と構造の相関に関する研究	九州大学
Multiscale water dynamics in proton exchange membranes made of sulfonated syndiotactic polystyrene (s-sPS)	Forschungszentrum Juelich

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 μm 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 ²
強度 ($\Delta \theta = 0.08\text{deg}$)	$11.8 \times 10^4 \text{ n/cm}^2/\text{s}$
バックグラウンド	$44.5 \times 10^{-3} \text{ n/s}$
検出器	0次元検出
到達可能反射率	10^{-6} 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)

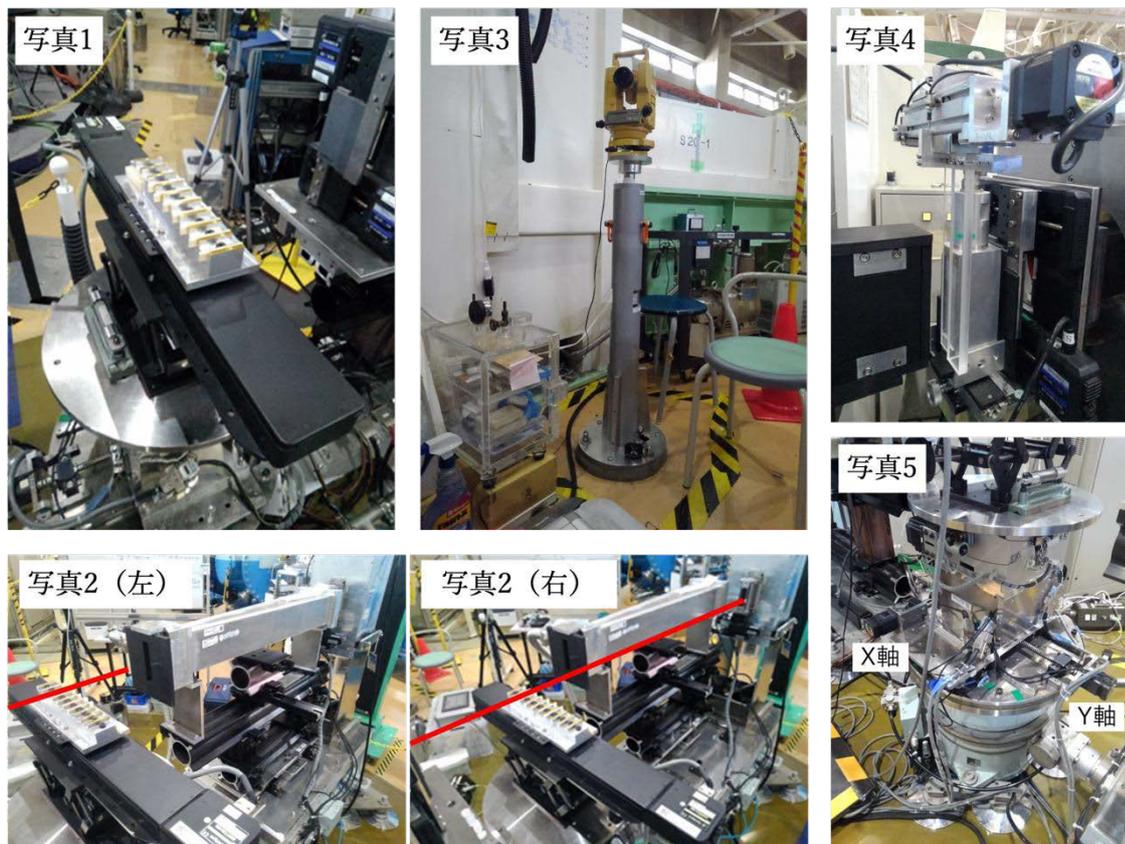
試料回転ステージと後述の 4 軸ゴニオメータに取り付けられた試料の中心位置が一致するように調整するための測量機。

(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ができる 4 軸ゴニオメータ。耐荷重は 6.865 kN、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^t、10mm^t）、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示した。図1に示すのは石英基板、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。石英基板の厚さは3mm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、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。この石英基板の例では 10^{-5} 領域までの反射率が測定できているが、装置としてのバックグラウンドレベルは 10^{-7} 領域である事がわかる。次の例であるNi/Ti多層膜ミラーでは、それぞれ5.0nm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 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。

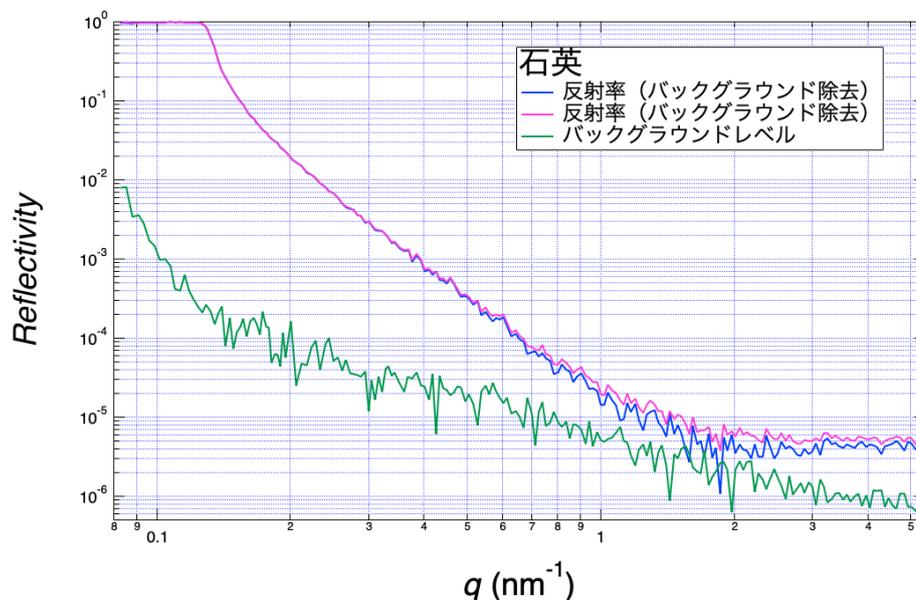


図1 石英の中性子反射率

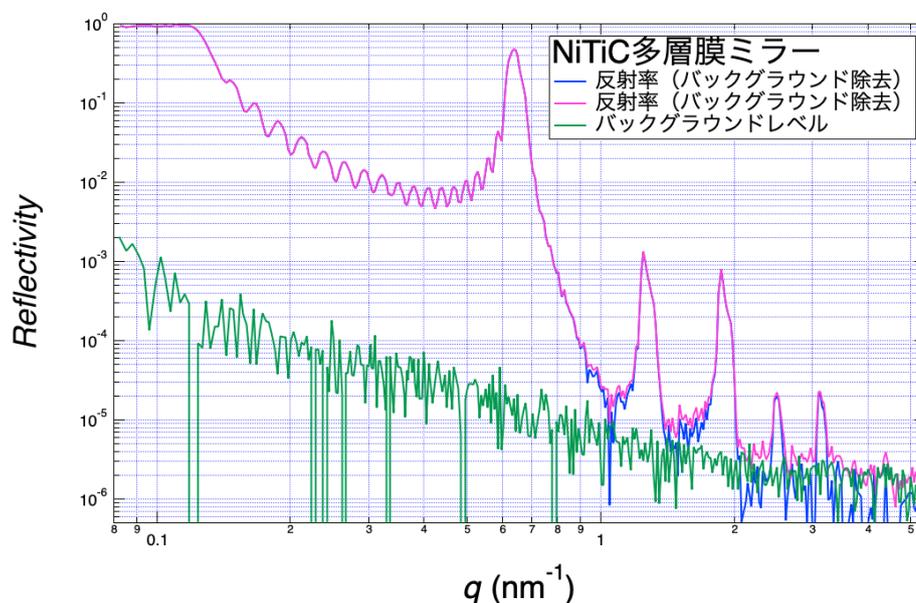


図2 Ni/Ti 多層膜ミラーの中性子反射率

全反射中性子利用 γ 線分析法の開発：シリコン基板上少量サマリウムの観測Development of Total-Reflection Neutron-Induced Gamma Spectroscopy:
Observation of Small Amounts of Samarium on a Silicon Surface

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 中性子基盤セクション

**総合科学研究機構(CROSS) 中性子科学研究センター

***イメージング物理研究所

概要

深く埋もれた界面で元素・核種分析を行うため、試料の表面すれすれに中性子を斜入射（斜め照射）する即発ガンマ線分析法（全反射中性子利用 γ 線分析法、TN- γ 法）を開発する。これは中性子反射法や斜入射小角散乱法による構造解析と同時にできる、全反射蛍光 X 線分析に似た手法だが、中性子とガンマ線の高い透過力のため X 線では到達できない深く埋もれた界面や固液界面へも適用できる。

我々は、研究炉 JRR-3 の中性子反射率計 SUIREN で TN- γ 法のためのバックグラウンド低減作業および TN- γ 法の試験測定を行った。前者については、試料およびガンマ線検出器周辺の遮蔽増強等により Fig.1 の通り着実なバックグラウンド低減に成功した。後者では、シリコン基板上のおよそ 5mm ϕ の範囲にサマリウム標準液を滴下して乾燥させたものを試料として測定を行った。波長 3.99Å の単色中性子を視射角 0.15° で 20,000 s 照射した結果、0.4 mg 以上のサマリウム残滓から Sm-149 起因の即発ガンマ線(334 keV)を検知することに成功した(Fig. 2)。サマリウム 0.4mg は $\square 30\text{mm}$ の薄膜にして約 60nm の厚みに相当する。また、SUIREN に設置した我々の測定系では 334 keV のガンマ線なら発生率 46 s^{-1} であれば検知可能であると見積もられた。この検出限界値は、バックグラウンドや検出効率のためガンマ線エネルギーによって異なるが、分析元素やビーム強度にかかわらず適用できる値である。今後もさらなるバックグラウンドの低減やガンマ線検出器の高度化などにより、より微量の Sm が検知可能になると期待される。

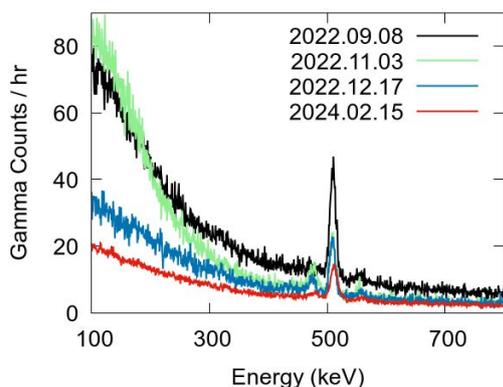


Fig.1 ガンマ線バックグラウンドの変遷

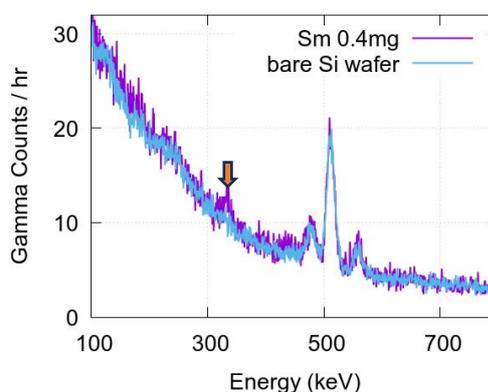


Fig.2 Sm0.4mg からのガンマ線スペクトル

使用装置

SUIREN

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D773「斜入射中性子即発ガンマ線分析法による凝固 InGa 界面の密着性の検討」
- [2]令和6年度 D985「全反射中性子利用 γ 線分析法による凝固 InGa の界面密着性の検討」

装置光軸調整の自動化

Automatic instrument setup system

盛合 敦*、武田 全康**

*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
強相関材料物性研究グループ

**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

概要

反射率測定では $\theta - 2\theta$ スキャンの際に 0.001 度の精度が必要になること、光軸を決めるスリット制御にも 0.01mm 以下の精度が求められることから、測定に先立つ装置の光軸調整は重要である。さらに光軸調整は非常に手間のかかる作業であるだけでなく間違いが許されないので、省力化と人為的な間違いを排除するために、光軸調整を自動で行うソフトウェアを整備した。以下に示すパネルから GUI による実行も可能であるが、コマンドラインからも実行できる。光軸調整の対象となるのは、 2θ 軸、上流側と下流側の 2 象限スリット、検出器前のスリットであるが、Fig. 1 のパネルに示されている順番で各項目が実行される。途中から開始することも可能である。

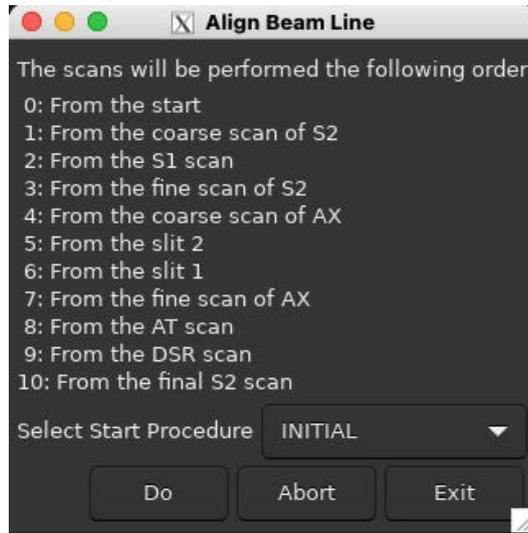


Fig.1 光軸調整実行パネル

調整には 1 時間ほどかかる。以下に主要な軸の光軸調整で得られた結果（自動で行われる fitting によって 0 点やオフセットが決定される）を示す(Fig. 2~5)。

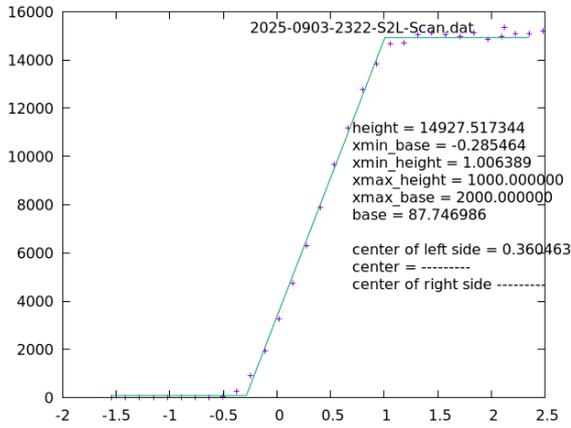


Fig. 2 下流スリットの半割スキャン

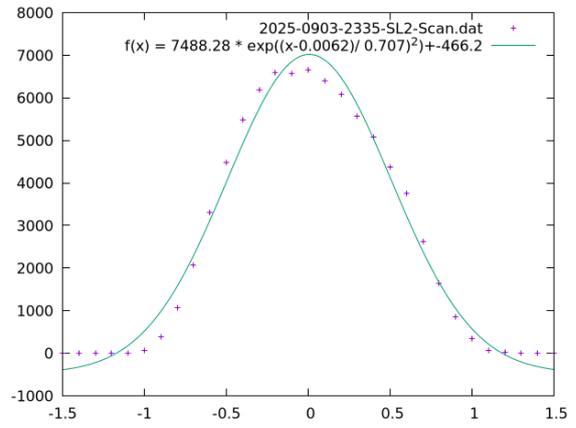


Fig. 3 下流スリットの中心スキャン

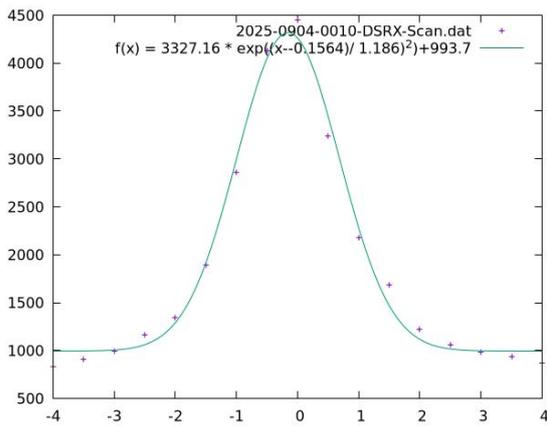


Fig. 4 検出器前スリットの鉛直度スキャン

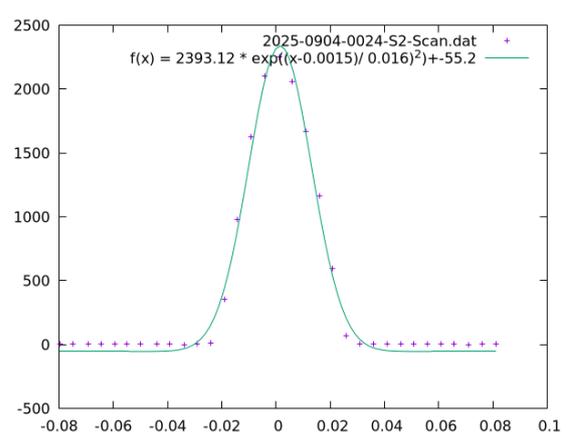


Fig. 5 2θ 軸の 0 点スキャン

使用装置

SUIREN

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 I845 「SUIREN 装置課題」
- [2]令和 5 年度 I1086 「SUIREN 装置課題」

試料の位置合わせの自動化

Automatic sample alignment system

盛合 敦*、武田 全康**

*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
強相関材料物性研究グループ

**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

概要

装置の光軸調整と同様に反射率測定に先立つ試料の位置合わせにおいても、0.001 度の精度での試料面と入射中性子がなす角度を決定することが必要になること、さらに試料の中心を光軸に対して 0.01mm 以下の精度で位置合わせすることが求められることから、測定に先立つ試料の位置合わせの精度が最終的なデータの質を決めてしまう。この試料の位置合わせ調整は手間のかかる作業であるため作業者のミス排除するとともに、試料の位置合わせの工程（順番と精度）を統一化するために、試料の位置合わせを自動で行うソフトウェアを整備した。光軸に合わせたレーザー光を使って、試料の位置と光学反射条件（入射角=反射角）を目視で合わせた後で実行すると試料の角度とビームラインに対する位置の精密化、鉛直からの傾きの補正を自動で行う。Fig.1 に操作パネルを示す。

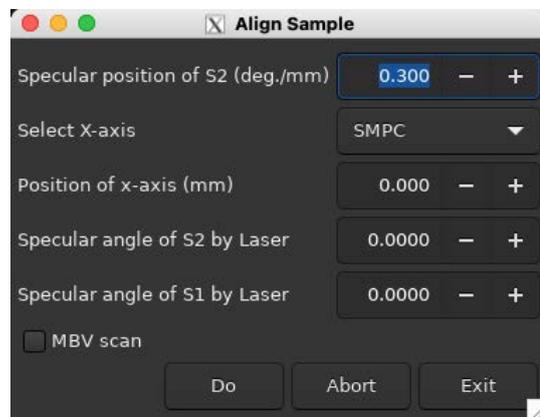


Fig. 1 試料位置決め実行パネル

使用装置

SUIREN

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 I845 「SUIREN 装置課題」
[2]令和 6 年度 I1086 「SUIREN 装置課題」

制御・測定制御機器及びソフトウェアの GUI 化

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 原子力科学研究所 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 原子力科学研究所 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を PLC (Programmable Logic Controller) に更新した際に、ドライバーも含めた制御・測定ソフトウェアも一新したが、その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。CUI による操作は慣れてしまうと便利である反面、一般の利用者にとっては多くのコマンドやその引数を覚えなければならず、GUI による操作を望む声が多かった。その声に応えるため、制御ソフトウェアの GUI 化を進めてきた。以下はいくつかの例である。(Fig. 1~4)

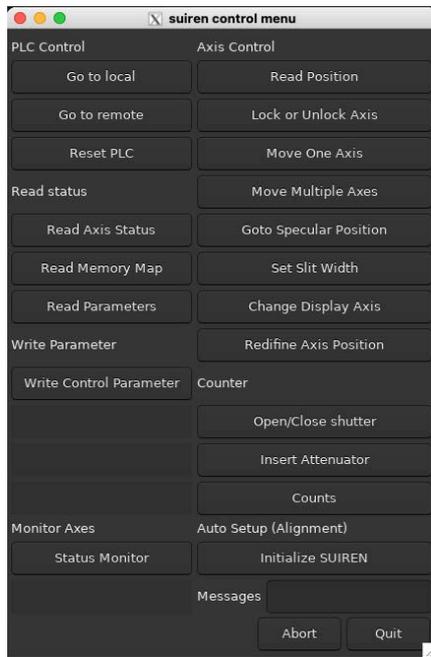


Fig. 1 様々な機能の呼び出し画面

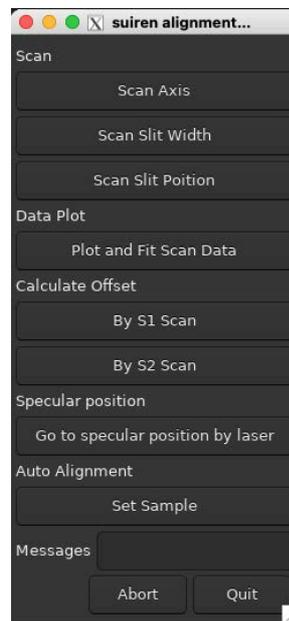


Fig.2 試料の位置値調整



Fig. 3 反射率測定パネル

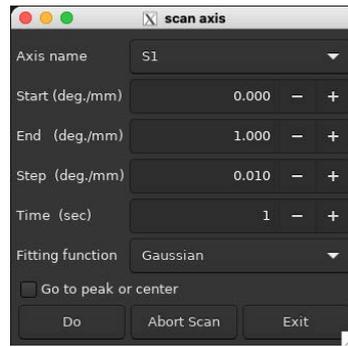


Fig. 4 軸スキャンパネル

測定や軸スキャンが始まると、即座にグラフが表示され測定が進むとデータが更新される。軸スキャンの場合には、測定が終了するとガウス関数または台形関数による fitting が行われて、その結果が表示される。(Fig. 5)

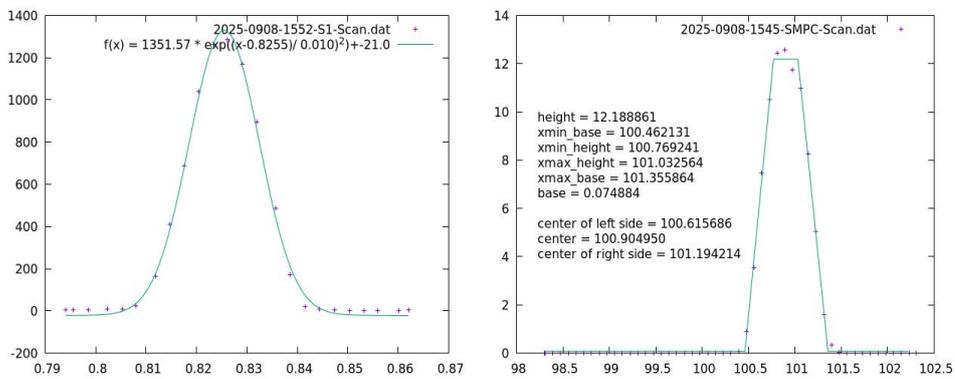


Fig. 5 測定後に表示される fitting の例

使用装置

SUIREN

実施課題 No.

- [1]令和5年度 I845 「SUIREN 装置課題」
- [2]令和6年度 I1086 「SUIREN 装置課題」

MLF 中性子ガイド管の中性子反射率測定 Evaluation of the supermirrors used in neutron guides at Material and Life Science Experimental Facility (MLF)

古府 麻衣子*†、楡井 真実*、Piyawongwatthana Pharit*、河村 聖子*、丸山 龍治**、
曾山 和彦***、盛合 敦****、武田 全康*****

*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

**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

***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

****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

強相関材料物性研究グループ

*****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

†現 東京大学物性研究所 附属中性子科学研究施設

概要

J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) の BL14 冷中性子ディスクチョッパー型分光器 AMATERAS は、2009 年に建設が完了、運用を開始し、2023 年で 15 年が経過している。本測定は、中性子ガイド管の経年劣化に関する評価の一環として行った。BL14 では、当該ガイド管の性能評価として、金箔やバナジウムを用いたフラックス測定を行い (2022-2023 年)、McStas によるシミュレーションの値と比較評価を行ってきた。中性子ガイド管実機の中性子反射率測定の結果は、当該評価の重要な指標になると考えている。この指標を得るために AMATERAS 下流のガイド管 No.23 と No.24 を対象とし、NiC/Ti 多層膜スーパーミラーについて中性子反射率測定を実施した。

測定結果を Fig.1 に示す。ガイド管 No.23 では、 $Q=0.214\text{\AA}^{-1}$ 以下のニッケルの全反射領域 ($m=1$ 以下) の反射率はほぼ 1 であり、基板の平面度およびニッケルの全反射膜の性能は十分に設計値を満している。一方、 $m=1$ 以上のブラッグ反射領域では、設計値に比べて低い値を示している。スーパーミラーの界面粗さの低下が原因と思われる、デバイワラーの評価式を用いた評価が必要である。ミラーの臨界角は、側面内側(公称値 $m=3$)はほぼ設計値に等しく、側面外側(公称値 $m=3.8$)は $m=4$ 程度で、膜厚が狭まった傾向が見られる。ガイド管 No.24(公称値 $m=3\sim 3.8$)では、 $m=1$ でも全反射が確認されず、全体的に反射率は低かった。ブラッグピークが明瞭に確認されており、高 Q 領域のピーク位置は公称の m 値に対応している。ミラー性能が著しく低下した原因は不明であるが、BL14 の試料位置でのフラックスの実測値がシミュレーション結果に比べ 3-4 倍低いことと関連していると考えられる。本測定結果を受け、現在ガイド管の更新が検討されている。

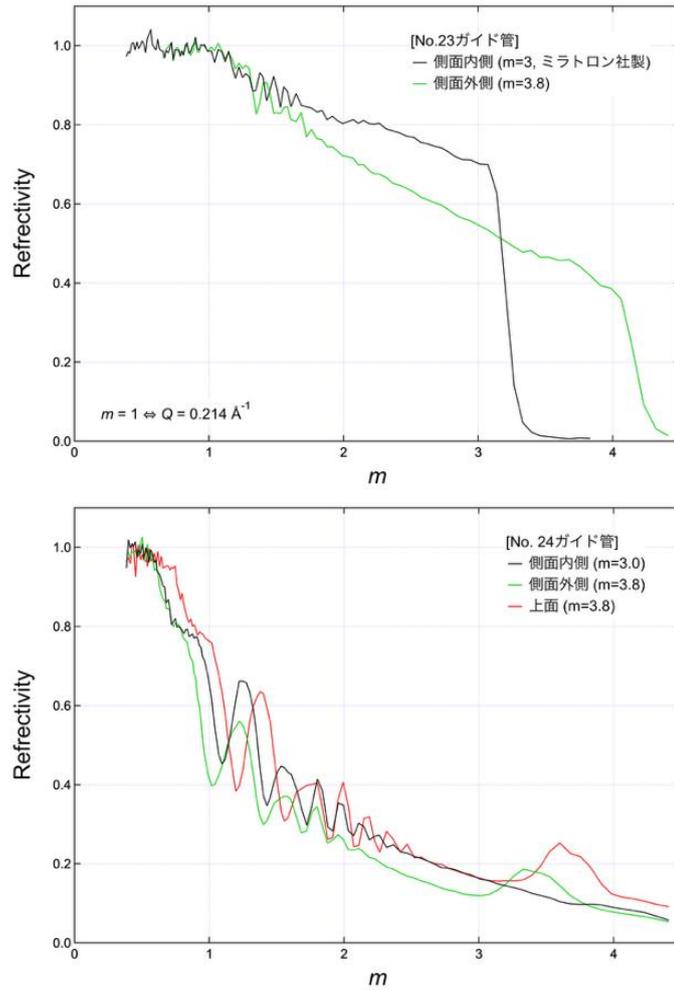


Fig. 1 BL14 で実際に使用されていた No.23 と No24 ガイド管の多層膜スーパーミラーの中性子反射率の Q 依存性。凡例に記載された m 値は公称値である。

使用装置

SUIREN

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 I845 「SUIREN 装置課題」

学会等で発表された成果

- 令和6年12月4～6日
第24回日本中性子科学会第24回年会 於：名古屋国際会議場
山崎 大, 水沢 まり, 桜井 健次
“全反射中性子利用 γ 線分析法の開発：シリコン基板上少量サマリウムの観測”（ポスター）
- 令和6年12月4日
日本中性子科学会第24回年会 於名古屋国際会議場
盛合 敦、武田 全康
“偏極中性子反射率計 SUIREN の現状”（ポスター）

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）…1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° から 30° 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。階層構造を知ることが、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と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 μm までの構造を決定する装置である。SANS-J と併用することで、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)
モノクロメーター	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 偏極アナライザー
^3He 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

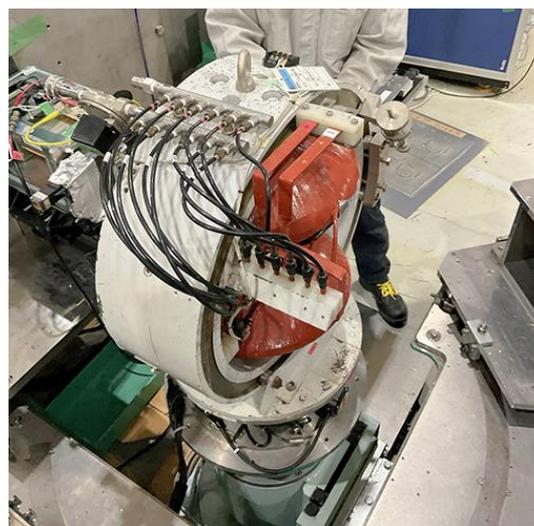
中性子源	熱中性子源
モノクロメーター	シリコン結晶3回反射
中性子波長	$\lambda = 0.2 \text{ nm}$
光学機器	超精密制御回転ステージ
検出器	^3He 検出器

試料環境

・ サンプルチェンジャー



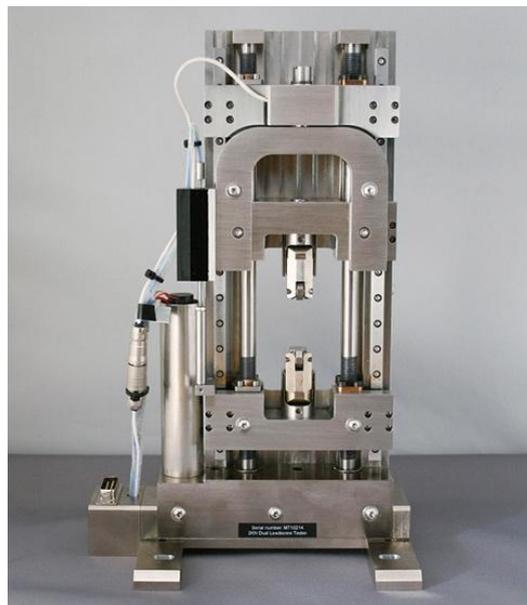
・ 常伝導マグネット (1-T)



・超伝導マグネット(10 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（図 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（図 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（図 1 c-g）。図 2 は、このプロセスを SANS-J でその場観察した結果で、実際に図 1 のスキームに従ってフォトニック結晶がつけられることを確認している（R.Motokawa, T.Kumada et al., *Macromolecules*, 2016）。

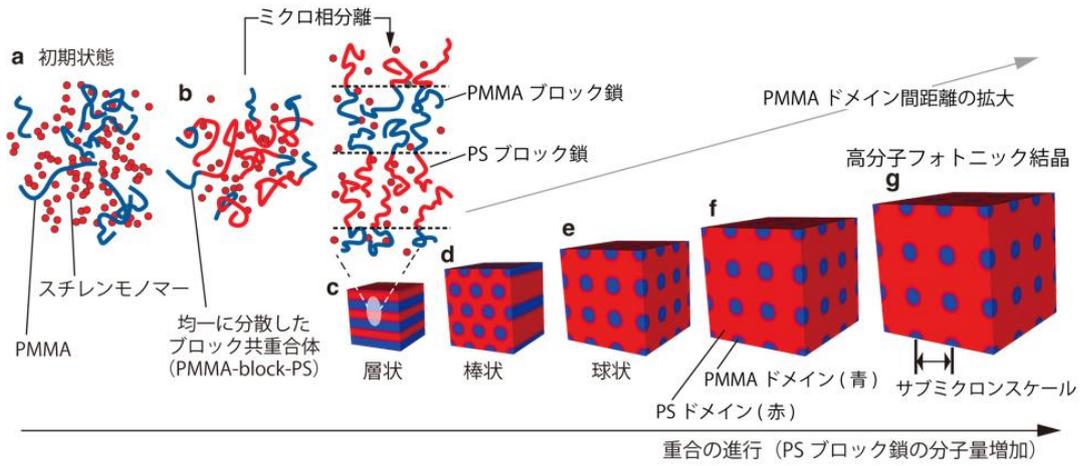


図1 ブロック共重合体の重合誘起相分離を利用した高分子フォトニック結晶の作製スキーム

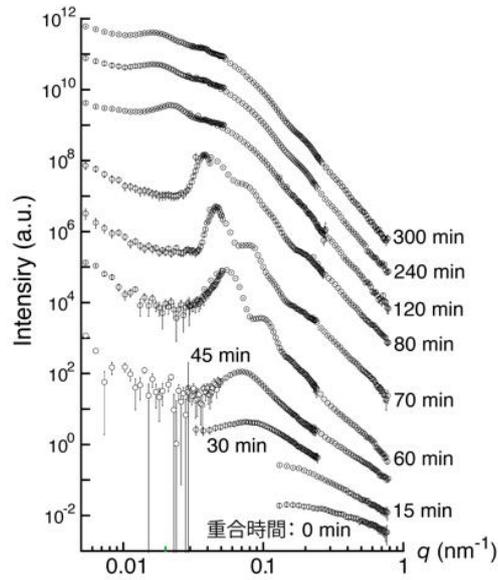


図2. 図1のプロセスをSANS-Jで追跡した結果.

中性子小角散乱法による凍結架橋セルロースゲルの微細構造評価

Microstructural Analysis of Freeze-Crosslinked Cellulose Gels Using Small-Angle Neutron Scattering

関根 由莉奈*

*日本原子力研究開発機構 プロモーション・オフィス

概要

バイオマス系吸着材の構造解析を目的に、ジルコニウム (Zr) を導入したカルボキシメチルセルロースナノファイバー (CMF) ゲルのナノ構造を中性子小角散乱 (SANS) 法で評価した。凍結架橋法により得られた CMF-F-Zr ゲルでは、CMF 単体に見られた約 30 nm の秩序構造 ($Q \approx 0.2 \text{ nm}^{-1}$ のハンプ) が低下し、Zr の浸潤によって構造秩序が減少していることが示された (Fig.1)。これは凍結濃縮層 (FCL) 内での反応によって緻密なネットワーク構造が形成された結果と考えられる。一方、Zr を常温で添加したゲルでは秩序構造が見られず、凍結架橋が均一構造形成に重要であることが分かった。本結果は、吸着性能や機械強度に寄与する内部構造の理解に資するものであり、環境浄化材料の設計指針となる。

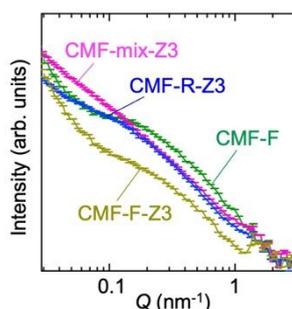


Fig.1 凍結架橋 CMF ゲル (CMF-F、緑)、Zr 添加凍結架橋 CMF ゲル (CMF-F-Z3、黄)、Zr 添加室温架橋 CMF ゲル (CMF-R-Z3、紫)、Zr 直接混合 CMF ゲル (CMF-mix-Z3、ピンク) の SANS パターン

参照

[1] [Yurina Sekine, et al.](#), “Freeze-crosslinking approach for preparing carboxymethyl cellulose nanofiber/zirconium hydrogels as fluoride adsorbents”, *Nanoscale*, vol.16, 9400 (2024).

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D775「コントラスト変調中性子小角散乱法による凍結架橋セルロースナノコンポジットゲルの微細構造評価」
- [2]令和6年度 D1050「コントラスト変調中性子小角散乱によるセルロースナノファイバー凍結反応メカニズムの解明」

相変化する重金属コロイドの秩序：セリウムとトリウムの比較

Order of Phase-Transitioning Heavy Metal Colloids: A Comparison of Cerium and Thorium

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

セラミックスの小型化と機能集約が課題となる中、本研究では排ガス浄化助触媒の原料であるセリア(CeO_2)の製造プロセスを改良し、機能向上に向け、特異的な構造解析を詳細に行うことを研究目的とした。中性子及びX線の小角散乱や先端顕微鏡を駆使した結果、ナノ結晶が集まり階層構造を形成することが分かった。これは、粒子間の引力と反発力のバランスで安定化されるため、サイズの異なる微粒子が共存することで、構造相転移を起こすことが明らかになった(Fig.1)。有機高分子を含まない工程において粒子間の枯渇引力が観測されたことは、新しい発見である。この力を利用して、組織・形態の制御を行えば、機能材料創製に繋がるであろう。

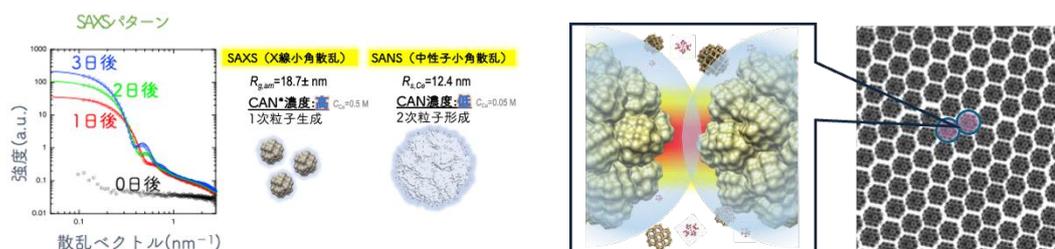


Fig.1 SANSとSAXSの結果を比較し、表面の対イオン凝集層が粒子間引力に繋がることを明らかにした。

参照

- [1] Aoyagi, N. et al., Globular Pattern Formation of Hierarchical Ceria Nanoarchitectures, *Communications Chemistry*, vol.7, issue 1, 128, (2024), p.13.
- [2] プレスリリース：(日経新聞電子版 (R6年6月12日)、日刊工業新聞 (32面、2024年6月17日付)、科学新聞 (1面、2024年6月28日付))：中性子線とナノテクノロジーを武器に「悪魔のつくった表面」を制御するーセラミックスの製造技術の課題を克服し、排ガス浄化触媒に新しい未来を！ー
- [3] 注目論文(Editors' highlight)：2024 Editors' Highlights, *Communications Chemistry*, vol.8, No.1, 2025, p.2.
- [4] JAEA R&D Navigator: https://rdreview.jaea.go.jp/navi_jp/rd_j2024_3-8.html
(参照:2025/03/31).

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D857「相変化する重金属コロイドの秩序：セリウムとトリウムと比較」
- [2]令和6年度 D1061「ウラン(IV)とセリウム(IV)の混合粒子とハイエントロピー化」

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 technique for removing incoherent scattering component at SANS-J

廣井 孝介*、元川 竜平**、上田 祐生**、熊田 高之**

*日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 中性子利用セクション

**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

中性子小角散乱において、偏極度解析法はスピン反転散乱を非反転散乱と識別することで、試料からのスピン非干渉性散乱をその他の散乱成分から定量的に分離することが可能な手法である。一方、解析を行うための偏極光学系を挿入することにより、検出器に到達する中性子強度は約 20%以下に低下し、長い測定時間を要することが SANS-J における偏極度解析測定の問題であった。そこで我々は、試料付近に偏極ビームを集光するための六極磁気レンズを、新たに SANS-J の上流光学系に追加し、偏極ビーム強度を 20 倍以上高めることに成功した (図 1 (a))。その結果、今まで SANS-J では偏極度解析測定が困難であった散乱強度の弱い試料に関しても、定量的に試料からのスピン非干渉性散乱を見積もることが可能であることを示した (図 1(b))。

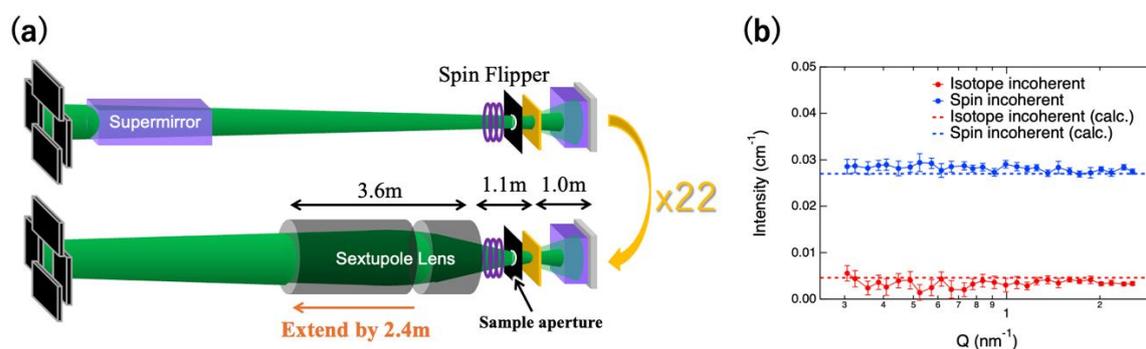


図 1 (a)レンズ集光偏極度解析システムの模式図 (b)偏極度解析測定により得られた V-Ni 合金の同位体/スピン非干渉性散乱プロファイル

参照

[1] Kosuke Hiroi, Rintaro Nakabe, Takayuki Oku, Takayuki Kumada and Ryuhei Motokawa “Extended magnetic lenses increase polarized neutron intensity up to 22-fold in the SANS-J small-angle scattering diffractometer at JRR-3”, *Journal of Applied Crystallography* submitted.

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D869 「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6年度 D1030 「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」

4 級アンモニウム型イオン液体へのウラン抽出挙動と非線形粘弾性に対する水分子の役割

Investigation of the role of water into the Mechanism of non linear viscosity and Uranium extraction from sulphuric Acid Solution with mixtures into a mix of quaternary ammonium ionic liquid

上田 祐生*、GUERINONI Elise**、DOURDAIN Sandrine**、ZIJUN Lu**、
PELLET-ROSRAING Stephane**

*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

**フランス原子力庁 マルクール分離化学研究所

概要

ウラン生産において、AMEX(AMine Extraction)プロセスを用いた溶媒抽出では、アルキル系希釈剤に溶解した第三級アミンが使用される。有機相の安定性や競合元素の共抽出といった実際のプロセスにおける制約から、分子レベルでの詳細な研究が求められている。第三級アミンのアルキル鎖構造を系統的に変更し、長距離相互作用を考慮したイェナ分析法を用いて、ギブズ自由エネルギーの転移における抽出性能の大きな変動を調査した。これにより、有機相の構造化がウランの抽出分配比を2桁のオーダーで変化させることが示され、これは溶媒抽出の標準的な錯体形成理論と矛盾する結果であった。共抽出される水がウランの抽出には必要であり、有効な会合数が4未満の場合、抽出は起きないことが明らかになった。これにより、ギブズ転移自由エネルギーのイェナ分析法におけるフィルム項が抽出性能を支配する要因であることが示された。これは、ウラニウムイオンが錯形成のみでは説明できない現象であり、有機相の構造化を考慮しなければ分配比を定量的に解釈できないことを示している。

参照

[1] E. Guerinoni, F. Giusti, S. Dourdain, J.-F. Dufrêche, 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”, *Journal of Molecular Liquids*, volume 403, 124820, (2024).

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和5年度 K843 「4 級アンモニウム型イオン液体へのウラン抽出挙動と非線形粘弾性に対する水分子の役割」

アミンによるウラン抽出における分岐位置と分岐度の影響

Impact of Branching Position and Degree on Uranium Extraction by Amines

元川 竜平*、上田 祐生*、青柳 登**、GUERINONI Elise***、DOURDAIN Sandrine***

*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

***フランス原子力庁 マルクール分離化学研究所

概要

本研究では、ウラン抽出に用いられる AMEX 法（アミン抽出法）において、三級アミンのアルキル鎖構造が抽出分離性能や有機相の相安定性に与える影響を、中性子小角散乱法（SANS-J）を用いて詳細に解析した。抽出剤の分子構造が有機相中で形成する逆ミセル型凝集体の構造やサイズを SANS-J により定量し、ウランの抽出効率との相関を明らかにした。特に、アルキル鎖の枝分かれが多く立体障害の大きい抽出剤は、有機相中で凝集せずに単分子状態にとどまり、ウラン抽出が著しく低下することが観察された。一方で、窒素から離れた位置に 1~2 本の長い枝分かれをもつ抽出剤は、凝集体の膨張や水・酸の共抽出を促進し、高い抽出性能を示すことが明らかにされた。熱力学的分析を進めた結果、ウランの抽出性能は単なる錯形成ではなく、溶媒膜相の構造形成に支配されることが示された。この膜の柔軟性や希釈剤の浸透性が凝集体の形状や相互作用に大きく影響し、抽出の自由エネルギーに対して高いエントロピー寄与をもたらすことがわかり、SANS-J による構造解析は、この膜構造の変化や凝集体の曲率自由エネルギーを定量的に裏付け、抽出剤設計における分子構造の最適化に重要な知見を提供することが示唆された。結果として、中程度の枝分かれを持つ抽出剤が、第三相の形成を抑制しつつ、ウランの高い抽出性能を維持できる最適な構造であると結論づけられた。

参照

[1] Elise Guerinoni, Sandrine Dourdain. et al., “Impact of branching position and degree on uranium extraction by amines: A supramolecular and thermodynamic study”, *Journal of Molecular Liquids*, vol.403, 124820(2024).

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和6年度 K963 「4級アンモニウム型イオン液体へのウラン抽出挙動と非線形粘弾性に対する水分子の役割」

エマルション液滴のナノ構造観察

Observation of nanostructures in emulsion droplets

上田 祐生*、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

**株式会社エマルションフローテクノロジーズ

概要

我が国の最重要課題の1つである希土類元素資源の安定確保(資源セキュリティの強化)のために、希土類元素の精錬・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、次のような解決すべき課題がある。

1. EF法は、最も汎用的な溶媒抽出法として利用されているミキサセトラ法と比較して、2相混合部におけるエマルション液滴の粒径が均一であり、液滴同士の合体が起きやすいため分相性能が高いと目視による観察から推測されているものの、分子レベルでの根拠はない。また、EF法に優れた分離性能を与えるための主要因についても明らかにされていない。

2. 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。

今回のSANS実験では、これまでの実験で得られた知見を踏まえ、光路長を10mmに変更したSANS用エマルション生成装置を用いSANS実験を行なった。図1にToluene- d_8 /H₂O溶液のOilエマルションのSANSプロファイルを示す。今後、詳細な解析を進めていき2025年度化学工学会における口頭発表及び論文化を進める予定である。

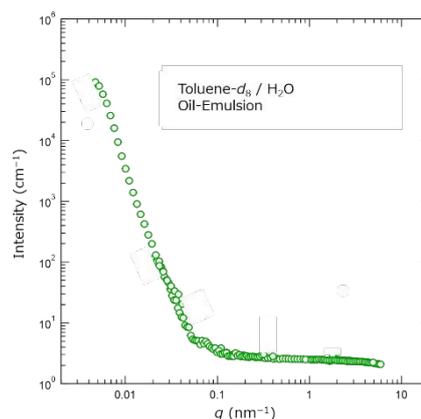


図1 Toluene- d_8 / H₂O溶液のOil-EmulsionのSANSプロファイル

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和5年度 D792「エマルション液滴の液膜厚み及び液膜内の抽出剤の凝集状態の観察」

[2]令和6年度 D995「エマルション液滴の液膜厚み及び液膜内の抽出剤の凝集状態の観察」

浮選による三価イオン分離用ポリエトキシ化カルボン酸界面活性剤 Polyethoxylated carboxylic acid surfactants for the separation of trivalent ions by flotation.

Micheau Cyril*、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

Ion foam flotation uses surfactant molecules to coordinate ions and extract them in a foam phase. This process has potential as an ecofriendly alternative to solvent extraction for the separation and concentration of trivalent rare earth elements (REE) ions. However, selectivity of surfactant molecules for REE remain low, and the concentration property of the foam contribute also to concentrate the surfactant which can lead to phase transition inside the foam structure. In this study we investigate a pH-sensitive polyethoxylated carboxylic acid surfactant, AKYPO, which has proven its efficiency to complex and extract some REE (*i.e.* Nd and Eu). In this way, we investigate the impact of pH (Fig. 1a), surfactant concentration (Fig. 1b and c) and trivalent metal concentration on the surfactant structure in water. It has been revealed that, pH affects the surfactant structure only in very acidic conditions (Fig. 1a), whereas the increase of surfactant concentration show a transition from spherical disperse micelles at low concentration (Fig. 1b) to more crystalline structure at high concentration (Fig. 1c). However, effects of trivalent ions couldn't be clearly established due to low scattering intensity, and experimental conditions will be improved lately.

These results will strongly contribute to the surfactant phase diagram which has never been established so far, and give fundamental data for the design of an ion foam flotation setup for REE separation.

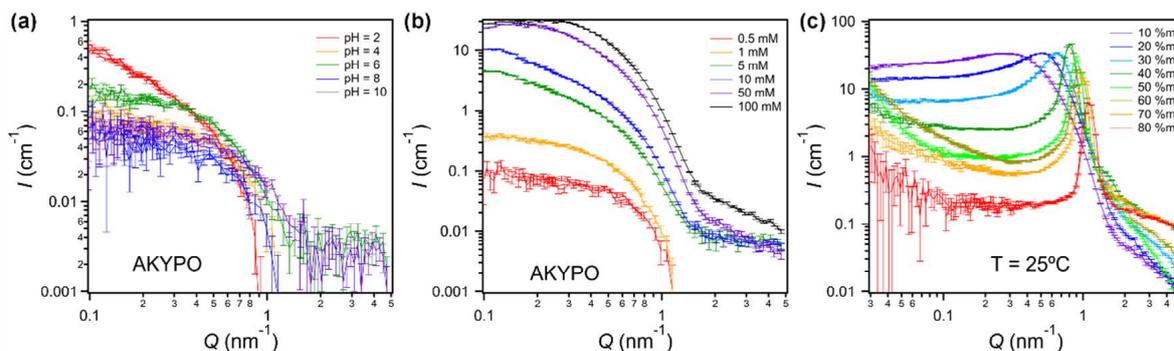


Fig.1 Small-angle neutron scattering data of AKYPO surfactant as function of pH (a) or concentration (b, c)

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D802 「浮遊選鉱におけるミセル形状及び泡膜厚の 3 価金属イオンと pH の影響」

[2]令和 6 年度 D986 「Phase diagram of pH-sensitive foaming surfactant」

溶媒抽出による選択的重要原材料分離のための凝集体サイズ制御

Aggregate size control for selective critical raw materials separation by solvent extraction

Micheau Cyril*, 上田 祐生*, 元川 竜平*, Damien Bourgeois**, Marie Simonnet**

*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

The growing demand of platinoid group metals (PGM) and rare earth elements (REE) imposes the development of more efficient and selective separation processes. Recently, the liquid-liquid extraction (LLE) process using malonamides molecules as extractant has highlighted an aggregate size-recognition effect explaining the metal ion selectivity. In this study, a fine control of extractant aggregate size to tune the selectivity was attempted through 2 different approaches: (i) adjusting the composition of organic phase (toluene-heptane mixture, Fig. 1a), and (ii) adjusting the ionic strength of the aqueous phase (Fig. 1b). The size of the aggregates was probed using small-angle neutron scattering (SANS) and it was revealed that toluene hindered the aggregation while increasing the heptane content or the ionic strength increases the size of the aggregates which ultimately reduce the selectivity.

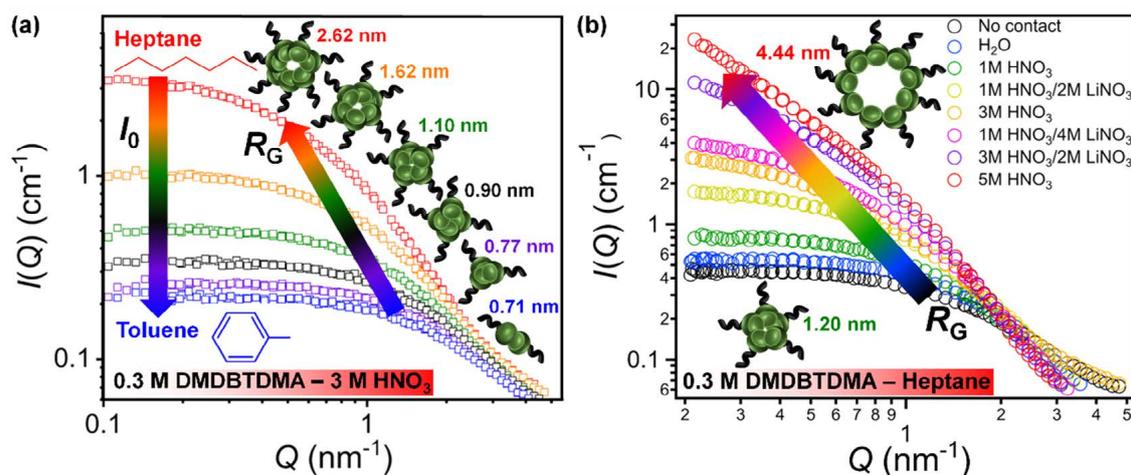


Fig.1 Aggregation size control by (a) toluene content, and (b) aqueous phase composition revealed by small-angle neutron scattering (SANS)

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和5年度 D804 「パラジウム・ネオジムの抽出分離におけるマロンアミド凝集体の溶媒効果」

[2]令和6年度 D984 「Effect of temperature and nitrates on malonamide aggregation」

希釈剤 1-オクタノールの凝集挙動に関する研究 Study of the aggregation behavior of the diluent 1-octanol

SIMONNET Marie*、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 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 階層構造研究グループ

概要

最近の研究で、カリックスアレン-クラウンエーテルを用いたセシウム (Cs) の抽出において、1-オクタノール希釈剤抽出系における抽出挙動が、1-オクタノールに特有の化学的性質が抽出に影響を与えることが示唆されている。従来の古典的な抽出平衡反応式では、配位子 (L) と抽出対象物質 (CsCl) との錯体形成 ($\text{Cs}^+ + \text{Cl}^- + \text{L} \rightleftharpoons \text{CsClL}$) に抽出反応は説明される。この反応式から、水相中のアニオン濃度が増加すると抽出効率も増加し、1つのアニオンが抽出されるため、この増加は線形 (両対数スケールでの 1 乗または勾配 1) であるはずである。しかしながら、実際の抽出挙動の硝酸濃度依存性は、非線形的な増加傾向を示しており、この抽出メカニズムに関する理解が求められている。本研究では、カリックスクラウンエーテル (MAXCalix) の 1-オクタノール溶液による水、無機酸、及び Cs 抽出時の有機相に関して SANS 測定を行うことで、構造科学的に理解できないかを検証した。図 1 に 0.02 M MAXCalix の 1-オクタノール溶液 / H₂O、1 mM HNO₃ 水溶液、または 7.7 ppm Cs の 1 mM HNO₃ 水溶液系における各有機相の SANS プロファイルを示す。得られた SANS プロファイルに対し Guinier 解析を行ったところ、系内の散乱体の回転半径は、それぞれ 0.178 nm (/水)、0.177 nm (/1 mM HNO₃ 水溶液)、および 0.175 nm (7.7 ppm Cs の 1 mM HNO₃ 水溶液) であった。今後、無機酸の種類 (HCl など)、イオン強度の影響等を検証し、再度 SANS 実験を行なうことで、0.02 M MAXCalix の 1-オクタノール溶液抽出系における抽出挙動の変化を構造科学的な視点から検証し、最終的には論文文化につなげる予定である。

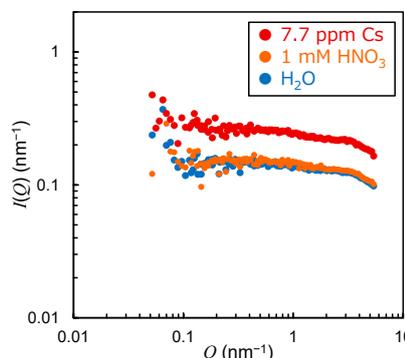


図1 0.02 M MAXCalix in 1-octanol / 7.7 ppm Cs in HNO₃系の有機相に関するSANSプロファイル

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和5年度 D808「溶媒抽出における希釈剤 1-オクタノールの凝集挙動」

イオン液体による金属イオンの抽出におけるマイクロ構造の寄与

Contribution of microstructure to the extraction of metal ions using ionic liquids

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

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。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り、原子力分野では、高レベル放射性廃液中の核分裂生成物の分離への適用が検討されている。この溶媒抽出法では、一般的に希釈剤として使用する炭化水素系の有機溶媒が使用されるが、揮発性および毒性があり人体や環境に対して有害であるという課題がある。それに対しイオン液体は、不揮発性、不燃性、および高い熱安定性などの優れた性質を有するため、有機溶媒の代替として利用した研究が行なわれている。近年、申請者らはウレア基を導入したイミダゾリウム系イオン液体を合成し、従来の有機溶媒系では不可能であった、Pt と Pd の相互分離が pH 変化のみで可能であることを報告した。Pt または Pd を抽出したイオン液体相の UV-vis および EXAFS スペクトル解析から、Pt と Pd はそれぞれ外圏錯体(PtCl_6^{2-})と内圏錯体(PdCl_2)として抽出されることが示された。しかしながら、イオン液体系のみでこの選択性が発現する明確な理由は分かっていない。そこで、本研究では、小角中性子散乱測定により 1 nm 以上の空間スケールにおける構造情報を取得し、それらのナノ構造の有無が抽出挙動に及ぼす影響を検証した。図1に有機ウレア抽出剤の n-オクタン溶液とウレアイオン液体の SANS プロファイルを示す。この結果から、従来の有機抽出系では観察されていた比較的大きな凝集体は、イオン液体抽出系では形成されていないことが示唆された。今後、更なる解析及び小角 X 線散乱測定を行い、中性子と X 線から得られる構造情報を相補的に比較することで、抽出メカニズムへの理解を深め論文化する予定である。

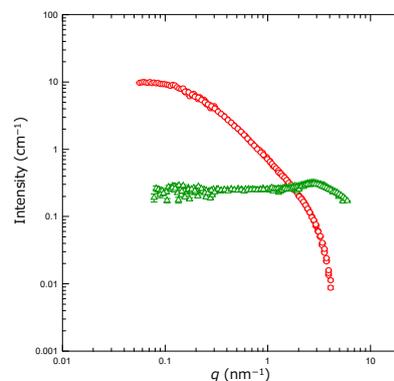


図1 有機ウレア抽出剤のn-オクタン溶液(赤)およびウレアイオン液体(緑)のSANSプロファイル

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D820「ウレアイオン液体による Pt 及び Pd 抽出におけるマイクロ構造の寄与」
 [2]令和6年度 D1001「ビスウレア抽出剤による Rh(III)における水素結合ネットワークの寄与」

中性子小角散乱による鉄ナノ粒子高密度集合体の磁気構造解析 Magnetic structure analysis of dense assembly of Fe nanoparticles by SANS

廣井 孝介*、熊田 高之**

*日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 中性子利用セクション

**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

強磁性体ナノ粒子は、一方向に磁化した単磁区構造をとるため、その高密度な集合体内では粒子間の磁気双極子相互作用により、単純な超常磁性とは異なる粒子磁気モーメントの磁気秩序が低温で生じる。我々はバルク鉄に近い 180 emu/g という強い自発磁化を有する平均粒径約 7nm の鉄ナノ粒子の高密度集合体を作製し、中性子小角散乱(SANS)法により、粒子の磁気モーメントの配列情報や、内部で形成される磁気ドメイン構造の大きさに関する情報を取得することを試みた。

実験では、SANS-J に 1T 電磁石と冷凍機を組み合わせた実験体系を準備し、アルミセル中に封入した鉄ナノ粒子集合体試料から生じる中性子小角散乱の温度依存性と磁場依存性の測定を行った。1T の強磁場を印加した状態では、試料の磁化は磁場方向に飽和していると考えられるため、その磁場に並行な成分の SANS データから試料の核散乱プロファイルを取得でき、ナノ粒子がほぼ高密度ランダム充填されていることを示唆する散乱プロファイルを得ることができた。また、室温から 10K 程度の低温までの小角散乱データから核散乱プロファイルを差し引くことにより、試料の磁気散乱成分の温度依存性を調べたところ、試料の冷却に従い、強い磁気散乱が観測されることが分かった。この結果から、最近接粒子間距離より大きな構造を有する磁気秩序が低温で発達していると考えられる。

また、SANS-J は常設の偏極度解析装置を有するため、SANS 測定と同時に、透過偏極度解析を行う実験も試みた。その結果、試料の透過偏極度も試料の温度や印加する磁場の大きさに依存して変化することが分かった。磁性体による透過偏極度の減少具合（減偏極）からは、試料透過方向において隣り合う磁気的構造の相関距離情報を議論できるため、この結果からも試料中のミクロな磁気構造の大きさ情報を引き出せる可能性がある。現在、SANS 情報と減偏極情報両面から試料中に生じる磁気的構造情報の定量解析に取り組んでいる。

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 D868 「中性子小角散乱による鉄ナノ粒子高密度集合体の磁気構造解析」
- [2]令和 6 年度 D1040 「中性子小角散乱による鉄ナノ粒子高密度集合体の磁気構造解析」

植物由来蛋白質の押し出し過程におけるナノ構造変化の解析

Analysis of changes in fiber structure and hydration structure of plant-based proteins during extrusion

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

近年、本物の食感、風味、外観を人工的に再現した代替肉が世界的に注目されており、持続性の高いタンパク質供給手段として期待されている。押し出し成形により製造される肉様繊維構造を模倣することは食感の再現に有効であると考えられているが、ナノメートルスケールでの繊維化のメカニズムや、繊維構造が食感の発現にどのように関与しているかは未解明である。先行研究では、押し出し成形時のタンパク質と水の相分離がタンパク質の線維化を誘導すると予測されているが、実際の加工条件の決定は経験的に行われることが多く、食感や保水力（WHC）などの食品の機能特性を予測・制御するには分子論的根拠が必要とされている。

本研究では、保水性（WHC）や食感など、食品としての機能特性が異なる植物性タンパク質について、小角中性子散乱（SANS）を用いて、押し出し成形時に形成されるナノ構造を解析する。代替肉を構成するタンパク質の分子量は数万オーダーであるため、広いナノスケールのQ領域をカバーする SANS-J 装置は構造解析に有効である。本実験では、押し出し前後でナノスケールの構造変化が確認され、特に小角領域では押し出しによって散乱強度の増大が確認され、ナノスケールの凝集構造が形成されることが示唆された。このような押し出しで形成される凝集構造は WHC に直接関連し、レオロジー特性と密接に関連していると考えられる。SANS は、タンパク質マトリックス中のタンパク質凝集状態を分析するために効果的であることが分かり、物性の異なる様々な代替肉のナノ構造解析に有効であると考えられる。

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1] 令和6年度 D1014 「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」

マイナーアクチノイド分離能力に及ぼす側鎖アルキル基の影響 Effect of alkyl side chains on minor actinide separation

伴 康俊*、中村 聡志**、元川 竜平***

*日本原子力研究開発機構 N X R 開発センター 分離・利用技術開発特別チーム

**日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター 原子力基盤技術開発グループ

***日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

概要

高レベル放射性廃液(HLLW)に含まれるマイナーアクチノイド(MA)や核分裂生成物の効率的な分離手法の開発は、原子力機構における最重要課題の1つである。申請者らは、使用済核燃料溶解液の再処理と HLLW からの MA 分離を統合した分離プロセスである「SELECT プロセス」の開発に成功している。この SELECT プロセスでは、アミドアミン系抽出剤が用いられ、これらの抽出剤はいずれもアミノ基またはアミド基が金属イオンと相互作用することで抽出能力を発現しているが、金属イオンと直接相互作用しないアルキル基が及ぼす抽出分離性能への影響は、未だに曖昧な解釈しかなされていないのが現状である。本申請では、側鎖アルキル基の構造が異なる4種のトリアミドアミン抽出剤が有機相中において形成する凝集構造を、中性子小角散乱法により観察し、金属イオンの抽出能力に及ぼす側鎖アルキル基の影響を検証した。図1に得られた SANS プロファイルを示す。得られた SANS プロファイル(図1)から、有機相中で形成されるナノ構造体のアルキル側鎖の違いによる影響が系統的に観察できていることが分かる。今後、詳細な解析を進め、2025年度溶媒抽出討論会、及び学術論文として発表する予定である。

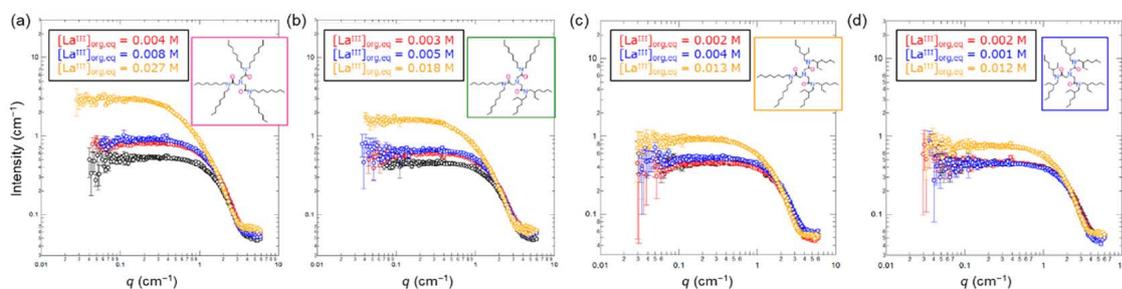


図1 アルキル側鎖が異なるトリアミドアミンによる La 抽出後有機相の SANS プロファイル
使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和6年度 D1023 「マイナーアクチノイド分離能力に及ぼす側鎖アルキル基の影響」

干し芋澱粉のナノスケールの階層構造解析

Hierarchical structure of starch of dry potato during drying process

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

干し芋は茨城県東海村やひたちなか市の名産品である。そ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。干し芋は乾燥によりその水分含量が減少し、保存性が増すと考えられるが、乾燥に伴う分子構造の変化は未解明である。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。澱粉構造の水分量依存性を調べるためには、これら異なる時空間スケールの現象のつながりを解析し、ナノからマイクロスケールに広がる澱粉の複雑な階層構造を調べる必要がある。本研究では、干し芋の澱粉の階層構造が、干し芋作成過程においてどのように変化するかを調べた。

干し芋の澱粉は蒸すことでナノスケールの規則的な構造体が崩壊することが観測された。また、同時に測定した顕微鏡観察では生の状態では細胞内に澱粉粒が観測されるが、蒸すことで糊化し澱粉が細胞内で非晶質化していることが観測された。また、乾燥過程において、大きな空間スケールで観測された散乱プロファイルを現在解析中である。これらの結果は、今後、水分活性やレオロジー特性、糖度などとの関係性を調べるほか、原料芋の品種による違いを調べることで、品種ごとに高品質な干し芋を作れるような分子基盤を解明していく。

使用装置

PNO

実施課題 No.

[1] 令和6年度 D1082「干し芋の乾燥過程における澱粉の階層構造の解析」

笠間焼中における欠陥の小角散乱測定 Small-angle scattering measurement of defects in Kasama ware

杉田 剛*、上田 祐生*、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

多孔性は、セラミックスの物性に影響を与える重要な要因の一つである。これは、機械的強度（例：強度、硬さ）、電気伝導率、熱伝導率、化学的侵食への感受性、透水性、吸水性、耐火性などに大きく影響する。孔体積、孔径、孔表面積、および比表面積も、セラミックス材料の組織的物性に大きく寄与する。セラミック材料の多孔率は、原料の組成と焼成温度に強く影響を受けることが知られている。粘土組成と焼成温度が最終的な孔径分布に与える影響を定量的に評価することは、高品質なセラミックの開発と製造において不可欠である。

そこで我々は、粘土の種類（純粋な笠間土と笠間ブレンド土）と焼成温度（1210–1290 °C）が笠間焼の開気孔または閉気孔の孔径分布に与える影響を、SANS 測定によって調査した。

笠間ブレンド土から作製した試料は、笠間土から作製した試料に比べて小さな孔の割合がより多かった。両方の粘土において、焼成温度の上昇に伴い孔が粗大化し、総孔率が低下した。D₂O 吸着試料の SANS 曲線は、乾燥試料と比較して測定範囲全体で強度が低下したことから、SANS 測定範囲（数十ナノメートルから数マイクロメートル）の開気孔は水の吸着に関与していることが明らかとなった。

使用装置

SANSJ, PNO, TNRF

実施課題 No.

[1]令和6年度 D1094「笠間焼中における欠陥の小角散乱測定」

**地層処分環境におけるアクチノイド水酸化物固相の
中性子マルチスケール構造解析**
**Structural analysis of actinide hydroxide solid phases for safety assessment of
geological disposal**

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

* 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 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 階層構造研究グループ

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アモルファス水酸化物沈殿を形成する。現在の安全評価では、このアモルファス水酸化物沈殿を溶解度制限固相とし、地下水中のウランやトリウム濃度の予測が行われている。しかし、例えば、天然環境に存在するウランの代表的な固相形態は、アモルファス水酸化物沈殿ではなく、閃ウラン鉱 (UO_{2+x}) やコフィン石 ($\text{U}(\text{SiO}_4)_{1-x}(\text{OH})_{4x}$) などの酸化鉱物やケイ酸塩鉱物であることが知られている。これまでの安全評価では、より溶解度が高いアモルファス水酸化物沈殿 ($\text{U}(\text{OH})_4(\text{am})$ や $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$) が保守的に溶解度制限固相として設定されてきたが、より現実的な長期の安全評価のためには、アモルファス水酸化物沈殿から酸化鉱物やケイ酸塩鉱物へ変化する変遷過程を解明する必要がある。

本研究では、重水を用いて $\text{Th}(\text{OD})_4(\text{am})$ を含む試料溶液を調製し、pH12 および 90°C 下で静置することで、アモルファス水酸化物沈殿から酸化物への変化を加速させた。中性子小角散乱法を用いて、アモルファス水酸化物沈殿の凝集構造や粒径の変化を調べた。さらに、Pu の化学アナログとされる Zr のアモルファス水酸化物沈殿 ($\text{Zr}(\text{OD})_4(\text{am})$) を pH12 および 90°C 下で静置した試料を合わせて測定し、元素による違いを調べた。中性子回折や X 線分析の結果と合わせて、マルチスケールでの構造変化を継続して調べる。

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 K815 「地層処分環境におけるアクチノイド水酸化物固相の中性子マルチスケール構造解析」

リン脂質膜の可溶化剤としての無機ナノイオン Inorganic Nano-ions as solubilizers of phospholipids membranes

Olivier Diat*, Pierre Bauduin*, Hussein Fakhouri*, Coralie Pasquier*, 上田 祐生**

*フランス原子力庁 マルクール分離化学研究所

**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

脂質膜の可溶化に至るプロセスを理解することは、バイオテクノロジーや産業応用において極めて重要である。具体的には、細胞膜の可溶化と再構成を完全にコントロールすること、適切な洗浄剤を使用すること、目的とするタンパク質の変性を避けることが、膜タンパク質の最良の抽出に必要である。本研究の目的は、COSAN、 I_2 COSAN、FeSAN や、水中で凝集しない $B_{12}I_{12}$ 、 $B_{12}Cl_{12}$ のような他のホウ素誘導体のような超カオトロピックナノイオン(NI)の、ホスファチジルコリン(PC)膜の可溶化に関して、小角中性子散乱(SANS)を用いた構造科学的検証を行うことである。SANS 実験は、2つのホスファチジルコリン濃度(5 mMと15 mM)で6つのNI/PC比について検討した。図1に5 mM PCにおけるNI/PC比の変化が及ぼすSANS プロファイル変化を示す。図1から、NI/PC比の変化に伴い、 $q < 2 \text{ nm}^{-1}$ 領域における散乱強度が増加していた。今後、他の条件についても詳細な解析を進めることで論文化する予定である。

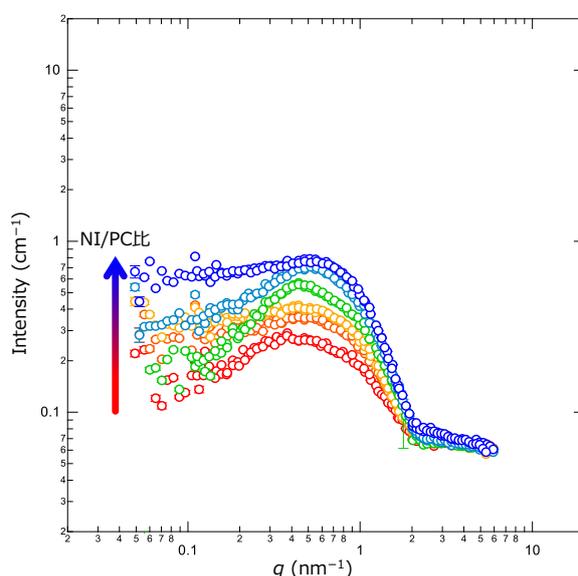


図1 5 mM PC濃度における6つのNI/PC比試料のSANSプロファイル

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和6年度 K1007「リン脂質膜の可溶化剤としての無機ナノイオン」

**4 価アクチノイドのアモルファス水酸化物固相の安定性解明に向けた
中性子構造解析**
**Structural analysis of actinide hydroxide solid phases for safety assessment of
geological disposal**

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

* 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 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 階層構造研究グループ

概要

周期律表の第 IV 族元素を中心とし、アクチノイド元素やその他遷移金属元素の中には、水溶液中で 4 価の酸化状態をとるものが存在する。水溶液に溶解した 4 価金属イオンは、加水分解反応により非晶質（アモルファス）の水酸化物（ $M(OH)_4(am)$ ）を形成し、熱力学的には不安定とされながら、様々な環境中で安定に存在することが知られている。アモルファス水酸化物は、その構造的な脆さから準安定コロイド粒子の発生源となったり、固液界面における再沈殿層として見かけの溶解度上昇に寄与したりする可能性が指摘され、原子力のバックエンドプロセスにおける核燃料物質や核分裂生成物の化学的挙動の予測を乱す一因となっている。 $M(OH)_4(am)$ の水溶液中での安定性を明らかにするためには、溶存化学種との溶解平衡反応の熱力学定数である溶解度積（ K_{sp} ）が指標となるが、 $M(OH)_4(am)$ を構成する粒子サイズが数十 nm 以下の領域では、表面自由エネルギーの影響により $\log K_{sp}$ が粒子サイズに反比例して大きくなる（粒子サイズ効果）。このため、 $M(OH)_4(am)$ の熱力学的な安定性の理解には、数 nm～数十 nm の領域における粒子サイズの把握が必要となる。

本研究では、R5 年度より継続して、重水を用いて $Th(OD)_4(am)$ を含む試料溶液を調製し、分析している。 $Th(OD)_4(am)$ を含む試料溶液を pH8, 12 および 25, 90°C 下で静置した後、中性子小角散乱法を用いて、アモルファス水酸化物沈殿の凝集構造や粒径の変化を調べた。

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1] 令和 6 年度 K1016 「4 価アクチノイドのアモルファス水酸化物固相の安定性解明に向けた中性子構造解析」

有価金属の分離のための自己適応型溶媒抽出システム

Self-adaptive solvent extraction systems for the separation of valuable metals

Micheau Cyril*、上田 祐生*、元川 竜平*、Damien Bourgeois**、Marie Simonnet**

*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

Waste of electric and electronic equipment (WEEE) are considered for the recovery of valuable metals such as Palladium (Pd), gold (Au) or iron (Fe). The hydrometallurgical treatment of WEEE follows several steps: (i) shredding of the waste into small particles to facilitate further processing, (ii) pyrometallurgical or hydrometallurgical treatment which leads to a complex mixture of metal elements, and (iii) hydrometallurgical separation to isolate the different metals. Among them, solvent extraction demonstrated its efficiency and reliability. However, the separation of the metal feeds implies a high number of steps. To reduce this number, self-adaptive systems were developed. For example, tributyl phosphate (TBP) and dioctyl sulfide (DOS) in dodecane can separate Pd(II) and Cu(II) in chloride media. The two metals separate with Cu(II) in the aqueous phase and Pd(II) in the organic phase. By adding Fe(III) in the feed solution, the organic phase self-adapts through organic phase splitting, with Cu(II) remaining in the aqueous phase, Pd(II) in the upper organic phase, and Fe(III) in the lower organic phase. The driving forces and origin of phase splitting is not well understood but is expected to arise from extractant supramolecular organization. In this way, molecular structure information is required, and can be determined by small-angle neutron scattering.

In this first attempt, we investigated the effect of extracted metal ion concentration on two different types of self-adaptive system: (A) TBP in dodecane for Au or Fe extraction, and (B) malonamide (DMDBTDMA or THeMA) in toluene for Pd extraction. The system A adapts to the extraction of metal (Au or Fe) through the swelling of TBP spherical aggregates (from around 7 nm to 10 nm at high metal loading). On the other hand, the system B adapts through extractant structure transition, from small associates at low metal loading, to large aggregate and finally superclusters at high metal loading without the occurrence of phase splitting.

This research has high potential to bring new concepts to the solvent extraction process for the recovery of critical raw materials resources but also for the separation of high-level radioactive waste.

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和6年度 K1056 「Formulation of organic phases for self-adaptive metal separation」

反射率測定に変わる中性子小角散乱用回転セルの開発
**New rotating emulsion cell for SANS experiment as an alternative to standard
 neutron reflectivity geometry**

元川 竜平*、MICHEAU Cyril*、上田 祐生*、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

**フランス原子力庁 マルクール分離科学研究所

概要

Solvent extraction process is a well-known method employed for the separation of metallic entities from an aqueous phase to an organic phase. This process is based on the mass transfer of metal that occurs at the interface through the coordination by extractant molecules. Recent studies based on Neutron reflectivity (NR) have proved that these latter form an adsorbed layer at the interface. Nevertheless, probing these interfacial layers using NR is quite complicated (low intensity, unique interface, time and solvents consuming). In this study, we developed a new rotating cell (see Fig. 1a) dedicated to the SANS-J beamline (see Fig. 1b) as an alternative to NR. These preliminary tests confirm the production of emulsion droplets (see insert) with large size giving only a low contribution to the SANS (Porod) signal. Further testing will be made to produce more fine emulsion and increase the quality of the SANS signal by improving the experiment design.

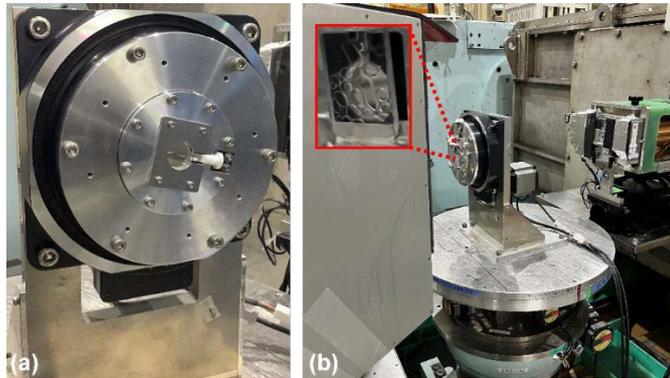


Fig.1 New rotating cell (a) adapted to the SANS-J beamline at JRR-3 (b) producing emulsion droplets (insert)

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和5年度 D806 「反射率測定に変わる中性子小角散乱用回転セルの開発」

[2]令和6年度 K1013 「液-液界面を観察するための中性子小角散乱測定」

低バックグラウンド超高純度アルミニウム窓の導入

Installation of low background ultrahigh purity aluminium window

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

アルミニウム合金（A6061, A5052 など）は中性子の透過性が良いことから中性子窓としてよく使われている。しかしながら、小角散乱実験においてはそのアルミニウム窓からの散乱が強くなり、微小信号の測定を妨害してきた。そこで我々は、アルミニウム材に含まれる不純物を極力排した純度 99.999%以上の超高純度アルミニウム(5N-Al)の SANS プロファイルを測定したところ、合金に比べ 5 N-Al の散乱強度は $Q < 0.1 \text{ nm}^{-1}$ で数桁も小さいことを見出した(図 1)。そこで、機械強度を考慮し 3 mm厚に加工した 5 N-Al 窓を SANS-J に実装したところ、1 mm厚の A6061 窓を用いた時に比べ、バックグラウンドが $Q = 0.03 \text{ nm}^{-1}$ で 1/30 になるなど顕著な効果が得られた(図 2)。

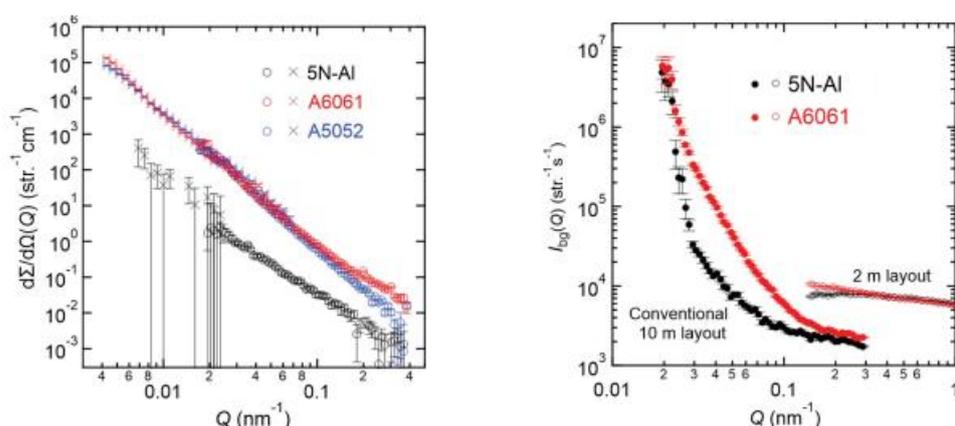


図1 各アルミ材の SANS プロファイル 図2 各中性子窓を用いた SANS-J のバックグラウンド

参照

- [1] Takayuki Kumada, Ryuhei Motokawa, & Hiroki Iwase, “Low-background ultrahigh-purity aluminium window for small-angle neutron scattering using monochromatic cold neutrons”, *Journal of Applied Crystallography*, 57, 728-733 (2024).

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

- [1]令和5年度 I814「SANS-J と PNO の整備及び高度化」

長尺強集光磁気レンズの導入

Installation of tight-focusing magnetic lens

熊田 高之*、廣井 孝介**、中部 倫太郎*、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

**日本原子力研究開発機構 J-PARC センター

概要

六極磁石を用いた中性子磁気レンズは、これまで偏極中性子の集光装置として $Q < 0.05 \text{ nm}^{-1}$ の超小角散乱測定に用いられてきた。それに対し我々は、集光距離 f をこれまでの 5 m から 2-3 m に短縮した長尺強集光磁気レンズを導入して試料位置にビームを集光して $Q > 0.2 \text{ nm}^{-1}$ の中角散乱の高強度化を試みた。導入の結果、強集光磁気レンズ導入前に比べ、非偏極ビームで 3 倍以上、偏極中性子ビームでは最大 30 倍にフラックスが増加した。また、磁気レンズは片方にスピンの向いた中性子を集光し、もう片方にスピンの向いた中性子を発散させる。そこで、集光点を試料直前のスリット位置に合わせると、発散した中性子のほとんどが遮られる結果、90%以上の高い偏極度が得られることがわかった。また、その偏極中性子強度は、従来の偏極ミラーを用いた時に比べて最大 30 倍になることが判明した。

この高強度偏極中性子を用いて、これまで強度不足によって実現が難しかった偏極解析実験を行った。結果、ベヘン酸銀や VNi などの試料において干渉性散乱と非干渉性散乱をきれいにわけられることが判明した。本結果は現在論文にまとめ投稿中である。

使用装置

SANS-J

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 I1077 「SANS-J および PNO の整備」

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
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)
- 令和5年9月13～15日
日本応用糖質科学会 2023年度大会(第72回) 於：沖縄
平田 芳信、金子 文俊、ラドゥレスク オーレル、西津 貴久、
勝野 那嘉子、今泉 鉄平、中川 洋
“SANS/FTIR-ATR 同時測定法による澱粉老化の解析”(口頭)
- 令和5年9月24～27日
13th Design and Engineering of Neutron Instruments Meeting (DENIM XIII)
於：東海
熊田 高之、元川 竜平、中部 倫太郎、廣井 孝介、奥 隆之、岩瀬 裕希
“90% background reduction using 99.999% aluminium windows and 30 times
enhancement of polarized neutron flux using extended short-focal-length magnetic
lenses in SANS-J at JRR-3”
- 令和5年9月24～27日
13th Design and Engineering of Neutron Instruments Meeting (DENIM XIII)
於：東海
廣井 孝介、熊田 高之、中部 倫太郎、元川 竜平、奥 隆之
“Polarization analysis method for removing incoherent scattering component at
BL15 TAIKAN and SANS-J”
- 令和5年9月24～27日
13th Design and Engineering of Neutron Instruments Meeting (DENIM XIII)
於：東海
中部 倫太郎、熊田 高之
“Development of a proton polarized apparatus”

- 令和5年10月19～20日
第42回溶媒抽出討論会 於：長岡
上田 祐生、ミシヨ シリル、元川 竜平、徳永 紘平、阿久津 和宏、
山田 悟史
“フルオラス抽出系と有機抽出系における抽出機構の違い：界面およびバルク抽出
相における抽出剤の構造化”(口頭)
- 令和6年9月1～6日
6th International ATALANTE Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable
Fuel Cycles (2024) 於：アヴィニョン
Cyril Micheau, Yuki Ueda, Ryuhei Motokawa, Kazuhiro Akutsu-Suyama, Norifumi
L. Yamada, Masako Yamada, Sayed Ali Moussaoui, Elizabeth Makombe, Daniel
Meyer, Laurence Berthon, Damien Bourgeois
“Potential of aggregation control for solvent extraction separation” (口頭)
- 令和6年9月1～6日
6th International ATALANTE Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable
Fuel Cycles (2024) 於：アヴィニョン
Yuki UEDA, Cyril MICHEAU, Ryuhei MOTOKAWA, Kohei TOKUNAGA,
Kazuhiro Akutsu, Norifumi YAMADA
“Differences in extraction mechanisms between fluoruous and organic extraction
systems: structuring extractants at the interface and in the bulk extracting phase”
(ポスター)
- 令和6年10月18日
J-PARC Workshop 2024 Deuterium Science Entering an Advanced Phase 於：水戸
Yuki UEDA
“A Comparison from the Perspectives of Coordination Structures, Interfaces, and
Bulk Extraction Phases: Fluorous and Organic Extraction Systems” (口頭)
- 令和6年10月31日～11月1日
第43回溶媒抽出討論会 於：水戸
上田 祐生
“有価金属元素の高効率分離のための新規抽出剤及び抽出系の開発、並びにその抽
出メカニズムの解明”(口頭)

- 令和6年10月31日～11月1日
第43回溶媒抽出討論会 於：水戸
上田 祐生、ミシヨ シリル、永野 哲志、元川 竜平
“中性子小角散乱法によるエマルション液滴ナノ構造の観察手法の開発”（ポスター）

独自利用以外の課題実施状況

SANS-J

○施設供用課題…75件

成果占有課題（トライアルユース含む）…12件

成果非占有課題…63件

成果非占有課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
パーキンソン病発症と関連する天然変性蛋白質 α -シヌクレインの「構造」解析	量子科学技術研究開発機構
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研究	京都大学
ゴム/カーボンブラック充填系の階層構造の粒径依存性の解明(PNO)	京都大学
フラワー型 Fe_3O_4 メソ結晶粒子の磁化分布の粒子形態依存性	岩手大学
Fe_3O_4 中空サブミクロン粒子における磁気渦の磁化機構	岩手大学
化学修飾セルロースの水溶液中での溶存形態の解明 ー幅広い散乱ベクトル域での中性子散乱データに基づく形態探求(PNO)	東京農工大学
塑性変形した Pt_3Fe 反強磁性体における強磁性ナノドメインの磁氣的形態	岩手大学
小角中性子散乱によるカプセル化ビタミン D3 を含むカラギーナン- α -ラクトアルブミンゲルの構造特性	Forschungszentrum Juelich
中性子小角散乱による天然有機物の凝集構造評価(PNO)	東京大学
ブロック共重合体ブレンド系における新規ネットワーク型相分離構造の形成メカニズムに関する研究	名古屋工業大学
添加剤により誘起される炭化水素系電解質膜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
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/X線小角散乱によるパワーエレクトロニクス用 ナノ結晶磁性材料のコントラストバリエーション解析	物質・材料研究機構
Low-complexity 配列を持つ相分離液滴のナノ構造解析	量子科学技術研究開発機構
中性子小角散乱によるカベオリン1蛋白質複合体の構造解析	量子科学技術研究開発機構
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
環状 PEG が物理吸着した金ナノ粒子の構造解析	北海道大学
コントラスト変調小角中性子散乱法を用いたシリカ粒子界面におけるゴム吸着層の解明	京都大学

成果非占有課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
Contrast variation study of peptide interaction with lipid and polymeric membranes mimicking oncolytic viruses	Forschungszentrum Jülich GmbH
凝集抑制に関する insulin B-chain と aB-crystallin の複合体解析	京都大学
曇点抽出法による放射性微粒子の捕集とその相構造および抽出機構の解明	福島大学
放射性核種の分離・抽出における熱感応性界面活性剤の分子構造特性の解明	福島大学
分散媒の混合によるシリカ懸濁液の粒子凝集構造とレオロジー特性	三重大学
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解析および架橋構造解析	山形大学
リビングラジカル沈殿重合による高分子微粒子の合成	千葉大学大学院
超小角中性子散乱法によるモノグリセリド系界面活性剤水溶液が形成するメゾスコピックな分子集合体の構造解析	東京理科大学
コントラスト変調小角中性子散乱法と超小角中性子散乱法を用いた精密三次元ネットワークゲルの構造解析(PNO)	京都大学
金属微粒子と両性イオンミセルとの親和性と構造変化	福島大学
架橋ポリマーブレンドの吸湿下での構造変化の解析	兵庫県立大学
小角中性子散乱法を用いた SBR ゴム/フィラー界面のバウンドラバーの構造解析 ～SBR の末端変性の効果～	株式会社 ENEOS マテリアル
ゴム/シリカ充填系の階層構造の粒径依存性の解明	京都大学
シード重合による表面開始原子移動ラジカル重合開始点を有する高分子微粒子の合成とグラフト鎖の導入	千葉大学大学院
小角中性子散乱法による超臨界水を用いた高分子材料のケミカルリサイクルの最適化条件の解明	京都大学
小角中性子散乱による超臨界水でのバウンドラバー分解過程の研究	京都大学
コントラスト変調中性子小角散乱法によるドラッグデリバリーキャリアナノゲルの微細構造評価	旭化成株式会社
塑性変形した Pt ₃ Fe 反強磁性体における強磁性ナノドメインの磁氣的形態	岩手大学
光誘起コロイド結晶化によるコロイド集積膜の作製	千葉大学
セメント系材料の二次生成物生成反応を追う	東京大学
Polysaccharide based nano/micro-gel for the food application	Forschungszentrum Juelich GmbH
中性子小角散乱法による巨大ひずみ加工した鉄にトラップされた水素の観測	豊橋技術科学大学

成果非占有課題名 ※括弧内は併用装置	所属機関
中性子極小角散乱によるパワーエレクトロニクス用ナノ結晶磁性材料の磁区構造分析(PNO)	物質・材料研究機構
コントラスト変調 SANS によるリポソーム内水相及び外水相界面の PEG 鎖コンフォメーション評価	千葉大学
マイクロ流体工学を使用した伸長流における複雑な流体の SANS 研究	Forschungszentrum Juelich GmbH
伸長誘起相分離を発現する応力応答性ハイドロゲルの中性子散乱測定を用いた相分離ネットワーク構造評価	大阪大学
SEC-SANS measurement on standard proteins for a proof of concept	Forschungszentrum Juelich
Nanostructure-conductivity relationship in environmentally friendly hydrocarbon PEMs as an alternative to the established PFSA ionomers.	Forschungszentrum Juelich
コントラスト変調小角中性子散乱法によるシリカ充填系ゴムの階層構造解析および力学物性との相関説明(PNO)	京都大学
高機能燃料電池触媒層内の水分分布の定量(PNO)	総合科学研究機構
ポリカーボネートのアンモニア分解中における密度揺らぎの変化に関する研究	山形大学
水と多価アルコールの混合による親水性フュームドシリカ懸濁液の粒子凝集構造とせん断増粘挙動	三重大学
セルロース複合可逆性架橋型超分子材料の中性子散乱による独立ネットワーク構造の評価	大阪大学
金ナノ粒子・環状 PEG 複合体の構造解析	北海道大学
SANS 測定による poloxamer 407 ミセル中の薬物封入場所の評価	千葉大学

PNO

○施設供用課題…4 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…2 件

成果非占有課題名	所属機関
広 Q 範囲測定による燃料電池触媒インクの階層構造解析	株式会社豊田中央研究所
中性子超小角散乱法による酸化グラフェンにおける水分分布の解析	総合科学研究機構

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、柴山 由樹



概要

中性子応力測定装置 RESA は、角度分散型の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。角度分散型の中性子回折装置は、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 λ 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 2θ を測定するための装置であり、この回折角 2θ 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 ε_{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"> ・最大強度 0.13 nm のマクスウェル分布 ・波長範囲：0.155~0.19 nm ・Take-off 角度範囲：70~90° ・最大ビームサイズ：20×20 mm²
モノクロメーター	<ul style="list-style-type: none"> ・ダブルベント集光完全結晶 Si モノクロメーター ・[011]垂直に切断した Si(400) ・15枚の Si ウエハーからなる7つのパケット構成 ・ウエハー寸法：250 mm^L×15 mm^w×0.7 mm^t ・パケット厚さ：10.5 mm^t ・利用可能な反射：(400)
検出器	<ul style="list-style-type: none"> ・³He1 次元検出器 ・検出領域：100×100 mm² ・検出器範囲：6° ・角度範囲：0~120°
試料ステージ	<ul style="list-style-type: none"> ・耐荷重：≦ 700 kg ・X-Y 移動量：±200 mm ・Z 移動量：±300 mm
装置性能	<ul style="list-style-type: none"> ・中性子束強度：7×10⁵ n/cm²・s (試料位置) ・回折線分解能 (Δd/d)：3×10⁻³ ・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) ・測定体積：2×2×2 mm³~10×10×10 mm³

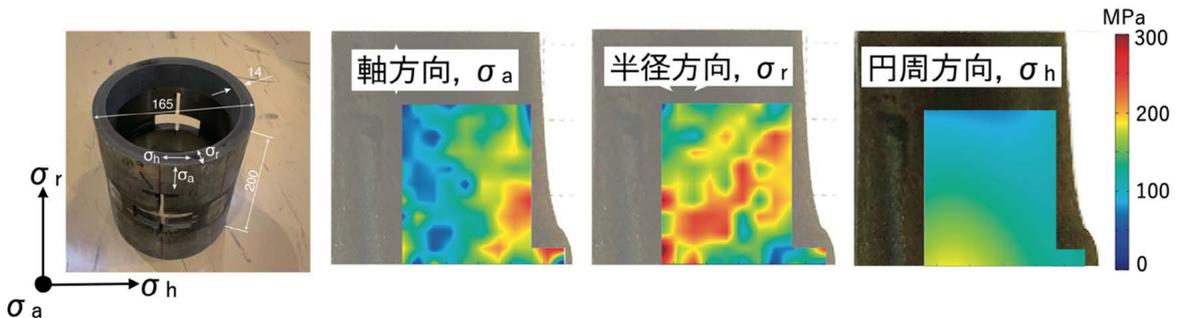
試料環境

- ・ 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ャンニング法を用いて、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。

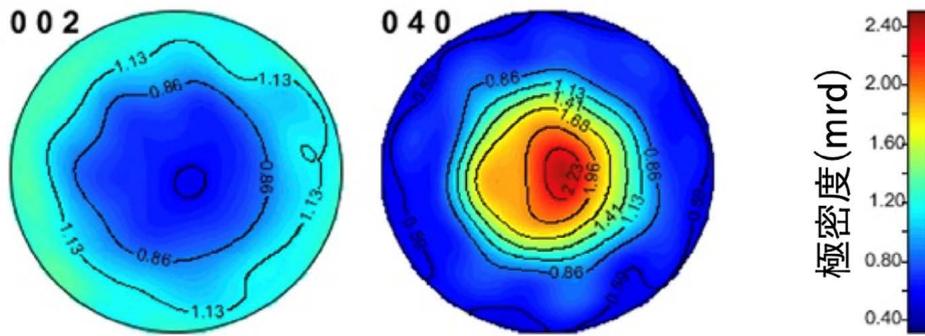


オーステナイト系ステンレス鋼の小口径突合せ溶接配管の 3 軸応力分布

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（ Fe_3C ）変形メカニズムを理解することは、鋼の機械的特性の解明、改善の上で非常に重要である。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により製造した単相構造のバルクセメンタイトに対して、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）を評価した。製造されたままの試料はランダムな集合組織だったのに対して、833K で 50%の圧縮ひずみを加えた試料は、圧縮軸に沿って(010)繊維集合組織が形成されていた。この結果から、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>

高周波焼入炭素鋼車軸の表面残留応力勾配の定量測定

高周波焼入炭素鋼車軸は、疲労強度を大幅にアップさせた機械製品であり、高速・高荷重の鉄道車両に多く用いられているが、炭素鋼車軸 S38C における表面から数ミリメートルの深さまでの三軸残留応力分布の把握が、鉄道車両の疲労寿命に関わる重要な課題となっている。本研究では、190 mm 直径×1800 mm 長さのフルサイズ車軸から厚さ 15 mm の扇形試料を切り出し、車軸表面以下の軸方向、環方向、および径方向の残留応力分布を RESA で測定し、有限要素法と組み合わせることによりフルサイズ車軸の残留応力分布を予測した。その結果、車軸表面下で軸方向約 520 MPa、環方向約 710 MPa、径方向約 40 MPa の圧縮残留応力が示された。一方、S38C 車軸の疲労クラック進展挙動実験及び破断力学に基づいた数値計算から、軸表面から 3 mm の深さにおける圧縮残留応力が表面クラックの成長駆動力を低下させ、軸表面からのクラック深さが 3.7 mm 未満であれば疲労クラックは進展しないことを明らかにした(図 1)。一方、軸表面から 4.5mm の深さを超えるクラックは引張残留応力によって、クラックの進展が加速する可能性を見出した。

以上より、中性子回折実験と有限要素法を組み合わせることにより、フルサイズ車軸の深さ方向の残留応力分布の予測と特性評価が可能であり、高周波焼入車軸の表面欠陥に対する非破壊検査の検査間隔最適化に対し有益な提言ができると期待される。

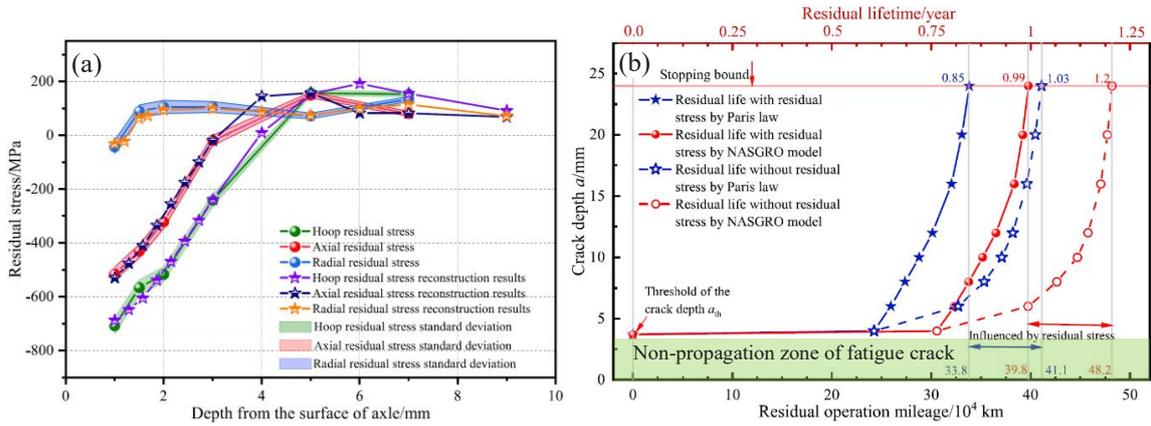


図1 (a)焼き入れ車軸の表面層付近の三軸残留応力分布測定と有限要素法で逆計算したフルサイズ車軸の応力分布の比較 (b)疲労き裂進展解析モデルを用いた車軸の残存寿命予測

参考文献：

1. T.Y. Qin, F.F. Hu, P.G. Xu, H. Zhang, L. Zhou, N. Ao, Y.H. Su, T. Shobu, S.C. Wu, Gradient residual stress and fatigue life prediction of induction hardened carbon steel axles: Experiment and simulation, *International Journal of Fatigue*, 185(2024): 108336.

2. F.F. Hu, T.Y. Qin, N. Ao, P.G. Xu, Y.H. Su, J.D. Parker, T. Shinohara, T. Shobu, G.Z. Kang, M.M. Ren, Y.Z. Ma, F. Kang, S.C. Wu, Residual stress measurement and lifetime evaluation of railway axles by neutron scattering. *Journal of Traffic and Transportation Engineering*, 2025, 25(2): 75-93.

ハイエントロピー合金の冷間圧延集合組織の変化に及ぼす炭素添加の影響

オーステナイト系ハイエントロピー合金は、高い強度と優れた延性、放射線への高い耐照射性などの機能も持っている。このハイエントロピー合金の実用化のためには、圧延加工の際に、軽元素が変形特性にどのような影響を持っているかを明らかにする必要がある。本研究では、RESA 中性子回折法によるバルク集合組織測定と電子回折法による局所組織観察を組み合わせ、ハイエントロピー合金を圧延する際に形成される集合組織の変化に及ぼす炭素添加の影響を定量的に評価した。その結果、炭素を添加することで、圧延変形時にゴス(Goss)方位結晶粒及びブラス(Brass)方位結晶粒の形成が促進されることを明らかにした(図 2)。今後、これらの組織の配向を制御する技術を最適化することで、放射線への耐照射性に優れた新材料の開発が加速し、宇宙・原子力産業への適用が期待される。

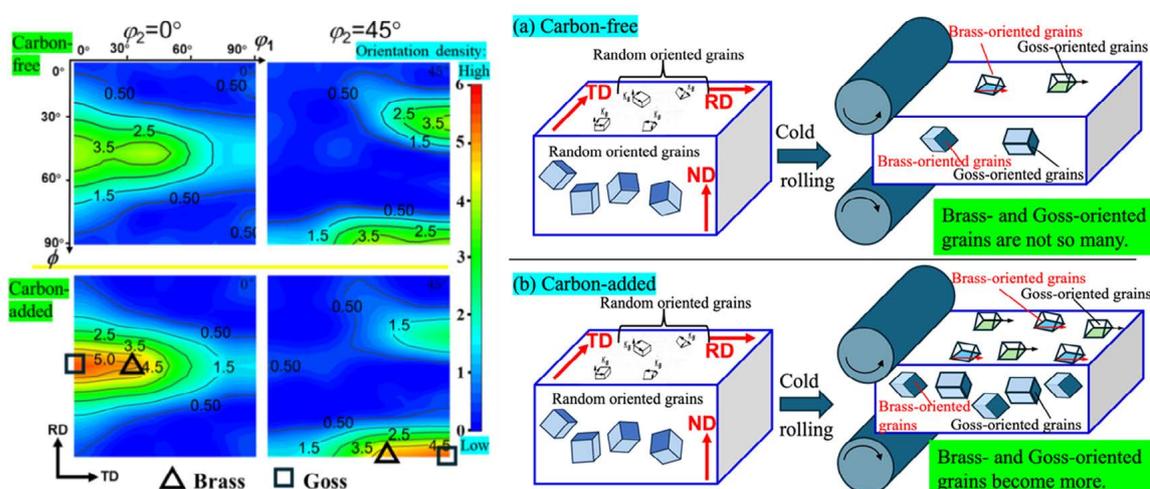


図 2 炭素添加の違いによる冷間圧延前後の結晶粒の方位分布 (a) 炭素無添加では、冷間圧延後にゴス(Goss)方位結晶粒及びブラス(Brass)方位結晶粒がわずかしかな存在しないのに対して、(b) 炭素添加では、冷間圧延後にゴス方位結晶粒及びブラス方位結晶粒が大量に存在する

参考文献：

1. W. Fang, C. Liu, J.F. Zhang, P.G. Xu, T.X. Peng, B.X. Liu, S. Morooka, F.X. Yin, Influence of interstitial carbon on bulk texture evolution of carbide-free high entropy alloys during cold rolling using neutron diffraction, Scripta Materialia, 249(2024): 116046.

2. 中性子で解き明かす「ハイエントロピー合金」を上手に延ばす秘訣 —合金中で炭素が微小な組織の形成を制御していることを発見— (日本原子力研究開発機構：プレス発表) <https://www.jaea.go.jp/02/press2024/p24051702/>(参照:2025/05/17).

鉄鋼材料の冷間圧延加工に伴う格子欠陥密度変化の定量

Quantitative analysis of changes in lattice defect density for cold-rolled steel alloys

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

構造材料における格子欠陥は、結晶強度の低下を引き起こす主要な要因の一つである。一方で、線欠陥の一種である転位は、降伏、加工硬化、破壊といった力学特性に影響を及ぼし、材料の強度向上に寄与することから、その制御および定量化は材料設計において極めて重要である。転位密度の定量には、透過電子顕微鏡 (TEM) による観察が広く用いられている。しかしながら、試料の微細加工に伴う内部ひずみの解放や自由表面の影響により、バルク中に存在していた転位の約 60% が散逸・消滅することが報告されており、直接観察に基づく手法であるにもかかわらず、信頼性に課題がある。これに対し、回折法による転位密度の評価は、非破壊かつ非接触で定量が可能であり、特に中性子回折を用いることで材料内部 (バルク) の情報を取得できる点において、材料設計に資する有効な手法である。中性子回折法の精度と信頼性を向上させるためには、構造材料を対象とした測定事例の蓄積が不可欠である。

本研究では、冷間圧延加工による転位密度の変化を調査し、SUS310S 合金および高窒素 SUS 合金における転位増殖機構の解明を目的とした。

鋼の転位密度の評価には、原子力機構の研究用原子炉 JRR-3 の T2-1 ポートに設置された中性子応力測定装置 RSEA を用いた。測定条件は、波長 0.158 nm、照射領域 5 mm × 10 mm × 15 mm とした。バックグラウンド補正のため、散乱ゼロ材料として V-Ni 合金を測定した。供試材としては、冷間圧延加工率の異なる 4 種類の SUS310S 合金 (5 mm × 5 mm × 10 mm) を準備し、それぞれを試料 A (0%)、試料 B (15%)、試料 C (30%)、試料 D (45%) とした。

転位密度の評価は、中性子回折法により各結晶面の歪みを計測し、得られたデータに基づいて校正式を適用することで転位密度を定量した。未加工のステンレス鋼においては、複数の回折プロファイルを単純に取得することで評価が可能であるが、加工材では集合組織の発達により、同様のプロファイルが得られない場合がある。このため、加工の有無にかかわらず正確な比較を行うために、集合組織の影響を考慮した計測手法を導入した。具体的には、各回折面において極密度が最大となる $\{\chi, \phi\}$ 座標位置を選定し、結晶学的に最も多くの結晶が存在する方向、すなわち巨視的な情報に近い状態を評価対象とすることで、より信頼性の高い転位密度の比較を可能とした。

Fig.1 に、試料 D における (111)、(200)、(220)、(311)、(222) 面に対応する $\chi \cdot \phi$ スキャンの結果を示す。カラースケールは極密度の変化を表しており、図中の矢印は各結晶面における最大極密度の位置を示している。各結晶面における最大極密度の $\{\chi, \phi\}$ 座標は、それぞれ (111) : $\{20, 0\}$ 、(200) : $\{0, 50\}$ 、(220) : $\{0, 0\}$ 、(311) : $\{0, 30\}$ 、(222) : $\{20, 0\}$ である。これらの座標に基づき、中性子応力測定装置 RSEA を用いて転位密度の評価を実施することで、加工の有無に

かかわらず、より正確な転位密度の定量が可能となることが期待される。

本研究の成果は、産業界における材料開発への貢献に資するものであり、特に中性子回折法を用いた高精度な転位密度評価技術の確立に寄与することが期待される。これにより、将来的には鋼材メーカーとの共同研究の推進や、得られた知見を基盤とした製品化への展開が見込まれる。

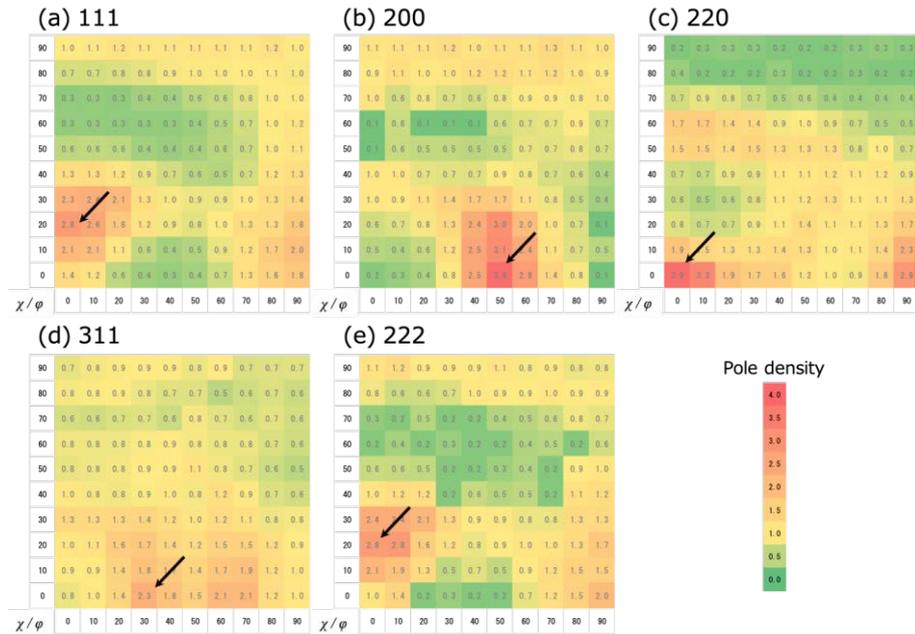


Fig.1 45%冷間圧延加工を施したステンレス鋼の極密度測定

使用装置

RESA

実施課題 No.

[1]令和5年度 D758「鉄鋼材料の冷間圧延加工に伴う格子欠陥密度変化の定量」

Evaluation of Strain and Texture Distributions in Cold-Bent High-Mn Steel Plate

Pingguang XU*, Li JIANG**, Yangwen WANG**, Yuhua SU***, Honghong WANG**,
Takayuki HAMA****

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

**Wuhan University of Science and Technology, China

***J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency, Japan

****Graduate School of Energy Science, Kyoto University, Japan

Abstract

High-Mn steels, which offer excellent cryogenic strength, ductility and toughness, have attracted considerable interest as a cost-effective alternative to the more expensive high-Ni martensite and high-Ni-Cr austenite steels for large pressure vessels intended for the transport and storage of liquefied natural gas (LNG). However, high-Mn steels typically exhibit obvious chemical segregation and heterogeneous work-hardening ability, which means complicated manufacturing processes are essential when producing such steel plates and related large-scale infrastructures. Omitting this heterogeneous microstructure distribution can introduce significant uncertainty when evaluating the quantitative residual strain distribution of related semi-finished products. Furthermore, preparing and conducting neutron measurements on full-size deformed/welded samples is very time-consuming. In this research, the strain distribution and texture gradient characteristics of a 10mm-thick, cold-bent high-Mn steel plate with heterogeneous microstructure were studied to provide a valuable reference for optimizing their manufacturing processes.

These RESA neutron experiments revealed an irregular change in the diffraction angle, and local microstructure observation and electron probe microanalyzer measurement both confirmed the macroscopic segregation and the microscopic fluctuation of manganese-chromium elements throughout the thickness direction, respectively. The numerical correction with a comb-shaped, strain-free reference sample made from the same high-Mn steel plate helped to achieve a reasonable cold-bent strain distribution in the steel plate. Further strain distribution measurements using neutron diffraction will be carried out this year to support strain mapping analysis using the Bragg-edge neutron transmission technique.

Instruments

RESA

Proposal No.

[1]令和5年度 D838「中性子回折による曲げ変形したハイマンガ鋼のひずみ分布と集合組織勾配の評価」

[2]令和6年度 K1029「中性子回折と結晶塑性数値計算による高Mn鋼の曲げ変形後のひずみ分布と集合組織勾配評価」

多軸応力状態における水素脆性破壊 Hydrogen Embrittlement Failure under Multi-axial Stress States

柴山 由樹*

*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

鉄鋼材料は、その力学性能の向上に起因した水素脆化感受性の増大が喫緊の課題となっている。材料中に侵入した水素は、その力学性能を著しく劣化させ、早期破断を引起こす要因となる。特に構造物用鉄鋼材料は、プレス成形など塑性加工によって複雑な応力状態に曝されるため、その応力状態の影響を明らかにすることが重要である。

本研究では、多軸応力状態における水素脆性破壊の再現を目的として開発した任意の応力状態を付与できる新規形状試験片について、中性子応力測定装置（RESA）を用いた力学応答測定を実施した。現在当該研究成果に関して論文投稿を進めている。

使用装置

RESA

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D880 「中性子回折法を利用した水素脆性破壊に及ぼす応力状態の評価」
- [2]令和6年度 D1036 「中性子応力測定装置による水素脆化特性に及ぼす応力状態の解明」

多孔質金属の特性定量

Quantitative characterization of porous metals

諸岡 聡*、栗田 圭輔*、原山 勲*

*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

多孔質金属（ポーラス金属）は、内部に空孔を有するスポンジ状の構造を持つ金属材料の総称であり、従来の緻密な金属材料とは異なる特性を示す。自然界においても、蜂の巣のハニカム構造、植物組織、生体骨などに代表されるように、多孔質構造は広く存在し、それぞれが複雑な内部構造に起因する多様な機能を有している。ポーラス金属は、軽量性、延性、導電性、熱伝導性といった金属固有の性質を保持しつつ、多孔質構造に由来する新たな機能を付加できる点で、産業応用の可能性が高い。具体的には、アルミニウムやマグネシウム合金の代替材料、衝撃吸収材、防音材、断熱材、生体医療材料などへの応用が期待されている。本研究では、中性子を用いた特性定量により、材料のバルク平均情報を取得し、材料設計に資する有益な知見を得ることを目的とする。

ポーラス金属の微視的情報を定量評価するために、原子力機構の研究用原子炉 JRR-3 の T2-1 ポートに設置された中性子応力測定装置 RSEA を使用した。測定条件は、波長 0.158 nm、照射領域 5 mm × 5 mm × 5 mm とした。一方、ポーラス金属の巨視的情報を定量評価するために、同じく JRR-3 の R7 ポートに設置された熱中性子ラジオグラフィ装置 TNRF を使用した。

供試材としては、Fig. 1 に示すように、気孔径および気孔率が異なる 4 種類の SUS316 成分ベースのポーラス金属（200 mm × 200 mm × 10 mm）を準備し、それぞれを試料 A、試料 B、試料 C、試料 D とした。各試料の気孔径および気孔率は、それぞれ 1.00 mm / 95.8%、0.43 mm / 95.0%、0.20 mm / 90.5%、0.16 mm / 85.3% であり、気孔径の減少に伴い気孔率も低下する傾向が確認された。

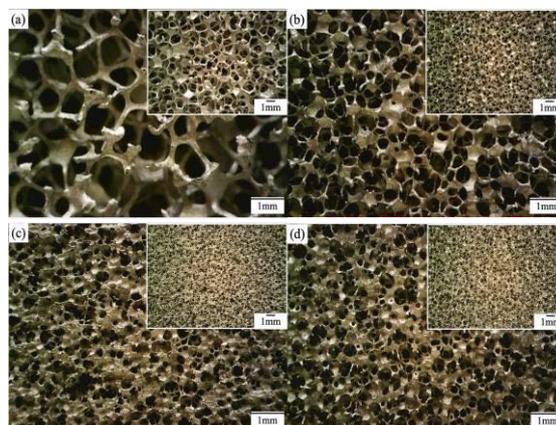


Fig.1 ポーラス金属の微視組織

これらの試料に対して、中性子応力測定装置 RSEA および熱中性子ラジオグラフィ装置 TNRF を用いることで、材料形成時に生じる内部応力、気孔径、気孔率など、ポーラス金属の組織因子を非破壊的に定量評価することが可能となる。

本研究により、ポーラス金属の特性に関する定量的知見が得られ、剛性やエネルギー吸収性といった機能特性の発現機構の解明が進展することが期待される。これにより、産業界における新材料開発への貢献が見込まれ、将来的には多孔質金属メーカーとの共同研究や製品化への展開を

通じて、材料技術の高度化に寄与する可能性がある。

使用装置

RESA・TNRF

実施課題 No.

[1]令和6年度 D971「多孔質金属の特性定量」

中性子回折法を用いた溶接条件の異なる溶接継手配管の残留応力分布測定 Residual Stress Distribution Measurement of Welded Pipes under Different Welding Conditions Using Neutron Diffraction

山口 義仁*、李 索*、諸岡 聡**

*日本原子力研究開発機構 安全研究センター 経年劣化研究グループ

**日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 階層構造研究グループ

概要

近年、加圧水型原子炉の加圧器スプレイライン配管等に使用されているステンレス鋼管の溶接部において、応力腐食割れ（SCC）による亀裂の存在が確認されている。SCCは、応力、環境、材料の3要素が組み合わさって発生する。また、溶接部近傍の硬化が、SCCによる亀裂の発生や進展に寄与していることが示唆されている。この亀裂発生や進展の評価に必要な溶接部近傍の硬さや溶接残留応力は、溶接時の入熱量や拘束条件の影響を大きく受けるため、これらを考慮して評価される必要がある。しかし、溶接条件を変えた複数の溶接試験体を製作し、直接硬さや残留応力を測定することで、溶接条件ごとに硬さや残留応力を評価することは現実的ではない。そこで、課題申請者らは、溶接を模擬した有限要素解析により溶接近傍の硬さや残留応力を評価する手法の整備を進めており、この手法の妥当性確認が重要な課題である。

本研究では、溶接を模擬した有限要素解析により溶接近傍の硬さや残留応力を評価する手法の妥当性確認を目的に、配管溶接継手試験体に対して中性子応力測定装置 RESA を用いた肉厚内の残留応力測定を実施し、残留応力の測定値と有限要素解析で得られた値との比較を行っている。令和6年度は、一つの溶接条件における配管溶接継手試験体に対して残留応力を測定し、有限要素解析による残留応力の推定結果と定性的に一致することを確認した。令和7年度も、溶接条件を変えた配管溶接継手試験体に対して残留応力測定を継続し、解析手法の妥当性確認を進める。

使用装置

RESA

実施課題 No.

[1]令和6年度 D972「中性子回折法を用いた溶接継手配管の残留応力分布測定」

中性子を用いたあと施工アンカーの長期付着特性評価 Evaluation of long-term adhesion characteristics in post-installed anchor using neutron

菖蒲 敬久*、諸岡 聡*、柴山 由樹*、栗田 圭輔*、原山 勲*、飯倉 寛*
向井 智久**、坂下 雅信**、中村**、チェ ホンボク***

*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

**建築研究所

***日本大学

概要

あと施工アンカーは、耐震改修工事に利用される技術として一般的であり、増改築などのリニューアル工事等にも広く適用可能範囲が拡大されることが期待されている。特に、穿孔を湿式コアドリルで行い、接着剤の充填を注入方式で行う静充填型あと施工アンカーは、低騒音、低振動で施工可能な方法として注目されているが、その構造性能や品質管理、施工管理方法に関して十分な実験データや検証結果が少なく、技術基準がまだ整理されていない段階にある。

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、あと施工アンカーの長期付着特性評価のための基礎研究を行った。

RESA では初期段階における強度特性と鉄筋の節のピッチとの関係について評価した。鉄筋を引っ張りながらコンクリート内部の鉄筋のひずみ分布を計測した結果、14mm ピッチ×3 個の節を持つ鉄筋コンクリートでは載荷端側の 1 目目の節を境にひずみが大きく変化するのに対して、7mm ピッチ×3 個の節を持つ鉄筋コンクリートでは節よりさらに載荷端側でひずみが大きく変化するという現象が確認された。

一方、TNRF では最大強度より先のかかなり鉄筋がコンクリートより抜け出したところの内部の様子を観察した。その結果、載荷端側の節より手前の接着剤がコンクリート中の穴より膨らんでいる様子が確認され、この膨らみは鉄筋がコンクリートから抜けないための「抵抗力」となっている可能性を明らかにした。

使用装置

RESA, TNRF

実施課題 No.

- [1]令和5年度 K826「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」
- [2]令和5年度 J827「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」
- [3]令和6年度 K1041「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」

集合組織と相分率の同時測定による高効率化

High efficiency through Simultaneous Determination of Crystallographic Texture and Phase Fraction

徐 平光*、柴山 由樹*、諸岡 聡*、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

概要

弾塑性異方性を有する構造材料中の集合組織測定は、その力学性能の向上を目的とした材料組織制御研究の基本的なツールのひとつである。とくに中性子は、試料全体にわたる平均集合組織の取得に威力を発揮する。

今回我々は、従来使用していたシングルピークフィッティング法に代えて、リートベルト法に基づく集合組織解析ソフトウェア MAUD (Materials Analysis Using Diffraction) を導入した。この手法により、より少ない回折強度でも解析が可能となった。また極点図上の立体角における走査間隔を任意に設定できるようにして従来は 1297 ステップを要していた測定を、385 ステップにまで削減することができた。

本手法の有効性を検証するため、二相ステンレス鋼を用いた中性子回折実験を実施した。RESA においてはじめて集合組織と相分率の同時測定が可能となり、5つの極点図の中性子測定時間も従来比で約 1/3 (約 12 時間) に短縮することに成功した。さらに、測定後ただちに極点図を出力 (約 2 時間) できるようになり、ユーザーフレンドリーな集合組織測定環境を提供可能とした。

使用装置

RESA

実施課題 No.

- [1] 令和 5 年度 I759 「中性子応力測定装置 RESA の保守管理」
- [2] 令和 6 年度 I966 「中性子応力測定装置 RESA の運用と保守」

ユーザズミーティング

- 令和6年11月29日
令和6年度第2回試験研究炉の利用に関する講習会
菖蒲 敬久
「中性子回折」

学会等で発表された成果

- 令和5年7月20日
日本材料学会第57回X線材料強度に関するシンポジウム, 於: 山梨県立図書館 (甲府市)
柴山 由樹、諸岡 聡、徐 平光、菖蒲 敬久
“幅広い応力三軸度を評価する引張試験方法の検討” (口頭)
- 令和5年9月5日
令和5年度第2回製鉄科学技術コンソーシアム研究会, 於: 名城大学
菖蒲 敬久、冨永 亜希、城 鮎美
“放射光X線、中性子を利用した材料強度評価”, (口頭)
- 令和5年9月13日
日本中性子科学会第23回年会, 於: 北海道大学 (札幌市)
諸岡 聡、徐 平光、柴山 由樹、佐々木 未来、菖蒲 敬久
“中性子利用による材料内部の非破壊応力評価”, (ポスター)
- 令和5年9月13日
日本中性子科学会第23回年会, 於: 北海道大学 (札幌市)
柴山 由樹、諸岡 聡、徐 平光、菖蒲 敬久
“応力三軸度を指標とした引張試験手法の開発”, (ポスター)
- 令和5年9月15日
2023年度日本建築学会大会, 於: 京都大学吉田キャンパス
チェ ホンボク、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 秀幸
“中性子回折法による接着系あと施工アンカーのひずみ分布の測定精度に関する基礎的
検討”, (口頭)

- 令和5年10月22～26日
11th Workshop on Neutron Wavelength-Dependent Imaging (NEUWAVE-11), 於: 日本科学未来館 (江東区)
P.G. Xu, Y.W. Wang, Y.H. Su, C. Iwamoto, H.H. Wang, T. Hama, Y. Shibayama, Y. Tsuchikawa, J.D. Parker, T. Kai, S. Morooka, M. Takamura, K. Oikawa, T. Shinohara, T. Shobu
“Texture gradient evaluation of cold bent high-Mn steel plate using RADEN and RESA neutron instruments”, (ポスター)
- 令和5年10月28～29日
Mini symposium on Characterization of Material Process Using Diffraction Techniques
於: 上野駅前ビル (台東区)
P.G. Xu, S. Harjo, Y. Onuki, S. Sato, L. Lutterotti, S.C. Vogel, K. Liss
"High resolution texture measurement by using neutron diffraction", (口頭)
- 令和5年11月28～30日
8th International Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University (ISQBS 2023)
於: 茨城大学 (水戸市)
P.G. Xu, S. Morooka, Y. Shibayama, M. Sasaki, K. Yamamoto, T. Shobu
“Engineering materials characterization techniques using neutron diffraction”, (口頭)
- 令和5年12月11日
Advanced Materials Research Grand Meeting (MRM2023/IUMRS-ICA2023), 於: 国立京都国際会館 (京都市)
Y. Shibayama, S. Morooka, P.G. Xu, T. Shobu
"Triaxial stress evaluation of high strength steels under various deformation modes using neutron diffraction and finite element analysis", (ポスター)
- 令和6年2月7日
2023年度 RANS シンポジウム (理研シンポジウム)
いつでもどこでも中性子、新たな現場利用！小型中性子源の拓く世界-スマートインフラ、ものづくり、宇宙へむけて- 於: 理化学研究所 (和光市)
徐 平光、岩本 ちひろ、山本 和喜、諸岡 聡、高村 正人、呉 聖川、大竹 淑恵、菖蒲 敬久
“中性子材料評価技術の高度化研究に関する大型施設と小型施設の協奏”, (口頭)

- 令和6年7月11日
令和6年度中性子産業利用報告会 於：秋葉原コンベンションセンター
菖蒲 敬久
“中性子応力測定装置 RESA の現状”（口頭）
- 令和6年8月7日
日本保全学会第20回学術講演会, 於:東京大学駒場キャンパス
菖蒲 敬久、栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛、諸岡 聡、柴山 由樹、向井 智久、
中村 聡宏、坂下 雅信、有木 克良、チェ ホンボク、高野 慶貴、西脇 洗瑠
“中性子を用いたあと施工アンカー長期付着特性評価”（口頭）
- 令和6年9月4日
US-Japan Workshop 2024; ISSP Workshop, Frontier of Neutron Science in Research
Reactor ~Future Perspective of US-Japan Cooperative Program on Neutron Scattering~,
於: JAEA Tokai Mirai Base (東海村)
P.G. Xu, S. Morooka, Y. Shibayama, T. Shobu
“Measurements of residual stress and crystallographic texture of engineering materials on
RESA”（ポスター）
- 令和6年12月4~6日
日本中性子科学会第24回年会, 於: 名古屋国際会議場（名古屋市）
徐 平光、蔣 立、張 書暢、那須 翔太、蘇 玉華、岩本 ちひろ、王 紅鴻、浜
孝之、菖蒲 敬久
“不均一組織を有する冷間曲げ高 Mn 鋼板のひずみ分布評価”（ポスター）
- 令和6年12月4~6日
日本中性子科学会第24回年会, 於: 名古屋国際会議場（名古屋市）
徐 平光、諸岡 聡、柴山 由樹、佐々木 未来、山本 和喜、菖蒲 敬久
“RESA 回折装置を用いた工学応用研究事例の紹介”（ポスター）

独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…10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…10件

成果非占有課題名	所属機関
Evaluation of residual stress relaxation in Shinkansen vehicle axles subjected to fatigue loads by neutron diffraction	Southwest Jiaotong University
Texture evolution for multilayer steel with multi-scale heterogeneous structure after various tensile deformation	Hebei University of Technology
Texture evaluation for heterogeneous multilayer metals with different interface structures after various tensile deformation	Hebei University of Technology
Microstructure and residual strain in used railway wheel investigated by neutron diffraction	Southwest Jiaotong University
Analysis of texture evolution of additive manufacturing FeMnCrNiMo high entropy alloys under different laser energy density	Hebei University of Technology
小口径ステンレス鋼配管溶接部の残留応力分布のばらつきに関する実験的検討	電力中央研究所
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 (II)	株式会社アンテックス

2.8 PGA 即発 γ 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 γ 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 γ 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。

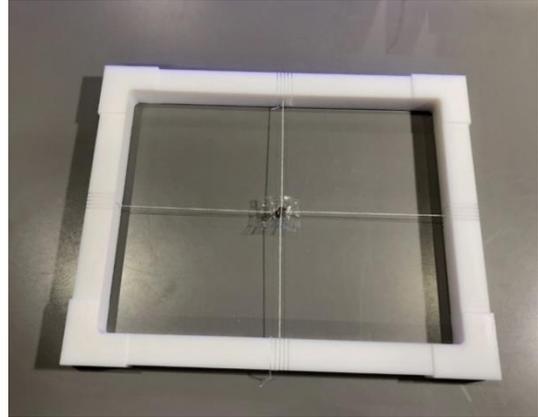
装置詳細

中性子源	熱中性子源
中性子波長	$\lambda = 0.145 \text{ nm}$
γ 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 ₂

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)。

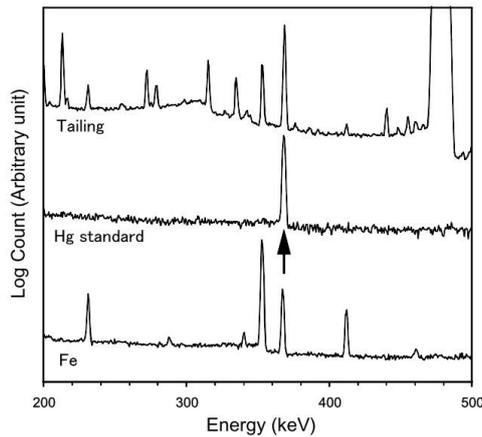


図1 フィリピンの採鉱くず (Tailing) 中の水銀分析の例

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 a Highly Accurate and Simple Method for Determination of Boron Concentration in Metallic Fuel Debris

佐藤 志彦*、墨田 岳大**

*日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 プロモーション・オフィス

**九州大学 材料工学部門

概要

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(B₄C)を制御材として使用する原子炉の場合、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[1]。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、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[2]。本研究では混酸による試料分解と ICP-OES を組み合わせて、燃料デブリ中ホウ素の簡便かつ高精度な新規濃度定量法を開発した (Fig.1)。詳細は [Sumita et al., “Evaluation of analytical uncertainty in quantitative determination of elements - The case of boron”, *Analytica Chimica Acta*, 1392, 343256(2024)] 参照。

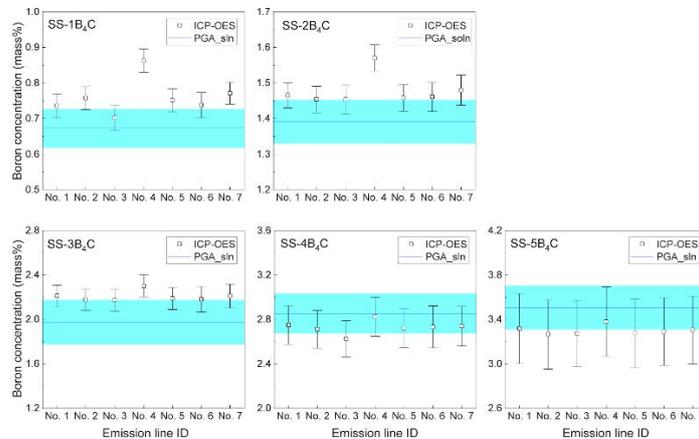


Fig.1 開発したホウ素分析手法の分析精度の評価

参照

- [1] Sumita et al., “Solidification and re-melting mechanisms of SUS-B₄C eutectic mixture”, *J. Nucl. Mater.*, 543, 152527(2021).
- [2] Sumita et al., “High temperature reaction of multiple eutectic-component system: The case of solid metallic Zr and molten stainless steel-B₄C” *Materialia.*, 20, 101197(2021).

使用装置

PGA

実施課題 No.

令和5年度 D780 「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」

地球外物質の即発 γ 線分析Prompt γ -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 AO 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した。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 1 回目の国際 AO の公募により入手したリュウグウ試料の分析を行った。3 回目の国際 AO の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 年度にはその試料の分析を行った。令和 6 年度には J-PARC にてミュオン特性 X 線分析を行った 6 粒の試料に対して PGA で測定を行った。これにより、同一の試料に対して即発 γ 線分析とミュオン特性 X 線分析の両方を実施することが出来た。

リュウグウ試料を相対的に比較するために、各種炭素質コンドライトの分析を行った。特にリュウグウと近似している CI コンドライトのうち、南極隕石の分析を行った (Fig.1)。その結果、新しい隕石種として提案されていた CY タイプに分類可能であった。また元素組成の相違から CYi と CYm の 2 種類に分類できる可能性を提案した。

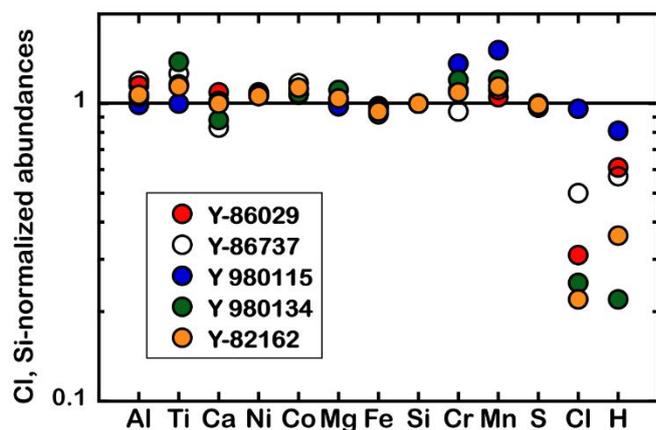


Fig.1 非南極 CI コンドライトのケイ素濃度で規格化した南極 CI コンドライトの元素組成

参照

[1] Mitsuru Ebihara, Naoki Shirai, Takahito Osawa and Akira Yamaguchi, “Chemical characteristics of the Yamato-type (CY) carbonaceous chondrites” *Geochim. Cosmochim. Acta*, 389, 200-210(2025).

使用装置

PGA

実施課題 No.

[1]令和5年度 D796「地球外物質の即発γ線分析」

[2]令和6年度 D970「地球外物質の即発γ線分析」

即発 γ 線分析装置の保守点検・高度化 Maintenance and upgrading of prompt γ -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 γ 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 γ 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 5 年度以降も非常に頻繁なアップグレードが重ねられ、信頼性の向上と様々な新機能の実装がなされた。最も顕著な進化は、 γ 線の測定プログラムを自ら開発したことである。これにより分析の自由度が大幅に向上しただけでなく、ソフトウェア的にコンプトンサプレッションが実施できるようになった。自由測定モードの導入により、試料を測定する順番と測定時間を完全に自由に設定できるようになった。

液体窒素の自動供給システムの開発により装置管理の負担が軽減された。PGA 装置の内部構造を根本的に見直し、部材の AI を徹底的に排除することで AI のバックグラウンドを大幅に低下させることに成功した。テフロン製のジグを内部に導入し、試料ボックスの足も改造したことで、インビームメスバウアーの実験等で一度分解した装置を再度組み立てた際に試料ボックスの位置がずれなくなった。

使用装置

PGA

関連課題 No.

[1]令和 5 年度 1800 「即発 γ 線分析装置の保守点検・高度化」

[2]令和 6 年度 1969 「即発 γ 線分析装置の保守点検・高度化」

ユーザズミーティング

- 令和5年8月7日 第1回PGA研究会 原子力科学研究所
 - 大澤 崇人： PGA システムの改造に関する説明
 - 大貫 敏彦： 蟬抜け殻中元素のPGA分析
 - 墨田 岳大： JRR-3のPGA分析におけるホウ素分析性能評価
 - 三浦 勉： 即発ガンマ線分析法による高純度金属中の水素分析
 - 佐野 貴司： 海洋プレートと環太平洋火山岩の即発ガンマ線分析
 - 海老原 充： 南極隕石のPGA(1) - 炭素質コンドライト
 - 白井 直樹： 即発ガンマ線分析装置を用いた隕石の分類
 - 新正 裕尚： PGAを用いたホウ素含有量分析による火山岩のスラブ由来成分の検討：
南米チリ孤と西南日本孤を例として
 - 久保 謙哉： 中性子インビームメスバウアー分光法の開発
 - 田中 真奈子：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の同定
 - 小島 均： 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評価
 - 大浦 泰嗣： 八王子市で捕集したPM2.5粒子の元素組成(仮)
 - 山口 峻英： 草木染めに含まれる元素の同定
 - 都築 豊： 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
 - 大澤 崇人： 小惑星リュウグウ試料の即発 γ 線分析
- 令和6年10月11日 第2回PGA研究会 原子力科学研究所
 - 大澤 崇人： PGAの現状と今後の高度化予定
 - 新正 裕尚： PGAによるホウ素含有量分析の瀬戸内火山岩類への適用
 - 墨田 岳大： PGAを基準とした汎用分析手法評価
 - 邱 奕寰： 即発ガンマ線二次元イメージング技術の開発
 - 白井 直樹： 即発ガンマ線分析装置を用いた隕石の分類
 - 三浦 勉： 高純度金属中の水素の即発ガンマ線分析
 - 佐野 貴司： 特異的な島弧火山岩の即発ガンマ線分析
 - 久保 謙哉： 中性子インビームメスバウアー分光法の開発
 - 海老原 充： 南極隕石のPGA(2) - CM炭素質コンドライト
 - 大浦 泰嗣： PM2.5粒子中のホウ素の定量

学会等で発表された成果

- 令和5年7月13日
令和5年度中性子産業利用報告会 於：東京
大澤 崇人
“JRR-3による小惑星「リュウグウ」から採取したサンプルの非破壊分析”（口頭）
- 令和5年9月21日
資源・素材学会秋季大会、於：松山
墨田 岳大、大澤 崇人、池田 篤史、齊藤 敬高、中島 邦彦
“軽元素ホウ素の精緻な分析”（ポスター）
- 令和5年9月23日
日本地球化学会第70回年会、於：東京
邱 奕寰、大澤 崇人
“中性子とミュオンを用いた元素分析法の最前線”（口頭 招待講演）
- 令和5年11月14日
The 14th Symposium on Polar Science,
Sagamihara, M. Ebihara, N. Shirai, A. Yamaguchi, T. Osawa
“Prompt gamma-ray analysis of Antarctic meteorites (1) – C1-related chondrites”（口頭）
- 令和5年11月28日
8th International Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University (ISQBS 2023), Mito
Takahito Osawa
“Introduction of prompt gamma-ray analysis system (PGA) at JRR-3”（口頭 招待講演）
- 令和5年12月19日
京都大学複合原子力科学研究所専門研究会「放射化分析及び中性子を用いた地球化学的研究」、於：熊取
大澤 崇人
“JRR-3に設置された即発 γ 線分析装置(PGA)の現状”（口頭）
- 令和6年3月12日
令和5年度「惑星物質科学のフロンティア」研究集会 於：柏
大澤 崇人
“小惑星リュウグウの即発ガンマ線分析”（口頭）

- 令和6年3月12日
令和5年度「惑星物質科学のフロンティア」研究集会 於：柏
邱 奕寰
“負ミュオンビームによる月隕石の非破壊元素分析法”（口頭）
- 令和6年3月15日
実験自動化による R&D の効率化とその進め方 於：オンライン
大澤 崇人
“どうしたら手間のかかる実験を自動化できるのか；ラボラトリーオートメーションを実現する秘訣”（口頭）
- 令和6年3月20日
日本化学会 第104 春季年会 (2024) 於：船橋
久保 謙哉
“中性子インビームメスバウアー分光法のノイズ低減”（口頭）
- 令和6年5月29日
東北大学学際ハブ事業研究会、於：仙台
大澤 崇人
“即発 γ 線分析法を用いた非破壊定量分析”（口頭）
- 令和6年7月11日
令和6年度中性子産業利用報告会 於：東京
大澤 崇人
“中性子を用いた全固体電池中のリチウムイオン動態の可視化”（口頭）
- 令和6年7月27日
第20回日本中性子捕捉療法学会学術大会 於：高槻
邱 奕寰
“JRR-3におけるCdTeイメージング検出器を用いたBNCT-SPECTの開発”（口頭）
- 令和6年9月11日
22nd International Symposium on Boron, Borides and Related Materials 於：トルコ
Takehiro Sumita
“ABSOLUTE EVALUATION OF ANALYTICAL UNCERTAINTY IN QUANTITATIVE DETERMINATION OF BORON”（口頭）

- 令和6年9月18日
日本物理学会第79回年次大会(2024) 於：札幌
邱 奕寰
“JRR-3におけるCdTe-DSDを用いたBNCT-SPECTの開発” (口頭)
- 令和6年9月23日
日本放射化学会第68回討論会(2024) 於：静岡
大澤 崇人
“即発ガンマ線分析装置(PGA)の過去現在未来” (口頭)
- 令和6年9月23日
日本放射化学会第68回討論会(2024) 於：静岡
稲垣 誠
“もんじゅサイト新試験研究炉における中性子放射化分析関連装置の計画” (ポスター)
- 令和6年9月25日
日本放射化学会第68回討論会(2024) 於：静岡
邱 奕寰
“即発ガンマ線二次元イメージング技術の開発” (口頭)
- 令和6年9月25日
日本放射化学会第68回討論会(2024) 於：静岡
邱 奕寰
“JRR-3におけるCdTe検出器を用いたBNCT-SPECTの開発” (口頭)
- 令和6年9月26日
6th Quantum Beam Imaging Workshop (QBI2024) 於：Tokyo
Chiu, I.-H.
“Development of a boron imaging method for BNCT using CdTe-DSD” (口頭)
- 令和6年10月15日
4th J-PARC Symposium (J-PARC 2024) 於：Mito
Chiu, I.-H.
“Development of elemental 3D imaging method by muonic X-ray measurement using CdTe-DSD” (口頭)

- 令和6年10月15日
4th J-PARC Symposium (J-PARC 2024) 於：Mito
Chiu, I.-H.
“Multi-element imaging method based on neutron capture gamma-ray measurement”
(口頭)
- 令和6年10月18日
日本火山学会秋季大会 於：札幌
佐野 貴司
“即発ガンマ線分析による火山岩中のホウ素や塩素の定量” (ポスター)
- 令和6年10月18日
日本火山学会秋季大会 於：札幌
佐野 貴司
“伊豆－小笠原弧の島弧沿い地球化学的変動を生み出すスラブ由来物質” (口頭)
- 令和6年12月5日
The 15th Symposium on Polar Science 於：Tachikawa
Mitsuru Ebihara
“Prompt gamma-ray analysis of Antarctic meteorites (2) – CM chondrites” (口頭)

独自利用以外の課題実施状況

○施設供用課題…4件

 成果占有課題（トライアルユース含む）…4件

 成果非占有課題…0件

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：原山 勲、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)	1.0×10^8 n/cm ² /sec
ビームサイズ (Beam Size)	H 305 mm × W 255 mm
コリメータ比 (L/D)	175

検出器 (Detector)	シンチレータ <ul style="list-style-type: none"> →⁶LiF:ZnS(Ag)シンチレータ カメラ <ul style="list-style-type: none"> →冷却 CCD カメラ (Cooled-CCD Camera) →CMOS カメラ (CMOS 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・スイベル)
 圧縮空気
 循環水
 200 V 電源

測定例

図 1 は、土壤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 土壤中に存在する植物の根の 3次元画

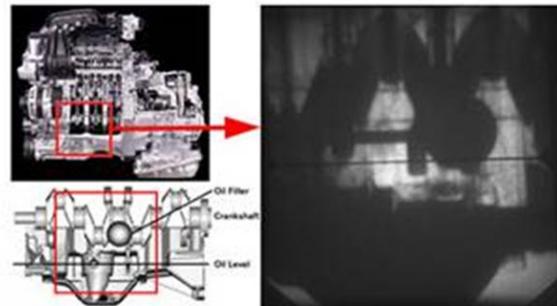


図 2 エンジン内部の潤滑オイル挙動の撮像例
 (2008 年 11 月プレス資料より)

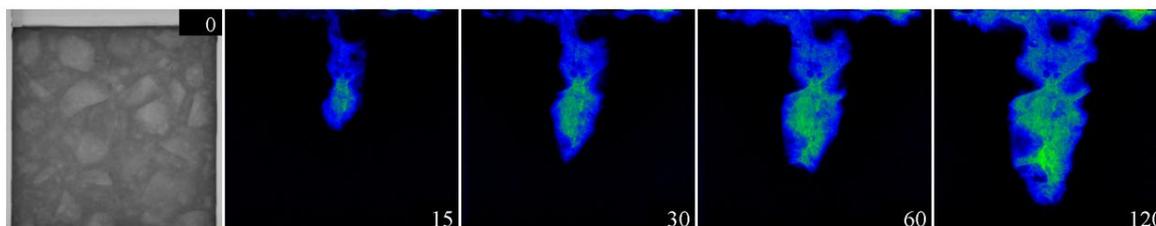


図3 コンクリートの中性子透過像（白黒）及びコンクリートのひび割れから侵入する水の経時変化（カラー、図の数字単位は分）

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装置である。熱中性子よりエネルギーの低い冷中性子を利用することで、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）	1.7×10^7 n/cm ² /sec
ビームサイズ（Beam Size）	H 30 mm × W 20 mm
コリメータ比（L/D）	71
検出器（Detector）	シンチレータ <ul style="list-style-type: none"> • ⁶LiF:ZnS(Ag)シンチレータ カメラ <ul style="list-style-type: none"> • CMOSカメラ（CMOS Camera）

測定例

図4は、単三形Liイオン電池を撮影したものである。Liは中性子を吸収しやすい元素の一つであり、中性子ラジオグラフィではコントラストが大きな影として検出できる。

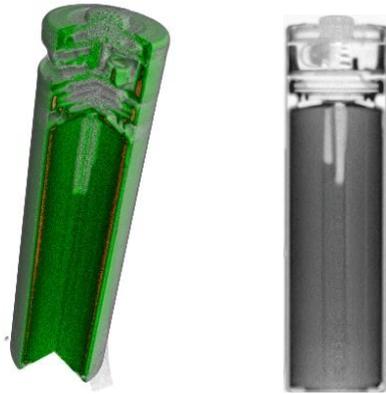


図4 単三形Liイオン電池の3次元画像(左図)、及び断面画像(右図)

アルミニウム合金中のマイクロポアにトラップされた水素ガス濃度評価 Evaluation of hydrogen gas concentration trapped in micropores within aluminum alloys

諸岡 聡*、栗田 圭輔*、佐々木 未来**、原山 勲*

*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

アルミニウムは、鉄の約 35%の比重を有する軽量な構造用金属材料であり、加工性に優れたアルミニウム合金（例：ジュラルミン）は、強度と軽量性を兼ね備えていることから、航空機、自動車、電子機器など多様な産業分野で広く利用されている。一方で、鋳造工程においてアルミニウム合金の溶湯は水分と高い反応性を示し、水分子との接触により水素ガスが発生する。この水素ガスは、マイクロポアやピンホールといった鋳造欠陥の原因となり、製品の品質低下を招く要因となる。したがって、鋳造欠陥の発生メカニズムを解明し、溶湯中の水素量を適切に管理することは、高品質なアルミニウム鋳物の製造において極めて重要である。本研究では、非破壊・非接触で金属内部の構造を可視化可能な中性子イメージング技術に着目し、鋳造欠陥の定量的評価を通じて水素ガス濃度との関係性を明らかにすることを目的とする。

鋳造欠陥の定量評価には、原子力機構の研究用原子炉 JRR-3 に設置された熱中性子ラジオグラフィ装置 TNRF を使用した。

供試材としては、Fig. 1 に示すように、水素ガスによる鋳造欠陥量が異なる 3 種類のアルミニウム合金鋳物（35 mm × 35 mm × 300 mm）を準備し、それぞれを試料 A、試料 B、試料 C とした。鋳造欠陥を誘起するために付加した水素ガス量は、それぞれ 0.68、0.54、0.35 (ml/100g-Al) である。これらの試料に対して熱中性子ラジオグラフィ装置 TNRF を用いることで、アルミニウム合金鋳物中の鋳造欠陥量を非破壊的に定量評価することが可能となる。

本研究により、熱中性子ラジオグラフィ技術を活用したアルミニウム合金鋳物中の鋳造欠陥の形態および数密度の定量的評価が可能となり、水素ガス濃度との相関関係の解明が期待される。これにより、鋳造欠陥の発生メカニズムに関する理解が深化し、アルミニウム合金の品質管理技術の高度化に資する成果が得られると考えられる。さらに、得られた知見は、素材メーカーとの共同研究や新材料開発への応用が期待され、産業界における材料技術の革新に寄与する可能性がある。

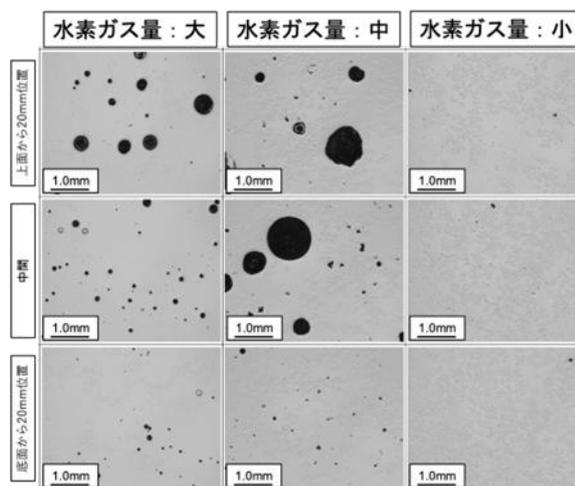


Fig.1 アルミニウム合金鋳物の鋳造欠陥

使用装置

TNRF

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 D762 「アルミニウム合金中のマイクロポアにトラップされた水素ガス濃度評価」

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

空間分解能はイメージング装置において重要な技術開発要素の一つであり、外部ユーザーからもその向上に対するニーズは高い。空間分解能に関する装置パラメータの一つとして、ビーム並行度があるが、このパラメータは光源から検出器までの距離 L と光源のサイズ D を用いて L/D と表せる。この式からわかるように、光源からの距離 L が長いほど、また光源サイズ D が小さいほどビーム並行度は良くなる。しかしながら、TNRF は炉室に設置されている装置であり、装置空間に制限があるため L を大きくすることが難しい。また、光源となるビーム取り出し口が炉内にあるため、光源を改良して D を小さくすることも困難である。さらに、試料位置の上流約 2 m の位置にある可変スリットにより D を小さくすることは可能であるが、スリットにより中性子束と照射面積が大幅に減ってしまい、TNRF の特徴である高い中性子束と広い照射野というメリットを失うこととなる。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) による空間分解能の向上を目的とする。サブピクセル処理とは、サンプルやカメラ位置を 1 画素のサイズよりも細かく動かして撮像した画像を解析することで、その装置が持つ空間分解能以上の画像を取得する手法である。これまでの研究で、冷却 CCD カメラ iKon-L 936 (Andor 製) を用いた基礎データを取得してきたが、令和 5、6 年度ではより高い空間分解能が期待できる CMOS カメラ (ORCA-FLAS4.0、浜松ホトニクス製) を用いた測定を実施した。また、TNRF だけでなく CNRF においても同様の測定を行った。現在はこれらの結果の画像解析を進めており、得られた画像から空間分解能の評価を行っている。

使用装置

TNRF, CNRF

実施課題 No.

- [1]令和 5 年度 D846 「イメージング用画像解析手法の開発」
- [2]令和 6 年度 D1064 「イメージング用画像解析手法の開発」

品種の異なる干し芋の水の分布状態の変化の解析

Analysis of changes in water distribution in dried sweet potatoes of different varieties

栗田 圭輔*、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。干し芋に使われる芋の品種は、従来はべにはるかが主流であったが、近年、紫色が特徴のふくむらさきといった新たな品種が出てきている。品種によって水分状態がどのように異なってくるかは、干し芋の品質の理解に重要な情報となる。

本研究では、べにはるかとふくむらさきの干し芋の中性子イメージング測定を行い、水分の分布状態を調べることを目的とした。いずれも、サツマイモの成長方向に沿った繊維構造が観測された一方、水の分布状態については試料の厚みのバラツキもあり、現在解析中であるが、品種による顕著な違いは今のところ確認できていない。定量的な透過画像を取得するためには、試料の前処理方法の検討が必要である。

使用装置

TNRF

実施課題 No.

- [1]令和5年度 D878「品種の異なる干し芋の乾燥過程における水の分布状態の変化の解析」
- [2]令和6年度 D1038「品種の異なる干し芋の乾燥過程における水の分布状態の変化の解析」

TNRF における高速度撮影を用いた高速 CT システムの開発 Development of High Speed Computed Tomography for TNRF

原山 勲*、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

JRR-3 に設置された中性子ラジオグラフィ装置 (TNRF) は、広い照射野・高い中性子束という特徴を持ち、幅広い分野で利用されている。撮影では高い中性子束を生かして、2次元透過像のみならず、3次元コンピュータ断層撮影 (以後 CT 撮影) や高速動画撮影も多く実施される。一方、CT 撮影は実験条件によっては撮影そのものに数時間を要することから、試料への照射量も高くなり、試料の放射化を冷ますために半日待機する必要があるなど、1日に測定できる検体数が限定されていた。また、数時間ごとの CT 撮影しか困難であるため、リアルタイムで変化する現象などを観察することはできなかった。

本課題では、試料の連続回転中に高速度撮影することで、従来は数時間を必要としている CT 撮影の所要時間を、数分間にまで短縮する高速 CT システムを確立することを目指す。カメラは CMOS カメラ ORCA-Flash 4.0v3 (浜松ホトニクス製) を用い、CT 再構成した断面画像の空間分解能を評価するため、アルミ製のインジケータを CT 撮影した。CT 撮影時に、回転ステージの回転速度やカメラの露光時間を走査し、空間分解能に及ぼす影響を評価した。現在実験結果の解析を進めている。

使用装置

TNRF

実施課題 No.

[1]令和5年度 D889「TNRF における高速 CT システムの開発」

[2]令和6年度 D1049「TNRF における高速度撮影を用いた高速 CT システムの開発」

CNRF における CT システムの開発

Development of Computed Tomography System for CNRF

原山 勲*、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

冷中性子を用いた中性子ラジオグラフィは、熱中性子に比べコントラストの高い画像が得られる。そのため、TNRF ではコントラストがつかない薄膜試料や物質の密度差を評価する際に有効である。JRR-3 においても冷中性子ラジオグラフィ装置 (CNRF) を運用しているが、中性子ベンドシステムで分岐された中性子を利用していることから、ビームの平行度 (L/D) が悪い。そのため、撮影装置から試料を離すとボケが生じ、撮影部分を撮影装置に直付けできない立体的な試料の撮影や CT 撮影は困難であった。また CT 撮影においては、CNRF に常設している撮影装置がイメージングプレート (IP) であり連続して撮影できないため、CT に必要な大量の再構成用画像を取得することは実質不可能であった。

本課題は、CNRF における中性子ビームをコリメータで絞ることで L/D を改善し、かつ CMOS カメラ+シンチレータによる撮影システムの導入により連続撮影が可能な環境にすることで、CNRF においても CT 撮影可能な環境の確立を目指す。L/D を改善するため、撮影室内の中性子取り出し口に穴径の異なる Cd ピンホールを設置し、L/D=100~1000 の範囲で変更可能にした。また、撮影装置に CMOS カメラ ORCA-Flash 4.0 v3 (浜松ホトニクス製) +⁶LiF:ZnS(Ag)シンチレータを組み合わせた撮影システムを導入し、回転ステージと連動させた。カメラと回転ステージの制御は LabVIEW を用いた。実験では、試験体としてリチウムイオン電池の CT 撮影を行った。Cd ピンホール径を 2 mm 以下にすると、ビームラインの導管形状を反映した格子状アーティファクトが発生した。そのため、高 L/D で撮像を行う際は、散乱体でビームを散らすなど改良が必要である。今後、ビーム質を改善した上で、各 L/D における信号強度や CT 再構成した断面画像の空間分解能を評価するなど、L/D が与える影響を調査する予定である。

使用装置

CNRF

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 D1052 「CNRF における CT システムの開発」

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

概要

根圏とは、植物の根とその周辺環境が互いに影響し合う空間を指す。この空間では、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いる。このため、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、作物の収量を増やし食糧危機を解決する上で重要となる。近年、量研・高崎研では、短寿命核種 ^{11}C で標識した二酸化炭素とポジトロンイメージング装置 (PETIS) を利用して、マメ科植物の根から土壌に放出された ^{11}C 標識分泌物の分布を可視化した。これにより、地中の根が土と微生物に分泌物を介して働きかけている様子を撮影することに世界で初めて成功した。本手法を用いて、同じマメ科植物のダイズとルーピンを比較したところ、ダイズでは根が張っている範囲の土にほぼ均一に分泌物が分布したのに対し、ルーピンではわずかに数ミリメートルの範囲に集中して分泌物を放出する部位が多数存在していた。さらに、分泌活性の高い部位においてクラスター根と呼ばれるブラシ状の小根の集団が確認され、ルーピンが持つ高い栄養獲得能力との関与が示唆された。

本研究では、上記の研究で確認されたルーピンの根圏構造、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 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 5 年度は、栽培条件を変えたルーピンの CT 測定を行い、その根の構造を可視化した。また、軽水と重水を用いることで、土壌中や植物中における水動態の可視化計測も実施した。現在はこれらの結果を解析中である。

使用装置

TNRF

実施課題 No.

[1]令和 5 年度 K856 「中性子ラジオグラフィによる根圏構造の可視化」

中性子イメージングによる雑固体廃棄物からの研究展開

Research development based on the change in properties of miscellaneous solid wastes using neutron imaging

西村 昭彦*、橋口 亜由未**

*日本原子力研究開発機構 福島廃炉安全工学研究所 廃炉環境国際共同研究センター
廃炉システムグループ

**岡山大学

概要

原子力関連施設が保管する廃棄物収納容器は増加の一途を辿り、初期の収納容器は腐食損傷の危機に晒されている。JAEA ではレーザー蒸発技術を導入し、収納容器の表面層を蒸発除去する試みを開始した。これにより容器表面に耐食性のマグネタイト層を生成させ、以後の保管管理の負担を著しく低減できる。但し、長期間の容器の健全性確保のためにはレーザー蒸発技術に加えて防食技術の組み合わせが不可欠である。腐食を考える時に最も不確定となる因子が微生物腐食である。

本研究では、雑固体として鉄、鉛材、ガラス（石英とパイレックス）容器、光ファイバを模擬材として選定し、薄肉鉄容器に収納した照射体を準備し、これを JAEA の JRR-3 中性子ビームライン（TNRF）にてイメージング撮影を行った。なお「中性子施設ハンドブック」には、金属缶内の噴水を中性子イメージングで撮影した例が表示されており、金属缶内壁を伝う水滴の筋が明確に捉えられている。イメージングの一例を図 1 に示す。中性子は薄板鉄容器を投下し、雑固体の中でもパイレックスガラス容器や内部の水を明瞭に捉えている。

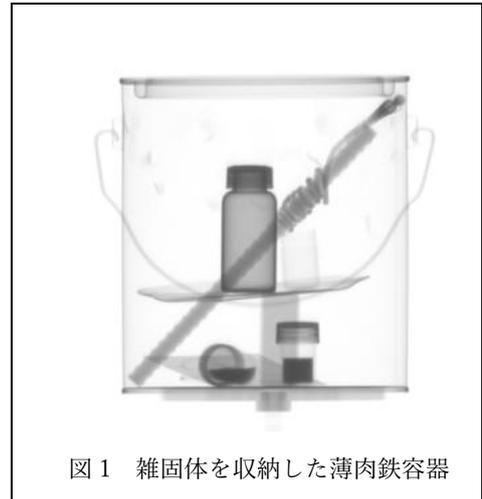


図 1 雑固体を収納した薄肉鉄容器

雑固体中に存在する微生物としては、綱レベルにおいて Gmmaproteobacteria に分類される鉄腐食細菌が JAEA の廃棄物ドラム缶表面に存在する。属レベルにおいて Noviherspirillum と Massilia の 2 種に注目した中性子照射による耐性試験と紫外線照射による不活化の研究展開が望まれる。また、照射した材料には光ファイバがあり、放射線耐性を高めた光ファイバの特性の評価が出来れば、核融合炉や高速炉に設置するファイバセンシング技術の高度化など、未来の原子力に貢献できる展開がある。

使用装置

TNRF

実施課題 No.

[1]令和5年度 R778「廃棄物収納容器内部の収納物のイメージング」

中性子イメージングによる水素挙動オペランド計測技術開発 Development of operando measurement technology for hydrogen behavior using neutron imaging

菖蒲 敬久*、栗田 圭輔*、原山 勲*

*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、水素社会実現に向けた研究開発が加速している。このうち水素貯蔵については、より高密度材料開発及びそれらを貯蔵するシステム開発が急務となっている。

本研究では、中性子の材料に対する高い透過力及び水素感受性の高さを活かし、中性子イメージング技術により、貯蔵容器内部における水素貯蔵材料の水素貯蔵・脱離過程の直接観察を実施した。

実験は、JRR-3 に設置されている熱中性子イメージング測定装置 (TNRF) 及び冷中性子イメージング測定装置 (CNRF) の 2 装置を用いて実施した。市販の水素貯蔵容器に対して熱中性子を照射したイメージング像からは、水素量の違いにより明確な画像の違いが観察され、CT 画像から局所的にコントラストが異なるところが多数観測された。一方、アルミ容器中のパラジウムブラック粉末に水素ガスを導入した際の様子を冷中性子で観察したところ、容器の周りから中央に向かって徐々にコントラストが変化する様子、具体的には透過中性子の強度が減少する様子が観測された。これは水素が容器の周りのパラジウムから吸収されていくことを示しており、中性子イメージングが貯蔵システム設計において有効な技術であることが確認された。

使用装置

CNRF、TNRF

実施課題 No.

[1]令和 6 年度 J1059 「中性子イメージングによる水素挙動オペランド計測技術開発」

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

Evaluation of simulated concrete materials for the development of damage detection technology for concrete structures using electromagnetic waves

菖蒲 敬久*、栗田 圭輔*、原山 勲*、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

福島第一原子力発電所に立地している鉄筋コンクリート造の原子炉建屋の長期安定性を担保するためには、コンクリート内部のひび割れや欠陥などを遠隔で検証する技術が必要不可欠であり、当該技術の1つとしてテラヘルツ電磁波による内部観察技術が期待されている。本研究では、テラヘルツイメージング技術の検証に用いる鉄筋コンクリート試験体内部のひび割れ位置とサイズをより詳細に決定するために、JRR-3のTNRF等を使用した高分解能三次元中性子イメージング実験を行い、試験体内部にあるひび割れの位置とサイズ、深さを精密に測定した。また、上述した測定を通じて、様々な条件の鉄筋コンクリート試験体について、多くの詳細なデータを蓄積した。

図1はコンクリートに挿入後、鉄筋の腐食を進行させた直径50mm、高さ50mmコンクリート材におけるCT画像から切り出した中央付近の縦断面図及び横断面である。表面から内部にかけて鉄筋腐食の増加に伴う体積膨張が原因と考えられる亀裂が横方向に広がっていることが観測されている。その幅は、約1.5mm程度であり、かなりジグザグに発生していることもわかる。

本測定では当該試験片の他に7つの試験体についても計測を実施し、3次元的に複雑に発生している割れの観測に成功している。当該結果はテラヘルツ計測にフィードバックされ、テラヘルツ計測の高度化に活用された。

使用装置

TNRF

実施課題 No.

[1]令和5年度 J827「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」

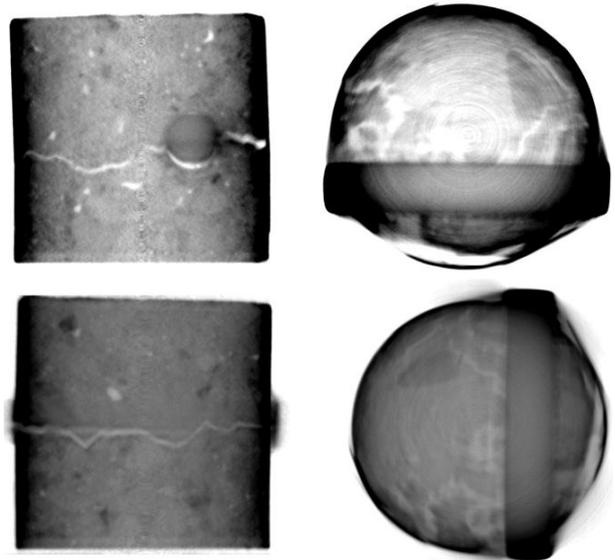


図1 コンクリート内で腐食を加速させた試験体における縦及び横断面像

ユーザーズミーティング

- 令和5年8月31日～9月1日
中性子イメージング研究会 於：新橋ビジネスフォーラム
栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛
「JRR-3における中性子イメージング研究の現状」
(URL: <https://is.j-parc.jp/MLFuser/event/pdf/【開催案内】R5年度中性子イメージング研究会.pdf>)
- 令和5年12月26日
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、原山 勲、飯倉 寛
「JRR-3の中性子イメージング装置について」
(URL: <https://www.rri.kyoto-u.ac.jp/wp-content/uploads/cfde36d5fae54fb1705ef16656ec7770.pdf>)
- 令和6年8月22～23日
中性子イメージング研究会 於：新橋ビジネスフォーラム
栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛
「JRR-3における中性子イメージング研究の現状」
(URL: <https://www.j-neutron.com/PDF/20240822-23.pdf>)
- 令和6年12月25日
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
原山 勲、栗田 圭輔、飯倉 寛
「JRR-3の中性子イメージング装置(TNRF/CNRF)について」
(URL: https://www.rri.kyoto-u.ac.jp/wp-content/uploads/program_2024122526.pdf)

学会等で発表された成果

- 令和5年7月13～14日
令和6年度中性子産業利用報告会 於：秋葉原コンベンションホール
栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛
“中性子イメージング装置”，(ポスター)
- 令和5年9月13～14日
日本中性子科学会第23回年会 於：北海道大学
原山 勲、栗田 圭輔、飯倉 寛、土川 雄介、甲斐 哲也、篠原 武尚、松林 政
仁、大平 直也、伊藤 大介、齊藤 泰司
“JRR-3 中性子ラジオグラフィ装置(TNRF, CNRF)の現状報告”，(ポスター)

- 令和6年6月2～7日
12th World Conference on Neutron Radiography 於：Idaho Falls
栗田 圭輔、飯倉 寛、原山 勲、土川 雄介、甲斐 哲也、篠原 武尚、大平 直也、伊藤 大介、齊藤 泰司、松林 政仁
“Introduction of camera system for CNRF at JRR-3”, (ポスター)
- 令和6年7月11～12日
令和6年度中性子産業利用報告会 於：秋葉原コンベンションホール
栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛
“中性子イメージング装置”, (ポスター)
- 令和6年8月7日
令和6年度中性子産業利用報告会, 於：東京大学駒場キャンパス
菖蒲 敬久、栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛、諸岡 聡、柴山 由樹、向井 智久、中村 聡宏、坂下 雅信、有木 克良、チェ ホンボク、高野 慶貴、西脇 洗瑠
“中性子を用いたあと施工アンカー長期付着特性評価” (口頭)
- 令和6年12月5～6日
日本中性子科学会第24回年会 於：名古屋国際会議場
原山 勲、栗田 圭輔、飯倉 寛、土川 雄介、甲斐 哲也、篠原 武尚、松林 政仁、大平 直也、伊藤 大介、齊藤 泰司
“JRR-3 中性子ラジオグラフィ装置に導入した CMOS カメラの性能評価”, (ポスター)
- 令和6年12月5～6日
日本中性子科学会第24回年会 於：名古屋国際会議場
菖蒲 敬久、栗田 圭輔、原山 勲、飯倉 寛
“中性子イメージングを用いた水素吸蔵材料における水素挙動観察”, (ポスター)

独自利用以外の課題実施状況

TNRF

- 施設供用課題…22件
 - 成果占有課題（トライアルユース含む）…19件
 - 成果非占有課題…3件

成果非占有課題名	所属機関
中性子ラジオグラフィによる新型ヒートパイプ内部流動の可視化および観察	青山学院大学
高圧中性子イメージング法による超臨界水を用いた高分子材料のケミカルリサイクルの最適化条件の解明	京都大学
NRG法による減速機の油面観察の試み（II）	日立建機株式会社

CNRF

- 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

成果非占有課題名	所属機関
中性子顕微鏡照明系ウォルターミラーの集光結像評価	総合科学研究機構
中性子顕微鏡照明系ウォルターミラーの集光結像評価	総合科学研究機構

This is a blank page.

