

JAERI - M
85-149

JRR-3改造炉とその利用の将来展望

1985年10月

研究炉管理部

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行	日本原子力研究所
印 刷	いばらき印刷㈱

JRR-3 改造炉とその利用の将来展望

日本原子力研究所東海研究所研究炉管理部

(1985年 8 月 29 日受理)

本報は、JRR-3 の改造工事を開始するに当り、JRR-3 改造炉とその利用の将来展望について、原子炉等の設備を利用する研究者との相互理解を深めるため、研究所内・外の技術者及び研究者、合計61名によって書かれたものを編集したものである。

本報に紹介する主な内容は以下のとおりで、あらためて多くの利用分野から改造炉への期待が大きいことが確認された。

(1) 改造炉及び利用設備

- ・改造炉及び建家設備の概要
- ・水力照射、気送管照射、リグ照射等の設備
- ・水平実験孔、冷中性子源、中性子導管等の装置

(2) 中性子ビーム実験装置

- ・中性子回折、中性子散乱、中性子小角散乱、中性子ラジオグラフィ等の装置

(3) 最近の利用動向

- ・燃料及び材料の照射研究
- ・放射化分析、RI 生産、シリコンドーピング等
- ・中性子散乱研究等

編集	宮 坂 靖 彦	研究炉管理部
	梅 井 弘	”
	高 橋 秀 武	”
	坂 本 正 誠	物 理 部

The Upgraded JRR-3 and Future Scope of its Utilization

Department of Research Reactor Operation

Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 29, 1985)

At the time of start to construct the upgraded JRR-3, the present report describes general features on the upgraded JRR-3 and future scope of its utilization on the purpose of the mutual understanding with researchers who use the reactor and the utilization facilities. The materials edited in the report have been written by 28 reactor engineers and scientists in JAERI, and 35 scientists in universities.

According to the reviewed subjects as shown below, it was confirmed that the upgraded JRR-3 would be extensively expected by much more fields.

(1) Reactor and utilization facilities

- Plan and main features of the upgraded JRR-3, Reactor building
- Irradiation facilities: Hydraulic rabbits, Pneumatic tubes, Rig, Hot Cell, etc.
- Neutron beam facilities: Horizontal tubes, Cold neutron source and Neutron guide tubes

(2) Neutron beam experimental facilities

- Neutron diffractometer, neutron spectrometer, Small-angle neutron scattering, Neutron radiography, etc.

(3) Recent trends

- Irradiation research of fuels and materials in research reactor
- Activation analysis, Radioisotope, Neutron transmutation doping, etc.
- Neutron scattering research

Keywords: Research Reactor, Upgraded JRR-3, Irradiation Facility, Irradiation Research, Cold Neutron Source, Neutron Guide Tube, Neutron Scattering Research, Activation Analysis.

Editors Yasuhiko Miyasaka (Dept. Research Reactor Operation)
 Hiroshi Umei (Dept. Research Reactor Operation)
 Hidetake Takahashi (Dept. Research Reactor Operation)
 Masanobu Sakamoto (Dept. Physics)

目 次

まえがき	1
1. JRR-3 改造炉計画	3
1.1 基本的な考え方	5
1.2 改造炉の概要	5
1.3 建家配置及び設備	7
2. 中性子照射利用	23
2.1 照射利用設備	27
2.2 研究炉による燃料材料照射研究の最近の動向	38
2.3 放射化分析等の最近の動向	114
2.4 RI 製造の最近の動向	133
2.5 シリコンドーピングの最近の動向	152
3. 中性子ビーム実験	159
3.1 全体配置計画	167
3.2 中性子ビーム実験設備	171
3.3 中性子ビーム実験装置	182
3.4 中性子散乱の最近の研究動向（総論）	241
3.5 中性子散乱の最近の研究動向（各論）	262
3.6 中性子ラジオグラフィの最近の動向	358
む す び	371

Contents

Preface	1
1. Plan of the upgraded JRR-3	3
1.1 Principle of upgrading plan	5
1.2 Main features of upgrading design	5
1.3 Buildings and facilities	7
2. Utilization for neutron irradiation	23
2.1 Irradiation facilities	27
2.2 Recent trends on irradiation research of fuels and materials in research reactor	38
2.3 Recent trends on activation analysis and related research	114
2.4 Recent trends on radioisotope production	133
2.5 Recent trends on neutron transmutation doping for semiconductors	152
3. Neutron beam research	159
3.1 Arrangement of neutron research facilities	167
3.2 Neutron beam facilities	171
3.3 Neutron beam experimental facilities	182
3.4 Recent trends on neutron scattering research	241
3.5 Current topics of neutron scattering research	262
3.6 Recent trends on neutron radiography	258
Concluding remarks	371

ま え が き

昭和31年、原研設立とともに研究用原子炉の建設が進められ、昭和40年までに東海研究所に JRR-1, JRR-2, JRR-3, JRR-4 が設置され、また大洗研究所に材料試験炉として昭和43年に JMTR が設置された。JRR-1 は昭和43年にその使命を終え、解体措置がとられているが、その他の原子炉はそれぞれ、その特長を活かし、相互補完しながら、原子力開発をはじめ、基礎的研究から産業界への応用研究まで広い範囲で利用されてきた。

この間、各炉とも利用の質的向上と効率化に努力してきたが、最近炉の性能及び構造上、利用の要望にそいかなるケースが多々あり、また炉の寿命も云々されるようになった。特に、最も性能が高い JRR-2 に利用が集中化していたが、何分にも初臨界以来25年間も稼動してきているので、安定運転もそう長く期待することは困難と推定された。かかる状況を勘案し、東海研究所に研究炉長期整備計画検討委員会が昭和51年及び昭和54年に設置され、検討の結果、JRR-3 を世界でもトップクラスの高性能汎用研究炉に改造することを骨子とした計画が策定された。計画立案にさいしては、将来の研究炉利用の動向を十分見極めながら進められた。幸に、本計画も軌道にのり、昭和60年より JRR-3 改造工事開始の段階になった。JRR-3 改造が確実視されるにつれ、利用者の方々もその実現に大きな期待をよせるとともに、利用者サイドの要望も詳細になり、JRR-3 改造後の姿もかなり明確になってきた。昭和64年に利用施設を含め、すべて設置完了し、特性試験を実施する予定である。

このような時期にあたり、改造炉の意義を再確認するとともに、関係者相互の理解のため、改造炉の概要及び利用施設の説明を行うとともに、JRR-3 改造炉を利用する所内・外の研究者より、各研究分野の動向及び研究内容を紹介していただき、改造炉の利用拡大と発展のため関係者の一層の理解を深めていただきたい。

昭和60年8月

研究炉管理部長 桜井 裕

1. JRR-3改造炉計画

目 次

1. JRR-3 改造炉計画	宮坂 靖彦 (原研研究炉管理部)	
1.1 基本的な考え方		5
1.2 改造炉の概要		5
1.3 建家配置及び設備		7

Contents

1. Plan of the upgraded JRR-3	Y. Miyasaka (JAERI)	
1.1 Principle of upgrading plan		5
1.2 Main features of upgrading design		5
1.3 Buildings and facilities		7

1. JRR-3改造炉計画

原研研究炉管理部 宮坂靖彦

1.1 基本的な考え方

JRR-3改造計画は、研究炉の現状及び利用、さらに将来の利用動向を考慮し、JRR-3が引き続き原子力の研究開発に寄与できるよう、次の基本的な考え方の基に進められている。

- (1) JRR-3改造炉は汎用中型炉として、熱出力20MWのプール型炉で、高水準の実験研究が可能であること。
- (2) 原研及び諸外国での研究炉の建設、運転経験を生かした安全性の高い研究炉であること。
- (3) 運転、保守が容易な設計とし、高稼働率（年間約70%）にすることにより、実験研究、ラジオアイソトープの生産等が効率的に進められること。
- (4) 既存の原子炉本体設備等の撤去に当っては、安全性を十分に考慮した工法を用いる。また原子炉建家等の既存施設は十分に再評価し、今後の使用に耐えるものは再利用する。
- (5) 改造炉の実験利用設備の充実を図るため、原子炉建家と隣接する実験利用棟を設ける。また、主要実験設備として冷中性子源装置を設置する。

なお、今後の改造炉のスケジュールを Table 1 に示す。

1.2 改造炉の概要

改造炉は、熱出力20MW、低濃縮ウラン板状燃料を用いた軽水減速、軽水冷却のプール型である。また、利用し得る熱中性子束及び高速中性子束はいずれも $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ を設計目標としている。主要諸元を現状と比較して Table 2 に示す。この改造炉に設ける主要な利用設備は水平実験孔9本、冷中性子源装置1基、気送照射設備3基、水力照射設備2基、均一照射設備、リグ照射設備等である。また、改造に際しては、Fig. 1に示すように、5本の中性子導管によるビーム実験が炉室外で行えるよう、幅30m、長さ50mの実験利用棟を建設する。

改造炉の要点については、以下に述べるが、原子炉本体概要図を Fig. 2、又設計計算に基づく諸特性を Table 3 に示す。

(1) 炉心部

炉心部は Fig. 3 に示すように格子板に自立する26体の標準型燃料要素、6体の制御棒吸収体付フォロウ型燃料要素、5体の照射筒要素及びベリリウム反射体から構成され、外径60cm、高さ75cm（旧原子炉は直径2.6m、高さ2.1m）と極めて小型なものとなり、出力は2倍の20MWとなっている。このため炉心領域では、速中性子束が最大 $3 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と高く、材料照射に適している。中性子束分布を Fig. 4 及び Fig. 5 に示す。

(2) 重水反射体

反射材には、良質の熱中性子ビームを得るために重水を採用した。炉心部を囲む重水タンクは Fig. 6 に示すように耐食アルミニウム製の内径 60 cm (内胴厚さ 1 cm)、外径 200 cm、高さ 160 cm の中空円筒型をしており、重水タンク内部に約 4 m³ の重水を貯留する。重水タンク内に設ける水平実験孔は、熱中性子ビーム中の γ 線及び速中性子を極力低くするため、Fig. 7 に示すとおり炉心を直接見ないようにタンジェンシャルに配置する。また、重水タンクには、冷中性子源のほか、大小の垂直照射孔を設けている。

(3) 燃料要素

燃料要素は、20%濃縮ウランを用いた UAl_x-Al 型板状燃料であり、標準型は、1 要素当り 20 枚の燃料板、フォロー型は、16 枚から成る。これらの要素の構造図を Fig. 8 及び Fig. 9 に示す。

(4) プール

炉室内に設けるプールは、Fig. 10 に示すように、原子炉プール、カナル、使用済プール及びサブプールより構成する。

原子炉プールは、高さ 8.5 m (水深 8 m)、内径 4.5 m の鍵穴形をしており、鉄筋コンクリートの内壁にステンレスクラッド鋼によるライニングを施したものである。このプールの生体遮蔽部には Fig. 11 に示すように 9 本の水平実験孔があり、遮蔽厚さ約 1.85 m、重コンクリートを充填する。また、このプールの上部には、固定遮蔽体及び両開きの摺動遮蔽体からなる上部遮蔽体が設置される。これは、燃料要素、照射リグ等の交換作業時に開放できる構造である。また、固定遮蔽体の上部には、均一照射設備用のキャスク等が設置される。

カナルは、使用済燃料及び照射試料等を使用済燃料プールの方に水中移動するためのものである。

使用済燃料プールには、使用済燃料を最大 120 体、貯蔵できる貯蔵ラックのほか、照射リグの冷却及び水切りのための設備を設ける。

サブプールには、冷中性子源装置の水素液化用コンデンサー及び水素緩衝タンクを水中に設ける。

(5) 制御装置

原子炉の反応度及び出力制御は、フォロー型燃料要素付制御棒の位置調整によって行う。制御棒駆動装置の説明図を Fig. 12 に示す。この装置は、炉心部における燃料要素照射リグなどを挿入、取出しに必要なスペースをできるだけ広く確保するため、原子炉プールの炉下室に駆動部を置く、下部駆動方式である。制御棒の構造は Fig. 13 に示すように吸収体にはボックス型のハフニウムを用い、フォロー型燃料要素と連結している。

この他、後備安全設備として重水ダンプがある。

(6) 冷却系設備

冷却系設備は主なものとして、Fig. 14 に示すように一次冷却系、重水系及び二次冷却系がある。これらは、炉心及び重水反射体その他で発生する熱を除去するものである。これらの配管、機器類は、主として原子炉建家の地階に配置される。

炉心の冷却は、燃料等が水流による浮上りを防止する下向流冷却方式である。この一次冷却系には、遮蔽設計を考慮して N-16 減衰タンク (約 30 m³)、商用電源喪失時の崩壊熱を除去する補助ポンプ (2 基)、配管破損事故時等の炉心冠水維持用サイフォンブレイク弁 (2 個) を設け

ている。

重水冷却系は重水タンク部の熱除去のための回路と重水分解ガスを安全に再結合させるためのヘリウム回路から構成される。また、制御棒のバックアップとして反射体の重水をダンプさせるダンプバルブを設けている。

(7) 計測制御系

JRR-3 改造炉は年間9 サイクル(4 週運転, 1 週停止を1 サイクルとする)の高稼働率運転を計画しているため運転の省力化, 省労化が必須である。

このため原子炉の運転は, 新たに原子炉建家外に設置する制御棟の2 階に設ける中央制御室からプロセス制御計算機によって全施設の集中監視を行う。

また, 運転支援システムとして, 上位計算機によるデータロギング及びオペレータガイダンス機能を持たせる。中央制御室には, 原子炉計測制御系のほか, 冷中性子源装置, 放射線監視設備, 建家維持設備等の監視設備を設け, 管理の一元化を図る計画である。

計測制御系統設備の構成を Fig. 15 に示す。中性子計装設備は Fig. 16 に示す。これらの検出器は, 重水反射体の囲りに設ける。原子炉出力制御設備は, 先に述べた制御棒駆動装置と, これを制御する回路で構成する (Fig. 17 参照)。工学的安全施設作動設備は, 非常排気設備あるいは, サイフォンブレイク弁を作動させるもので安全保護系の一部である。プロセス放射能監視設備は, 1 次冷却材及び2 次冷却材等の冷却材中の放射能を監視する設備であり, 燃料事故時モニター, 破損燃料検出装置等から構成する。

(8) 非常用電源設備

非常用電源設備としては, 商用電源の停止時に安全上重要な機器の運転, 監視する動力源として, 無停電電源装置及び非常用発電機を各2 基を独立させて, 原子炉制御棟の地階に設けている。

1.3 建家配置及び設備

JRR-3 改造後の建家配置を Fig. 18 に示す。このうち原子炉建家, 使用済燃料貯槽室, 事務管理棟及び排気筒は既設のものを再利用する。燃料管理施設, 実験利用棟, 原子炉制御棟コンプレッサ棟は増設する。また冷却塔は20 MW用に更新する。平面図を Fig. 19 及び Fig. 20 に示す。

次に実験装置の設置に関連する建家及び設備について述べる。

(1) 原子炉建家及び設備

原子炉建家は, 円筒形で地下1 階及び地上1 階の建物である。地下には, 冷却室, 計器室等を設けている。原子炉プール, カナル, 使用済燃料プール, サブプール及び詰替セルが一体構造として設置する。また, 実験利用棟方向へは, 炉心を中心に扇形の中性子ガイドトンネルを設置する。

本建家の出入口は, 全て気密扉であり, 一般用及び機器搬入用の扉が設けられている。この建家の漏洩率は10%/日以下とする。

炉室内での実験装置の据付に必要な付属設備としては, 水平実験孔1 G~6 G までの領域について, 扇形の床面に高平面度を有する御影石を張り, 中性子ビーム実験装置の設置及び移動を容易にする計画である。また, 炉室外壁近くに実験装置用及び運転保守用のステージを設ける (Fig. 21 参照)。

原子炉建家換気空調設備は、Fig.22に示すように、炉室給気系、炉室排気系、実験利用設備排気系及びオイルダンパ系で構成する。これらの設備のうち給気系の機器は、事務棟地階に設ける。また、排気側の機器は、実験利用棟の1階のホット機械室に設ける。炉室1階の空調は、高度の実験装置が多く配置されることを考慮して、原子炉停止期間を通じて常時換気することを原則とした設計である。

また、原子炉建家地階には、事故時に放射性物質が原子炉建家から環境へ放出されることを抑制するため非常用排気設備を設ける。これは、上記の換気空調設備を停止し、建家気密を確保すると同時に建家漏洩率相当の空気を沃素除去フィルタを通して排気筒から排気するものである。

(2) 実験利用棟

実験利用棟は、原子炉建家の東側に隣接した約30m×50m、地上2階建鉄骨鉄筋コンクリート造り（一部鉄骨造り）の建物である。

本建物の1階には、Fig.19のように、水力照射設備及び気送照射装置から取出された照射試料を取扱う詰替セル、操作室、実験室が設けられる。この他、廃液貯槽室、ホット機械室及び大型廃棄物保管室及びコールド機械室がある。2階（炉室1階と同一レベルであるが東側から見ると2階に当る）には、Fig.20に示すように中性子ガイドチューブの曲管部を遮蔽する導管室、中性子散乱実験を行うビームホール、器材室及び実験準備室がある。このビームホールには5本の中性子導管を設置し、約16台の中性子散乱実験装置が設けられるようにするため、空気、水、ガス等の供給設備が設けられる。また、装置組込みのために5トンの走行クレーンがある。

参 考 文 献

- 1) 鶴田晴通, 市川博善, 岩崎淳一; JRR-3 改造炉の核設計, JAERI-M-84-099 (1984).

Table 1 Construction Schedule of Upgraded JRR-3.

施設		年度	59	60	61	62	63	64	65
原子炉本体		安全審査	設計・製作			据付・調整		総合機能試験	利用運転
		特性試験							
実験利用設備			設計・製作			据付・調整			
付属建家	実験利用棟	設計	建設-I			建設-II			
	コンプレッサ棟				設計	建設			
	原子炉制御棟		設計	建設					
	冷却塔					設計	建設		
撤去			設計	原子炉本体等撤去工事					

Table 2 Summary of Upgraded JRR-3.

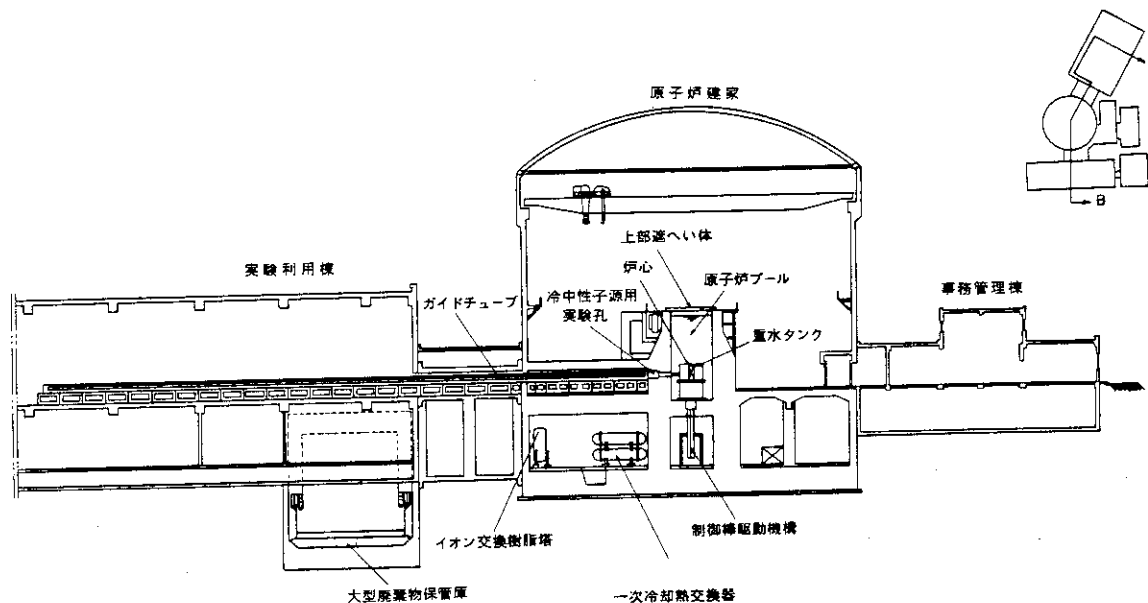
		現 状	改 造 後
炉 型 式		重水減速重水冷却 黒鉛反射体 タンク型	軽水減速, 軽水冷却 重水反射体付プール型
熱 出 力		10 MW	20 MW
最大熱中性子束		約 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$	約 $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$
炉 心	形 状	円柱 (約 $260 \text{ cm } \phi \times 210 \text{ cm H}$)	円柱 (約 $60 \text{ cm } \phi \times 75 \text{ cm H}$)
	格 子 数	260 格子 (燃料 243 体) (制御棒 17 体)	37 格子 (標準 26 体, 照射孔 5 体) (制御棒付 6 体)
	燃 料	1.5%濃縮 UO_2 ペレット (4 体 クラスト型)	20%濃縮 U- Al 分散型板状 (20枚要素 ETR 型)
制 御 棒		カドミウム吸収体 (円筒型)	ハフニウム吸収体 (箱型)
主 要 実 験 設 備	水 平 実 験 孔	8 本	9 本
	ル ー プ 装 置	極低温照射装置 1 基	冷中性子源装置 1 基
	照 射 設 備	垂直孔 5 本 (34 本)※ 気送管 3 本 (4 本)※	垂直孔 16 本 気送管 3 本 水力ラビット 2 本

※ 注 1 ()内は, 実設置数であるが, 熱中性子束が低いため, 現状の要求に
 応えられるものがそれぞれ 5 本及び 3 本である。

Table 3 Technical Specifications

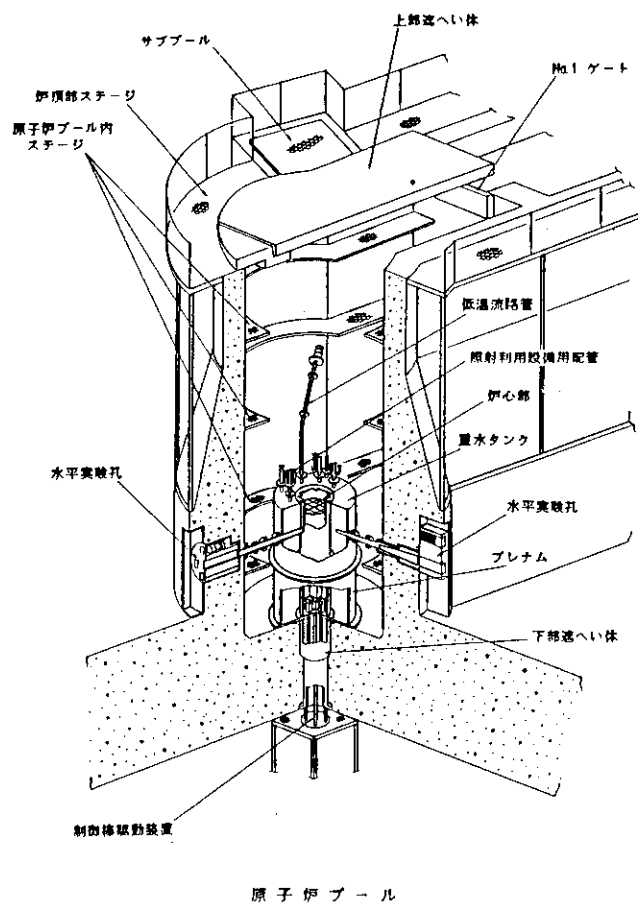
1) 原子炉炉心	
(1) 形状及び寸法	円筒型, 直径60cm (ベリリウム反射体付), 高さ75cm
(2) 燃料本数	標準燃料要素 26 体 フォロワ (制御棒) 要素 6 体
(3) 燃料要素	
燃料板	標準型 20 枚 寸法 $1.52^t \times 71^{\square} \times 770^{\ell}$ フォロア型 16 枚 " $1.52^t \times 60^{\square} \times 770$
燃料芯材	UAlx-Al
被覆材	AG 3 NE アルミニウム合金
(4) 減速材	軽水
(5) 燃料格子	正方形, ピッチ 約 7.7 cm
(6) 臨界量	約 4.5 kg ^{235}U
(7) ウラン装荷量	約 9 kg ^{235}U
(8) 平均比出力	約 2,200 kW/kg ^{235}U
(9) 平均出力密度	約 156 kW/ ℓ
(10) 燃焼度	平均 (燃料要素) 40 % 最大 (燃料要素) 50 %
(11) 燃料交換方式	5 バッチ分散方式
2) 核設計 ¹⁾	
(1) 中性子束	最大熱中性子束 (重水反射体中) $2.7 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 高速中性子束 (炉心内) $3 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$
(2) 反応度バランス	最大 (初装荷) 16.3 % $\Delta K/K$ 最大 (平衡炉心初期) 11.3 % $\Delta K/K$ 反応度補償 (平衡炉心初期) 燃焼度 6.3 % $\Delta K/K$ 実験物 3.7 % $\Delta K/K$ 運 転 1.3 % $\Delta K/K$
3) 熱水力設計	
(1) 炉心全伝熱面積	53 m ²
(2) 平均熱流束	38 W/cm ²
(3) 燃料温度	被覆材最高温度 100 °C
(4) 一次系冷却材流量	2,400 m ³ /h
(5) 冷却材圧力及び温度	炉心流路入口 35 °C, 1.55 kg/cm ² · a 炉心流路出口 44 °C,
(6) 核の熱水路係数	3.11

(7) 熱水路係数	冷却材バルク温度上昇因子 1.33 フィルム温度上昇因子 1.37
(8) 原子炉停止時熱除去	一次冷却材補助ポンプ, 自然循環弁
4) 原子炉制御	
(1) 制御棒及び安全棒	6 本 (フォロー型燃料要素上部), 箱型吸収体 有効長: 79 cm 吸収体: ハフニウム 微調整用: 2 本 粗調整用: 4 本 全制御棒価値 平衡炉心初期 0.33 $\Delta K/K$ ワンロードスタックマージン 平衡炉心初期 0.11 $\Delta K/K$ 駆動速度 微調整用最大 30 cm/min 粗調整用最大 10 cm/min
(2) 反応度添加率	最大 $7.5 \times 10^{-4} \% \Delta K/K/sec$
(3) スクラム時間及び 駆動機構	全ストロークの80%挿入時間 1 sec 以下 磁気クラッチ式, 重力落下
(4) 温度係数	減速材温度係数 ($0^{\circ}C \sim 100^{\circ}C$) 平衡炉心初期 $(-1.5 \sim -3.3) \times 10^{-4} \Delta K/K/^{\circ}C$
(5) 他の原子炉停止系	重水ダンプ系 反応度価値: 0.06 $\Delta K/K$ (全量排水時)



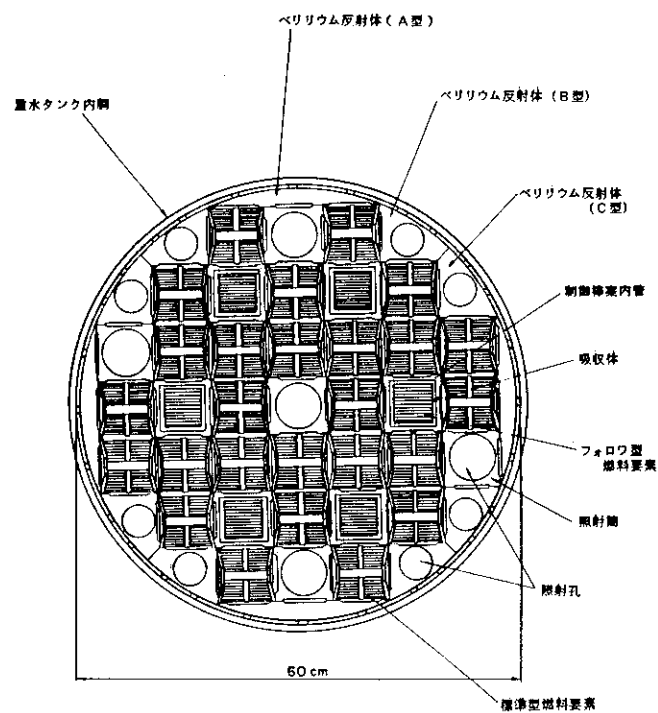
建屋断面図

Fig. 1 Vertical Section of Reactor Building.



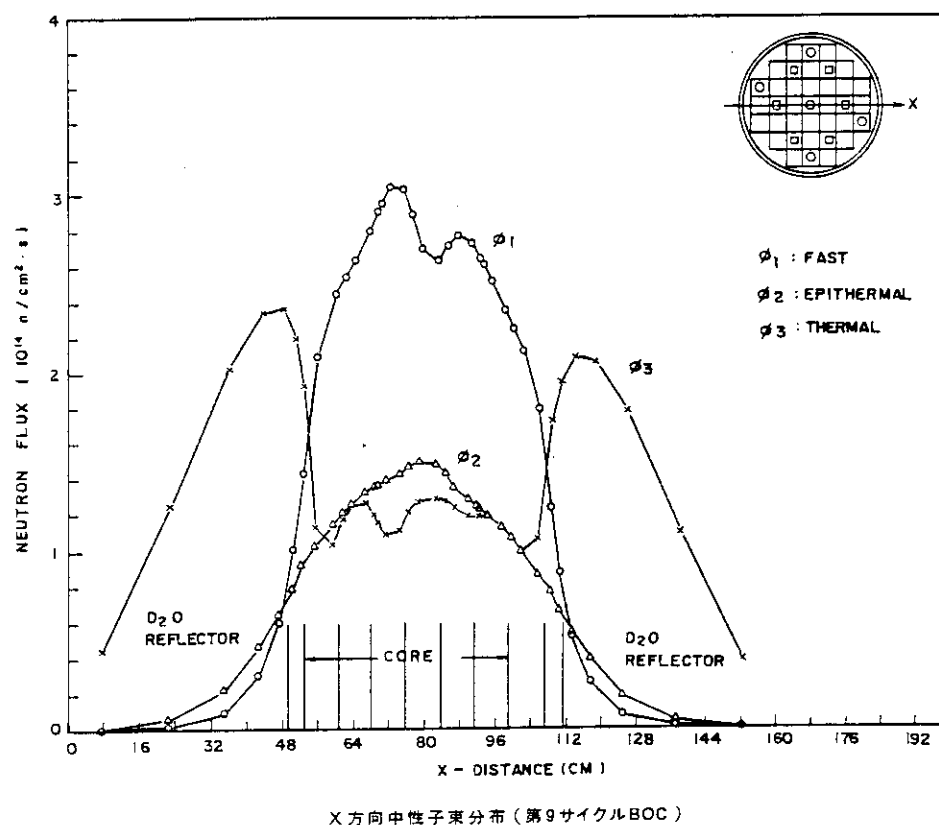
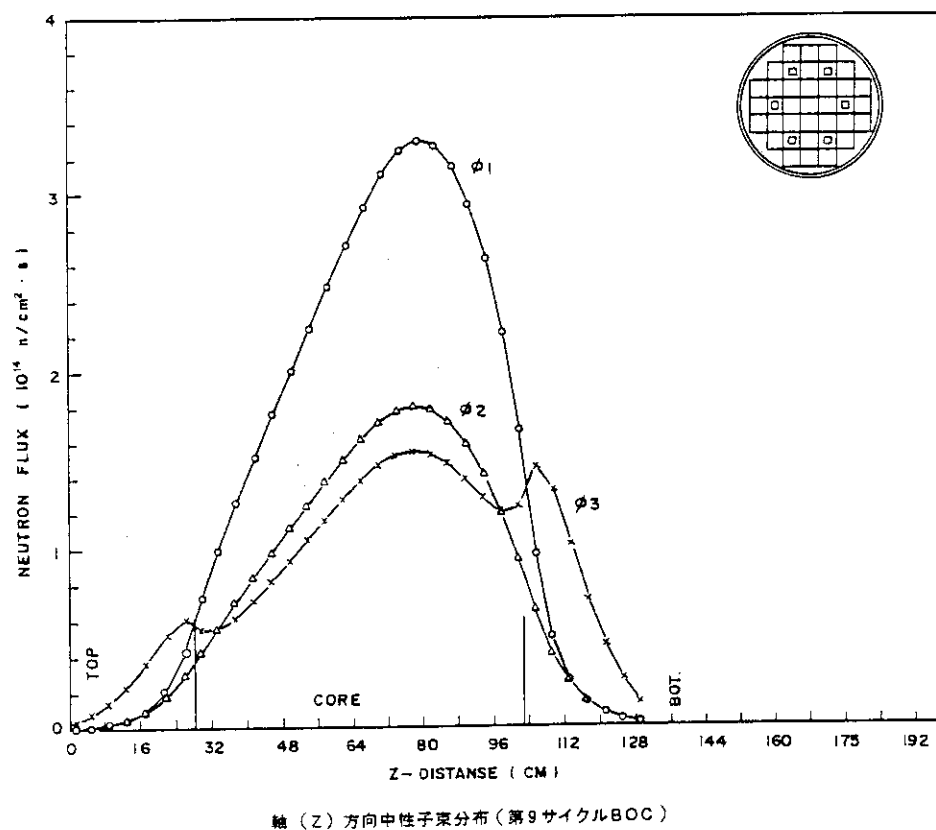
原子炉プール

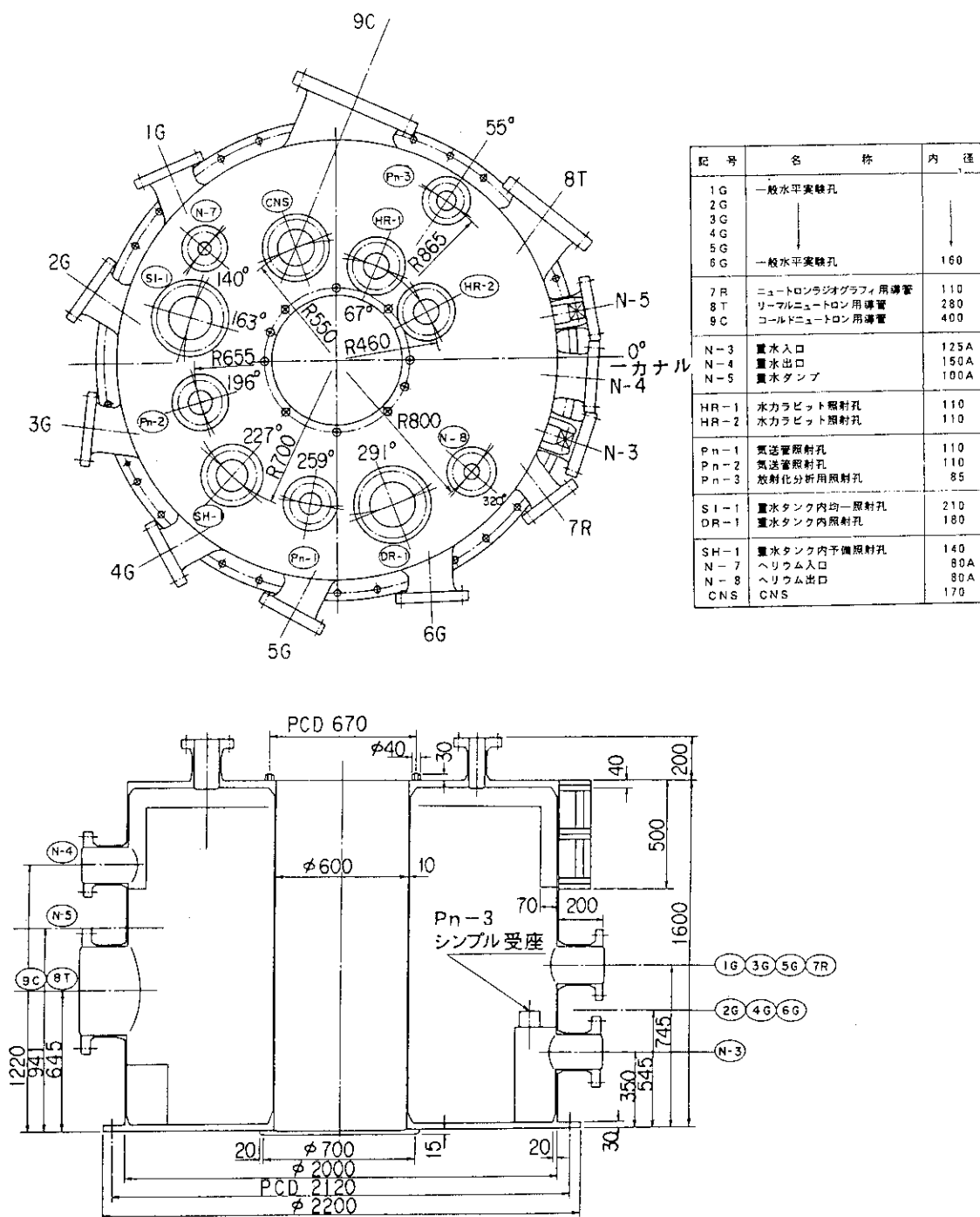
Fig. 2 Isometric View of Upgraded JRR-3.



原子炉心断面

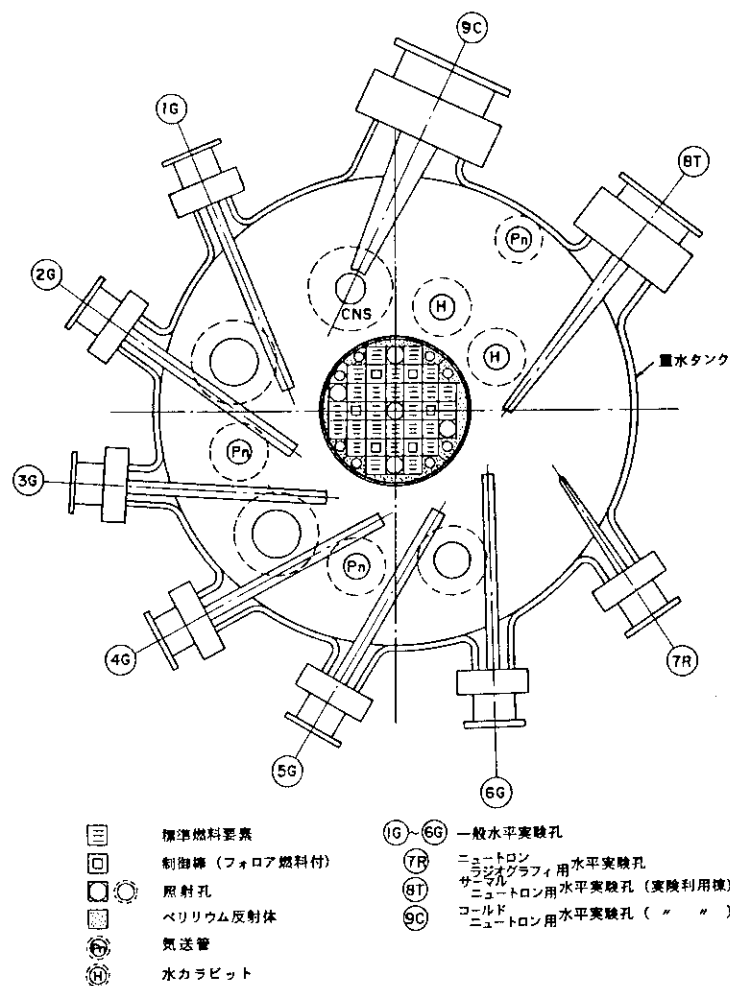
Fig. 3 Horizontal Section of Reactor Core.

Fig. 4 Typical Radial Neutron Flux Distribution.¹⁾Fig. 5 Axial Flux Neutron Distribution at Core Center.¹⁾



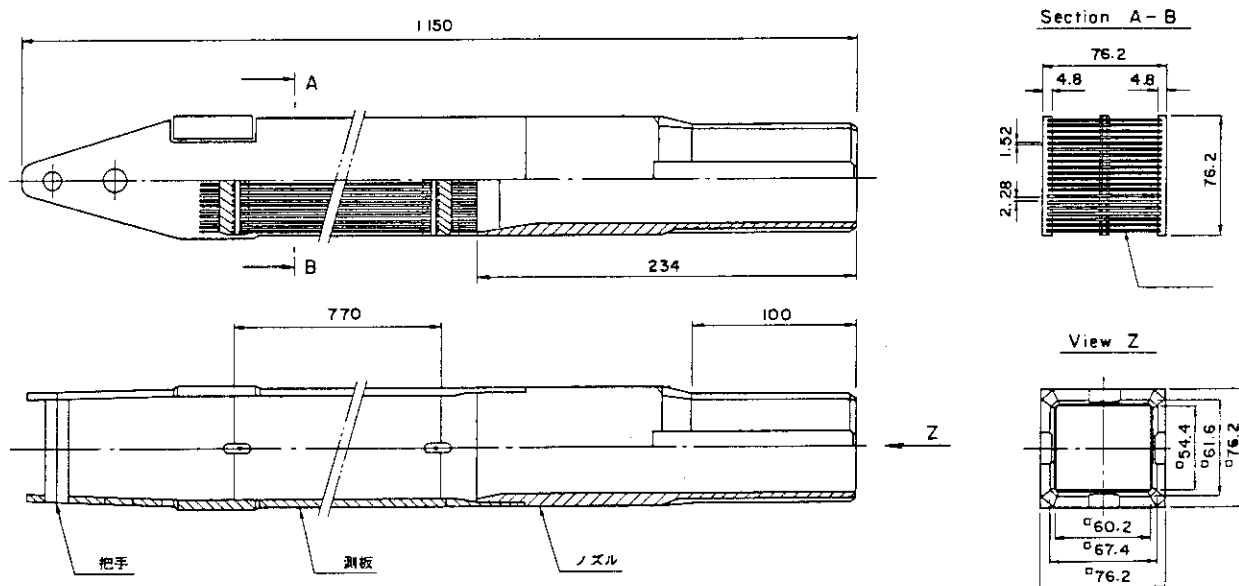
重水タンク本体構造図

Fig. 6 Experimental Holes Installed in Heavy Water Tank.



改造炉心構成要素配置図

Fig. 7 Designation of Experimental Holes.



標準型燃料要素 (燃料板: 20枚)

Fig. 8 Standard Fuel Element.

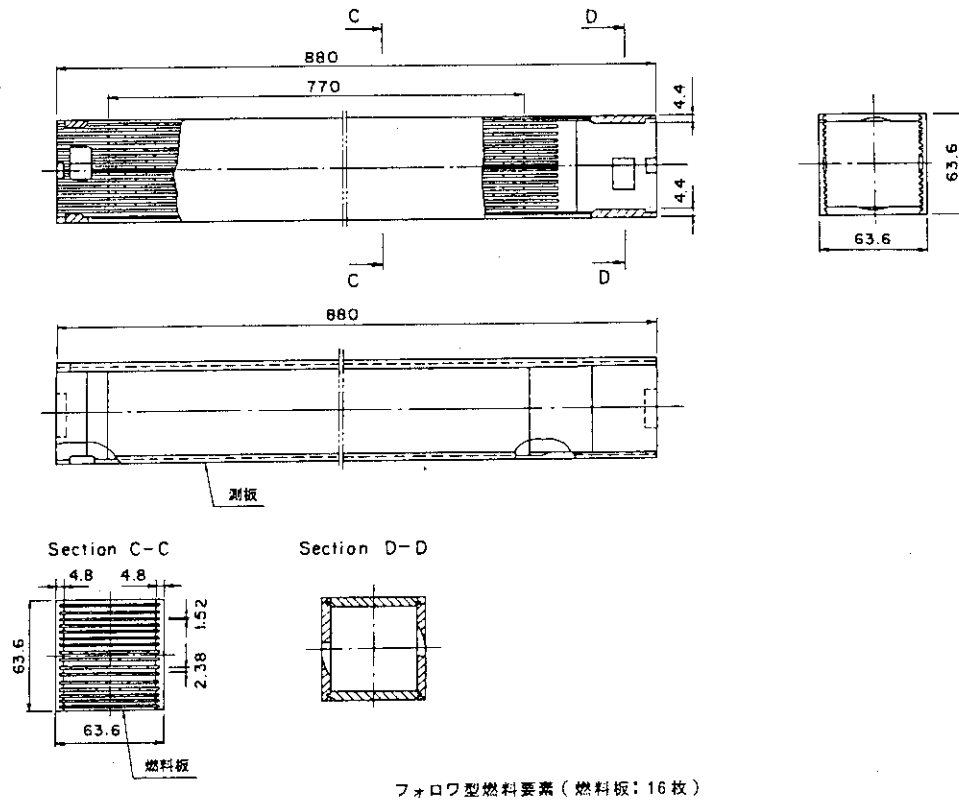


Fig. 9 Follower Fuel Element.

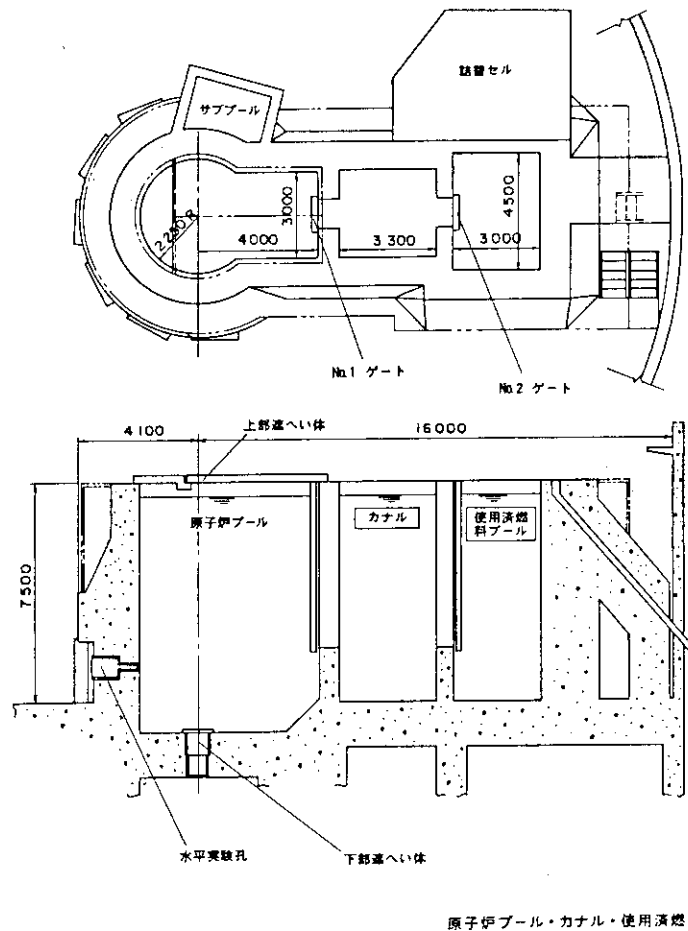
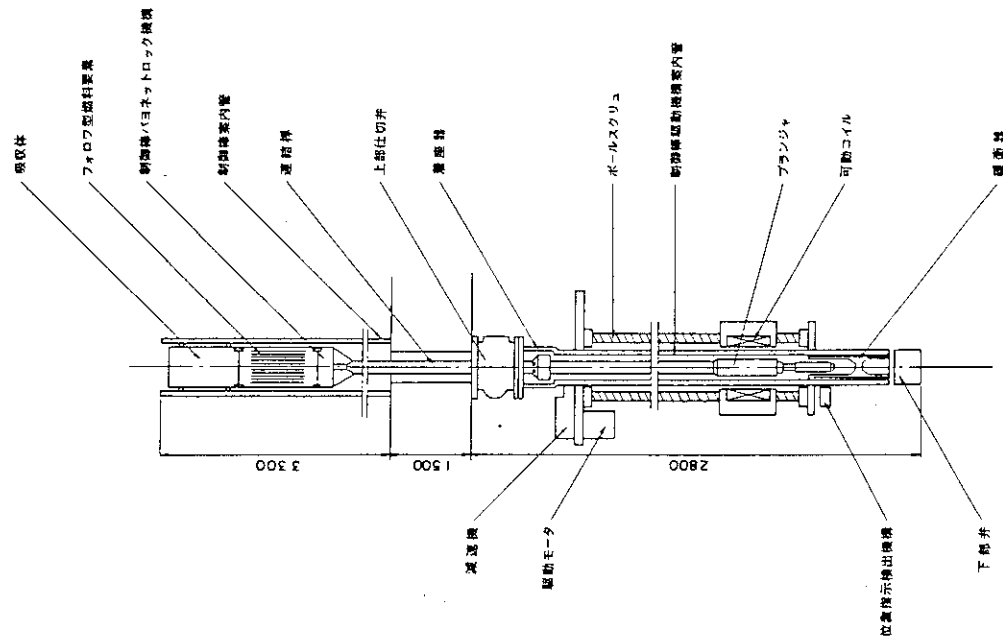


Fig. 10 Reactor Pool, Canal, Spent Fuel pond.



制御棒駆動装置概要構造

Fig. 12 Control Rod Drive Mechanism.

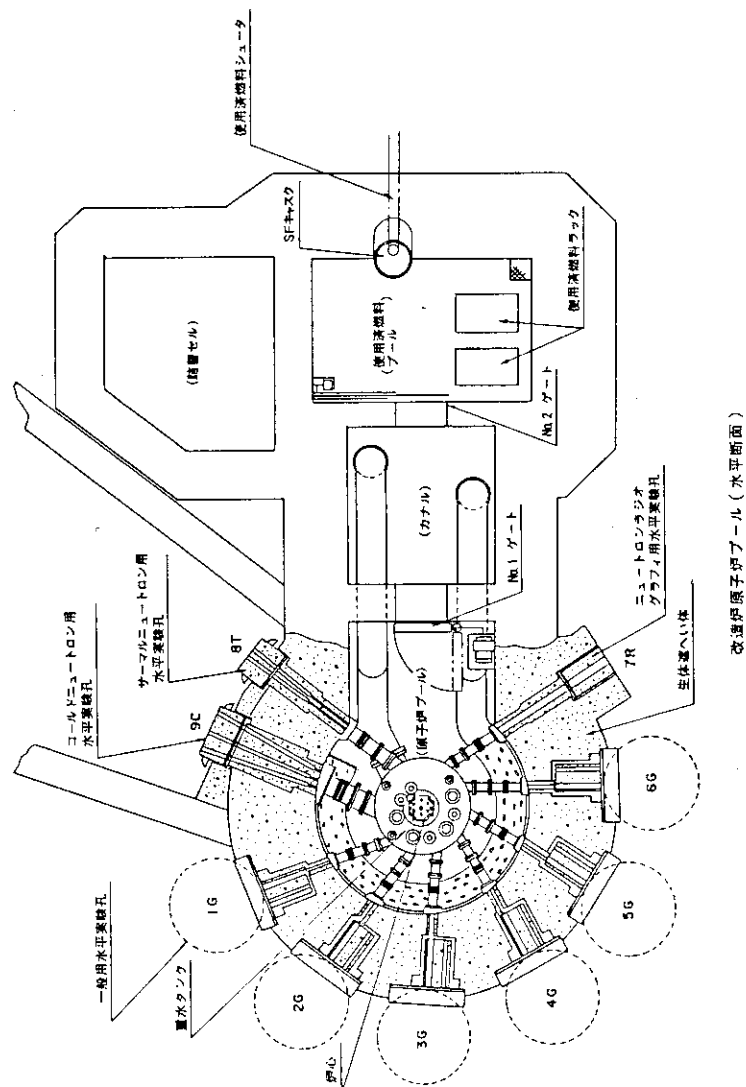
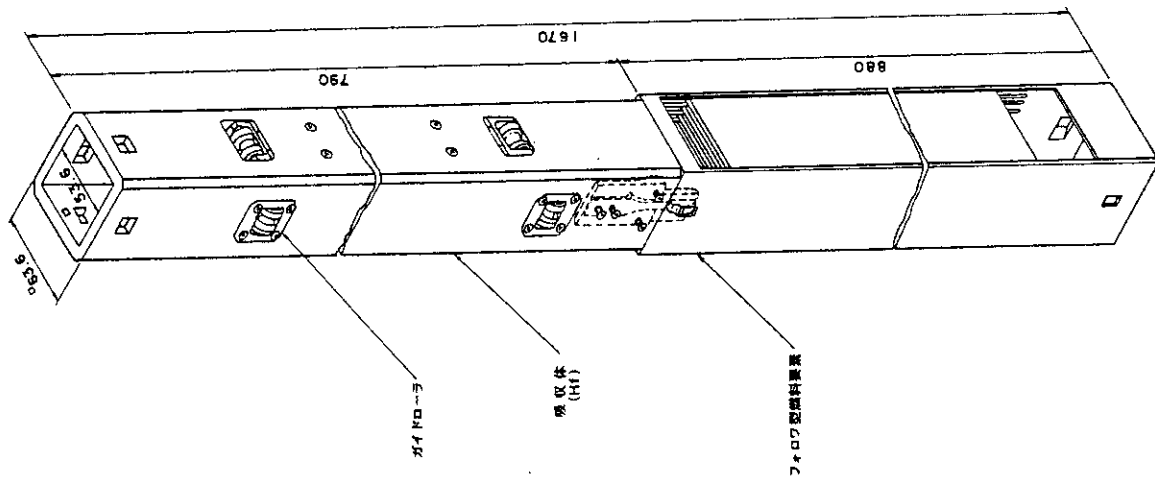
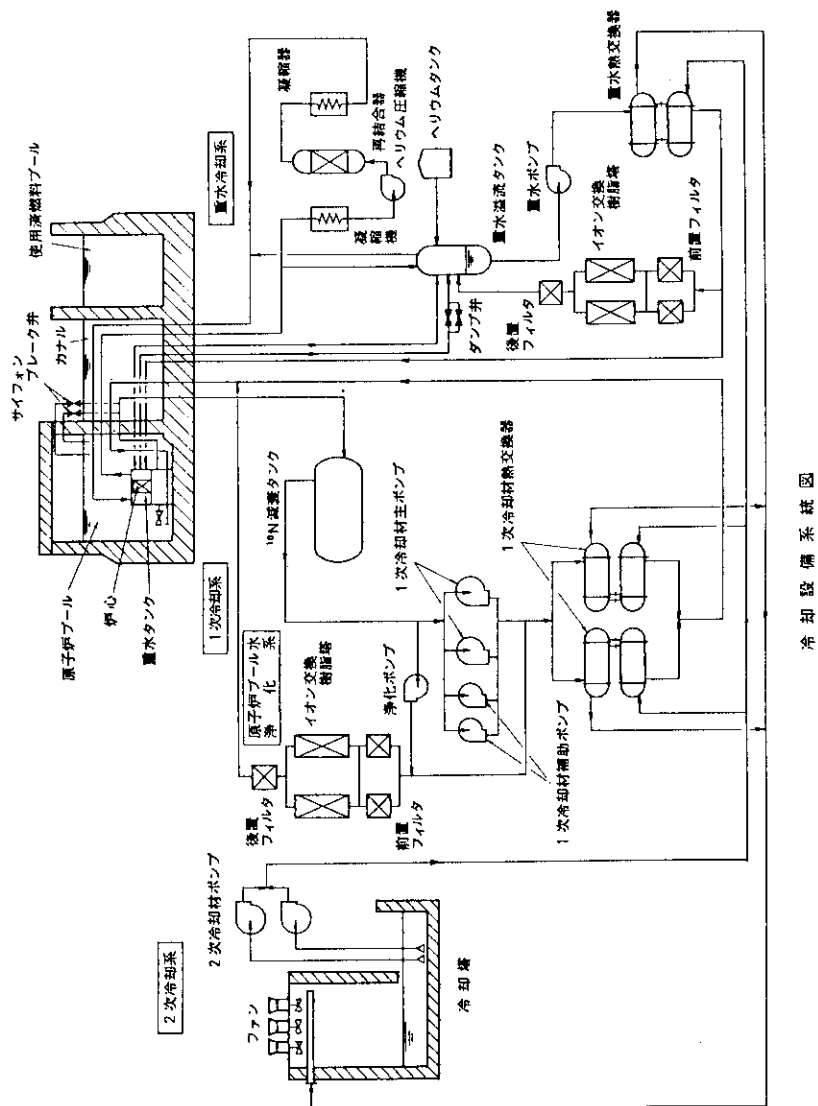


Fig. 11 Horizontal Beam Tube in Reactor Pool.



制御棒挿入機構

Fig. 13 Control Rod.



冷却システム図

Fig. 14 Reactor Cooling System.

計測制御系統施設の構成

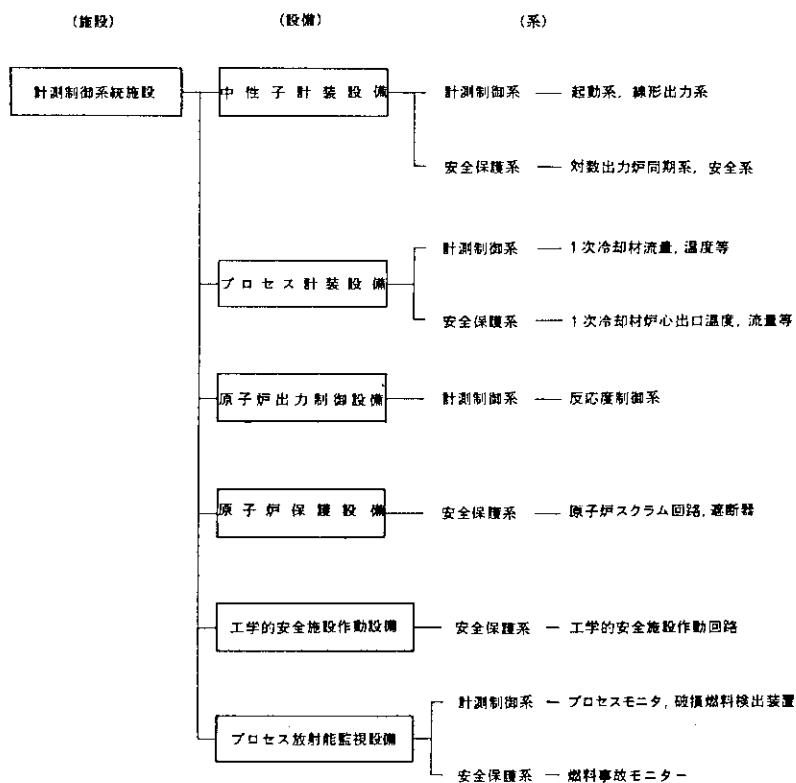


Fig. 15 Block diagram on measurement and control system.

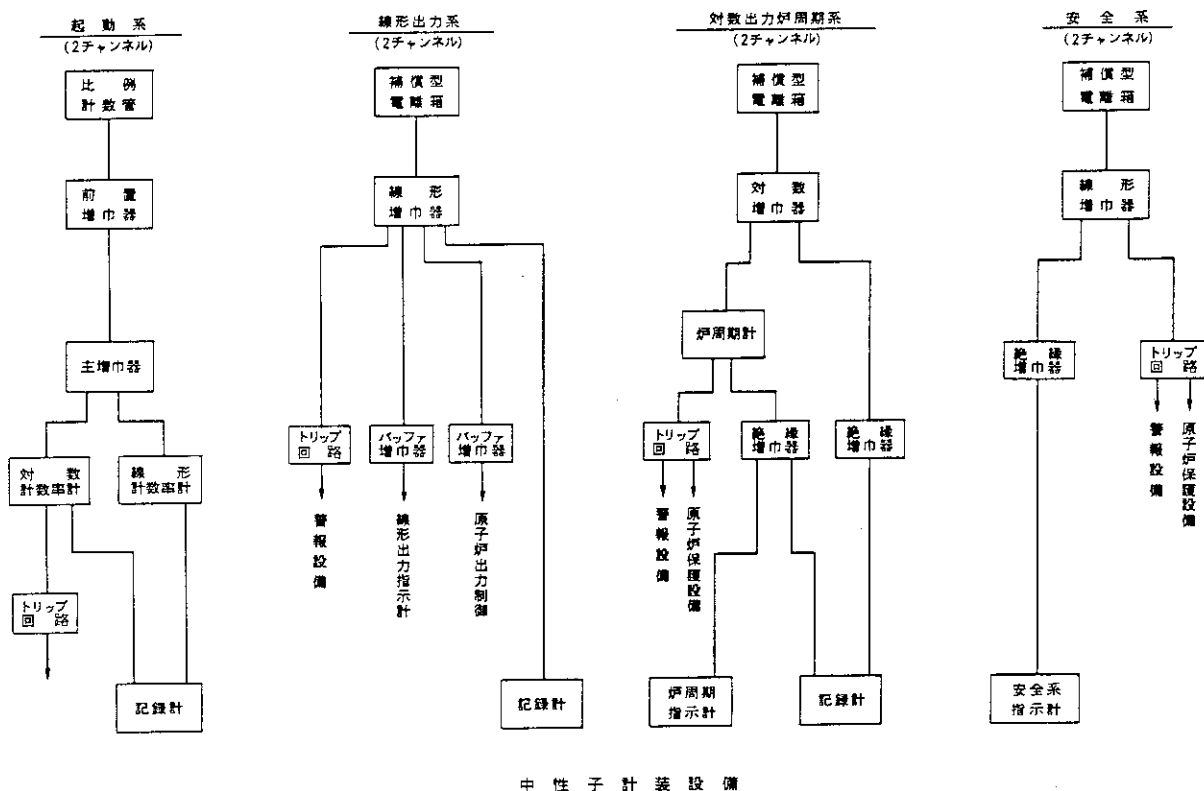


Fig. 16 Neutron measuring system.

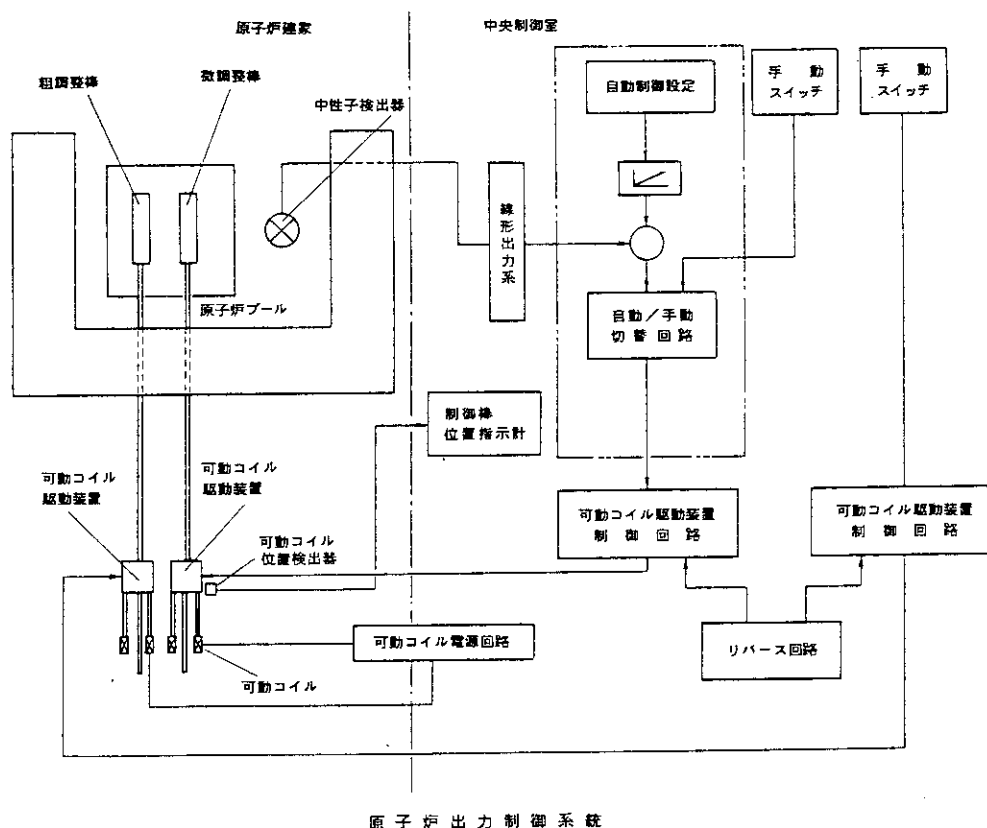


Fig. 17 Reactor control system.

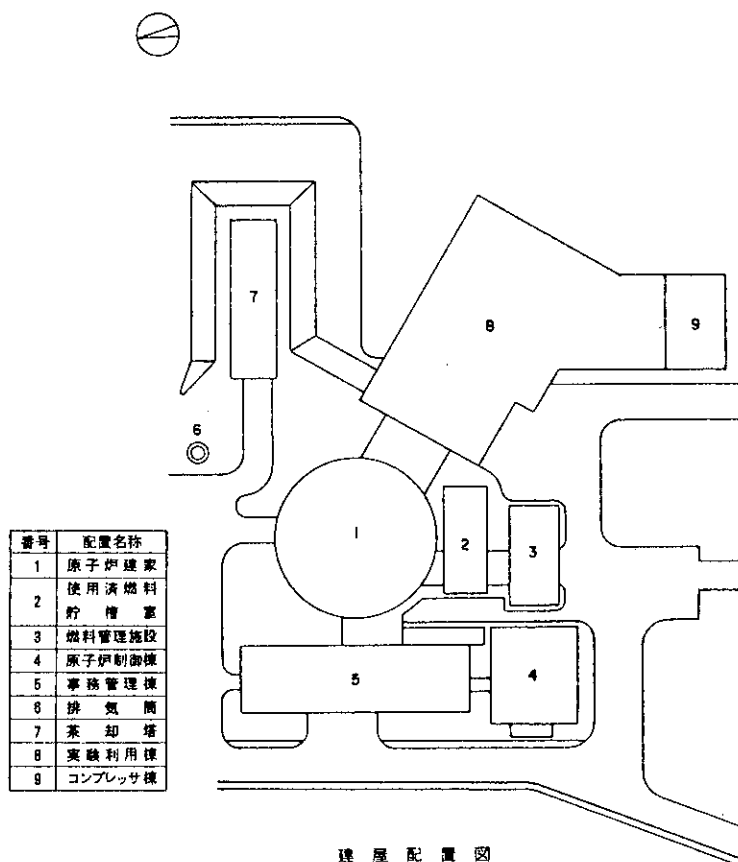


Fig. 18 Building of upgraded JRR-3 reactor site.

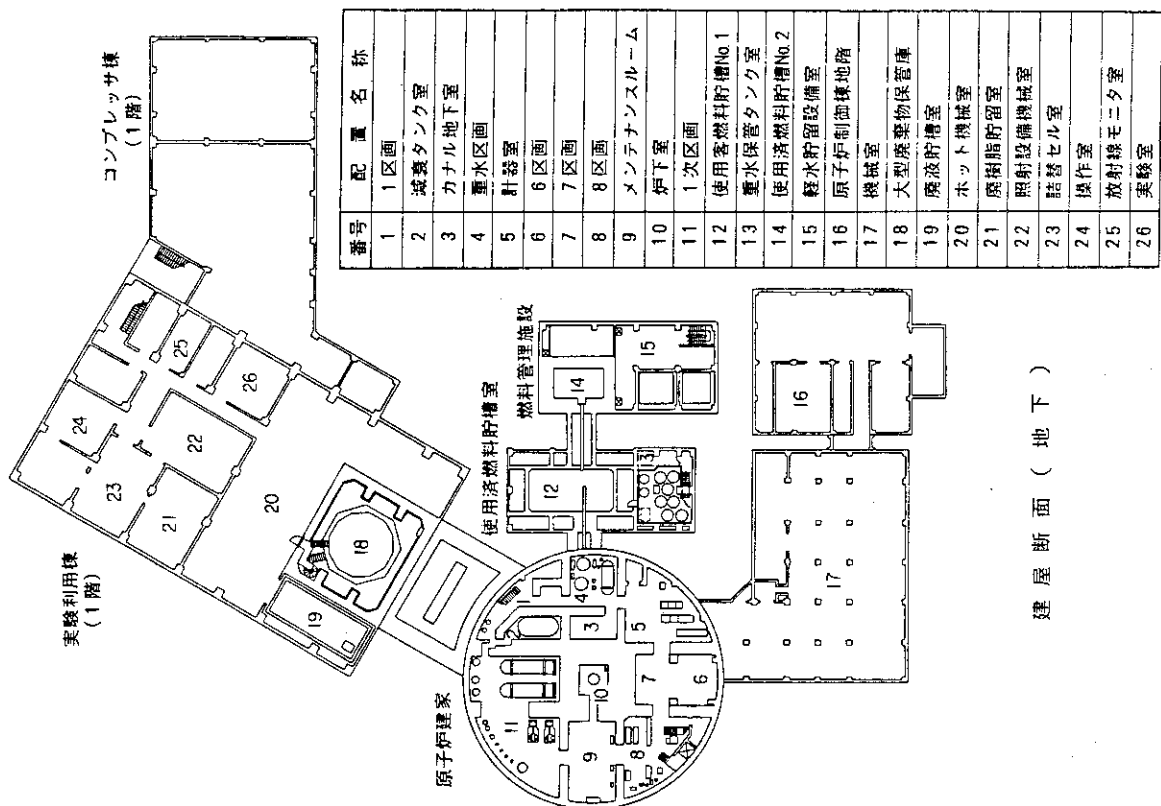


Fig. 19 Horizontal section of reactor (Basement plan).

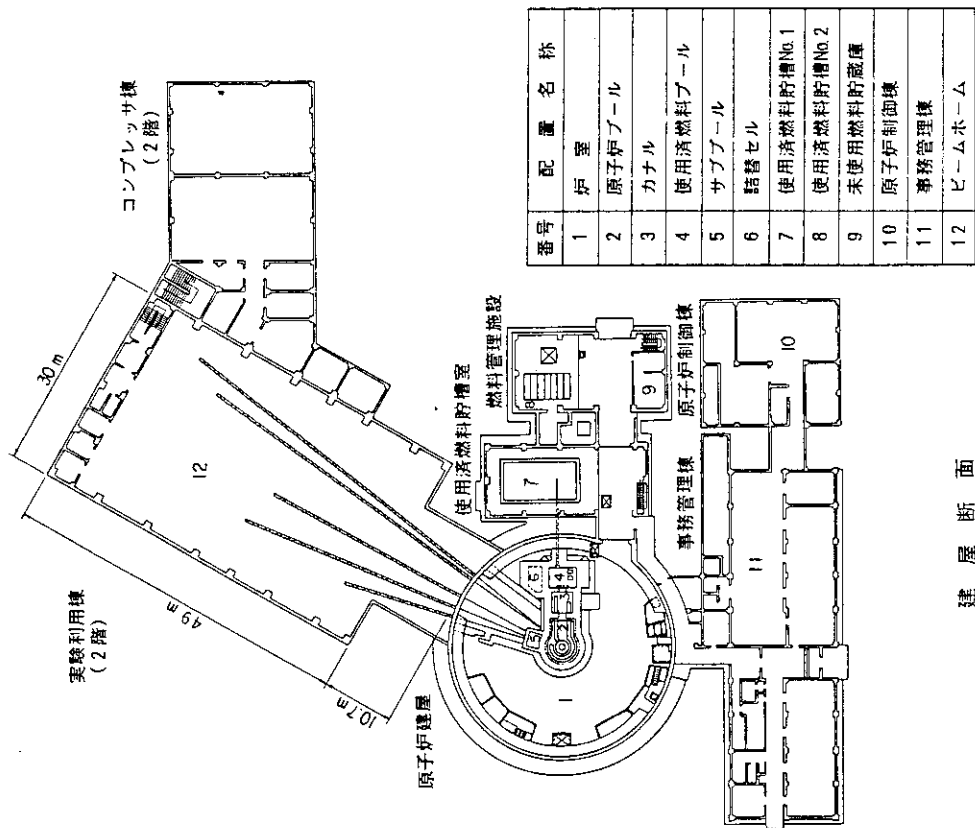


Fig. 20 Horizontal section of reactor (First floor).

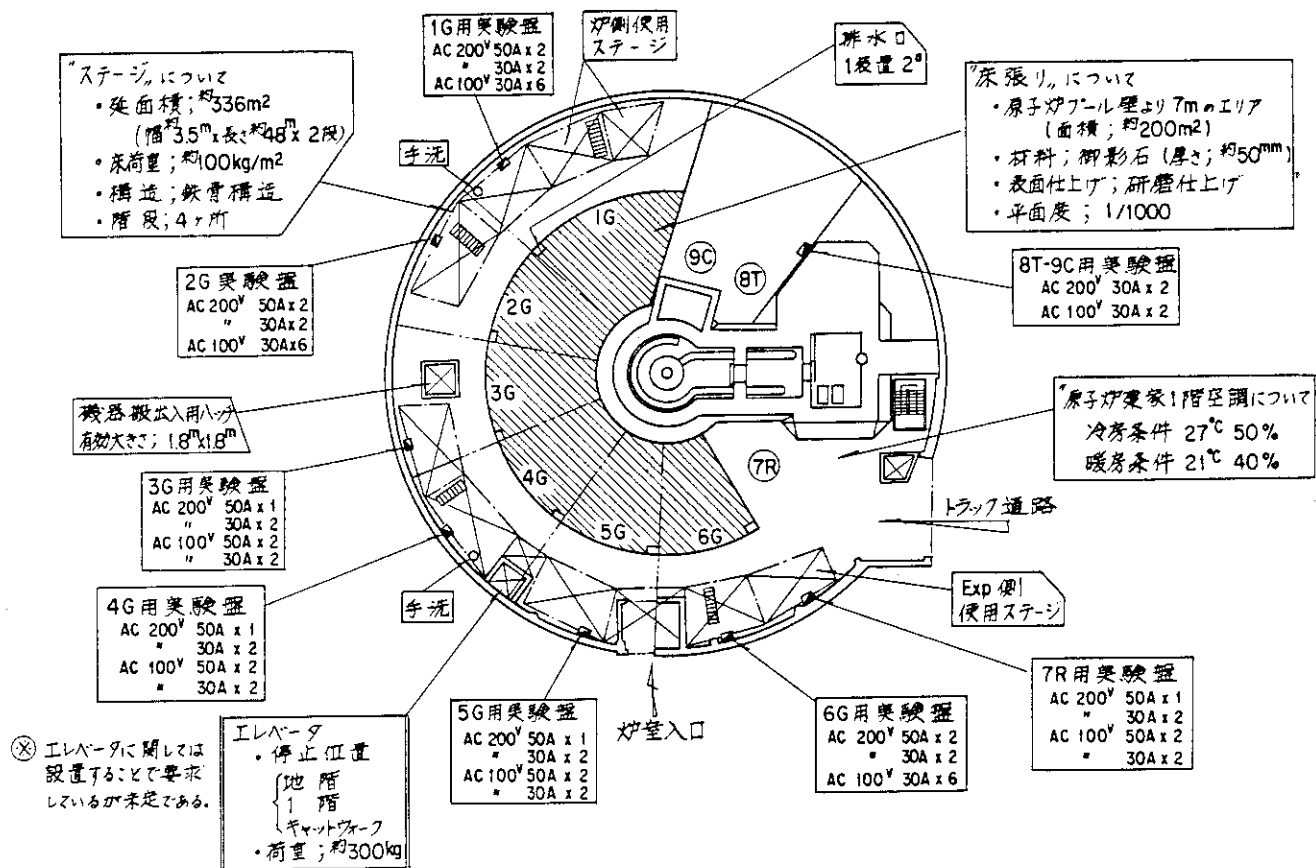


Fig. 21 Utilities in reactor hall for neutron beam facilities.

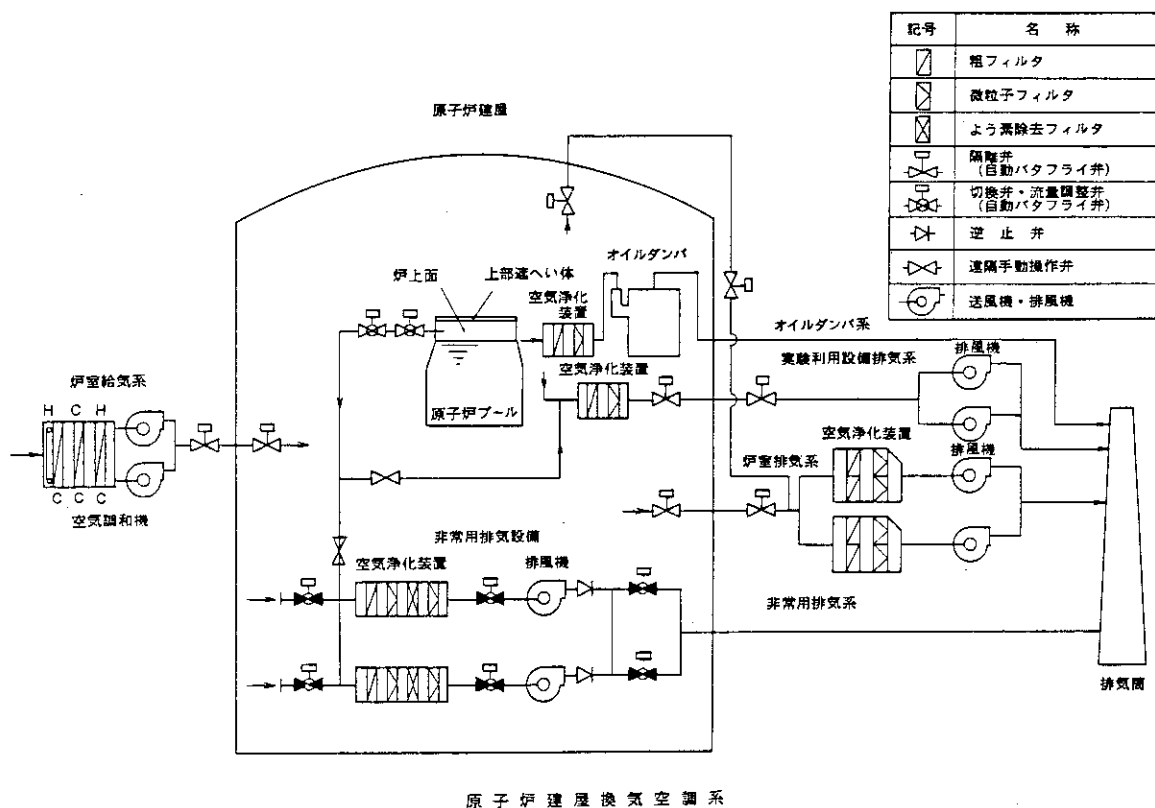


Fig. 22 Exhaustive air system of reactor building.

2. 中性子照射利用

目 次

2. 中性子照射利用		
2.1 照射利用設備	高橋 秀武 (原研研究炉管理部)	27
2.1.1 水力照射設備		27
2.1.2 気送照射設備		28
2.1.3 短寿命放射化分析照射設備		29
2.1.4 均一照射設備		29
2.1.5 回転照射設備		29
2.1.6 垂直照射設備		30
2.1.7 詰替セル		31
2.2 研究炉による燃料材料照射研究の最近の動向		38
2.2.1 はじめに	近藤 達男 (原研燃料工学部)	38
2.2.2 高温ガス炉燃料	福田 幸朔 (原研燃料工学部)	39
2.2.3 高温ガス炉用黒鉛材料	松尾 秀人 (原研燃料工学部)	48
2.2.4 高温ガス炉用金属材料	奥 達雄 (原研高温工学部)	57
2.2.5 核融合炉用燃料 (トリチウム増殖固体ブランケット材料)	渡辺 齊 (原研燃料工学部)	64
2.2.6 核融合炉用金属材料	菱沼 章道 (原研燃料工学部)	71
2.2.7 核融合炉用特殊用途材料	勝田 博司 (原研燃料工学部)	77
2.2.8 軽水炉用燃料及び被覆材料	市川 達生 (原研燃料安全工学部)	82
2.2.9 軽水炉用圧力容器材料	宮園昭八郎 (原研原子炉安全工学部)	94
2.2.10 高速炉用燃料	半田 宗男 (原研燃料工学部)	100
2.2.11 高速炉用金属材料	中島 甫 (原研燃料工学部)	105
2.2.12 おわりに	近藤 達男 (原研燃料工学部)	112
2.3 放射化分析等の最近の動向		114
2.3.1 放射化分析の最近の動向	米澤仲四郎 (原研化学部)	114
2.3.2 大学開放研における放射化を利用した研究	伊藤 泰男 (大学開放研)	122
2.3.3 放射化分析の農林水産分野への利用	結田 康一 (農業技術研究所)	125
2.4 RI製造の最近の動向		133
2.4.1 RIの製造	山林 尚道 (原研アイソトープ部)	133
2.4.2 医療用 RI 線源	加藤 久 (原研アイソトープ部)	144
2.4.3 研究用 RI	伊藤 泰男 (大学開放研究室)	150
2.5 シリコンドーピングの最近の動向	辻村 重男 (放射線照射振興協会)	152

2. Utilization for neutron irradiation	H. Takahashi (JAERI)	
2.1 Irradiation facilities		27
2.2.1 Hydraulic rabbit irradiation		28
2.1.2 Pneumatic tube irradiation		28
2.1.3 Short-life activation analysis irradiation		29
2.1.4 Uniform irradiation		29
2.1.5 Rotating irradiation		29
2.1.6 Rig irradiation		30
2.1.7 Hot cell		31
2.2 Recent trends on irradiation research of fuels and materials in research reactor		38
2.2.1 Introduction	T. Kondo (JAERI)	38
2.2.2 Fuels for VHTR	K. Fukuda (JAERI)	39
2.2.3 Graphite for VHTR	H. Matsuo (JAERI)	48
2.2.4 Metallic materials for VHTR	T. Oku (JAERI)	57
2.2.5 Fuels for fusion reactor (Solid blanket for tritium breeding)		
	H. Watanabe (JAERI)	64
2.2.6 Metallic materials for fusion reactor	A. Hishinuma (JAERI)	71
2.2.7 Special purpose materials for fusion reactor		
	H. Katsuta (JAERI)	77
2.2.8 Fuels and cladding materials for LWR	M. Ichikawa (JAERI)	82
2.2.9 Materials for pressure vessels of LWR	S. Miyazono (JAERI)	94
2.2.10 Fuels for fast breeder reactor	M. Handa (JAERI)	100
2.2.11 Metallic materials for fast breeder reactor		
	H. Nakajima (JAERI)	105
2.2.12 Final remarks	T. Kondo (JAERI)	112
2.3 Recent trends on activation analysis and related research		114
2.3.1 Current topics on activation analysis	C. Yonezawa (JAERI)	114
2.3.2 Studies with activation by university users		
	Y. Ito (Interuniv. Lab.)	122
2.3.3 Use of activation analysis in agriculture and fishery		
	K. Yuita (N.I. Agrecul. Sci.)	125
2.4 Recent trends on radioisotope production		133
2.4.1 RI production	N. Yamabayashi (JAERI)	133

2.4.2	RI sources for medical use	H. Kato	(JAERI)		144
2.4.3	RI for research experiments	Y. Ito	(Interuniv. Lab.)		150
2.5	Recent trends on neutron transmutation doping for semiconductors				
		S. Tsujimura	(Irrad. Dev. Ass.)	...	152

2. 中性子照射利用

2.1 照射利用設備

原研研究炉管理部 高橋秀武

照射利用設備は、試料を炉心に挿入することによって、試料に中性子を照射し、原子炉用燃料や材料の照射試験、ラジオアイソトープ生産、放射化分析などを行うための設備である。この設備は、従来から研究炉や材料試験炉に設置され、原子力研究所、大学、その他の研究機関などでの研究・開発などに長年利用されてきたものである。JRR-3改造炉に設置する照射利用設備は、他の研究炉における同類の設備と互に補完し合えるよう設計すると共に、使用上の改善を図り、効率の良い中性子照射が行えることを目指している。

中性子照射は、試料の種類、量、照射時間、照射の目的などによって多種・多様な条件の下で行われるため、照射利用設備は、種々の条件に対応できるものとする必要がある。Fig. 1に炉内の照射孔配置を、Fig. 2に中性子束分布を示す。また Table 1に照射設備としては、短時間照射を行うために原子炉運転中に試料を炉心に挿入、取出しを行う水力照射設備、気送照射設備、放射化分析用照射設備、均一照射設備と、原子炉の運転サイクルを照射時間単位とし、炉心への試料挿入・取出しを原子炉停止中に行う垂直照射設備及び回転照射設備とから構成される。また照射後の試料を取扱い、水力照射設備及び気送照射設備の機器の一部を格納する詰替セルを炉室内及び実験利用棟に設ける。さらに、RI棟の詰替セルに、ラジオアイソトープ生産のための試料を実験利用棟から搬送し、簡便かつ短時間にRI生産のプロセスが行えるようにする。

2.1.1 水力照射設備 (Fig.3 参照)

水力照射設備は、原子炉運転中の任意の時間に、試料を中性子照射するために炉心へ試料を挿入、取出しを行う設備である。本設備は、比較的大きな発熱量（最大3kw）、大型試料を照射できるように、試料を入れた容器（ラビットと称する）を流水の駆動力を利用して、炉外から炉心への搬送、照射中の冷却を行うものである。冷却水が炉心内を循環する照射系の機器類は、原子炉プール、カナル等に隣接して設けられる炉室内の詰替セル内に設置され、照射後のラビットは一時的に、この詰替セル内の転送機に取り出される。転送機に取り出された試料を、実験利用棟の詰替セルに搬送するため、照射系と分離する転送系を設け、照射系から転送系へラビットを乗り換えさせる。照射系は閉ループとし、系内に減衰タンクを設けることによって、系外への放出を防止するとともに照射系内の放射能濃度を低下させる。

ラビットの寸法は、外径32mm、長さ150mmとし、JMTRの水力ラビットと同じ寸法を採用する。これによって、RI生産用の試料は、JMTRと同等のものを取扱えることになり、年間を通じてのRIの出荷が定常的に行い得る。定常的出荷が、製品価値を高め得るモリブデン等のRIの需要の増加が期待できよう。また、ラビット輸送用キャスク、開封機等も共通のものが使用できるなど、寸法を統一するメリットは大きい。

ラビットの最大発熱量は、JMTRに比して $\frac{1}{4} \sim \frac{1}{3}$ と小さいが、高発熱量の試料は照射需要も

比較的少く、JMTR に対応できるため、最大発熱量を小さく制限する代りに、冷却水の流路方向の切替時間、流量制限値等の設備の設計条件を緩かなものにし、使い易さを優先させる。

水力照射設備の運転、監視は、実験利用棟の操作室で集中して行うことができるように計画しているが、試料を入れたラビットの取扱いも、この操作室近傍で集中して行えることを原則として設計する。照射前のラビットの転送系への挿入は、実験利用棟の詰替セル室内で行えるようにし、ここから転送系を介して炉室内の炉室詰替セル内に設ける転送機へ搬送し、ここでラビットを転送系から照射系へ乗り換えさせ、照射する。照射したのちに、転送機へ逆送されたラビットは、線量率をチェックされたのち、転送系を介して実験利用棟の詰替セル内に取り出される。この詰替セルで利用者へ引き渡される外に、RI 転送系を介して、RI 棟詰替セルへ搬送することもできる。これにより、定常的な RI 生産を行う場合には、キャスク等を用いずに、ラビットを RI 棟へ引き渡すことができる。又、RI 棟詰替セルが定期点検等のため、RI 転送系を使用できない場合でも、実験利用棟から従来のキャスクを用いて RI 棟の他のセルへ搬送できることにより、定常的 RI 生産を確保することができる。

核燃料の照射試験のように放射能強度の迅速な減衰が期待できない場合には、照射後のラビットを炉室の詰替セルで転送機から取り出し、ホットラボへ炉室詰替セルから運び出すことができるようにする。これにより、水力照射設備では、種々の照射試験に対応することができる。ただし、水力照射設備で用いるラビットは、発熱量が比較的大きいものや、照射時間が長い、生成放射エネルギーが大きい照射を行うことに対処するために、その材質をアルミニウム合金、ステンレス鋼を用いなければならない。又、健全性を担保しなければならない。このため、気送照射設備などに比べると、照射の簡便性ではやや難点があることになるので、今後は、より簡便な照射が行えるように努力が払われるべきである。

2.1.2 気送照射設備 (Fig.4 参照)

気送照射設備は、前述の水力照射設備と同様に、原子炉運転中の任意の時間に、試料を中性子照射するため炉心への挿入・取出しを行う設備である。

本設備は、水力照射設備と同じく照射系と、転送系とから構成し、ラビットの照射手順もほぼ同様に行うものであるが、照射系の冷却材としては窒素ガスを用い放射能生成量を少なくし、転送系は圧縮空気を用いる。

本設備で照射する試料は、発熱量が小さく、小型のものを対象とし、極く簡便に照射ができる設備とする。本設備で照射した試料は、水力照射設備と同様に、実験利用棟の詰替セルに取り出されるが、RI 棟詰替セルに搬送する径路の他に、詰替セル室の隣りに設ける実験室内のフードに搬送する経路を設け、放射化分析等を簡便に行うことができるよう計画している。利用者の都合に合わせて実験利用棟外にラビットを実験利用棟詰替セルから運び出すこともできるようにする。

ラビット材質は、比較的短時間の簡便な照射に対応するため、従来通りポリエチレン、ポリイミド等の有機材を用いる。このため、照射時間をポリエチレンの場合には最大約20分、ポリイミドについては数時間程度に制限する。ラビットの寸法は、従来の1インチのインナカプセルが取扱えるものとし、JRR-4での照射と相互に補完できるようにしている。

2.1.3 放射化分析用照射設備 (Fig. 5 参照)

放射化分析用照射設備は、前述の水力・気送照射設備と同様に、原子炉運転中の任意の時間に試料を中性子照射するための設備である。本設備の照射のための機構は、気送照射設備と同じであるが、少量の試料の放射化分析を行うことを主目的とし、特に、半減期が5～10秒程度の短寿命核種の放射化分析にも対応できることを計画している。このため、照射後の炉心からの取出しから、放射能測定開始までの時間を極力短く、かつ簡便に試料を取扱えるようにするため、試料の量を少く制限するとともに、ラビットを小型化し、炉心から測定部までの管路を短くするよう設計している。従って、試料の挿入、測定等を行う放射化分析室を、炉室内の炉ブル近傍のガイドトンネル上に設け、本設備の運転操作も、この放射化分析室で行えるようにしている。

放射化分析を簡便に、かつ精度良く行うために、ラビットの寸法は外径約16mmφと最小限なものに制約しているが、さらに材質についても測定上の外乱となるアルミニウム等の不純物の少いポリエチレン材を選択していく必要があるとともに、系内への混入不純物量を少なくすることが必要である。また、本設備を分析装置の一環として、広い分野に使用されるためには、放射線を用いるという特殊性を極力減ずることが必要であるが、遮蔽体等を十分に施して安全上の対策を行うとともに、操作及び測定系を自動化し、データ収録及び解析を簡便に行い、試料挿入から測定結果のアウトプットまでルーチン作業として容易に、短時間で行えるよう計画している。

2.1.4 均一照射設備 (Fig. 6 参照)

均一照射設備は、シリコン単結晶ブロック等の試料を原子炉運転中に炉心に挿入し、均一に照射するための設備である。シリコン単結晶の中性子照射は、従来JRR-2やJRR-4で行われてきたが、JRR-3改造炉における均一照射設備では、直径13センチ、長さ30cm程度の試料まで照射でき、より大型試料の照射を行うことによるシリコンドーピングの効率化が図れる。シリコン単結晶の照射に代表される照射の均一性の要求に対応するために、試料の照射に際しては、炉心での中性子束分布に応じて試料を回転及び上下駆動させて、試料全体に亘って中性子照射量を均一にする。

試料は、原子炉の上部遮蔽体上に設置する装荷用キャスクから、炉内の試料保管台に最大8個を装荷され、ここから1個ずつ遠隔自動でつかみ上げられ、炉心で2～3時間照射される。これを最大8回繰り返し、試料保管台に装荷した全試料を所定の照射を終了したのち、装荷用キャスクより出す。原子炉運転中に、これら一連の手順を繰返すことにより、大量の試料を良好な均一性で取り出す。原子炉運転中に、これら一連の手順を繰返すことにより、大量の試料を良好な均一性で照射することができ、シリコンドーピングによる半導体材料等を、諸外国製品に劣らぬ品質で生産する。

2.1.5 回転照射設備 (Fig. 7 参照)

回転照射設備は、HTGL用黒鉛ブロックや圧力容器材等の大型試料や、多量の試料を、水平面上で均一に照射し、試験データの信頼性を確保することなどのために、照射中の試料を回転させる設備である。

照射は、キャプセルを用いて行い、照射試験の目的に応じて照射中のデータを得るため計測も可能とする。

2.1.6 垂直照射設備 (Fig. 8 参照)

垂直照射設備は、キャプセル照射（又はリグ照射）を行うための設備である。

キャプセル照射は、原子炉運転 1 サイクル以上の高い中性子照射量を必要とする照射試験や、高い高速中性子束を必要とするもの、照射中の試料の状態を計測あるいは照射条件を制御する必要のある照射試験を行うものである。このため、試料の計測・制御用配線、配管類を試料部から炉外部に導き出すことが必要となる。さらに、照射試験を終了したのちは、原子炉停止時に、キャプセルを炉心から引抜き、カナルを通して使用済燃料プールに搬送し、所定期間キャプセルの放射能冷却を行い、切断してキャスクに装荷し、照射後試験等のためにホットラボ等へ運び出すことが必要である。

炉心にキャプセルを挿入し、中性子照射を行うためには、炉内でのキャプセルを精度良く支持するためのサポート、計測線等の引出しのための計装用トレイ、接続ユニット等を設ける。また、照射中のキャプセル中の試料の計測・制御を炉外で行うための温度制御装置及び監視盤を設ける。照射後のキャプセルを取扱うためのハンドリングツール、キャプセル搬送装置、キャプセル切断機、キャスク架台、キャスク等を設ける。さらに、照射前のキャプセルの検査や輸送のために、真直度測定架台及びキャプセル移動台車を設けることとしている。

温度制御装置としては、制御温度幅、制御精度等に関する種々の照射条件に対応できるよう各種の方式の装置を設ける。高い照射温度条件に対応するためには、キャプセル内に組み込まれた試料と、試料周囲の伝熱媒体との間の熱抵抗を変化させる方式を採るが、これには真空温度制御方式 (Fig. 9 参照) と混合ガス温度制御方式 (Fig. 10 参照) のものを設ける。真空温度制御方式は、試料周囲に比較的熱伝導率の大きいヘリウムガスを充填しておき、このヘリウムガスの圧力を大気圧から真空へと変化させることにより、熱伝導率を低下させ、すなわち熱抵抗を増大させて試料の温度を上昇させ、制御する方式である。これは制御幅が大きいという利点を有し、高温の照射条件又は小発熱量の試料の温度制御に適し、近年は多目的高温ガス炉用燃材料照射に広く用いられている。

混合ガス温度制御方式は、熱抵抗を変化させるために熱伝導率の大きいヘリウムガスと、熱抵抗の小さな窒素ガスあるいはネオンガス等を混合させ、ガスの熱伝導率を調整することにより温度制御を行う方式である。この方式は制御幅は真空温度制御方式より小さいが、安定した制御が行い易いこと、及び再現性が得やすい等の利点を有し、長期間照射を行うものに対しては、容易に照射試験を継続でき、広く軽水炉、高速炉等の燃料照射試験等に用いられている。

高精度の温度制御を要するもの、あるいは、試料部の温度の均一性を要する照射試験には、電気ヒータによるヒータ温度制御方式を設ける。この方式は試料の周囲にヒータを配置し、この電気入力を変化させることによる制御を行うものである。この方式は、キャプセルへ組み込むヒータ出力が配線等の理由により制限されるため、前述の真空温度制御又は混合ガス温度制御と組み合わせることにより、制御幅を拡大し、かつ精度の高い温度制御を用うことが可能である。これは近年圧力容器鋼材等では、試験データの正確あるいは確実性の要求が更に高度化してきており、これに対応するものとして、多く用いられるようになってきている。

これらの制御を行うためには、キャプセルの設計、製作、及び計測技術の高度化が必要になり、またデータ収集、データの編集等も効率的かつきめ細く行う必要がある。設計等の高度化に対応

するために、JMTR等の他の照射技術と交流を深めるなどとともに、設計計算等のコード化を進める。また、データ編集等のためには、計算機システムの活用を企っている。

照射試験は、時間と費用が多大に要することが、多年、問題点として指摘されてきたところであるが、今後の研究炉の十分な活用のためには、試料個数に対するキャプセル製作費、期間の低減化を企り、キャプセルの再利用、すなわちキャプセル技術の開発を行う必要がある。

2.1.7 詰替セル

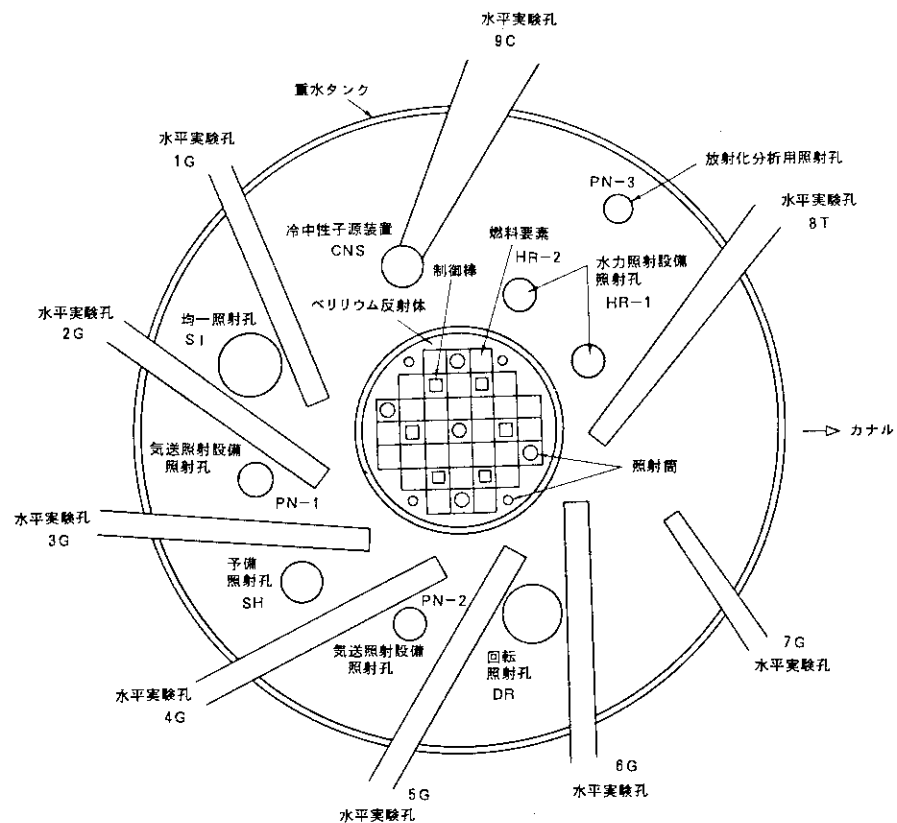
炉室内のプールに隣接して炉室内詰替セルを、実験利用棟に実験利用棟詰替セルを設ける。

炉室内詰替セルは、上部のセル室、下部の機器室の2室から構成し、セル室は水力・気送照射設備の転送機等の機器を格納する。機器室は水力・気送照射設備のポンプ、ブロワ等の機器を格納する。照射済のラビットは、炉心から逆送されセル室に搬送され、転送機に到達し、ここで線量率をチェックされた後に、実験利用棟詰替セルに搬送される。セル室は、この照射済ラビットの取扱いとともに、必要に応じて照射済キャプセルを取扱えるように最大約10,000 Ciの遮蔽能力を有し、鉛ガラス窓、マニプレータを設けている。

実験利用棟詰替セルは、水力・気送照射設備で照射した試料を利用者へ引渡すためのもので、この詰替セルに取出したラビットを、コンテナ等に詰替えて引渡せるとともに、RI棟や、実験室に転送できる機能を備えている。

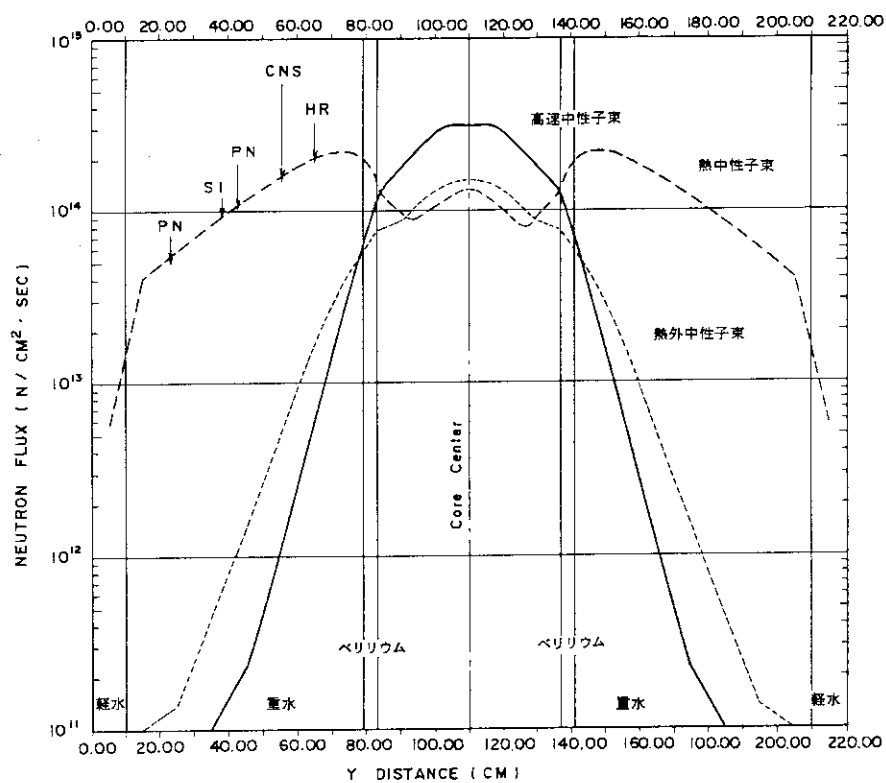
Table 1 Main specification of The Irradiation Facilities in The Upgraded JRR-3.

設 備	水力照射設備	気送照射設備	放射化分析用 照射設備	均一照射設備	回転照射設備	垂直照射設備			
						VR-1	RG-1~RG-4	BR-1~BR-4	SH-1
照射孔	HR-1, HR-2	PN-1, PN-2	PN-3	SI-1	DR-1	1	4	4	1
基 数	2	2	1	1	1	1	4	4	1
炉心位置	重水反射体領域	重水反射体領域	重水反射体領域	重水反射体領域	重水反射体領域	燃料領域	燃料領域	Be反射体領域	重水反射体領域
熱中性子束 (n/cm ² .s)	2×10^{14}	1×10^{14}	5×10^{13}	1×10^{14}	1×10^{14}	1×10^{14}	1×10^{14}	2×10^{14}	1×10^{14}
高速中性子束 (n/cm ² .s)	7×10^{12}	3×10^{11}	5×10^9	1×10^{11}	1×10^{11}	4×10^{14}	2×10^{14}	1×10^{14}	1×10^{11}
冷却材	軽水	窒素ガス	窒素ガス	軽水	軽水	軽水	軽水	軽水	軽水
最高使用温度	100 °C	120 °C	100 °C	100 °C	100 °C	100 °C	100 °C	100 °C	100 °C
最大発熱量	3 kW	75 W	11 W	9 kW	44 kW	44 kW	44 kW	38 kW	44 kW
ラビット、 キープセル寸法	32φ×150L	35φ×95L	16φ×30L	130φ	130φ	55φ	55φ	40φ	100φ
最大挿入個数	3個/孔	2個/孔	1個/孔	1個/孔 × 8個/回	1本/孔	1本/孔	1本/孔	1本/孔	(予備孔)
最大発熱量 (g/孔)	U-235 0.5 g Pu 0.5 g	U-235 0.05g Pu 0.05g	—	—	U-235 15 g Pu 15 g	U-235 15 g Pu 15 g	U-235 15 g Pu 15 g	U-235 15 g Pu 15 g	U-235 15 g Pu 15 g
照射時間	$1^h \sim 1^{cy}$	$1^m \sim 1^h$	$10^5 \sim 20^m$	$1^h \sim 24^h$	1^{cycle} 単位	1^{cycle} 単位	1^{cycle} 単位	1^{cycle} 単位	1^{cycle} 単位
照射量 nv ⁺ (th)	7.2×10^{17} ~ 4.8×10^{20}	6.0×10^{15} ~ 3.6×10^{17}	5.0×10^{14} ~ 6.0×10^{16}	3.6×10^{17} ~ 8.6×10^{18}	2.4×10^{20}	2.4×10^{20}	2.4×10^{20}	4.8×10^{20}	2.4×10^{20}
照射量 nv ⁺ (f)	2.52×10^{16} ~ 1.7×10^{19}	1.0×10^{13} ~ 1.1×10^{15}	5.0×10^{10} ~ 6.0×10^{12}	3.6×10^{14} ~ 8.6×10^{15}	2.4×10^{17}	9.7×10^{20}	4.8×10^{20}	2.4×10^{20}	2.4×10^{17}
γ heat (w/g)	0.9	0.3	0.1	0.2	0.2	5.4	5.0	3.4	0.2



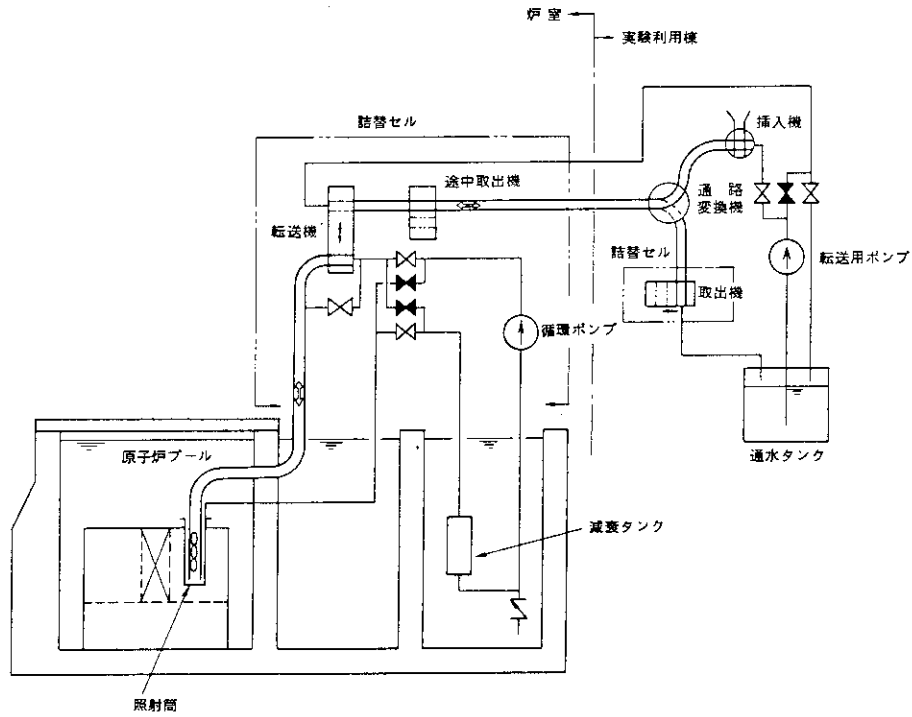
照射孔配置

Fig. 1 Designation of experimental holes.



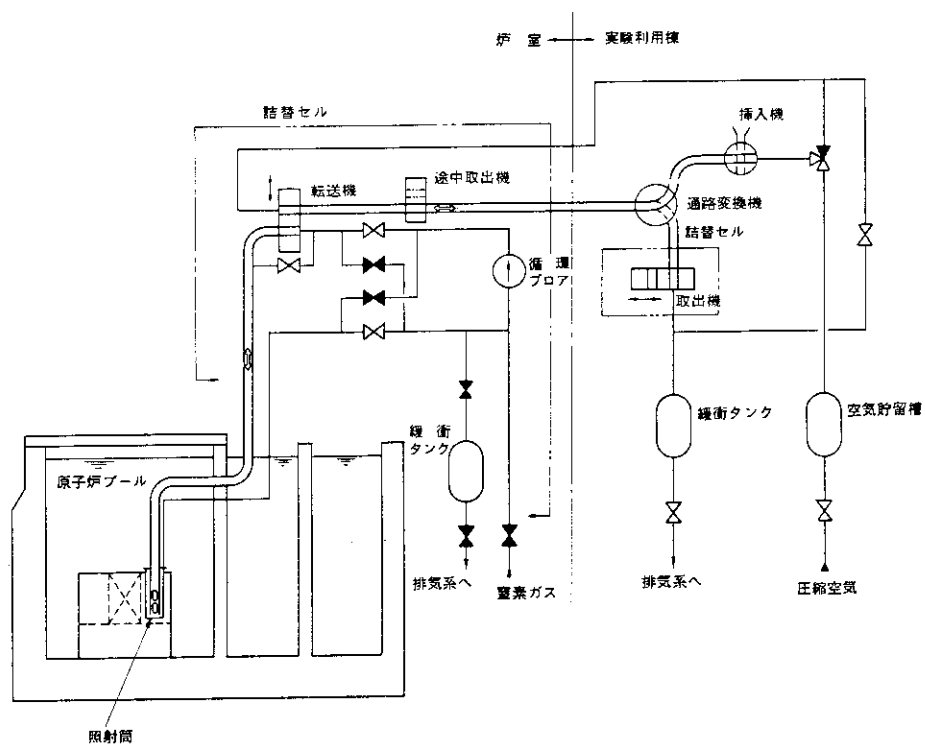
中性子束分布

Fig. 2 Typical radial flux distribution.



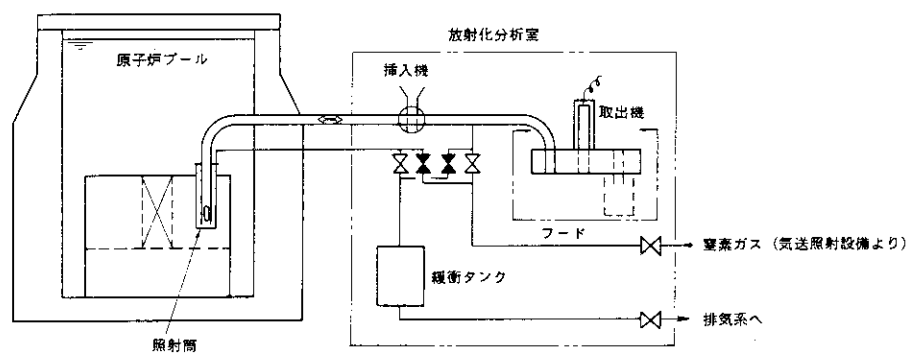
水力照射設備系統説明図

Fig. 3 Schematic diagram of hydraulic rabbit irradiation facility.



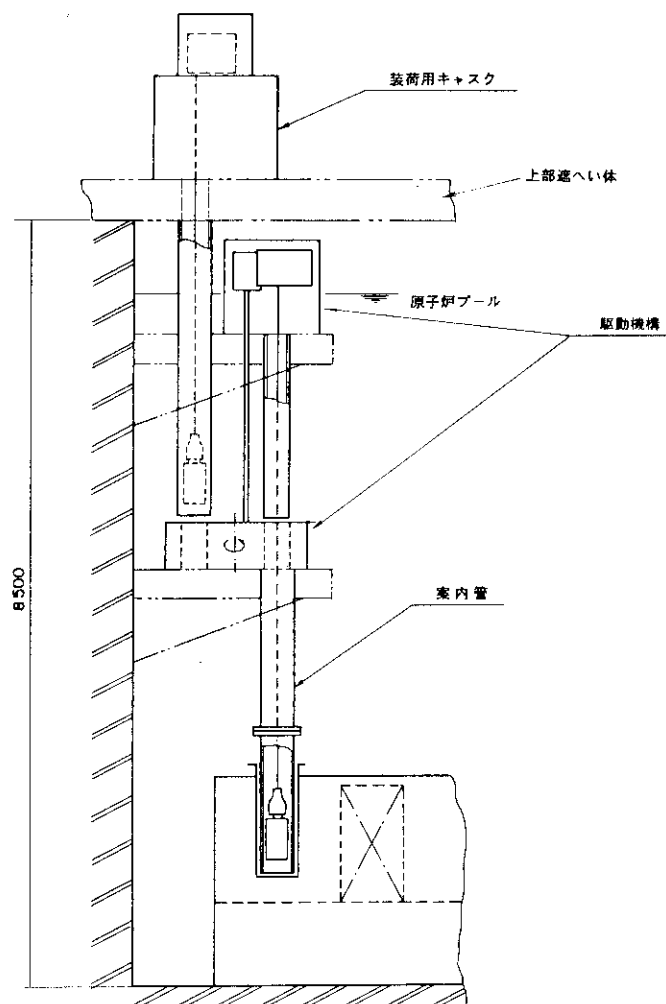
気送照射設備系統説明図

Fig. 4 Schematic diagram of pneumatic tube irradiation facility.



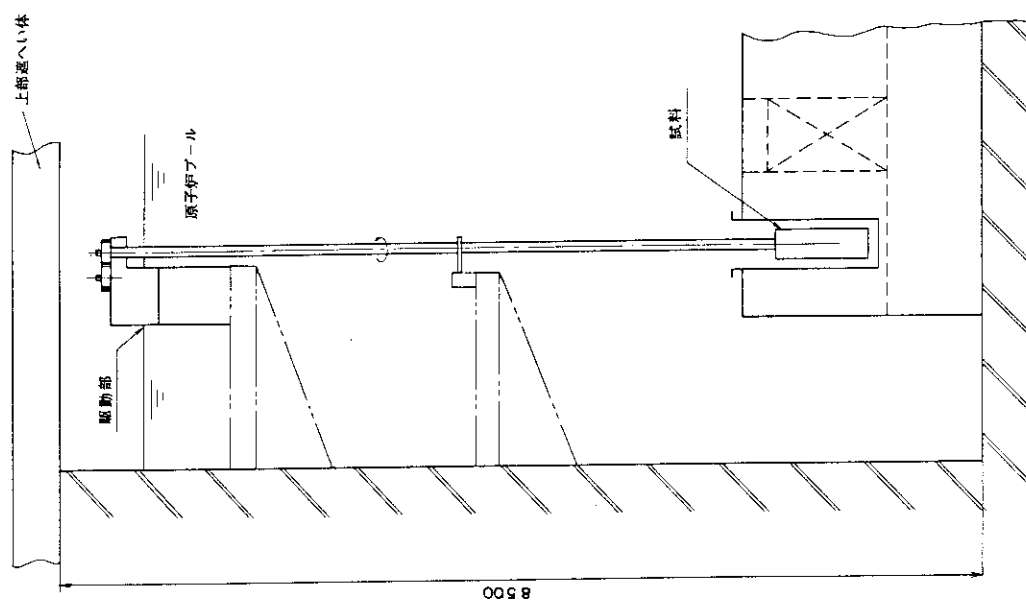
放射化分析用照射設備系統説明図

Fig. 5 Schematic diagram of activation analysis irradiation facility.



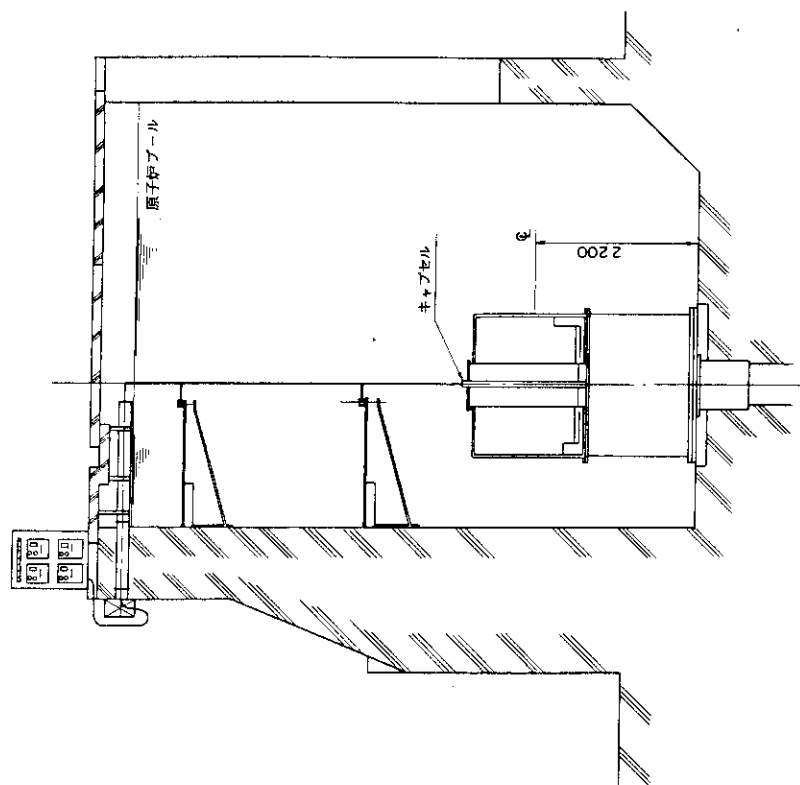
均一照射設備説明図

Fig. 6 Schematic diagram of uniform irradiation facility.



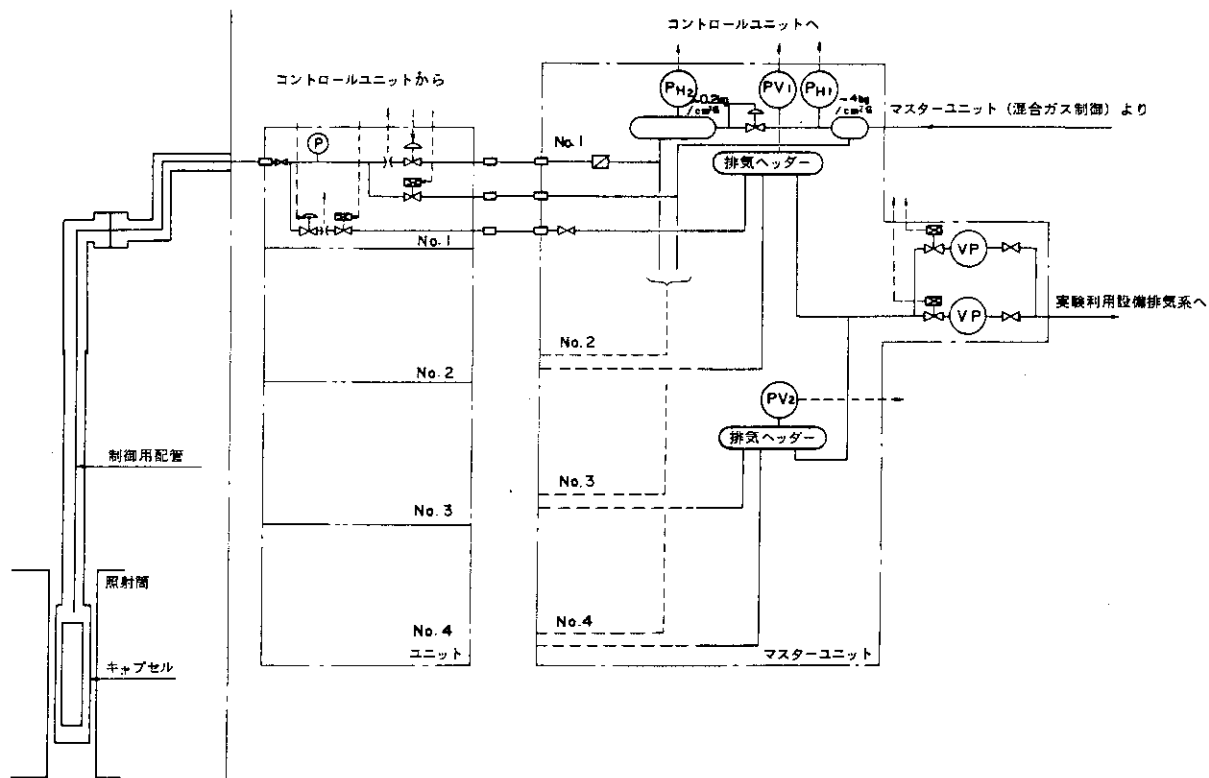
回転照射設備説明図

Fig. 7 Schematic diagram of rotating irradiation facility.



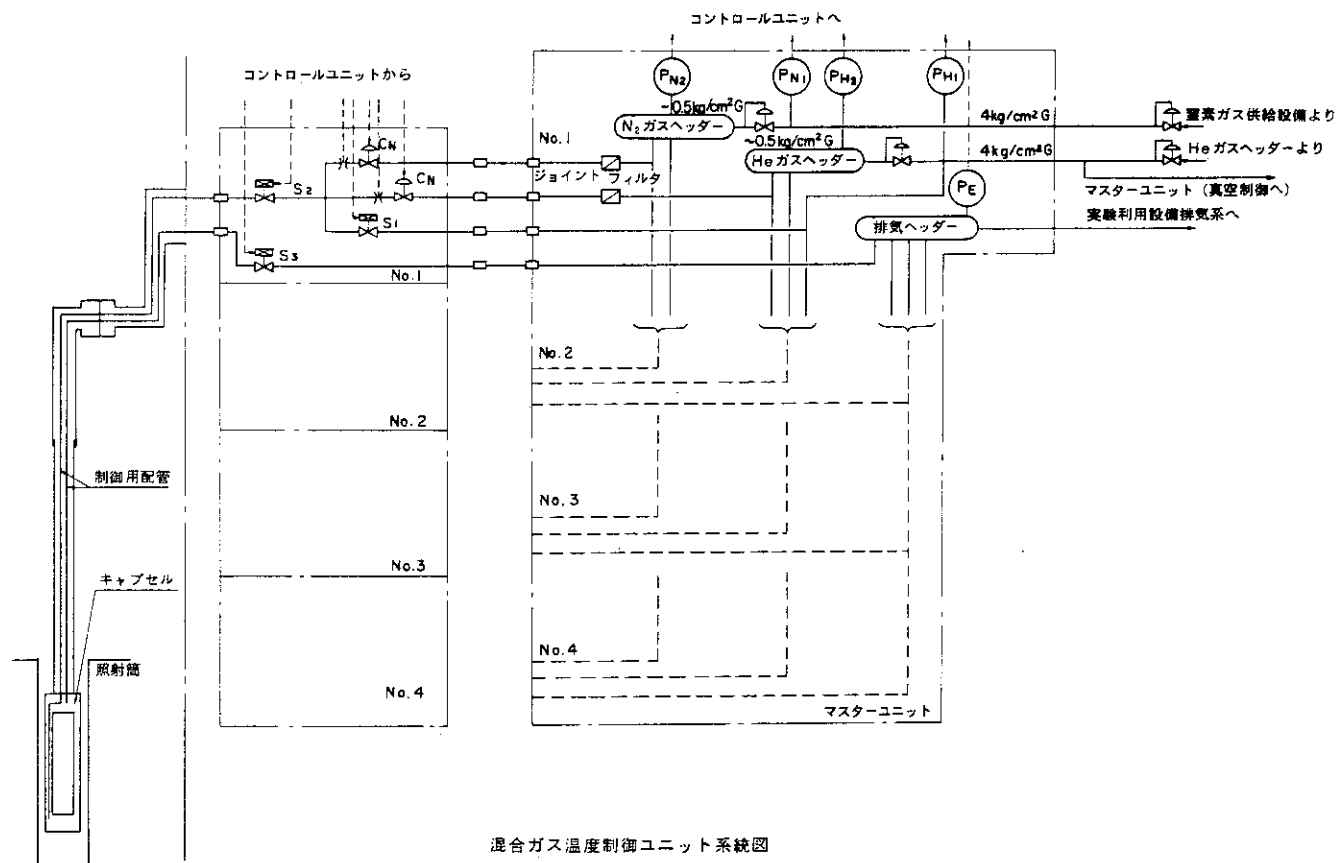
垂直照射設備キャプセル基荷状態説明図

Fig. 8 Schematic diagram of capsule irradiation facility.



真空温度制御ユニット系統図

Fig. 9 Conceptional diagram of vacuum temperature control system.



混合ガス温度制御ユニット系統図

Fig. 10 Conceptional diagram of mixed gas temperature control system.

2.2 研究炉による燃料材料照射研究の最近の動向

2.2.1 はじめに

原研燃料工学部 近藤達男

研究炉は実験炉、試験炉あるいは動力炉に対して研究専用に使われる原子炉の名称であるから本来その形式を問わないが、大勢として我国では JRR-2, -3, -4 や JMTR, 海外ではアメリカの ORR, HFIR, 欧州の HFR, BR-2 などで代表されるものを呼称する。ここではしたがって、いわゆる混合中性子スペクトル炉といったカテゴリーの炉による照射研究について関連の領域の専門家の簡単なレビューをまとめた。厳密には、原研の NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) やアメリカの FFTR (Fast Flux Test Reactor) などの高速増殖炉も明らかに研究炉の範ちゅうに入るが、この集録は本来、JRR-3 の今後の展開を念頭にしているため、上記のように狭義にとっている。

研究炉が、過去四半世紀以上の原子力開発に果たした役割については改めて述べるまでもないが、燃料材料の領域、とくにその工学的段階の研究開発においては常にその中心的手段であった。原子力技術が成熟して実用経験が積まれる一方、新型炉開発から核分裂炉の高度化と核融合への発展を目指すに至り、研究手段としての原子炉施設への期待と要求は大きく変化している。

研究開発一般の例にもれず、燃料材料の照射研究も基礎応用を問わず、初期の探索的でパラメータの単純化された実験から、より複合的な問題を踏まえ、しかも定量性の高い実験が要求されるようになる。さらに、基礎と応用の比率も大きく変わり、耐久性や長期挙動を実証的にとらえるために、実用炉の近似条件、ときに加速的条件下の試験が重ねられ、統計的な確度をもとに燃料、材料の構成する装置や構造体の寿命予測等へと応用領域がますます拡大している。

研究炉の機能として各種の実験への受容度の大きさや結果に至るまでのプロセスの迅速さがまず挙げられるが、上に述べたような展開のもとでは、実際に得られる中性子束の高さ、均一性、照射容積、エネルギー分布、現実的な期間内の達成可能な積算照射量などがきわめて大きな意味を持って来る。これらの課題には、原子炉の型式や大きさから決定的に制約される面が少なくないが、一方で炉心設計、照射装置技術、キャプセル試験技術、さらには照射後ないしは照射途上の中間段階でのホットセル内試験技術などの関連技術基盤とも密接にかかわっているのである。

新しい研究炉がこれから稼動するに当たっては、こうした面への格段の研究開発努力を並行させることが炉の使命の達成を左右すると言って過ぎないであろう。以下の各節の解説に示される研究動向はそれを如実に物語っており、その意味では JRR-3 のような型式の研究炉へ燃料材料照射研究の分野からの期待はますます大きいと言える。

2.2.2 高温ガス炉燃料

原研燃料工学部 福田幸朔

(1) 高温ガス炉と被覆粒子燃料

高温ガス炉燃料は、直径が200～600 μm 程度の微小な燃料核に熱分解炭素(Pyrolytic Carbon, PyC)及び熱分解炭化ケイ素(SiC)で被覆された燃料粒子の集団で構成される。燃料核には、ウラン及びトリウムの酸化物、炭化物及び炭酸化物など多くの形態が見られる。被覆層形態では、PyC層だけから成るBISO型(二重被覆)とPyC層及びSiC層から成るTRISO型(四重被覆, Fig. 1)の二種類が一般的に使われている。Peach Bottom(米), AVR(独)及びTHTR(独)などの高温ガス炉ではBISO型被覆粒子¹⁾が、またDragon(OECD, 英), Fort St. Vrain(米)¹⁾及び我国で開発中の多目的高温ガス実験炉(VHTR)やソ連で開発中のVGR-50, VG-400²⁾などにはTRISO型被覆粒子が使われる。

燃料核に直接被覆される第1層は、BISO型及びTRISO型のいずれの場合でも、低密度の多孔質PyC層であり、バッファ層と呼ばれている。その理由としては、この層は、燃料核のスエリングを吸収する、燃料核からの核分裂生成物反跳による外部被覆層への損傷を防ぐ、及び、燃料核から放出されるFPガスを貯蔵し、粒内のガス圧上昇を防ぐ、などの機能を有しているからである。第2層から外側に被覆される高密度PyC及びSiC層はFPガスや金属FP放出に対する障壁としての働きを有しているが、高密度PyC層は特にFPガス放出に対する阻止能が優れ、またSiC層はFPガスと共に金属FP放出に対しても効果的な障壁となっている。

被覆粒子は黒鉛粉末及び粘結材と共に固められ、燃料コンパクト(Dragon, Peach Bottom, VHTR)¹⁾、燃料スティック(Fort St. Vrain)¹⁾及びボール燃料(AVR, THTR,¹⁾ VGR-50, VG-400²⁾)へと成形される。VHTR燃料コンパクトの燃料構成をFig. 1に示す。この燃料コンパクトは直径24mm、内径8mm、長さ40mmの円筒形をしており、この中に約12gウラン量に相当する被覆粒子(約12000粒)が充填されている。燃料コンパクトは黒鉛スリーブ中に装填されて燃料棒を構成するが、さらに燃料棒は黒鉛ブロックの孔に保持され、燃料体となる(ピンインーブロック燃料体)。一方、燃料スティックの場合は、黒鉛ブロックにあげられた燃料スティック保持用の穴に密封され、冷却材ヘリウムガスは別の穴を通してブロック全体を冷やす(マルチホール燃料体)。また、ボール燃料は、そのまま炉内に積み上げられ、炉心を形成する。

(2) 高温ガス炉燃料の照射研究

高温ガス炉燃料についての照射研究では、照射下での燃料コンパクトの熱伝導³⁾や寸法変化といった熱的挙動に関する研究と共にFP放出に関する燃料挙動についての研究も鋭意行われて来た。特に後者の研究は安全性に直結するため、早くから重要視されて来た。

高温ガス炉燃料は、(1)に記したように個々の燃料粒子の被覆層が微小な压力容器としての機能を有しているため、被覆破損や被覆層を通ったFP移行といった現象は燃料からのFP放出を支配する重要な要因である。照射中の被覆層の破損原因としては、被覆粒子製造時に生じた被覆欠陥が拡大して破損に至る場合のほか、アメーバ効果やFPによるSiC層の腐食反応などに起因した化学的破損が挙げられる。特に、Pd(パラジウム)によるSiC層腐食反応は高温ガス炉燃料の照射挙動の中で、最近、最も注目されている現象である。一方、被覆層中のFP移行研究は米国、英国、ドイツなどにおいて1960年代からCs, I, Srなどの重要な核種を対象として進め

られて来たが、1970年代の初期にドラゴン炉で ^{110m}Ag が大量に放出される現象が見つかり、⁴⁾以降 ^{110m}Ag の放出も注目されるようになった。

この節では、FP放出に関係する照射試験の中で、アメーバ効果、Pd/SiC反応及びFP放出そのものの研究についての最近の動向を重点に述べる。

(a) アメーバ効果

アメーバ効果とは、照射中あるいは加熱中に被覆粒子に温度勾配があると、燃料核が被覆層を侵食しながら、高温側に移動する現象で、極端な場合には、被覆層を食い破ってしまう。その移動は、温度、時間、温度勾配及び出力に依存している。Fig 2にJRR-2, VOF-1Hキャプセル照射によるVHTR用被覆粒子に見られたアメーバ効果を示す。

アメーバ効果の発生機構は炭化物と酸化物燃料核とは異なる。炭化物核の場合は、燃料核中を通った高温側から低温側への炭素の固相熱拡散⁵⁾として説明づけられる。この時、炭素の熱拡散流束から炭化物核移動速度が与えられるが、核移動速度の温度依存性が炭素の自己拡散の活性化エネルギーによるものであると仮定して、照射や炉外加熱で求められる核移動係数を次のように定義した。

$$\text{KMC} = T^2 [dx/dt / (dT/dx)] = \beta \exp(-\Delta H/RT) \dots\dots\dots (1)$$

KMC = Kernel Migration Coefficient

dx/dt = 核移動速度 cm sec^{-1}

dT/dx = 温度勾配 K/cm

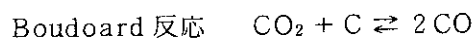
T = 温度 K

β = 定数

ΔH = 活性化エネルギー J/mol

R = 気体定数 8.314 J/mol K

一方、酸化物燃料核の移動の原因となる高温側の炭素原子が低温側へ移行する機構としては、



に従い、高温側と低温側の平衡 CO_2 、 CO 分圧が異なるため、 CO が低温側に移行し、 C 原子を放出し、 CO_2 となって高温側にもどって来る過程が考えられる。この時、核移動は、 $\text{CO}-\text{CO}_2$ 相互拡散が律速するという考えと、低温側の CO 分解反応が律速するという考えとがある。さらに、炭化物核の移動機構と同じように、固相熱拡散によって酸化物核中の酸素が高温側に輸送され、 CO のガス拡散によって炭素原子が低温側に輸送されるという機構も提案されている。これらの3つの移動機構の妥当性については、現在のところ明確な結論は得られていないが、種々の研究炉によるアメーバ効果のための照射試験データとそれぞれの提唱機構についての理論展界で求められる核移動量を比較してみると、⁶⁾固相熱拡散による核移動機構が最も確からしいと思われる。しかし、実験データでの温度誤差が大きく、データのばらつきも大きいため、最終的な結論はまだ得られていない。

アメーバ効果についての照射実験は、ORNL (米)、ドラゴン計画 (英) 及び日本原子力研究所では主に酸化物核について、またGA (米) では主に炭化物核について、取扱われて来た。

KFA (西独) でもアメーバ効果についての若干の研究は行われたが、ボール燃料の場合、米国や日本の高温ガス炉燃料に比べて燃料温度は低く、温度勾配が小さいため、⁷⁾ボール燃料の安全性に

はほとんど影響を与えない。原研でのアメーバ効果照射試験は JRR-2 を使って行われて来た。VOF-1H キャプセルの場合、直径 27 mm、内径 8 mm、厚さ 2 mm の黒鉛ディスクに、被覆粒子を約 100 粒埋め込む。このようなディスクを 30 枚、重ね合せ、この中央部に発熱用の被覆粒子を装荷することによりディスク中の被覆粒子試料に温度勾配をつけさせる構造になっている。照射温度は最高 1700°C、温度勾配は、164°C/cm、照射時間は 84 日である。天然ウランから 20% の範囲での 5 種類の異った濃縮度の被覆粒子を照射したところ、全ての被覆粒子にアメーバ効果の発生が見られた。照射時間、照射温度、及び勾配、核移動量より(1)式によって KMC を求めた。Fig. 3 には、濃縮度 20% 被覆粒子の KMC のアレニウスプロットを代表例として示すが、良い直線性を示している。

一方、ICF-3H や ICF-9H キャプセルでもアメーバ効果のための照射を行ったが、照射温度が低いことと、照射時間が短かったため、アメーバ効果は観察出来なかった。しかし、VHTR では被覆粒子は最高 1350°C で 440 日間燃焼する。このような比較的低い温度でのアメーバ効果を調べるには、研究炉においては、少なくとも 300 日以上照射を行わなければ、アメーバ効果による核移動が観察できない。このため、効率良く照射研究を進めるには、稼働率の高い研究炉を使う必要がある。

(b) Pd/SiC 反応

Pd による SiC 腐食反応が注目されるようになったのは、米国の核政策による高濃縮燃料から低濃縮燃料への転換が行われた後であり、米・独など高温ガス炉先進国が、低濃縮ウラン被覆粒子についての照射研究を進めて来たこと 10 年以内のことである。それ以前においては、炭化物燃料核の場合のみ、希土類 FP (Ce, Nd など) による SiC 腐食反応に注目が集中していた。照射中、低濃縮ウランでは、 ^{238}U が ^{239}Pu に転換される割合は、高濃縮ウランに比べてはるかに高く、従って全核分裂 ($^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$ の核分裂) に占める ^{239}Pu の核分裂の割合では、低濃縮ウランの方がはるかに大きい。低濃縮ウランを照射する場合、このような ^{239}Pu 核分裂割合が大きいため、核分裂収率において、貴金属 FP (Pd, Ag など) の生成が高濃縮ウランに比べて著るしく多いという特徴が見られる。

Pd による SiC 層腐食反応機構については米国を中心に多くの照射実験^{8,9)} や炉外実験^{10~12)} が行われて来た。これらの研究では、Pd は容易に燃料核や内部の PyC 層を移行し、SiC 層内表面に達する。そこで nodule となって集積することにより、SiC 層を腐食し始めるまでは共通した見解であるが、その腐食機構については統一的な見解は得られていない。Fig. 4 には、75F-4A スイープガスキャプセル (JMTR) で照射した VHTR 用被覆粒子に見られた Pd 腐食反応を示す。この被覆粒子は最高 1450°C で照射されたものである。

Pd が SiC 層中に侵入し、SiC と反応する過程では、Pd の粒界拡散が駆動力になっているという考えが支配的である。この際の反応では、Pd-Si 化合物 (Pd_3Si ¹³⁾ あるいは Pd_2Si ¹⁴⁾ あるいはこれに U を含んだもの¹¹⁾ が生成され、これらが低融点であるため、高温照射中に SiC 層が劣化していくという機構が考えられる。これらの他に、Pd nodule が SiC を溶解し、再成しながら SiC 層を進むという考えや、SiC 中に Pd の他にボイドも発生する現象も見られており、統一された腐食機構には至っていない。Pd による SiC 層の腐食速度に影響を及ぼす最も大きな因子は、温度であり、燃料核の組成、Pd の濃度などは副次的に影響を及ぼす。⁸⁾ 温度勾配について

は、炉外加熱実験では、腐食反応には影響を及ぼさないという報告¹⁵⁾もあるが、JMTRでの照射研究⁹⁾では、Pd腐食は被覆粒子の低温側に集まる傾向も見られている。

Pd/SiC反応についての照射研究を進めていく上では、上述したような反応機構や腐食速度を明らかにしていくためには、照射温度の高温化(1000°-1600°C)、照射時間の長期化(200日以上)の照射)及び被覆粒子の両端に温度勾配を付ける照射及び等温での照射などを考慮していかなければならない。特にVHTR用被覆粒子においては、この腐食反応の解明は避けて通れない重要な課題である。

(c) FP放出

FP放出研究では、照射中のFPガス放出と金属FP放出とに分けられる。FPガス放出では、スweepガスキャプセルによる照射試験が主であり、原研(JMTR)をはじめとして、ORNL(ORR)、ステュドビック研究所(R2)、モル研究所(BR-2)などにスweepガスキャプセル照射装置が設置されており、これらの研究炉により、高温ガス炉燃料のスweepガス照射が行われて来た。また、現在、原研ではJMTRに設置したOGL-1(インパイルガスループ)を使って、高温ガス炉燃料体からのFPガス放出実験も継続して行っている。

照射中に被覆粒子から放出されるFPガスは、 ^{85m}Kr ^{88}Kr や ^{135}Xe などの短半減期核種であり、これらの放出挙動から被覆層の健全状態を知ることが出来る。FPガスの放出機構は、主に、核分裂反跳で放出される場合と、健全粒子、破損粒子にかかわらず、拡散で放出される場合とがある。¹⁶⁾ しかし、短半減期FPガスの場合、拡散速度が遅い固相拡散(例えばPyC)中に、ほとんど消滅してしまうため、被覆層を通った健全粒子からの放出は起らない。健全粒子では、最外PyC層中の汚染ウランから生まれたFPガスが核分裂反跳、または、ごく表面付近では、拡散して放出される。その放出割合は破損粒子に比べて $10^{-4} \sim 10^{-5}$ 倍ほど低い値である。VHTR燃料コンパクトからのFPガス放出率は、照射温度にも依存するが、破損粒子を含む場合で $10^{-4} \sim 10^{-5}$ 、健全なコンパクトの場合で $10^{-6} \sim 10^{-7}$ 程度である。

照射中の金属FP放出は、原研ではスweepガスキャプセル及びOGL-1で調べられている。酸化物核被覆粒子の場合、希土類FPは UO_2 中に安定に固溶するため、放出に対しては、あまり重要視されないが、Csや貴金属FPは UO_2 核に留まらず、核外に放出されるため、特に注目される核種である。また、Srなどのアルカリ土類FPは $\sim 1200^\circ\text{C}$ 以下ではZrやUと安定な酸化物を形成するが、温度が高くなってくると、これらの酸化物も崩壊し、Sr、Baの放出も増加して来る。 ^{137}Cs の照射下での放出研究結果¹⁷⁾では、BISO粒子とTRISO粒子からの放出を比較してみると、BISOはTRISOに比べて約 10^3 倍ほど大きな放出を示しており、SiC層が ^{137}Cs の保持に非常に効果的であることを示している。すでに、Pd/SiC反応の所で示したように、低濃縮ウラン被覆粒子では、貴金属FP生成量が多く、このため、長半減期FPである ^{110m}Ag 放出についての研究が近年活発に行われて来た。照射下での ^{110m}Ag 放出をBISOとTRISO粒と比較してみると、TRISO粒子からの放出は、BISOに比べて約 $1/10$ ほど小さく、またSiC層が厚いほど ^{110m}Ag 放出は低下する傾向が見られる¹⁸⁾が、一方においては、SiC層では ^{110m}Ag を保持することは困難であるという報告¹⁹⁾も見られ、 ^{110m}Ag 保持に対するSiC層の効果は、まだ明確にはなっていない。

原研での照射下金属FP放出についてのデータ取得は十分ではないが、スweepガスキャプセル

ル照射で得られた結果では、 ^{110m}Ag 放出は ^{137}Cs 放出に比べて約10倍ほど高い値を示している。²⁰⁾ 研究炉を使った今後の金属FP放出照射研究では、照射時間は200日程度を考えれば十分であると思うが、研究を効率良く進めるには、1本のキャプセルで1000°C~1600°Cまでの間で数種類の温度が一度に実現出来るような照射キャプセルが望まれる。

参 考 文 献

- 1) Bullock, R.E. : "All-ceramic fuel elements for the high-temperature gas-cooled reactor (A review)", High Temperatures-High Pressures, 12, 599 (1980).
- 2) Chernikov, A.S., Permyakov, L.N., Mikhailichenko, L.T., et al. : "Spherical coated particle fuel for fuel elements of HTGR", IAEA Meeting on Gas-Cooled Reactors Fuel Development and Spent Fuel Treatment (18-21, Oct. 1983, Moscow, USSR).
- 3) 菊池輝男, 岩本多実, 井川勝市, "キャプセル照射による高温ガス炉用燃料棒の伝熱物性の測定(I)", JAERI-M 82-134 (1982).
- 4) Voice, E.H., Walther, H., York, J. : "The behavior of Silicon Carbide Coatings in the HTR", Proceedings of the International Conference, BNES (15-19 Oct. 1973, London).
- 5) Gulden, T.D. : "Carbon Thermal Diffusion in the $\text{UC}_2\text{-C}$ System", J. Am. Ceram. Soc., 55, 14 (1972).
- 6) Löffler, M.W., "Amoeba behavior of UO_2 coated particle fuel", Nucl. Technol., 35, 392 (1977).
- 7) Förthmann, R. : "Bestrahlungsverhalten von beschichteten Brennstoffteilchen für das Abbrand/Brut-Partikelsystem", Jül-1917 (1984).
- 8) Tiegs, T.N. : "Fission product Pd-SiC interaction in irradiated coated particle fuels", ORNL/TM-7203 (1980).
- 9) Minato, K., Ogawa, T., Fukuda, K., et al. : "Electron probe micro-analysis of irradiated TRISO-coated UO_2 particles (II)", JAERI-M 84-002 (1984).
- 10) Lauf, R.J. : "The interaction of silver and palladium with silicon carbide in HTGR fuel particles-preliminary report", ORNL/TM-7393 (1980).
- 11) Pearson, R.L., Lindemer, T.B., Beahm, E.C. : "Simulated fission product-SiC interaction in TRISO coated LEU or MEU HTGR fuel particles", ORNL/TM-6991 (1980).
- 12) Pearson, R.L., Lauf, R.J., Lindemer, T.B. : "The interaction of

- palladium, the rare earths and silver with silicon carbide in HTGR fuel particles", ORNL/TM-8059 (1982).
- 13) Montgomery, F. : "Fission product SiC reaction in HTGR fuel", DOE/ET/35300-T3 (1981).
 - 14) 小川 徹, "Pd-Si系の熱力学的性質とSiC層のPd腐食", JAERI-M 82-098 (1982).
 - 15) General Atomic Company : "HTGR Generic Technology Program-Semiannual Report for the Period Ending September 30, 1979", GA-A15606 (1979).
 - 16) Fukuda, K., Ogawa, T., Kashimura, S., et al. : "Release behavior of fission gas from coated fuel particles under irradiation", J. Nucl. Sci. Technol., 19, 889 (1982).
 - 17) Zoller, P. : "Das Transportverhalten der Spaltprodukte Cäsium und Strontium in beschichteten Brennstoffteilchen für Hochtemperatur-Reaktoren unter Bestrahlungsbedingungen", Jül-1324 (1976).
 - 18) Nabielek, H., Offerman, P. : "Silver release from coated fuel particles", Jül-1407 (1977).
 - 19) Amian, W., Stöver, D. : "Diffusion of silver and cesium in silicon carbide coatings of fuel particles for high temperature gas cooled reactors", Nucl. Technol., 61, 475 (1982).
 - 20) 小川 徹, 福田幸朔, 鹿志村悟, 他, "被覆粒子燃料からの照射中金属FP放出-74F9J, 75F4A, 75F5A スイープガスキャプセル-", JAERI-M 85-041 (1985).

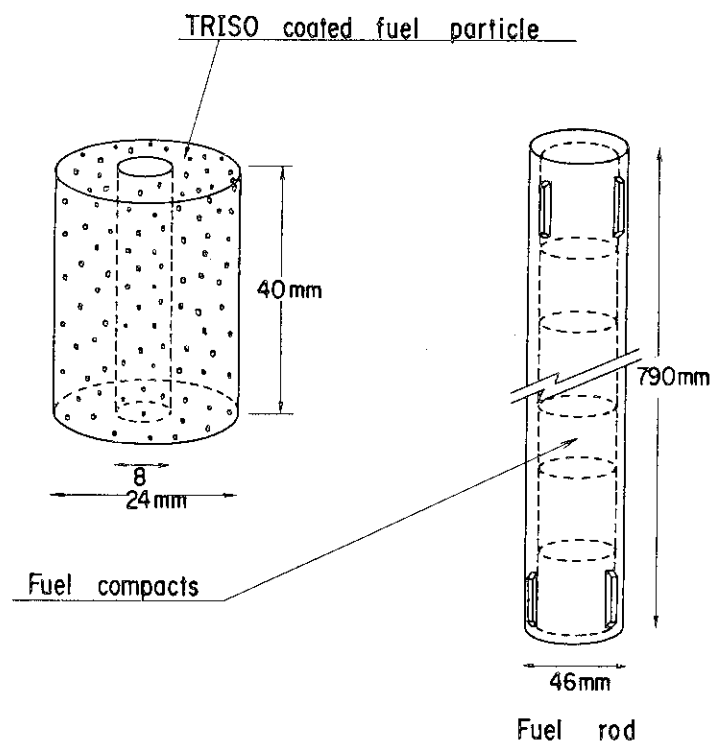
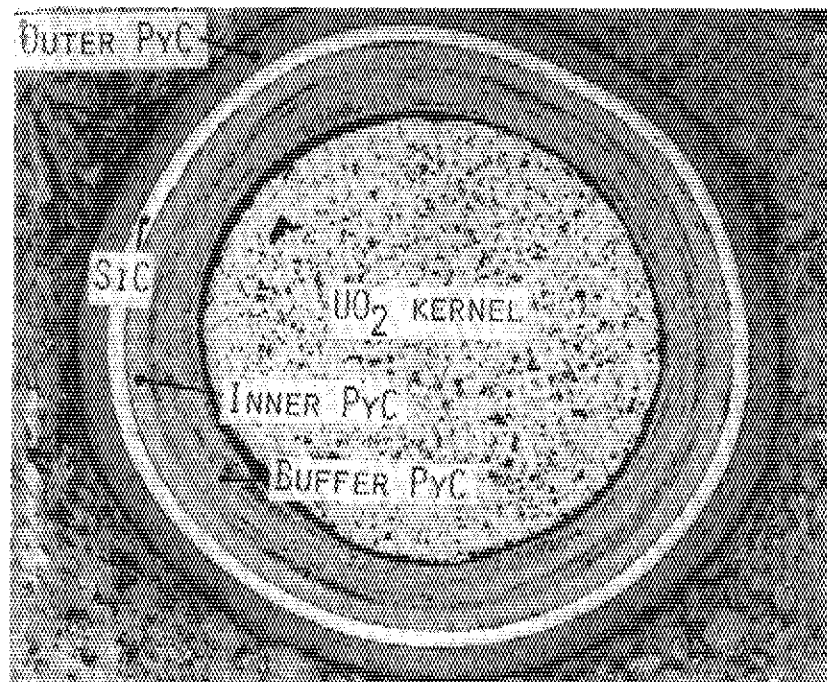


Fig. 1 Configuration of VHTR fuel.

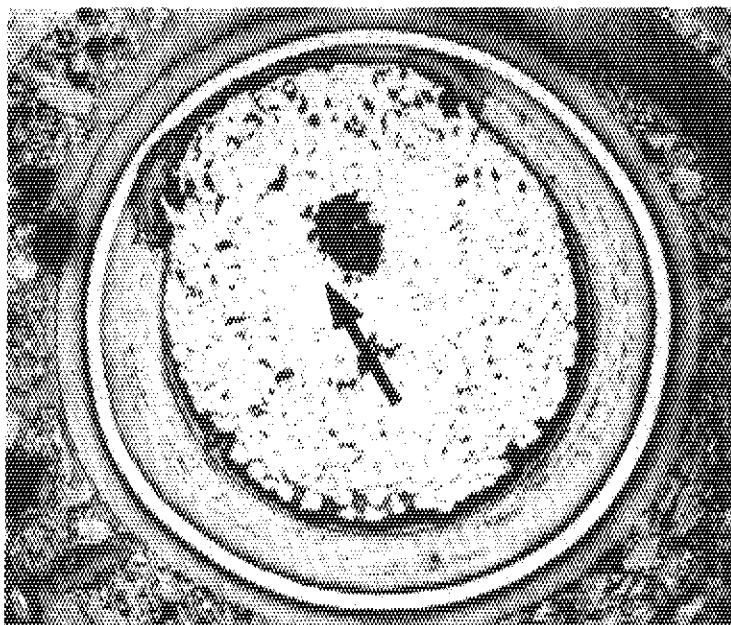


Fig. 2 Amoeba effect observed in coated fuel particles which were irradiated in VOF-1H capsule (JRR-2). (An arrow indicates a migration direction toward a hot side).

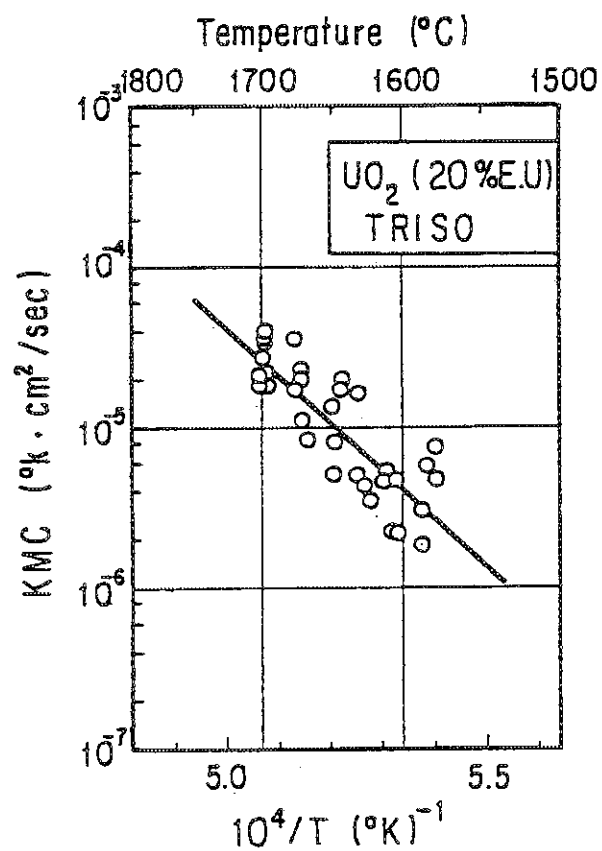


Fig. 3 KMC obtained on TRISO-coated UO₂ particles of 20% enrichment.

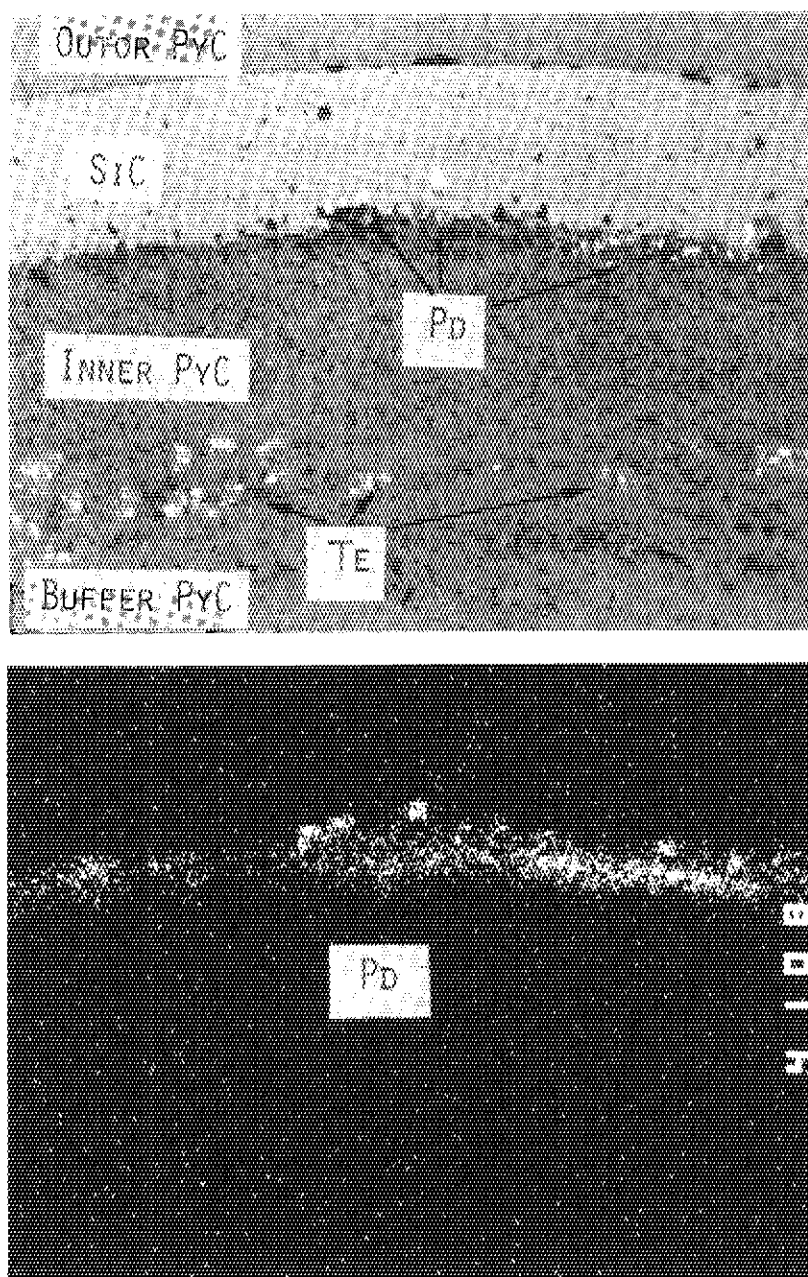


Fig. 4 SiC coating layer attacked by Pd.
Ceramography (upper) and Pd-L α
image of EPMA (lower).

2.2.3 高温ガス炉用黒鉛材料

原研燃料工学部 松尾秀人

(1) 原子炉用黒鉛の照射研究

原子炉用材料としての黒鉛材料の用途は1942年に臨界になったアメリカのCP-1原子炉にはじまり、その後イギリスやフランスで建設された同様な原子炉に使用された。それ以来、発電あるいはプルトニウム生産を目的とした黒鉛減速ガス冷却炉がイギリス、フランス、イタリア、日本に建設され、引続いてAGR（イギリス）やHTGR（イギリス、西ドイツ、アメリカ）などにも黒鉛材料は使用されてきている。黒鉛材料が原子炉材料として使用されている大きな理由は、①炭素原子は質量が小さくて高速中性子を熱中性子に減速させる効果が大い、②中性子吸収断面積が小さい という2つのすぐれた核的性質をもっていることによるものである。さらに、黒鉛材料は、③高温での機械的性質が他の材料に比較してすぐれ、④商用に大量生産され、⑤容易に加工でき、⑥高純度化できる などの利点があるために黒鉛減速ガス冷却型原子炉の主要構造材料として用いられてきている。

黒鉛材料が原子炉で使用される場合には、核分裂によって生成した高速中性子が結晶中の炭素原子と衝突し、炭素原子が変位する結果、種々の性質が変化する。この黒鉛材料の放射線損傷は1942年に Wigner¹⁾ によってはじめて予言された。それ以来現在まで40年以上にわたって種々の原子炉用黒鉛材料について照射温度および照射量などの異なった照射条件のもとで照射実験が行われ、炉心構造設計および安全性評価のためのデータが蓄積され、また原子炉用黒鉛材料の開発に役立てられてきている。

原子炉用材料として使用される多結晶黒鉛材料の構造については古くからモデル^{2,3)} が提案されてきている。そのモデルによると、黒鉛結晶に近い構造をもって異方性がきわめて大きい微結晶とその周囲に存在する閉気孔や開気孔、ならびに製造時に使用されて結晶性の低い結合材などから構成されているとされている。したがって、微結晶、気孔、結合材などが集合した多結晶黒鉛材料の諸性質は使用されている原材料や製造方法によって異なることは勿論、微結晶の配向性や気孔の形状や分布によっても大きく異なってくる。多結晶黒鉛材料の照射挙動は基本的には中性子照射による微結晶中の炭素原子の変位によるものである。この微結晶の変化が周囲に及ぼす影響の程度は、微結晶の配向性や気孔構造に依存することは勿論、照射温度によって著るしく違う照射欠陥の種類によっても異なってくるものである。したがって黒鉛材料の照射挙動はその材料の種類によって違うようになるために複雑になり、各使用材料についてその照射効果を調べる必要がある。

(2) 照射研究の目的

高温ガス炉用黒鉛材料の照射研究の目的は、その原子炉に使用される黒鉛材料の炉心構造設計ならびに安全性評価のためのデータを取得することにある。先に述べたように、黒鉛の中性子照射効果は黒鉛の種類や照射温度によって著るしく異なり、すでに得られている銘柄の黒鉛の照射効果から他の銘柄の照射効果を推定することは危険であるため、各原子炉で使用される黒鉛材料についての照射効果を調べる必要がある。また、同一銘柄の黒鉛材料でも製造ロットの違いなどによって性質にバラツキがあるため、その照射効果にもバラツキが生じてくる。したがって、原子炉の炉心構造設計ならびに安全性評価のデータとしてはできるだけ多くの試料を用いてデータ

を取得する必要がある。このため、アメリカ、イギリス、西ドイツなどでは非常に数多くの原子炉用黒鉛材料が試作され、照射試験が行われてきた。しかし、日本では材料試験用原子炉が少なく、また再照射試験設備がないため十分なデータは取得できていない。

(3) 高温ガス炉における黒鉛材料の使用条件

黒鉛材料は、多目的高温ガス実験炉（VHTR）では黒鉛スリーブ、燃料ブロック、可動反射体、固定反射体、高温プレナムブロック、サポートポストシートなどの構造物として使用される。これらの構造物のうちの黒鉛スリーブならびに燃料ブロックは2年間の運転で交換され、また他の構造材料は約20年間交換されることなく使用されるように設計されている。これらの構造材料がその使用期間中に受ける最高中性子照射量および最高使用温度について詳細設計(II)に基づいた値を Table 1⁴⁾ に示す。

(4) 照射研究の現状

日本原子力研究所において1969年からVHTRの開発研究のために進めている黒鉛材料の照射試験は、JMTR, JRR-2, およびHFR（ペッテン研究所、オランダ）で行われており、現在まで総計36本のキャプセルで照射研究を行ってきている。Fig. 1にVHTRにおける黒鉛の使用条件と現在までのデータ取得の状況を、またTable 2に最近の照射試験の実績と計画⁵⁾を示す。これらの照射試験の主なものは、寸法変化、熱膨張、熱伝導度、ヤング率、腐食、機械的強度、疲労、クリープ試験などである。

一方、国外においては、1959年から始ったドラゴンプロジェクト、ならびにアメリカにおけるORNL, BNWL, GAなどでの試験研究が終了して以来、高温照射は西ドイツによるオランダのHFRでの照射、ならびにアメリカのORR, HFIR, GETRなどで進められてきた。例えば、西ドイツはペブルベツト炉の開発を指向しているが、その炉の開発のためには照射温度が最高1000°Cまでの温度で、照射量が最高約 $6 \sim 7.6 \times 10^{25} \text{ n/m}^2 (E > 29 \text{ fJ})$ ⁶⁾までの条件の照射データを取得する必要があるとされていた。

(5) 黒鉛の高温照射効果の例

原子炉級黒鉛材料の高温照射効果の例として、寸法変化、熱膨張、熱伝導度、ヤング率、照射クリープ、腐食などについての研究結果の例を以下に示す。なお、種々の黒鉛材料の照射挙動を比較する場合には同一の原子炉で照射して得られたデータについて行うことが望ましいことは言うまでもないが、種々の制約がある現状ではなかなかむずかしい。中性子照射により炭素原子がその結晶格子点からはじき出される数は入射する中性子のエネルギーに依存するため、照射効果は炉内中性子エネルギースペクトルによって異なる。そのため、各原子炉で照射して得られたデータを相互比較する場合には中性子量についての各原子炉間の関係を知っておく必要がある。この高速中性子照射量の評価はReed⁷⁾や桜井⁹⁾などによっても行われているが、Table 3にはBlackstoneら⁸⁾によって与えられている結果を示した。

(a) 寸法変化

Fig. 2およびFig. 3に照射による寸法変化の例¹⁰⁾を示す。この寸法変化は微結晶の配向性によって異なるとともに照射温度によって異なった傾向を示す。高温照射の場合には寸法は照射によって収縮するが、ある一定の照射量以上になると逆に膨張に転じる。この現象をturnaroundと称している。これが現われる照射量は材料によって異なる他、照射温度によっても異なり、照

射温度が高くなればなる程高い照射量で生じる傾向がある。

(b) 熱膨張

Fig. 4 に照射による熱膨張係数の変化⁸⁾を示す。熱膨張係数は照射の初期には一旦増加するが、その後は照射量が増加するにしたがって減少する。この熱膨張係数の増加は照射前の熱膨張係数が大きい材料程照射量の低い領域で生じる。また、Fig. 5 にも示すように熱膨張係数の照射による変化は黒鉛の種類によって異なり、複雑な変化をする³⁾。

(c) 熱伝導度

黒鉛材料の熱伝導度は室温以上では温度が高くなるにしたがって減少する。その温度依存性の照射による変化では、熱伝導度の減少率は照射前は大きいが増加するにしたがって次第に小さくなる。また、温度が高くなるにしたがって逆に増加する場合もある。Fig. 6 には室温で測定した熱伝導度の変化¹¹⁾を示すが、照射量が増えるにしたがって熱伝導度は次第に小さくなる。

(d) ヤング率

Fig. 7 にヤング率の照射による変化¹²⁾を示す。ヤング率は照射によって増加するが、その変化傾向は照射温度や材料の種類によって異なる。

(e) 照射クリープ

Fig. 8 に照射クリープ係数と照射前のヤング率の積と照射温度の関係¹³⁾を示す。この値は中性子束によって異なるが、一定の中性子束では直線的な関係があることを示している。

(f) 腐食

Fig. 9 は 1000°C でヘリウム中の水蒸気濃度 0.65 % で腐食させた例を示す。黒鉛材料のガスに対する反応性は、照射によって増加する銘柄、変らないもの、減少する銘柄など様々である。図は照射によって反応速度が増加した例である。

(6) おわりに

日本原子力研究所で開発研究を進めている VHTR に使用する黒鉛材料の照射研究では、詳細設計(II)に基づく、照射条件としては照射温度が 400～1250°C、照射量が最高 $1 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 29 \text{ fJ}$) とされている。しかし、今後実用炉を指向した照射研究ではより高い照射量での照射効果を調べることが必要とされる。また、選択される炉型によってはそれに使用される黒鉛材料が受ける中性子照射量や照射温度が異なるため、その使用条件に合った正確なデータを取得することが必要である。現在の JMTR や JRR-2 を使った照射試験では、原子炉で照射して照射後試験を行ってデータを取得した後、再び同一の試料を照射する再照射試験ができない。このために高照射領域でのデータを取得するのに非常に長い時間を必要とする。したがって、寸法変化、熱膨張、熱伝導度、ヤング率などの非破壊検査用試料では再照射できるようにすれば少ない試料で連続してデータを取得できてデータのバラツキも少なくなり、かつより高い照射量までのデータをより短時間に取得できるようになるであろう。またより高い精度のデータを得るために、さらに正確な一定の温度での照射ができるよう温度制御することが望まれる。

参 考 文 献

- 1) Wigner, E.P. : CP-387 (1942).
- 2) Franklin, R.E. : Proc. Roy. Soc., A209, 196 (1951).
- 3) Engle, G.B. : Carbon 9, 539 (1971).
- 4) 荒井長利：私信.
- 5) 日本原子力研究所：多目的高温ガス炉研究開発の現状（1984）.
- 6) 財団法人原子力安全研究協会，高温ガス炉の安全性に関する調査（1972）.
- 7) Reed, D.L., Everett, M.R., Blackstone, R. : Proc. IAEA Symp.
Radiation Damage in Reactor Materials, Vol.2, 115 (1969).
- 8) Blackstone, R., Graham, L.W., Everett, M.R. and Delle, W. : ibid.
543 (1969).
- 9) 桜井文雄, 新保利定 日本原子力学会誌 Vol. 25, 372 (1983).
- 10) Engle, G.B. : GA-A14690 (1977).
- 11) Price, R.J. : GA-A12615 (1973).
- 12) Everett, M.R., Graham, L.W., Manzel, R. and Blackstone, R. :
Carbon 9, 417 (1971).
- 13) Price, R.J. : GA-A16402 (1981).

Table 1 Maximum neutron fluence and temperature of graphite materials used in VHTR⁴⁾

Materials	Max. temperature (°C)	Max. neutron fluence (E>29 fJ)
Graphite sleeve	1250	0.65×10^{25} n/m ² *
Fuel block	1200	0.65×10^{25} n/m ² *
Replaceable reflector	1150	1×10^{25} n/m ²
Fixed reflector	800	$\sim 1 \times 10^{23}$ n/m ² **
Hot plenum block	1150	$\sim 2 \times 10^{21}$ n/m ²
Support-post sheet	1050	$\sim 1 \times 10^{19}$ n/m ²

* Rate of operation 60% × 2 year

** Rate of operation 60% × 20 year

Table 3 Graphite damage correlation factors.⁸⁾

Facility	Neutron exposure expressed as	To obtain DIDO equivalent (Ni) multiply by
H.F.R.	Equivalent fission fluence	1.0
Dragon	"	1.7
DIDO, PLUTO	"	1.0
GETR/ETR	nvt (E > 0.18 MeV)	0.66
Dounreay Fast Reactor ^{*)}	Total dose	0.46

*) Direct comparison with results from D.F.R. should be made with extreme caution. Complications may arise from the difference in flux level with that of other facilities.

Table 2 High temperature neutron irradiation experiments for graphite materials at JAERI⁵⁾

Capsule	Sample*	Number of specimen	Neutron fluence 10^{25}n/m^2 ($E>29\text{fJ}$)	Max. irradiation temperature ($^{\circ}\text{C}$)	1980			1981			1982			1983			1984			1985			1986		
					4	7	10	4	7	10	4	7	10	4	7	10	4	7	10	4	7	10	4	7	10
78M-9A	A,B,C	109	3.0	1190																					
ICM-24H	A,B,C	58	1.4	1200																					
ICM-25H	B	186	0.2	700																					
80M-18A	A,B	84	2.1	1200																					
ICM-32H	A,B	58	(1.0)	(1200)																					
ICM-34H	B	186	0.4	600																					
GG-15(KFA)	B	4	4.6	750																					
GG-15(KFA)	B	20	7.6	600																					
81M-36A	A,B	84	(3.0)	(1200)																					
ICM-38H	A,B	58	(1.5)	(1200)																					
ICM-41H	A,B	44	(0.5)	(600)																					
ICM-42H	A,B	58	(0.5)	(1200)																					
82M-25A	B	35	(1.0)	(800)																					
83M-2A	B	37	(2.0)	(600)																					
83M-6A	A,B,D	109	(0.5)	(1000)																					
ICM-46H	A,B	90	(0.5)	(400)																					
JASMIN(HFR)	B	476	(0.9)	(1200)																					
84M-37A	A,B	225	(1.0)	(1000)																					

* A : Near-isotropic petroleum coke
 B : Fine grain isotropic petroleum coke
 C : Anisotropic coke
 D : Carbon

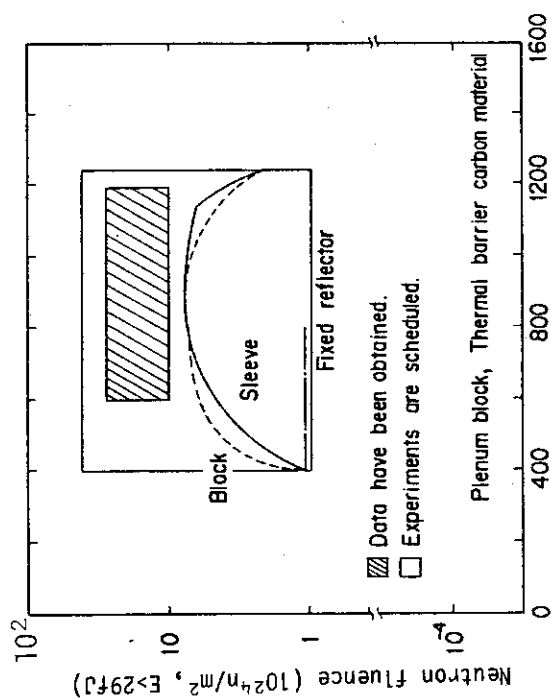


Fig. 1 Estimated neutron fluence and temperature for graphite and carbon materials in VHTR.

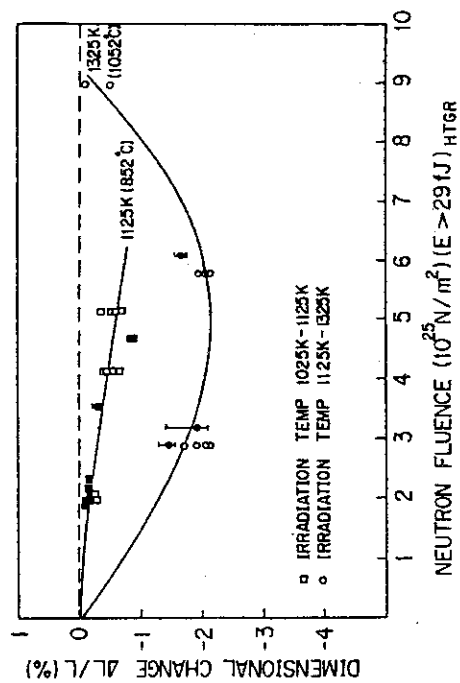


Fig. 2 Dimensional change in radial direction of H-451 graphite.¹⁰⁾

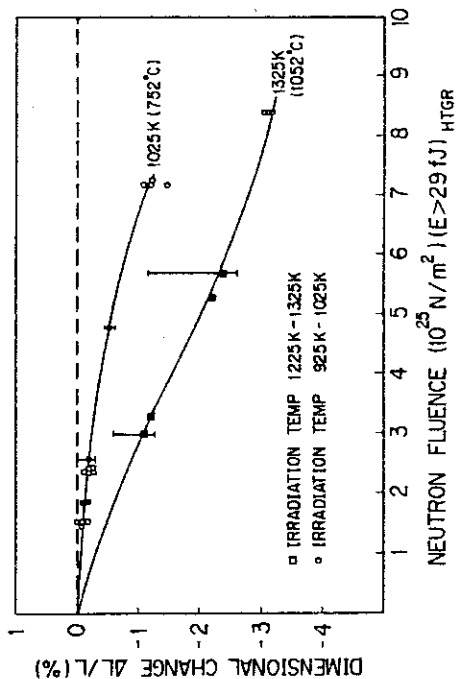


Fig. 3 Dimensional change in axial direction of H-451 graphite.¹⁰⁾

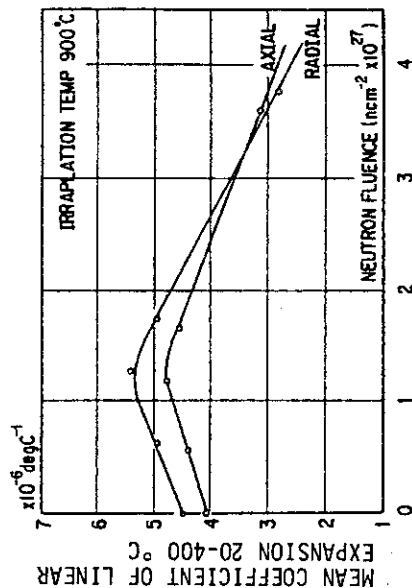


Fig. 4 Coefficient of thermal expansion with neutron fluence at 900°C of Gilso carbon graphite.⁸⁾

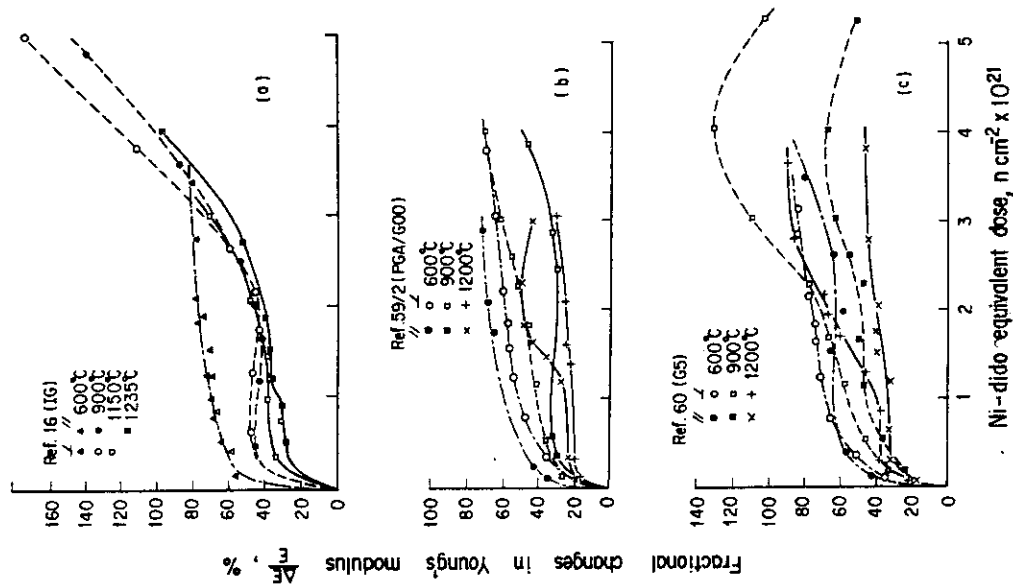


Fig. 7 Fractional changes in Young's modulus.¹²⁾

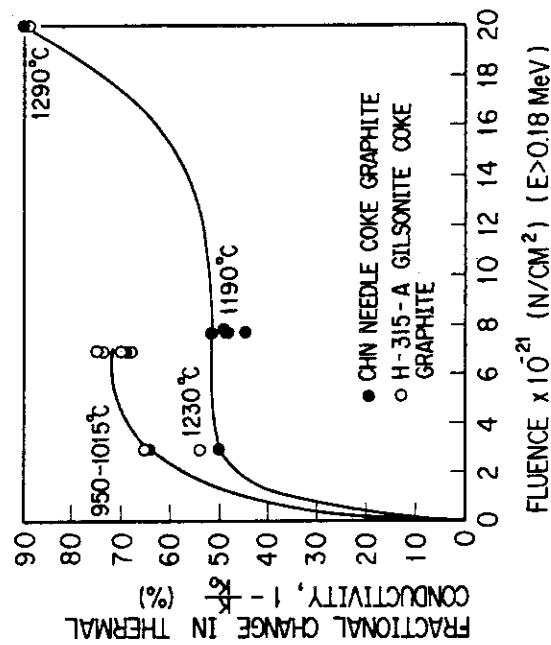


Fig. 6 Fractional change in thermal conductivity of needle-coke and Gilsonite-coke graphites as a function of fluence.¹¹⁾

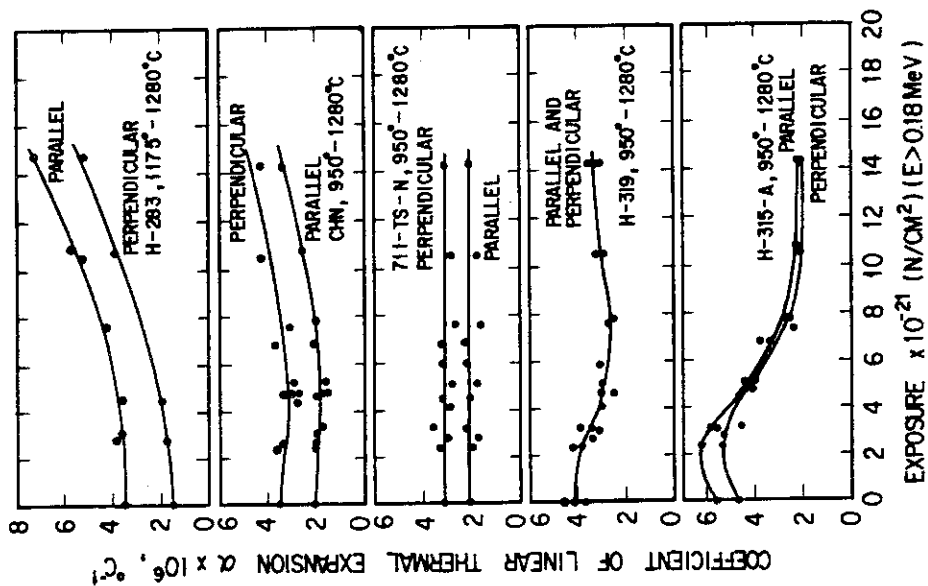


Fig. 5 Thermal expansivity changes measured at 400°C as a function of neutron fluence.³⁾

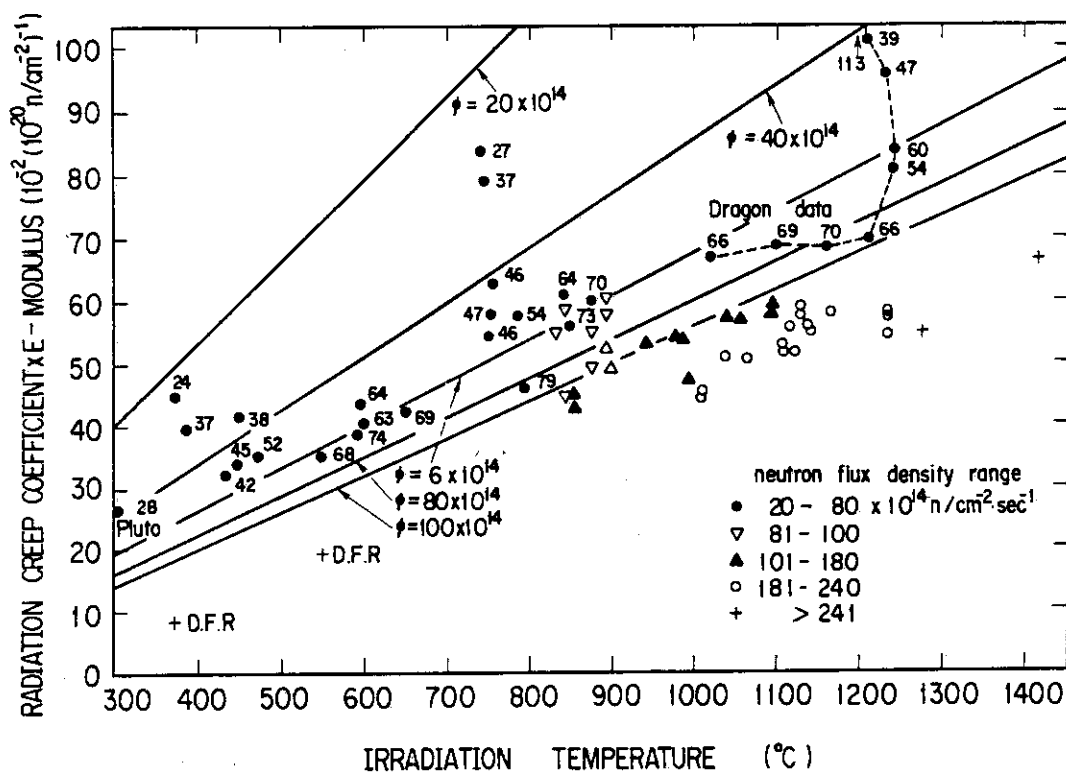


Fig. 8 Steady-state irradiation creep data from restrained shrinkage tests : Creep coefficient multiplied by initial Young's modulus for different flux ranges as a function of temperature.¹³⁾

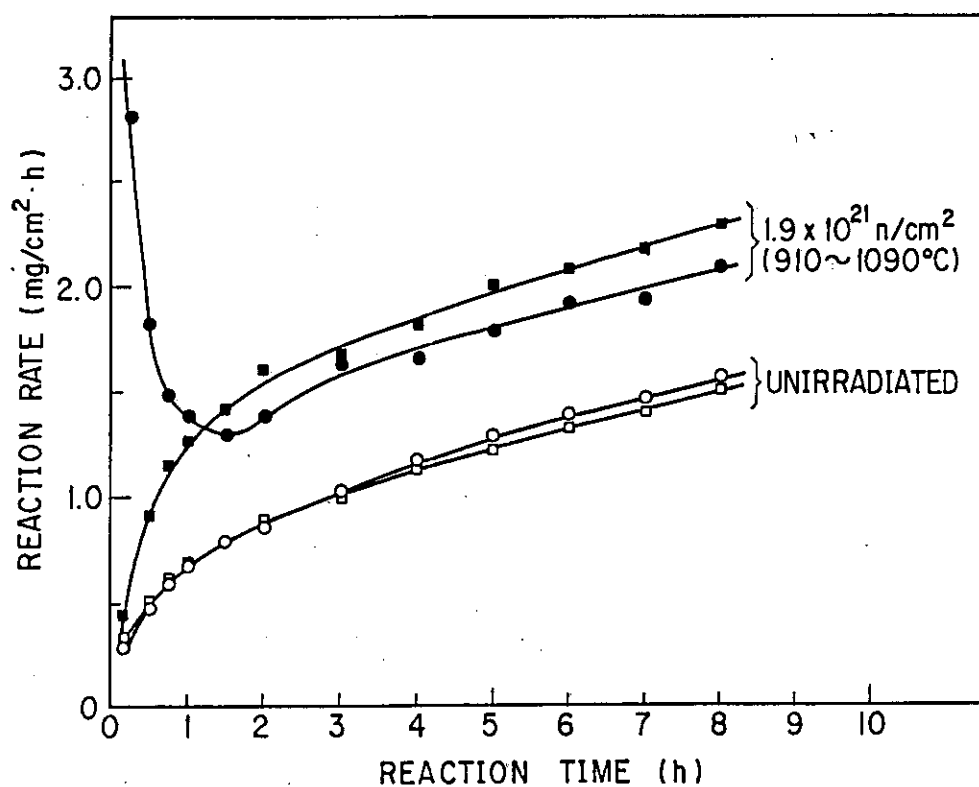


Fig. 9 Reaction rate at 1000°C with reaction time.

2.2.4 高温ガス炉用金属材料

原研高温工学部 奥 達雄

(1) 照射研究の課題

高温ガス冷却炉に使用される金属材料の照射研究の課題は一般に蒸気サイクルを用いた大型炉指向であるか、あるいは、鋼製容器を用いたモジュール型またはプロセスヒートを目指した比較的小型の炉のいずれかにより異なってくる。蒸気サイクル炉では制御材料の被覆合金の高温型の照射損傷が唯一の照射研究の課題であった。一方、小型炉では通常鋼製容器が考えられるため、被覆合金のはかに圧力容器鋼材の照射脆化及び炉心部で用いられる耐熱合金のヘリウム脆化が重要な問題となる。

以下、制御材料の被覆合金としての耐熱材料と圧力容器鋼材としての耐圧材料について、国内外の研究の動向を概説する。

(2) 耐熱材料

材料照射研究において 700℃ 以上の高温域での照射挙動が検討されはじめたのは多目的高温ガス炉の開発計画が提唱されて以来である。従来、高速炉炉心材料では、中温度(～500℃)で高照射量のためボイドスウェリングが最重要課題であったのに対して、多目的高温ガス実験炉の制御材用被覆合金では、高温で熱中性子照射の寄与が大きいため、いわゆる高温ヘリウム脆性によって材料の耐久性が支配されると考えられる。このため、鉄基耐熱合金及びニッケル基耐熱合金の高温照射脆化に関する研究課題が重要である。ここでは、日本及び西独における耐熱合金の照射研究の最近の動向を述べる。

日本における多目的高温ガス炉指向の耐熱合金の照射研究は当初ハステロイ X を中心とするニッケル基耐熱合金を主体に始められた。低照射量領域での研究では合金中の硼素の低減化が高温照射脆化に対する抵抗性を高める上で有効であることが確認された。その後、次第に高照射量領域へと研究が進展するに伴い、ニッケル基合金はヘリウム脆化に対する感受性が極めて高いことが明らかとなった。Fig. 1 にハステロイ X についての結果の 1 例を示す。高照射量域では Ni 2 段反応 $^{58}\text{Ni}(\text{n}, \gamma)^{59}\text{Ni}(\text{n}, \alpha)^{56}\text{Fe}$ にもとづく生成 He により著しい延性低下を生じ、その傾向は変形温度の上昇とともに増加することが分かる。Fig. 2 に鉄基合金とニッケル基合金との高温照射脆化についての比較結果を示す²⁾。照射量が増加してもニッケル基合金に比べて鉄基合金の方が高温照射脆化が少なく、とりわけインコロイ 800 では例外的に少ないことが分かる。これらのことから高ニッケル材料はヘリウム脆性の上から好ましくなく、むしろ必然的に含有ニッケル量が低い鉄基オーステナイト系合金が耐ヘリウム脆性の上から適していると判断された。さらにこのことをクリープ性質について実証したのが Fig. 3 である²⁾。照射前は当然のことながら鉄基のインコロイ 800 よりもニッケル基のハステロイ X の方がクリープ強度は高い。しかしながら、照射後はこの関係が逆転し、インコロイ 800 の方がハステロイ X よりも高いクリープ強度を示すことが分かる。

以上の結果をふまえて、現在はインコロイ 800 合金を主として他の 2, 3 種のオーステナイト系合金について、照射後クリープ試験を重点的に進めている。

西独における最近の照射研究³⁾⁴⁾によると 8 種の耐熱材料につき、照射後引張性質を検討している。例えばナイモニック PE 16 とインコネル 625 のような析出硬化型合金においてはとくに高温

照射脆化が顕著であることが確認された。他方、加工熱処理法によるミクロ組織の最適化による照射後高温延性の改善を目的とした一連の検討を行っている。Fig. 4 にその 1 例を示す。照射後延性は KA 材（冷間加工後焼なまし処理）の方が KAK 材（冷間加工後焼なまし冷間加工）よりも大きく、850°C においても約 20% の破断伸びを保持している。この外に、1.4981 KA（Nb 添加 SUS-316 相当材）インコロイ 800 H およびハステロイ X についてデータベース試験の観点から引張、クリープおよび低サイクル疲労などの照射後試験を行い、データの蓄積を図っている。

元来高温ガス炉の開発ではこの種の照射脆化問題への認識はなく、我国の高温ガス炉研究で昭和 50 年代初頭にはじめて問題提起されたにすぎない。したがって 700°C 以上の温度域での耐熱合金の照射後試験データは、国内のみならず国外においても比較的少ないのが現状である。照射後試験データの中でも特に照射後クリープ試験データは、高温構造物の安全性評価あるいは寿命評価の観点から極めて重要であり、今後更に蓄積していくことが必要である。しかしながら、現有の照射後試験施設では十分なデータの蓄積ができない状況にあり、今後材料試験用セルの増設と共に、照射後クリープ試験機の増設が望まれる。

(3) 耐圧材料

400°C 以上で使用することを予定した耐圧材料に関する照射研究は日本以外ではほとんど行われていないので、ここでは、日本における最近の研究動向について述べる。

多目的高温ガス実験炉の耐圧構造物として代表的なものは、原子炉压力容器であり、160 mm の厚さの 2 ¼ Cr-1 Mo 鋼が用いられる予定である。この原子炉压力容器は、中性子照射を受け、生じた損傷により、強度が上昇し、延性、じん性が低下する。じん性の低下は、压力容器の不安定破壊に対する裕度を低下せしめるので特に重要である。

2 ¼ Cr-1 Mo 鋼は、今まで原子炉压力容器に用いられた例がなく、そのため中性子照射データは少なく、外国で軽水炉運転温度付近（～300°C）のデータが散見⁶⁻⁷⁾される程度で、実験炉温度（～400°C）域におけるものは全て原研データ⁸⁾⁹⁾である。これらの中性子照射データの一例として、中性子照射によるシャルピー 30 ft-lb (41 J) における遷移温度の上昇 (ΔvTr 30) と中性子照射量 ($E > 160 \text{ ft} = 1 \text{ MeV}$) との関係を Fig. 5 に示す。同図から、400°C 近辺における 2 ¼ Cr-1 Mo 鋼の中性子照射脆化挙動として以下の点を指摘できる。

- ① 高温変態組織（フェライト・パーライト）の A 387 Gr. 22 Cl. 1 鋼は、低温変態組織（ベーナイト）のもの（A 387 Gr. 22 Cl. 2 及び A 542 Cl. 1）より中性子照射ぜい化感受性が高い。なお、照射前のじん性を考慮すると、A 387 Gr. 22 Cl. 2 鋼の方が A 542 Cl. 1 鋼より高じん性を示し、压力容器用鋼材として有望である⁸⁾。
- ② A 387 Gr. 22 Cl. 2 鋼の溶接部においては、熱影響部は母材と同等であるが、溶接金属は母材より中性子照射ぜい化感受性が高い。
- ③ 銅 (Cu) は中性子照射ぜい化に悪影響を及ぼすが、0.1% 以下であればその影響は少ない。なお、0.1% レベルは現在の製鋼技術で十分クリア（～0.04% 以下）できる。

更に、この種の 2 ¼ Cr-1 Mo 鋼は、焼戻しぜい化現象を示す⁸⁾⁹⁾ので、中性子照射ぜい化との相互作用を調べた。

Fig. 6¹⁰⁾ は、A 387 Gr. 22 Cl. 2 鋼の受入れ材と熱時効材（焼もどしぜい化を起こさせるために熱時効したもの）の中性子照射前後の遷移温度 (vTr 30, vTr S) 及び上部棚エネルギーの変

化を示す。これらから、受入れ材においては上部棚エネルギーの低下が顕著であること、一方、熱時効材では、熱時効によって遷移温度が上昇し、更に中性子照射によって上部棚エネルギーが低下することが分かる。

以上の知見を模式的に示したものが Fig.7 である。すなわち、

- ①熱時効によって遷移温度は上昇するが、上部棚エネルギーは低下しない。
- ②中性子照射によって上部棚エネルギーは低下するが、遷移温度はほとんど上昇しない。
- ③熱時効材を中性子照射すると、遷移温度が上昇し、上部棚エネルギーが低下する。

この遷移温度の上昇は、リン (P) が粒界に偏析し、粒界破壊を助長するために生ずる⁹⁾ことが分かっており、中性子照射は粒内強度を上昇せしめるので、さらに粒界破壊を促進させると解釈できる。遷移温度上昇に対する軽減対策としては、P含有量を下げることであり、50ppm以下であれば遷移温度の上昇はほとんど起こらないと言われている。この50ppmのレベルは、現在の製鋼技術で十分クリアできるので、焼もどしぜい化、中性子照射ぜい化による遷移温度の上昇は余り問題とならないと思われる。しかしながら、中性子照射による上部棚エネルギーの低下は避けられず、何らかの対策を講じて健全性を見究めることが必要である。

上部棚域における鋼材のじん性評価に関しては、シャルピー衝撃特性よりも物理的意義が明確で、き裂寸法と破壊応力を関連づけられるという意味で、定量的、合理的評価が可能な破壊力学の原理に基づく手法の確立が必要と指摘されている¹¹⁾。しかしながら、次に述べる問題点がある。

上部棚領域において破壊じん性値を測定する場合、照射キャプセル内スペース、ホットセルにおける操作性等から小型の試験片が使用できる弾塑性破壊力学に基づく弾塑性破壊じん性試験によらなければならない。Fig.8に JRR-2 及び JMTR で現在用いている破壊じん性試験片の形状、寸法を示すが、これらは、寸法的にみて有効な破壊じん性値が求められる限界域の試験片である。従って、照射材の有効な破壊じん性値を求め得るか否かという工学的に定量性のあるより高精度の判断を下すには、JRR-2、JMTR の現在の試験片サイズより一廻り大きなサイズの破壊じん性データの取得が焦眉の急となる。更に、より大型の破壊じん性試験片を照射しようとする場合、試験片に均一な中性子照射量を与えることが肝要である。さもなければ、中性子照射ぜい化の勾配の生じた試験片を用いて破壊じん性値を求めることになり、実験精度上の問題を生ずる。

以上述べた点から明らかなように、JRR-3 改造炉はこれらの要求を満たす装置を備えており注目される。すなわち、重水タンク内回転照射孔 (DR-1) がそれであり、試料寸法として最大 $\phi 130 \times 300$ mm のものを装荷でき、しかも、均一な中性子照射を行うために試料回転が出来る点で極めてユニークであり、これに比肩するのは、筆者の知る限りでは西独 GKSS の照射装置のみであろう。今後、压力容器用 $2\frac{1}{4}\text{Cr}-1\text{Mo}$ 鋼に関しては、以上の破壊じん性データのみでなく、照射後試験を行って、無延性遷移温度 (NDT)、き裂伝播、疲労、クリープ等のデータを取得し、データベース化することが焦眉の急であるが、その際照射後試験装置の整備が前提となることは言うまでもない。

参 考 文 献

- 1) 渡辺, 小川, 近藤: 鉄と鋼, 68, 682 (1982).
- 2) K. Watanabe, T. Kondo and Y. Ogawa : Nucl. Tech., 66, 630 (1984).
- 3) B.A. Thiele, F. Schubert and H. Nickel : Jül-1904 (1984).
- 4) B.A. Thiele, H. Diehl, W. Ohly and H. Weber : Nucl. Tech., 66, 597 (1984).
- 5) J.R. Hawthorne, et al. : Welding J., 453 S (1970).
- 6) M. Kawasaki, et al. : ASTM STP, 484, 74 (1970).
- 7) R.R. Hobson, et al. : ASTM STP, 484, 142 (1970).
- 8) M. Suzuki, K. Fukaya, T. Kodaira and T. Oku : Nucl. Tech., Vol.66, 619 (1984).
- 9) M. Suzuki, K. Fukaya, T. Kodaira and T. Oku : 5th Int. Conf. of Pressure Vessel Technology (1984), San Francisco.
- 10) 日本原子力研究所: 多目的高温ガス炉研究開発の現状, 1984.
- 11) 古平, 中島, 松本, 深谷: 鉄と鋼, 68, 8, 1032-1039 (1982).
- 12) J. Ahlf, et al. : "Operating Experience with Capsules for RPV Steel Irradiation with Large Specimen Volume", (1983) 私信。
- 13) 清水 他, 材料 28 (1979) 379.

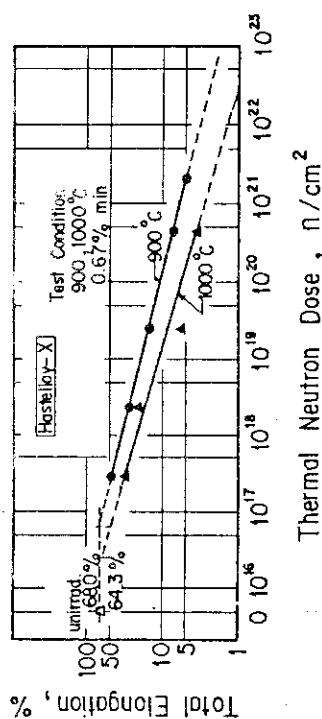


Fig. 1 Effect of thermal neutron dose on the total elongation of Hastelloy-X at test temperature of 900 and 1000°C.

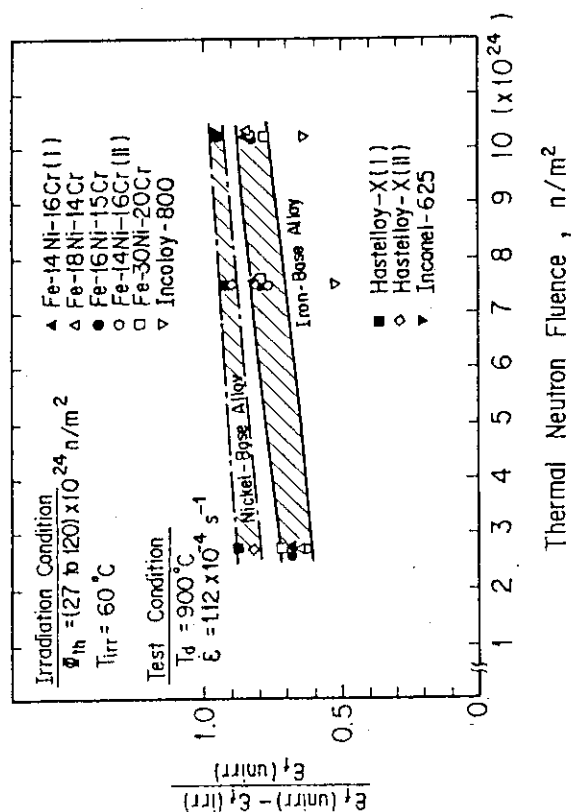


Fig. 2 Influence of thermal neutron fluence in high-temperature embrittlement of various austenitic alloys with different nickel content.

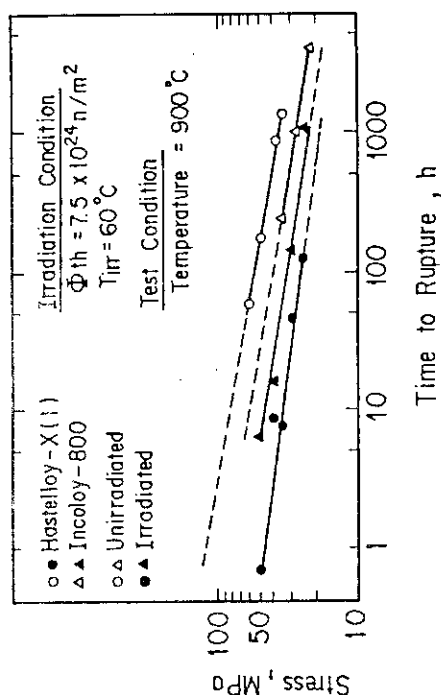


Fig. 3 Stress versus rupture life for Hastelloy-X(I) and Incoloy-800. Unirradiated Incoloy-800 data are from Shimizu et al.¹³⁾

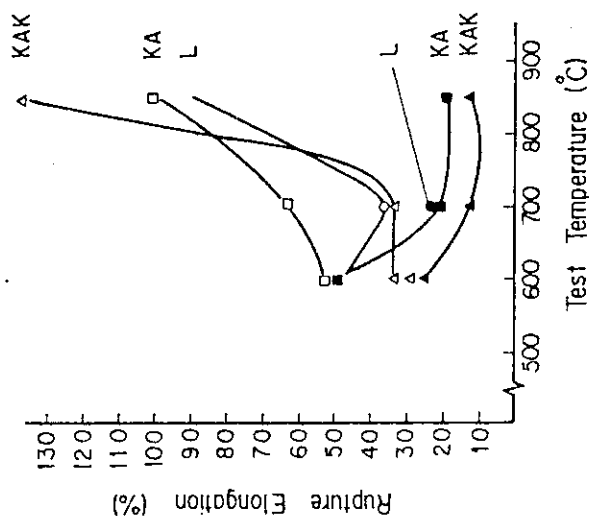
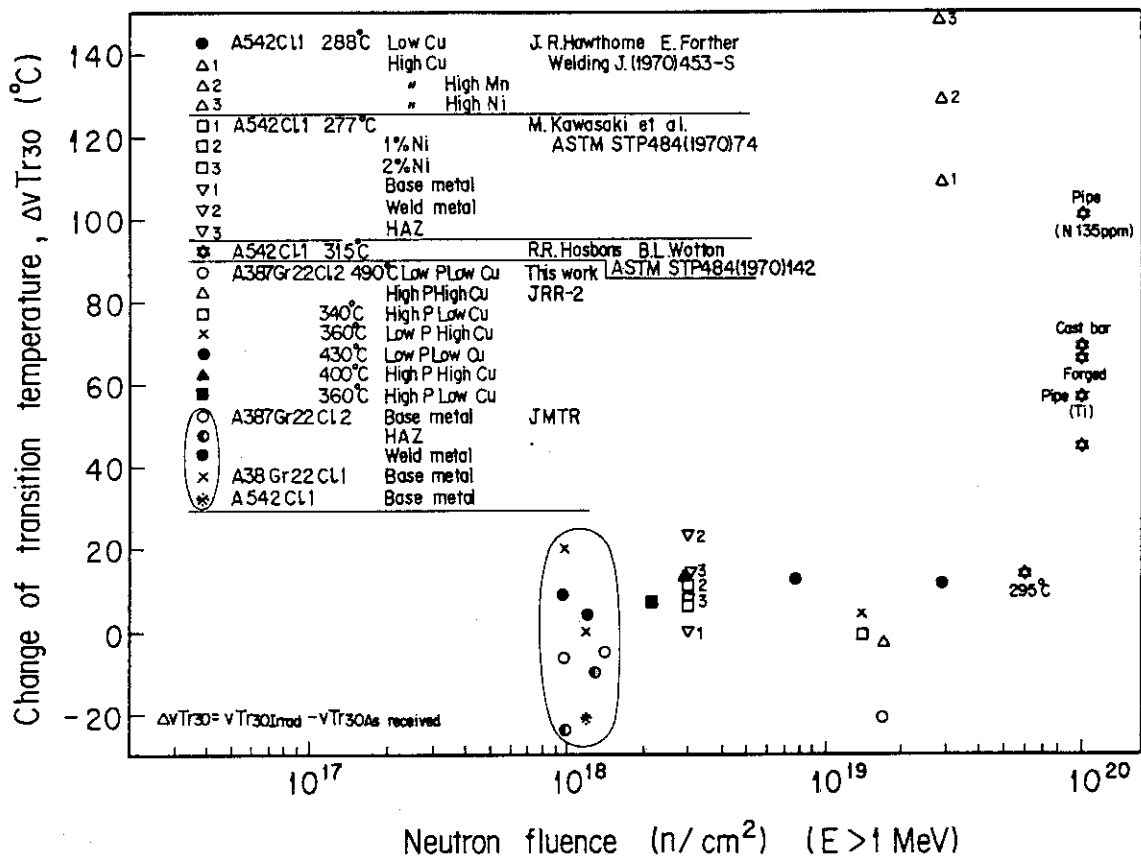


Fig. 4 Influence of test temperature on rupture elongation of unirradiated (open symbol) and irradiated tensile samples of various thermomechanical heat treatments of alloy A (X8 CrNiMoNb 1616).

Fig. 5 Behavior of irradiation embrittlement of 2 $\frac{1}{4}$ Cr-1Mo steels.

- Unirradiated, As Received
 ⊕ Unirradiated, Aged at 475°C for 1000 hours
 ● Irradiated As Received: 411°C, 2.3×10^{18} n/cm² (E > 160 fJ = 1 MeV)
 Thermal Aged: 393°C, 2.7×10^{18} n/cm² (E > 160 fJ = 1 MeV)
- vTr30 : Transition temperature at 30 ft-lb Charpy absorbed energy
 vTrS : Transition temperature 50% fibrosity
 vE : Upper shelf energy

		Transition Temperature (°C)								Upper shelf energy (J)							
		-80	-70	-60	-50	-40	-30	-20	-10	160	170	180	190	200	210	220	
As Received	vTr 30	●○															
	vTrS	○○●●															
	vE									●————○							
Aged at 475°C for 1000 hours	vTr 30	○⊕————●															
	vTrS	○————⊕————●															
	vE									●————○							

Fig. 6 Behavior of neutron irradiation embrittlement of A387Gr.22Cl.2 steels.¹⁰⁾

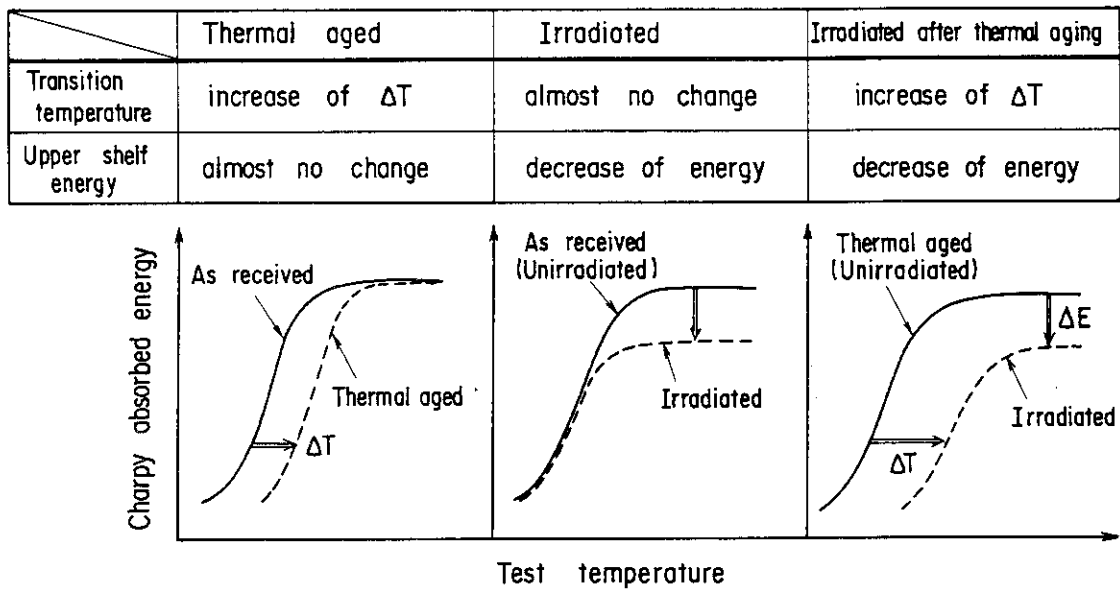
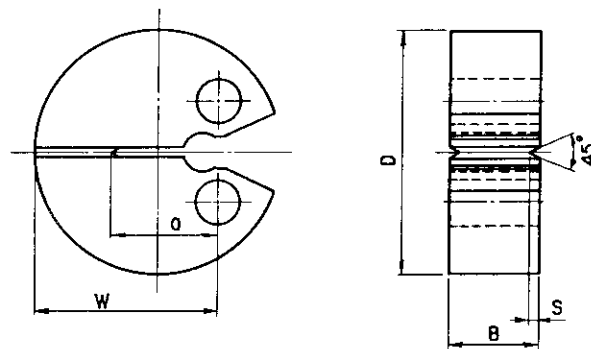


Fig. 7 Schematic illustration of embrittlement behavior due to thermal aging and neutron irradiation in a A387Gr.22Cr.2 steels.



Unit : mm

Type of Specimen	B	D	W	S	Reactors
0.4 TDCT	10.0	27.0	20.0	1.25	JRR-2
0.63T DCT	16.0	43.2	32.0	2.00	JMTR
0.75T DCT	18.8	50.6	37.5	2.35	JRR-2

B : Specimen thickness D : Diameter W : Width
S : Depth of groove a : Crack length

Fig. 8 Configuration of fracture toughness specimen.

2.2.5 核融合炉用燃料（トリチウム増殖固体ブランケット材料）

原研燃料工学部 渡辺 斉

(1) トリチウム増殖とブランケット機能

トリチウム増殖材料には、液体と固体が考えられるが、それらにはトリチウム生産用と、トリチウム生産のほかにブランケットの役割を兼ねるものの2種類がある。前者であれば長時間の照射健全性に多少不安があっても、所定の時間内の照射に耐え、生成したトリチウムの回収が容易で、かつ製造し易い材料であればよい。現在、アメリカ、フランス及び日本（原研）ではAl-Li合金をAl材で被覆したものを主としてトリチウム生産用に使用している。後者の目的であれば、トリチウム生産のほかに熱変換に関する性能が要求され、熱伝達媒体として高温状態で十分使用可能でなければならない。このブランケット候補材料としては固体及び液体リチウム化合物があり、広範囲に亘って研究開発が進められている。ここでは、後者のトリチウム増殖固体ブランケット材料について述べる。

(2) 照射研究の必要性

増殖ブランケット材料として要求される性能はつぎの項目に要約される。

- ① 増殖性能：Li原子密度の高いこと、構成原子の中性子断面積の小さいこと、あるいは中性子増倍効果の期待できること。
- ② 回収性能：トリチウム溶解度の小さいこと、トリチウム放出・回収の容易なこと。
- ③ 熱物理的特性：熱容量及び熱伝導度の大きいこと、熱膨張係数の小さいこと。
- ④ 高温安定性：融点又は相変態点の高いこと、蒸気圧の高いこと、ブランケット容器及び冷却管等の構造材料との両立性のよいこと。
- ⑤ 照射安定性：高エネルギーの中性子、トリチウム、ヘリウムの照射によって諸特性の変化しにくいこと、寸法変化及びスエリングの起りにくいこと。
- ⑥ 誘導放射能：構成原子及び不純物原子による誘導放射能の小さいこと。
- ⑦ 製造性：標準化及び量産化し易いこと。
- ⑧ 安全性：水素爆発や火災などの潜在的危険度の小さいこと、冷却材との反応の起りにくいこと。

これらのうち②及び⑤項目は照射試験によってのみ、はじめて明らかにされるものであり、トリチウム生産及びブランケット材の寿命評価の観点から重要な研究課題である。液体ブランケット材料は照射損傷を受けにくいので、⑤の項目は固体ブランケット材料に固有のものであり、固体ブランケット材料の選定にあたって緊急に調べておかねばならない課題である。しかし、照射試験は時間と費用がかかるので、他の項目にくらべて試験・研究が遅れている。最近、この分野での国際協力の機運が高まりつつある。

(3) 照射研究の現状及び動向

増殖ブランケット材料の照射試験はトリチウム生成・回収性能評価を目的とするものと、照射特性・寿命評価を目的とするものに区別できる。これらについて、現状及び今後の動向を述べる。

i) トリチウム放出・回収試験

${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 反応によって生成するトリチウムの放出挙動を調べるため、これまでに多く

の研究者によって照射後加熱試験が行われてきた。しかし、トリチウムの生成と放出が同時に進行するブランケットの使用環境を考えると、これらの試験では十分でなく、照射下のトリチウム回収試験が重要性を増してくる。原研は世界に先駆けてこの試験を実施している。ブランケット材料はその使用位置によって、14 MeV の速中性子から熱中性子までの幅広いエネルギーをもった中性子に曝されるが、 ${}^6\text{Li}$ の反応断面積は熱中性子に対して $500 \sim 1000$ バーン ($\times 10^{-24} \text{ cm}^2$) であり、中性子エネルギーの増加とともに著しく減少するので、トリチウムの放出挙動を調べる上で、天然 Li 化合物 (${}^6\text{Li}$: 7.5%) を用いた熱中性子炉照射は効果的である。

原研では 1981 年から JRR-2 を使用して、 Li_2O からの照射下トリチウム放出試験を進めている。1985 年 7 月には第 4 回照射試験 (VOM-22 H) が Li_2O 及び LiAlO_2 について実施される。昨年 (1984 年 5 月) 実施した第 3 回照射試験 (VOM-21 H) のトリチウム放出測定装置のフローシートを Fig. 1 に示す。これまでの照射試験によって、 Li_2O 焼結ペレットからのトリチウム放出速度、トリチウム化学形、トリチウム残存量などについて新しい知見を得た。¹⁾ 加えて、トリチウムの放出挙動に対して配管壁の吸着水分の影響を無視できないことがわかった。アメリカ ANL では、1983 年 LiAlO_2 焼結ペレットについて ORR を使用した照射試験を実施しており、²⁾ 欧州でも SILOE 及び HFR を使用して、 LiAlO_2 、 Li_2SiO_3 などの照射試験が 1984 年から開始されている。^{3,4)} 原研及び ANL の照射試験の条件及び主な結果を Table 1 に示す。

ii) 照射特性試験

増殖ブランケット材料は中性子照射によって、トリチウムを生成するとともにヘリウムガスも生成する。このヘリウムガスはブランケット内に蓄積すると、スエリングをひきおこす。このほか、14 MeV までの中性子及び ${}^3\text{H}$ イオン (2.7 MeV)、 ${}^4\text{He}$ イオン (2.1 MeV) によって、Li 化合物の結晶構造は損傷を受け、格子欠陥の生成、ボイドの成長によって諸特性に影響を及ぼすとともにスエリングをひきおこすことが予想される。このような照射による影響を評価するためには熱中性子から 14 MeV の高速中性子までの領域の中性子による長時間照射が必要であるが、これらを十分に満す照射装置がないので、現在は加速器、熱中性子炉、高速炉による模擬照射試験によって、基礎的データ及び工学的データの蓄積を図っている。

① 照射損傷の研究

原研では熱中性子炉による低照射及びタンデム加速器による酸素イオン照射によって Li_2O 中の格子欠陥の同定及びその濃度を ESR 及び光吸収法を用いて明らかにするとともに、この格子欠陥 (F^+ 中心) の生成量は照射イオンエネルギーに大きく依存することがわかってきた。⁵⁾

② 寸法変化及びスエリング測定

アメリカ HEDL では EBR-2 を使用して Li_2O 、 LiAlO_2 、 Li_4SiO_4 、 Li_2ZrO_3 の 4 種類の増殖材について、100、200、300 日* の高速中性子照射を行い、照射後試験として、中性子ラジオグラフ、寸法測定、トリチウム及びヘリウム残存量測定を行っている (FUBR-1 A 計画)。⁶⁾ この結果の要約を Table 2 に示す。 LiAlO_2 (95% T.D.) と Li_2ZrO_3 (85% T.D.) を除いて LiAlO_2 (85% T.D.) をはじめ、いずれの焼結ペレットにも亀裂発生が認められた。現在、

* 脚注：EBR-2 100 日照射で Li 燃焼度は $3 \times 10^{20} \text{ captures/cm}^3$ となる。中性子壁負荷 5 MW/m^2 で 1 年間運転すると Li 燃焼度は $9 \times 10^{20} \text{ captures/cm}^3$ となる。

FUBR-1B 計画として 300, 600, 900 日と長時間照射試験を開始している。欧州でも, OSIRIS や HFR を使用して LiAlO_2 , Li_2SiO_3 の照射健全性試験が現在進められている。各国の照射試験計画を Table 3 に示す。

原研では 100~1000 Ci のトリチウム取扱可能なホット・セルの増設後, 照射特性試験に着手する計画であるが, それまではトリチウム回収性能評価に重点をおき, JRR-2 から JRR-3M へ照射試験を移行するとともに, 200 Ci/d (現在は 0.3~1 Ci/d) のトリチウム生成量及びブランケット熱構造を考慮した生成・回収試験を JMTR OWL-2 を使用して計画している。

参 考 文 献

- [1] Kurasawa T., et al. : In-Situ Tritium Recovery Experiment from Lithium Oxide under High Neutron Fluence, 1st Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, Tokyo, Dec. 3-6 (1984).
- [2] Clemmer R.G., et al. : The TRIO Experiment, 3rd Top. Mtg. on Fusion Reactor Materials, Albuquerque, NM, Sep. 19-22 (1983).
Clemmer R.G., et al. : The TRIO Experiment, ANL-84-55 (1984).
- [3] Roth E., et al. : Irradiation of Lithium Aluminate and Tritium Extraction, 1st Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, Tokyo, Dec. 3-6 (1984).
- [4] Kwast H., et al. : Exotic, an Experimental Programme on the Development of Ceramic Tritium Breeding Materials, *ibid.*
- [5] Noda K., et al. : Study of Radiation Damage in Li_2O by Means of Electron Spin Resonance, *Phy. Rev. B24*, 3736 (1981).
Noda K., et al. : Irradiation Damage in Lithium Oxide, 1st Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, Tokyo, Dec. 3-6 (1984).
- [6] Hollenberg G.W. : Fast Neutron Irradiation Results on Li_2O , Li_4SiO_4 , Li_2ZrO_3 , and LiAlO_2 , 3rd Top. Mtg. on Fusion Reactor Materials, Albuquerque, NM, Sep. 19-22 (1983).
Hollenberg G.W. : The Effect on Irradiation on Four Solid Breeder Materials, 1st Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, Tokyo, Dec. 3-6 (1984).

Table 1 In-Situ Tritium Release and Recovery Experiments.

	VOM - 15H (JAERI)		VOM - 21H (JAERI)		TRIO(USA)
SAMPLE	LI2O	6.67G	LI2O	2.03G	LIAlO2 42.9G
NEUTRON FLUX	$1 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$		$0.9 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$		$4 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
TEMPERATURE	480 - 760°C		480 - 900°C		500 - 700°C
IRRADIATION TIME	990HR		2655HR		2112HR
BURNUP	0.24%		0.85%		0.18%
SWEEP GAS	HE		HE		HE - 0.1% H_2
RESULTS	STEADY STATE: SEVERAL DAYS FOR TOTAL T ABOVE 550°C.		STEADY STATE: ONE DAY FOR T _{2&HT} , SEVERAL DAYS FOR TOTAL T.		STEADY STATE: SEVERAL HOURS ABOVE 660°C.
	T _{2&HT} /TOTAL T = 8% *		T _{2&HT} /TOTAL T = 15 - 5% *		T _{2&HT} /TOTAL T = 94%
	HYDROGEN ADDITION INTO HE SWEEP GAS: ENHANCES T RECOVERY(VOM-7H).				WATER VAPOR CONCENTRATION IN SWEEP GAS NOT SPECIFIED.
	RETAINED T = 0.5 - 0.9WPPM (760°C).				THERMAL CONDUCTIVITY: NO CHANGE DURING IRRADIATION.
					RETAINED T 0.1WPPM(700°).

* RELEASED T EASILY INTERACTS WITH WATER IN THE SWEEP GAS AND ON THE WALL OF THE PIPING.

Table 2 Effect of Irradiation on Four Solid Breeder Material after a Burnup of 3×10^{20} captures/cm³ in EBR-II

Material	Retained Tritium %			Retained Helium %			Diametral Swelling %		
	500°C	700°C	900°C	500°C	700°C	900°C	500°C	700°C	900°C
Li ₂ O	8	3	0.9	20	20	0.9	0.5	1.8	1.7
LiAlO ₂	30	6	3	3	2	2	0.2	0.1	0.1
Li ₄ SiO ₄	20	1	0.6	0.7	0.5	0.07	0.3	0.3	0.3
Li ₂ ZrO ₃	3	0.5	0.1	5	0.1	0.06	0.3	0.1	0.1

Table 3 Irradiation Experimental Schedules

Reactor	Experiment	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993
(Japan) JRR-2 (JRR-3)	T Recovery	VOM-21H VOM-22H VOM-23H VOM-27H Li ₂ O, pellet Li ₂ O } sphere LiAlO ₂									
	Integrity	JMTR(OWL-2) -----									
(US) EBR-2	Integrity	FUBR-1A FUBR-1B FFTF -----									
	T Recovery	TRIO-1(ORR) completed in 1983 -----									
(EC) SILOE	T Recovery	8 weeks LiAlO ₂									
OSIRIS	Integrity	Breeding Materials Selection -----									
	Recovery/ Integrity	Li ₂ SiO ₃ , Li ₄ SiO ₄ ----- LiAlO ₂ , Li ₂ SiO ₃ , Li ₄ SiO ₄ ----- LiAlO ₂ , Li ₂ SiO ₃ , Li ₄ SiO ₄ , Li ₂ O									

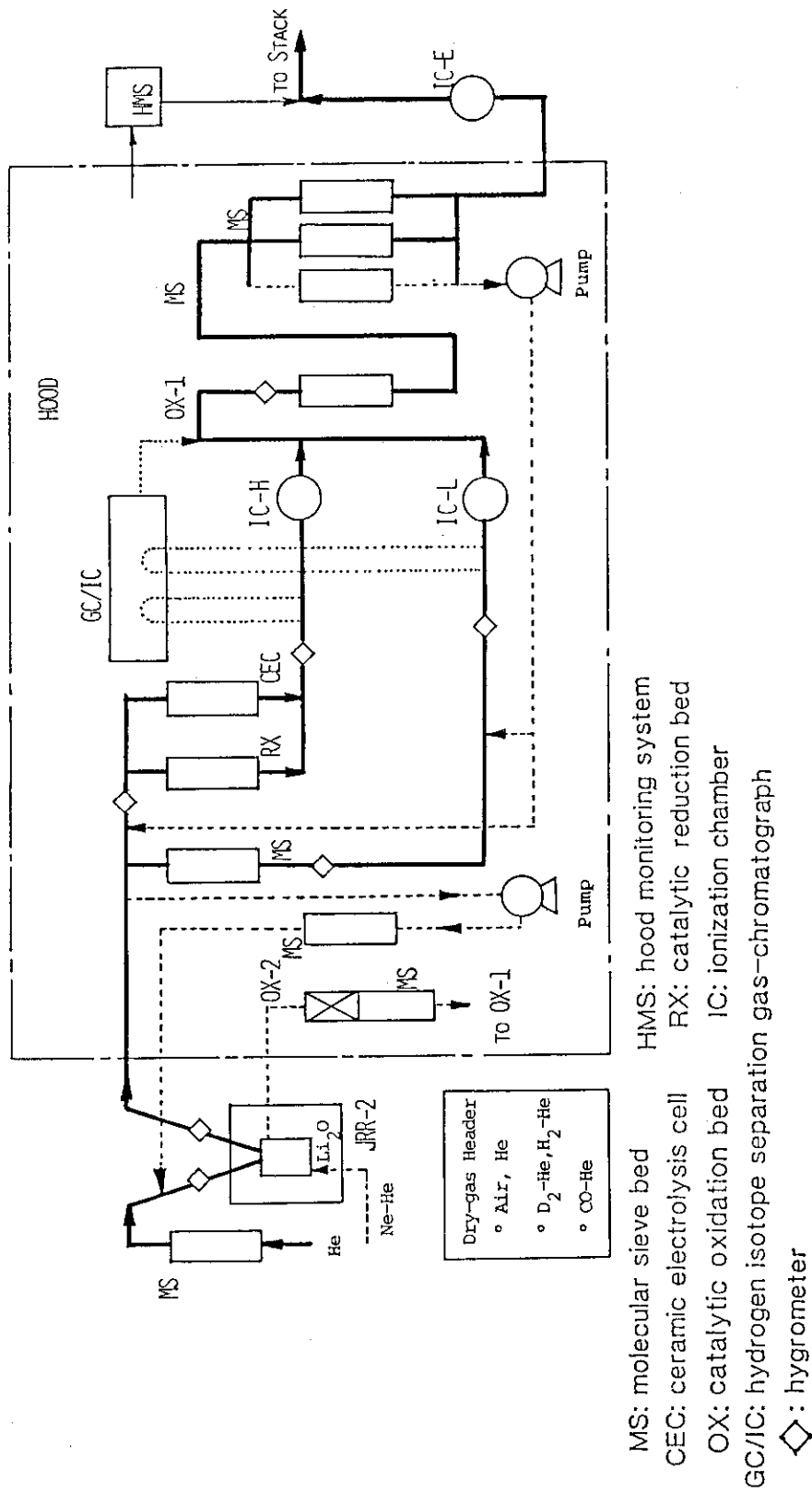


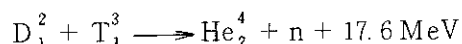
Fig. 1 Flowsheet of Apparatus for In-Situ Tritium Recovery Experiment (VOM-2IH).

2.2.6 核融合炉用金属材料

原研燃料工学部 菱沼章道

(1) 核融合炉と容器第一壁

核融合エネルギーを利用する上で現在最も実現性が高いとされているものは、D、Tを燃料として



の反応を利用するトカマク炉である。反応熱 17.6 MeV は中性子（～10–14.1 MeV）とヘリウムイオンに分配される。この反応を持続させるためには、D、Tを数億度（10–20 KeV）という超高温プラズマ状態に加熱しておき一定時間真空容器の中に強力な磁場によって閉じ込めておく必要がある。この超高温の炉心プラズマと直接対面する炉容器の最内壁は第一壁と呼ばれ、炉の構成材料の中で最も厳しい環境下に置かれる。したがって第一壁材料は、高いエネルギーの中性子、プラズマ粒子、電子等の照射を受け、表面の加熱による熱歪の発生、表面損耗による不純物粒子の放出が起る。その結果第一壁材料は、スパッタリング、ブリストリング等の表面損傷と中性子による材料内部での損傷が起ることになるが、研究炉を利用した研究は後者のバルクの損傷に関する実験が主に行われている。

(2) 核融合炉で予想される照射効果

14 MeV 中性子による材料の損傷の特徴は、

a) はじき出し損傷

b) 核反応による異種原子の導入

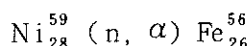
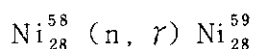
である。一般に、原子のはじき出し全断面積は中性子のエネルギーが高くなるにつれて増加する。また、ヘリウムや水素のガス原子が生成する(n, α), (n, p) 反応断面積も同様の傾向を示すが、中性子のエネルギーが～1 MeVを越えると、その一例をFig. 1 に示すように、急激に大きくなる。この特徴は、ガス原子の生成核反応ばかりでなく固体原子の生成する核反応断面積についても同様である。しかし、金属材料中に強制的に導入されたヘリウム原子はその中にはほとんど固溶度を持たないため集合しヘリウム気泡を形成する。これは原子炉材料で大きな問題となっているスウェリング（体積膨張）現象の原因であるボイドの生成、成長に根本的な影響を与え、さらに照射によって引き起こされる脆化現象、すなわちヘリウム脆化の直接の原因となるため、b) 項目の中で最も重要な因子となる。このため核融合炉材料の照射実験としては、少なくともはじき出し損傷と同時にヘリウムの生成が起る条件下で行うことが望まれる。

(3) 核分裂炉等による近似条件下の試験

候補材料の一つである標準 316 ステンレス鋼の第一壁材料に生じると予測されるはじき出し損傷量(dpa, displacements per atom)と核交換で生成するヘリウム量を代表的高速炉(EBR-II)と現在核融合炉材料に関する日米協力試験の一環として共同照射を実施しているオークリッジ国立研究所にある混合スペクトル炉HFIR (High Flux Isotope Reactor) および ORR (Oak Ridge Research Reactor) で照射した場合と比較して Table 1 に示す。実際には表に示すようにヘリウムの他にさらに多量の水素原子の生成および構成元素の変化が起る。

核融合炉材料の照射損傷を研究するための実験手段として当然ながら 14 MeV の高いエネルギー

ーの中性子源が必要となる。しかし現存する RTNS-II (Rotating Target Neutron Source-II) や FNS (Fast Neutron Source) 等の 14 MeV 中性子源は、いずれも中性子束密度が $\sim 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 程度で、 $\sim 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 以上必要とする工学的データを取得するには程遠く、その上有効に使える照射体積が極めて小さいため、設計上重要な機械強度パラメータを得ることは現時点では不可能である。そのため実際には核融合炉材料と云えども核分裂炉を利用した照射実験を基軸にした試験研究を進めざるを得ない。核融合炉と核分裂炉 (EBR-II; Experimental Breeder Reactor-II, HFIR, ORR) の中性子エネルギースペクトル分布とそこで照射された場合の 316 ステンレス鋼のはじき出し損傷が起る領域とヘリウムが生成するエネルギー領域を Fig. 2 に示した。核融合炉では、 $\sim 14 \text{ MeV}$ に中性子分布の山があり、それがヘリウムの生成と密接に関連していることが分る。高速炉では、はじき出し損傷が起るがヘリウムガス原子の生成がほとんど起きない。第一壁材料としてステンレス鋼を使用したときに生じると予測されるはじき出し損傷量 (dpa) とヘリウム生成量 (atomic ppm) の比は約 15 である。この様子は Fig. 3 に示すが、第一壁材料を壁負荷 10 dpa^* まで照射するとすれば、 $\sim 150 \text{ appm}$ の多量のヘリウムが材料中に生成することになる。いっぽう高速炉では、容易にはじき出し損傷を与えることが出来るが、ヘリウム原子の生成はほとんど期待出来ない。しかしながら熱中子と速中子を共に含んでいる研究炉 (混合スペクトル炉) では、材料中に適量のニッケルを含有している場合に限られるが、熱中子との二段反応¹⁾



を利用して、多量のヘリウムを材料中に注入することが可能である。ニッケルを $\sim 13 \text{ wt}\%$ 含むステンレス鋼を HFIR で照射すると、上記の熱中子との二段反応で多量のヘリウム原子が生成し、速中子によってはじき出し損傷が生じる。この方法は適量のニッケルを含む材料の照射実験に利用が限られるが、当面の候補材料はニッケルを含むオーステナイト鋼であるためかなり利用できることになる。

(4) スペクトル調整照射

ステンレス鋼の照射実験を混合スペクトル炉を利用すれば、多量のヘリウムを材料中に生成させることが可能であるが、その量は Fig. 3 に示すように第一壁材料で予測させる量に比べて非常に多過ぎることである。このことはヘリウムの影響を調べるのに都合がよいように考えられるが、材料の諸性質の照射下の変化に及ぼすヘリウムの挙動は複雑で、ある性質の変化に対して量が多いほど影響が大きいという単純なものではない。例えばスウェリングに関して言えば、適量を含んだ時にその量が最大となり、HFIR で照射したときのように多量のヘリウムを含んだ時には逆に小さくなることが分っている。したがって、核融合炉条件での照射実験手段としては必ずしも適当ではなく、より近い条件で照射実験をする必要がある。その一つの手段として、照射孔の高中性子束と熱中性子束の量比を適当に変えて He/dpa の比を核融合炉条件に合せるスベ

* これは中性子壁負荷およそ $1 \text{ MW} \cdot \text{Y/m}^2$ に相当し、長期的には $10 \text{ MW} \cdot \text{Y/m}^2$ 以上まで耐えられる材料開発が期待されている。

クトル調整 (Spectral Tailoring) 照射実験が行われている²⁾。このスペクトル調整実験は最初 ORR で始められたものであるが、その原理は実験孔のまわりの core piece 材料を照射途中で中性子吸収断面積の大きい材料に変えることによって、中性子のエネルギー分布条件を変え、熱及び速中性子束の比に直接関連する He/dpa の比を調整する方法である。この方法でステンレス鋼を ORR で照射したときに予測される He-appm と dpa の関係は Fig. 3 に点線で示されている。この例は日米共同で行っている照射キャプセルの設計に基づいたものである。この場合、初め水で満たしていた core piece 材料を約 6 dpa のところで固体アルミニウムに変え、 ~ 10 dpa のところで熱中性子吸収断面積の大きいハフニウムをキャプセルの周りに挿入する方法を利用している (Fig. 4 参照)。この He-dpa 曲線は 5 dpa 以下の照射初期領域で実際の第一壁材料に比べてかなり dip になっている。しかし実際のステンレス鋼には $2 \sim 10$ appm の B^{10} が含まれており、それは熱中性子量 $\sim 10^{25} \text{ n/m}^2$ でほとんど核変換し、ヘリウムとリチウムになってしまうので、熱中性子と速中性子束がほとんど同程度の研究炉では、 ~ 1 dpa 以下で B^{10} の含有量に相当するヘリウムが生成することになる。この Tailoring 技術を使った照射実験は現在 ORR とオランダペテン研究所の HFR (High Flux Material Testing Reactor) で実施されている³⁾。オークリッジ研究所では実験効率を高めるため、この ORR での技術を中性子束の大きい HFIR に応用するための検討を始めている。またペラン研究所では Spectral Tailoring のもう一つの方法として照射キャプセルの位置を移動させて熱中性子束と速中性子束の割合を調整する方法も試みられている。例えば始め熱中性子束の大きい反射体位置にキャプセルを置き、続いて速中性子束の大きい炉心部に移動させるという方法で解析を進めている。

(5) アイソトープ調整材の照射

Spectral Tailoring することによって材料中に生じる損傷条件を核融合炉に合せることが出来るが、炉心の core piece 材料を変えることはそれ程簡単ではなく、照射初期に大きな dip が生じたように (Fig. 3)、きめ細かに調整することが困難である。そこで他の原理を利用したアイソトープ調整 (Isotopic Tailoring) 照射が提案されている⁴⁾。すなわち、照射前に予めアイソトープの分量を人工的に変えておき照射中の損傷パラメータ、He/dpa を調整する方法である。例えば、ニッケルのアイソトープは Ni^{58} から Ni^{64} まで存在し、その中で自然に存在するのは Ni^{58} , Ni^{60} , Ni^{61} , Ni^{62} , Ni^{64} でそれぞれ 68.3, 26.1, 1.1, 3.6, 0.9% である。したがって、 Ni^{58} と Ni^{60} の量を予め調整しておけば、より精度の高い Tailoring 実験が可能であり、ヘリウム生成量を任意に変えることが可能となる。このことはスウェリングやヘリウム脆性に及ぼすヘリウムの効果に関する実験をきめ細かく実施することができることを意味する。さらにこの技術は本来ニッケルを余り含まない合金にも応用出来る。自然に存在するニッケルを 2 wt% フェライト鋼に添加して HFIR で照射すると、12 appm He/dpa のヘリウムが生成する。次に、 Ni^{58} と Ni^{60} を各々調整して添加すれば、それに伴って生成するヘリウム生成量が異なるので、理想的には $0 \sim 20$ appm He/dpa まで変化させることが出来るし、ヘリウムの効果とニッケルの効果を分離して評価することも可能である。

第一壁材料の照射損傷の研究、しかも工学的データの取得という目的では、実際に $\sim 10^{27} \text{ n/m}^2$ 以上の全中性子量を必要とする。したがって、一般の研究炉をこの目的に直接利用することは出来ないが、使い易く小回りのきくことを利用して基礎的研究、または合金開発初期の段階、例え

ばモリブデン合金の開発に使われており、さらに現象が複雑でしかも高度な実験技術を必要とする照射下クリープ試験、疲労試験、応力腐食割れ試験に利用されている。

参 考 文 献

- 1) A.A. Bauer and M. Kangilaski : J. Nucl. Mater., 42, 91 (1972).
- 2) T.A. Gabriel, R.A. Lillie, K. Thomas and R.L. Childs : J. Nucl. Mat. 103 & 104, 1445 (1981).
- 3) R. Conrad, et al. : "HFR Irradiation Testing of Fusion Materials", R-EUR9515EN, p.39 (1984).
- 4) A. Rowcliffe : "US-Japan Seminar on Irradiation Testing and Development of Alloys for Fusion Reactor", Richland, March 18-20 (1985).

Table 1 Dpa, gaseous, and solid transmuted production per year for type 316 stainless steel irradiated in various reactors.

Reactor Environment	Displacement ^a Damage (dpa)	Transmutation-Induced Compositional Change (at. %) ^c			
		Gas Content (at. ppm)		Helium ^a Hydrogen ^b	
				Manganese	Vanadium
MFR ^d (first wall)	32.1	465	1490	+0.19	+0.05
ORR (C-3) ^e	7.5 ^f	76.9 ^g	90	n.c.	n.c.
HFIR (PTP) ^e	36 ^f	2187 ^g	390	-0.76	+0.4
EBR-II	39.2	15.1	320	~0	0

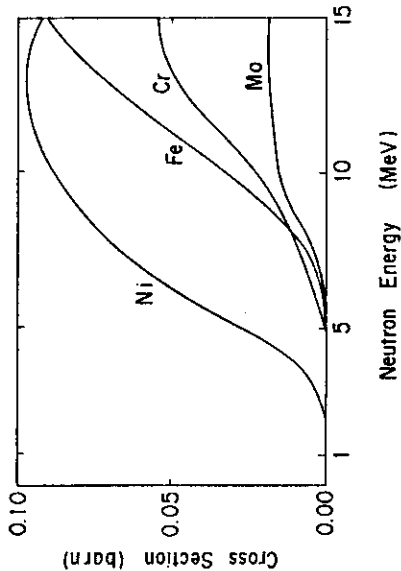


Fig. 1 Neutron energy dependence of (n,α) reaction.

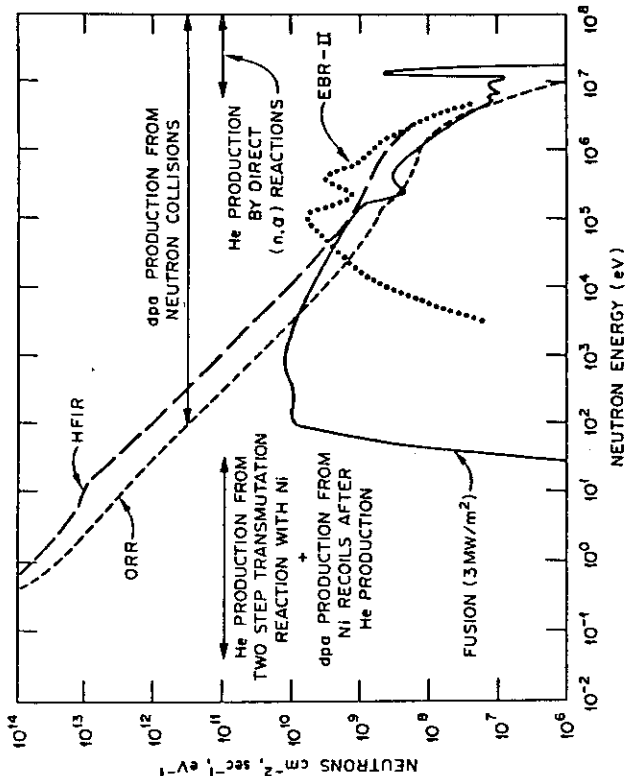


Fig. 2 A plot of differential neutron flux as a function of neutron energy for HFIR, ORR, EBR-II, and a fusion spectrum (at 3 MW/m² wall loading).

VARY THERMAL NEUTRON FLUX BY CHANGING THE MATERIAL SURROUNDING THE EXPERIMENT (i.e. THE CORE PIECE)

CORE PIECE DESIGN

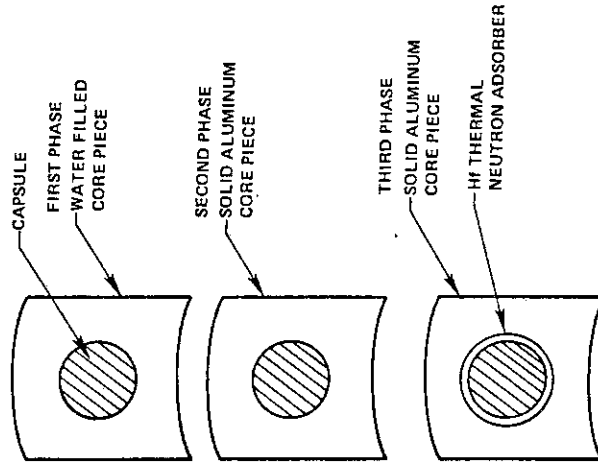


Fig. 4 Spectral tailoring method.

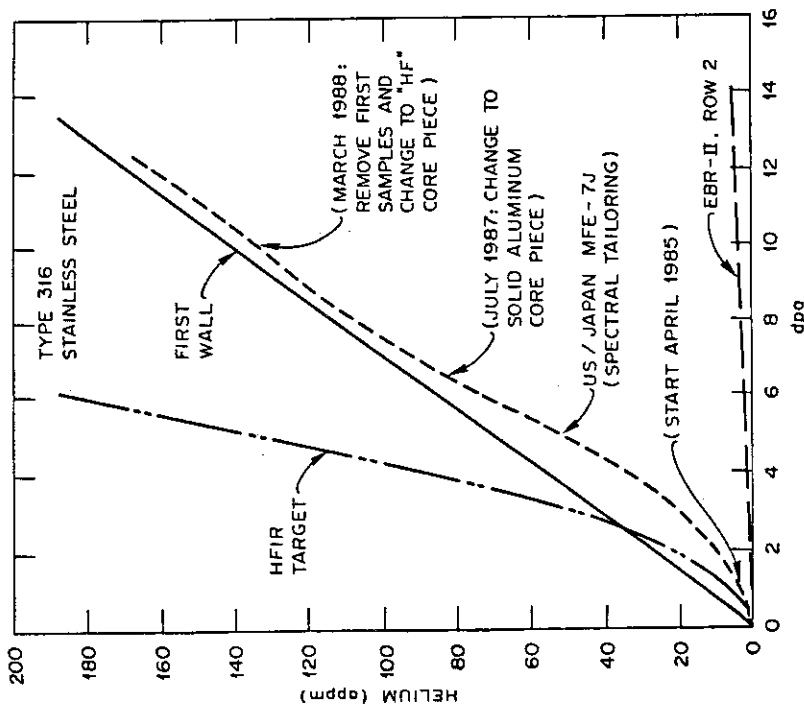


Fig. 3 A plot of helium generation as a function of displacement damage level for type 316 stainless steel irradiated in HFIR, EBR-II, or a Magnetic Fusion Reactor (MFR). The MFR case is for the first wall of the blanket. All are maximum flux positions. Tailoring curve is expected in the capsule in the US/Japan collaborative testing.

2.2.7 核融合炉用特殊用途材料

原研燃料工学部 勝田博司

(1) 核融合とセラミックス材料

核融合炉用特殊用途材料とその使用条件をまとめると Table 1 のように低Z材料、電気絶縁材料、光関連材料、トリチウム増殖用材料等に分類できるであろう。これらはプラズマの近くに配置されて最高14MeVの中性子を始めイオン、 γ 線及び熱線の照射を受けるため耐放射線性に優れていることが要求される。プラズマに特に近い第一壁周辺材料は高照射量に耐えることが必要である。一方プラズマの計測・制御にかかわる光変換素子や光ファイバーは低照射量に対しても損傷が激しいため新材料の開発が望まれている。これらセラミックス材料の照射研究は遅れている上に、はじき出しの生じる最少の“しきい”エネルギーがそれぞれの成分元素で異なっているため、損傷機構は複雑でその説明はより困難だと考えられる。Table 1 に示したように、14MeV中性子による 10^{26} n/m^2 までの重照射の研究が要求されているが、そのようなことが可能となる中性子源は世界的に存在しない。このような状況の中で核分裂炉を利用した研究の動向を記してみる。なお本テーマについては、“核融合炉設計及び研究開発の現状と課題（日本原子力学会編、1983年）に詳しく記述されている。その以後については1984年12月東京で開かれたICFRM-1²⁾に、また1985年7月に開かれる予定の“3rd International Conference on Radiation Effects in Insulators³⁾（英国Sarry大）に見られるであろう。またセラミックスの照射損傷機構については伊藤⁴⁾の解説が参考となる。

(2) 14MeV中性子照射損傷の推定

Table 1 に示した材料は最高で 10^{26} n/m^2 の14MeV中性子の照射を受けることが予想される。しかし、14MeV中性子源としては米国LLNLのRTNS-IIが最強であり、その最大フラックスは $10^{17} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ である。このため照射量としては 10^{23} n/m^2 が最大であり、前記 10^{26} n/m^2 の $1/10^3$ でしかすぎないのが現状である。そこで現在提案されているのは、14MeV中性子と核分裂中性子との損傷の相関を得て、分裂中性子による高照射量の損傷の結果から14MeV中性子高照射量の損傷を推定することである。セラミックスは金属と異り光吸収やESR（電子スピン共鳴吸収）の測定手段が利用できるため、照射損傷を初期段階から検出するとともにその損傷機構を研究する上で便利である。単結晶アルミナにRTNS（上記RTNS-IIの前身）で $1 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ の照射を室温近辺で行い、その光吸収曲線の測定結果をFig. 1に示す⁵⁾。図中の点線はほぼ同じ条件でBNLの黒鉛減速炉で約 $5 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 照射したLevy（1961）のデータである。また照射した両方の試料の等時焼鈍の結果を比較した場合、測定した試料や焼鈍方法の違いによると思われる少しの差はあるが、光吸収もその回復様相もよく似ている。このことより単位照射量当りの損傷量は14MeV中性子の方が約4倍大きいことが推定されている。さらに同じような実験と計算結果から、単結晶アルミナについて、14MeV中子と0.1MeV以上の分裂中子との照射効果の比は約2であることをEvans⁶⁾らが示している。その他単結晶マグネシアについてChen⁷⁾らの結果をも考慮すると、14MeV中子の方が核分裂中子に比べて2～4倍損傷を多く与えることが予想される。

さらに14MeVと分裂中子（ $E > 0.1 \text{ eV}$ ）が物質中に入った過程を考えると、14MeV中子の方がイオン化効果は大きい。アルミナについてのDell⁸⁾らの計算によると、 1 Gy/s （ $1 \text{ Grey} = 100 \text{ rad}$ ）

を与える中性子照射量は、14 MeV 中性子で $2.0 \times 10^{15} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ 、第1壁では $6.1 \times 10^{15} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ 、EBR-II (第7列) では $2.4 \times 10^{16} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ となる。Table 1 に示したように種々のセラミックスが核融合炉において電気絶縁材料として使われようとしている。高エネルギー放射線照射を受けるとイオン化により電気伝導度が大きくなることが予想されるが、 Al_2O_3 に電子ビームを照射した実験⁹⁾では、線量率が 7 Gy/s から 70 Gy/s に増すと電導度が1桁程度増大することが示されている。

(3) 核変換生成ガスのシミュレーション

14 MeV 程度の高エネルギー中性子に対しては、ほとんどの元素が $10^{-1} \sim 10^{-2} \text{ barn}$ の (n, p) (n, α) の核反応断面積を有するため、Table 1 に示した照射量に対しては大量の H や He が生成することになる。特にセラミックスでは金属に比べてガスの溶解度が低いうえに延性がないためこれらガスの挙動が重要となる。実際に 14 MeV 中性子の重照射ができないため、酸化物や窒化物に ^{17}O や ^{15}N をドーブした試料を作り、これらを核分裂炉で照射し、 $^{17}\text{O}(n_{\text{th}}, \alpha)^{14}\text{C}$ や $^{15}\text{N}(n_{\text{th}}, p)^{14}\text{C}$ の反応で H や He をセラミックス中で生成させてその挙動を調べようとしている。これについての研究結果はまだ報告されていないが、核分裂炉を用いた核融合炉用セラミックス材料の研究として注目されるものである。

(4) その他

信号伝送用ガラスファイバーを始めとする光関連材料は比較的プラズマから離れた位置に配置される。しかし、これらの材料は放射線の低い照射量に対してもその特性が大きく劣化するので、先ず照射機構の研究を行い耐放射線新材料の開発を進めている。純粹石英コアのステップインデックス型 (SI 型) と石英コアにドーパントを含むグレーディッドインデックス型 (GI 型) の両者について、 $1 \times 10^4 \text{ R}$ の γ 線と $2 \times 10^{17} \text{ n/m}^2$ の中性子照射を行った西谷の実験結果¹⁰⁾を Fig. 2 に示す。このように少量の照射量に対しても損傷が大きく表われることが明らかにされたが、純粹石英 SI 型で OH 基を多く含んだ材料が γ 線、中性子照射に対して耐照射特性が優れているようである。この結果は、今まで長距離大容量通信をめざして OH 基の少ないコア作りに専念してきた通信用光ファイバーの開発とは異なるものが、耐放射線性光ファイバーの開発には要求されることを示唆している。本質的に、損傷に対して強い特性を有する赤外線領域の波長の伝送を目的とした新材料の開発が進められている。

一方光ファイバーの両端には、発光素子、受光素子の半導体素子をつける必要がある。発光素子としては、 AlGaAs 、 InGaAsP 発光ダイオード (LED) やレーザーダイオード (LD) が、又受光素子としては SiGe 、 InGaAs ピンフォトダイオード等があるが中性子線量 $10^{14} \sim 10^{18} \text{ n/m}^2$ で損傷劣化してしまうことが明らかになっている。またより低い照射量に対しても、放射線によって、間違い信号を出したり、受信したりすることが知られている。¹⁰⁾ 耐放射線性に優れた素子材料の開発は、原子力用ロボットの開発にも不可欠なものでその研究の意義は大きい。

さらに、超伝導コイル絶縁材料の低温照射特性研究に JRR-3 を始めとしていくつかの研究炉が用いられてきたが、対象が有機系材料となるのでここでは省略する。

参 考 文 献

- 1) 核融合炉設計及び研究開発の現状と課題：日本原子力学会（1983）.
- 2) First International Conference on Fusion Materials, Tokyo, Japan (1984). J. Nucl. Mater., 133 & 134 (1985).
- 3) 3rd International Conference on Radiation Effects in Insulators, Sarry, U.K. (1985).
- 4) 伊藤憲照, 無機絶縁材料の照射効果に対する最近の研究：日本原子力学会誌, 25, 13, (1983).
- 5) J.M. Bunch, F.W. Clinard, Jr. : J. Am. Ceram. Soc., 62, 267 (1979).
- 6) B.D. Evans, M. Stapelbroek : J. Nucl. Mater., 85 & 86, 497 (1979).
- 7) Y. Chen, et al. : Proc. Int. Conf. on Radiation Effects and Tritium Technology for Fusion Reactor, Gatlinburg, TN, Vol.II, P.492 (1975).
- 8) G.F. Dell, A.N. Goland : BNL-29615 (1981).
- 9) R.E. Gold, et al. : Nucl. Technol./Fusion, 1, 169 (1981).
- 10) 西谷健夫：OHM 69, 230 (1982)

Table 1 Special purpose materials in fusion reactors and requirement.

分 類	用 途	放射線照射量(率)	使 用 温 度	要求される特性	候 補 材 料
低 Z 材 料	・第一壁及びその周辺 (リミター、ダイバータ) 材料	$10^{25} \sim 10^{26} \text{ n/m}^2$ 中性子, イオン	壁 温 度	低 Z, 耐熱応力対放 射線性対エロージョン	C, SiC, TiC コーティング (基材: 304SS, グラファイト, Mo, Cu)
	・トーラス構造絶縁体	$10^{25} \sim 10^{26} \text{ n/m}^2$	ブランケット温度 ~ 500 K	耐放射線性	Mg Al_2O_3 , MgO
	・中性ビームインジェ クター用絶縁材	$10^{14} \sim 10^{16} \text{ n/m}^2$		絶縁耐力, 絶縁抵抗, 金属との接合性	Al_2O_3 , MACOR
	・RF 加熱用窓材	$10^{19} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$	800 ~ 1,000 K	低誘電損失	BeO , Al_2O_3
	・超電導材用絶縁材	10^{22} n/m^2 10^7 Gy (γ 線)	4.2 K	耐熱応力 耐放射線性	ガラス繊維強化 エポキシ
光 関 連 材 料	・ブラズマ計測, 制御用窓材	$10^{25} \sim 10^{26} \text{ n/m}^2$	壁 温 度	耐放射線性, 透 光 性	石英, サファイア, 鉛ガラス 赤外線ガラス
	・光信号の伝送		常 温	耐放射線性	ガラスファイバー (石英, フッ 化物ガラス, カルコゲンガラス)
	・光変換素子 (発・受光素子)		常 温	導 光 性 耐放射線性	AlGaAs, InGaAs, SiGe
トリチウム増 殖用材料	・トリチウムの増殖	$10^{25} \sim 10^{26} \text{ n/m}^2$	ブランケット温度	高トリチウム増殖 遮蔽, 発熱	Li_2O , LiAlO_2 , Li_2SiO_3 , Li_8ZrO_6
	・中性子増倍材		"	中性子増倍	BeO

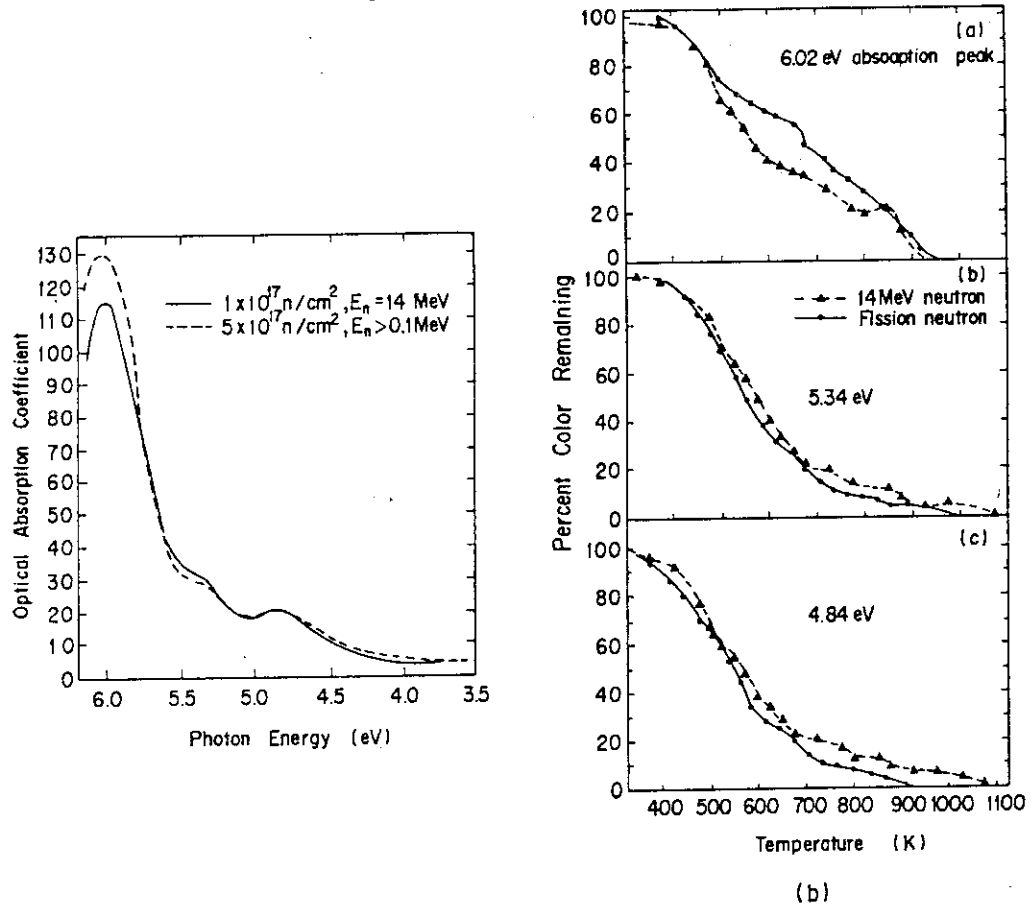


Fig. 1 Optical absorption spectra and isochronal annealing of optical absorption peaks for single crystal Al_2O_3 irradiation with 14MeV neutrons and fission neutrons.
a: Optical absorption
b: Isochronal annealing

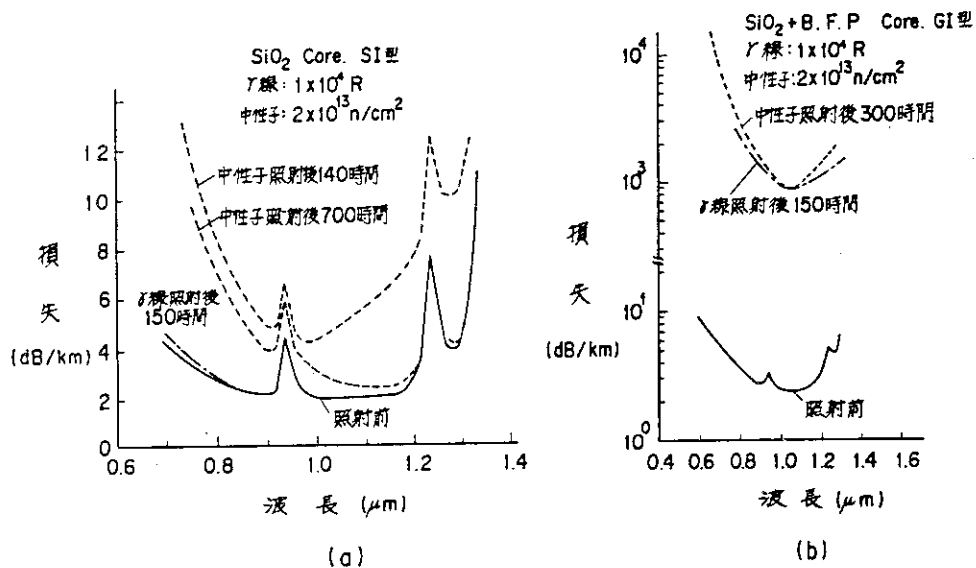


Fig. 2 Optical absorption spectra for GI and SI type glass fiber before and after irradiation with neutron and γ -ray.
a: GI type
b: SI type

2.2.8 軽水炉用燃料及び被覆材料

原研燃料安全工学部 市川達生

(1) 軽水炉燃料照射試験の現状

軽水炉技術は成熟の域に達した。すなわち国内では営業運転中の軽水炉 27 基、試運転中 4 基（60.4.15 現在）であり、59 年度の設備利用率は 73.9%（ガス炉 1 基含む）という高い値を達成している。

また FP の漏洩を生じるいわゆるリーク燃料の発生率も極めて低く燃料棒ベースで 10^{-4} % 以下という工業製品としては著るしく小さいものとなっている。しかし、原子力発電量の総発電量に占める割合が高くなると、発電所は一定出力での基底負荷運転のみならず、出力調整運転が必要とされる。さらに原子力発電の経済性を向上させるため、炉の長期間運転を行って稼働率を向上させる必要があり、燃料の高燃焼度化が要求されることになる。

これらのことから、現設計燃料の性能確認や、燃料改良のため、多くの照射試験が行われてきた。しかしながら、照射試験は実際の発電炉を利用した、いわゆる監視試験計画（Surveillance Test Program）の類が主であった。研究炉では、発電炉内では実施することが困難な試験、たとえば破損を伴う出力急昇試験や、計装付燃料の照射などが行われてきた。

事故時の燃料挙動研究は、反応度事故時の研究には、NSRR（原研）や PBF（米国）、LOCA 時の研究には、PHEBUS（フランス）や PBF、NRU（カナダ）、などが主に用いられてきた。しかし、これらは特殊目的の研究炉を用いたものであり、今回の対象とする範囲とは異なるものと考えられるので、ここでは、通常運転時における燃料・材料の照射研究の最近の動向についてのべることにする。

なお HBWR（ハルデン重水冷却減速沸騰水炉）は、研究炉（Research Reactor）ではなく、試験炉（Test Reactor）に分類されているものであるが、そこで実施されている研究は研究炉でのそれと大差がないものが多いため今回の記述に含めてある。

(2) 照射研究の概要

燃料の開発に用いられる照射試験は、燃料ミートや被覆材などの素材のキャプセル照射による基礎的な照射試験からはじまり、燃料棒としての各種特性を研究するための照射試験、集合体、又は集合体の一部（サブアッセンブリ）で実施する確性試験、性能向上や改良あるいは健全性、信頼性の裕度を確認するための照射試験、破損が発生した場合の原因・条件の究明のための照射試験などに分類することができよう。

軽水炉燃料は稠密格子炉（又は高転換型軽水炉）用燃料を除いては、すでにのべたように成熟の段階に達しており、研究炉や試験炉での照射試験は高燃焼度における燃料の基本的特性を研究して健全性、信頼性裕度を確認するものと、ペレット・被覆相互作用による燃料破損条件究明とその改良研究のための試験が主となっている。これらについて、以下に概説する。

(3) 燃料棒の基本的諸特性の研究

燃料棒の基本的諸特性としては、

- 燃料温度
- FP ガス放出
- 変形（焼きしまり、スエリングなどペレット変形を含む）

一被覆腐食

などをあげることができる。燃料の燃焼度が進んだ状態や、負荷追従など出力変動がこれらの諸特性に与える効果について、なお研究が続けられている。

(a) 燃料温度

燃料内の温度分布は、燃料の熱膨脹を支配し、核分裂生成物の移動と放出に影響を与え、燃料棒内に貯えられるエネルギーを決定する。燃料の熱的応答を正確に理解し、定量化しておくことは、通常時のみならず、異常過渡時、事故時における燃料棒の性能評価上重要である。

燃料中心温度は通常 Fig. 1 に示すようなシース型熱電対（外径 1.0～1.6 mm）で測定する。素線としてはタングステン-レニウム合金（W-Re）、絶縁材としては酸化ベリリウム、被覆としてはタンタル又はモリブデンが多く用いられる。W-Re 合金は熱中性子照射によって W は Re に Re は Os に核変換し、起電力特性がフルエンスに依存して変化する。このため測定温度の補正を行う必要があり、この補正をデキャリブレーション（DECALIBRATION）と称する。デキャリブレーションは中性子スペクトル、熱電対軸方向温度分布等に強く依存するため、照射試験を行う炉で補正のための照射実験を行うことが多い。

燃料中心温度に影響を及ぼす主な因子としては、燃料棒設計・製造パラメータ、照射履歴や燃焼度などである。

Fig. 2 には燃焼度に伴う燃料中心温度の変化を示す。同図下部には後述する燃料棒内圧測定素子による棒内圧変化測定結果も示されている。約 15,000 MWd/t まで中心温度が増大するのは FP ガス放出によるギャップコンダクタンス劣化のためであり、それ以上の燃焼度で中心温度が減少するのは主として熱電対特性変化に起因している。デキャリブレーション補正を行うと、約 15,000 MWd/t 以上での温度はほぼ一定値に近くなる。燃焼度が大きくなると、デキャリブレーションの不確かさや、熱電対の破損のため、燃料製造時から装着した熱電対使用は困難となる。このため燃焼の進んだ燃料棒に未照射の熱電対を取付ける技術も開発されている。

(b) FP ガス放出

炉運転中に燃料棒内に放出される FP ガス評価は、事故時の放出放射能算定の基礎となり、燃料設計上からは寿命末期あるいは異常過渡時の内圧による強度上の健全性検討に重要である。また、FP ガスの熱伝導度がヘリウムガスにくらべて著しく低いため、FP ガスが放出されるとギャップコンダクタンスの低下を招き、燃料棒出力の高い場合は燃料中心温度の上昇をもたらす。燃料のふるまいは温度に著しく鋭敏なため、FP ガス放出が温度上昇を通して、全体的なふるまいに影響を及ぼす。

燃焼の進んだ燃料では過渡変化時にバースト的に FP ガス放出を生ずる場合があるが、放出された FP ガスはプレナム部のヘリウムガスと混合するには時間を要するため、局所的にギャップコンダクタンスが低下し、温度上昇を招くことも知られている。

燃料棒内のガス圧変化を連続的に測定する素子としては Fig. 3 に示すようなベローズ型式のものが多く用いられている。ベローズ長さの変化は差動トランス（LVDT）によって検出している。

Fig. 4 には燃焼度に伴う燃料棒内圧測定例が示されている。線出力密度がほぼ一定の場合、FP ガス放出は燃焼度に関してしきい値があり、それを越すと急速に生ずることが分る。このしきい値とは結晶粒界に FP ガス気泡が集積し結合しやすくなった時点に対応するものであると理解さ

れている。

低出力で長期間照射した燃料棒の出力を急速に上昇せしめるとFPガスがバースト的に放出され温度が上昇することはすでに述べたが、この例はFig.5に示されている。時間経過と共に中心温度が低下するのは、放出されたFPガスがガスの相互拡散によってプレナム側へと移行するためである。移行に要する時間は燃料棒長さ、内圧に依存することも、実験及びコード解析により分っている。

現在、燃焼の進んだ燃料の過渡時のFPガス放出及び軸方向移行、燃焼の進んだ燃料の負荷追従など出力変動時のFPガス放出研究に特に関心が高い。またその場合、燃料中心温度測定のための熱電対再取付や、変形測定などの多重計装による総合的な測定が行われることも多い。

(c) 変形ふるまい

照射下で燃料棒に生じる変形はジルカロイ管の照射成長、クリープダウン、燃料棒曲り、ペレット・被覆相互作用(PCMI)による長さ及び直径変化などである。ペレットの変形としては割れによるリロケーション、焼きしまり、スエリングなどで、これらはPCMIやギャップコンダクタンスに大きい影響を及ぼす。これらのうち特にPCMIについては研究炉・試験炉を用いて詳細な研究が行われている。

(i) ギャップ測定

PCMIはペレットと被覆のギャップが閉塞してから開始するものであり、ギャップ閉塞ふるまいの理解は重要である。割れたペレットが径方向に移動する(リロケーション)ために生じるギャップの減少や閉塞は、いわゆるソフトコンタクトと称するPCMIにはあまり影響を及ぼさないが、ギャップコンダクタンスには大きく影響する。この意味では力学的なギャップ閉塞ふるまいと、熱的なギャップ閉塞ふるまいは異なるものと考えられている。照射下におけるギャップ閉塞ふるまいの測定はこれらに対応して2種類ある。

力学的なギャップ寸法はFig.6に示すようなギャップメータで測定されている。これは燃料棒の扁平試験であって、燃料棒を並行板で圧縮するものである。荷重は炉外部からガス加圧によるベローズで行い、圧縮板の変位は差動トランスで測定する。線出力密度による荷重・変位曲線の変化例をFig.7に示す。これらの曲線よりギャップ閉塞のふるまいを解析することができる。

熱的なギャップは燃料棒内にガスを流し、このガスの流量と、燃料棒上下部の差圧を測定することにより求めた平均的なギャップ寸法から推定することができる。Fig.8にはその測定例が示されている。

(ii) 燃料棒伸び

燃料棒の出力が上昇すると、ペレットの熱膨張が被覆管より大きいため、両者は接触し、PCMIによって被覆管は軸方向に伸びる。この時、ペレットリロケーション、その他の理由で、PCMIの開始はペレットが円筒形状を保持して、被覆管内に同心円状に配置するとした場合より低い線出力密度で生じる。

燃料棒伸びは燃料棒の一端栓を集合体構造物に固定し、他端栓を自由端として、その変位を差動トランスによって測定する例が多い。局所的な変形は高温型のひずみゲージを被覆管に溶接して測定した例もある。

燃料棒伸びの測定によってPCMIに関する知見が得られた例をFig.9に示す。この図では

PCMI に及ぼすペレット長さ、ペレット端面形状、製造時のペレット・被覆管ギャップ寸法の効果が示されている。

(iii) 燃料棒直径変化

照射下における燃料棒の直径形状（プロフィロメトリ）は Fig. 10 に示すような差動トランスを利用した測定素子が主として用いられる。すなわち燃料棒の表面に接触するフィーラの動きは精度の高いクロススプリング支持機構を介してフェライトアマチュアの動作になり、この変位を差動トランスの原理によって検出するものである。その測定例として、3種類の燃料棒に夫々1個ずつの測定素子を配し、水圧駆動によって3個の素子を同時に軸方向に走査させて得られた燃料棒のプロフィルが Fig. 11 に示されている。燃料棒としてはBWR型のものであるが、ギャップ寸法や被覆管厚をパラメータとしてある。ギャップの小さい燃料棒には竹の節状の変形（リッジ変形）が認められるが、これは有限長ペレットが、ペレット内の温度分布のため、つづみ状に変形することによる。またギャップの大きい燃料棒の波状変形は外圧による軽度の扁平変形である。

これらの直径変形測定から、燃料棒の設計・製造パラメータや照射履歴の異なるものについて多数のデータが得られており、燃料ふるまい解析コードの開発や、ベンチマークデータとして重要な役割を果たしてきた。

(iv) 被覆腐食

燃料の高燃焼化に伴い、燃料寿命に影響する最大の因子の一つとして関心が寄せられている。BWR 燃料棒ではノジュラー腐食、PWR 燃料棒では均一腐食が主な腐食のメカニズムである。従来の発電炉燃料の最高燃焼度を越えて 50,000 MWd/t 以上の「伸長燃焼度」で使用された燃料の被覆管腐食は、健全性は充分満足しているが腐食量にはばらつきがある。このばらつきのメカニズム研究等のため、ハルデンプロジェクトなどでは試験炉内の高圧水ループを利用した研究が計画されている。

(4) 燃料破損の研究

1960年代初期に実用化の段階に入った軽水炉は、BWR、PWRとも膨大な使用実績を有し、すでにのべたようにわが国の燃料棒の破損率は現在では概して0.01%以下と極めて低く保たれている。ここに至るまでには、BWR、PWR燃料ともいくつかの問題が発生し、その都度原因を究明し対策を施してきた。両炉型に共通した通常運転時の主な破損原因としては、

- ① 製造上の欠陥（寿命初期）
- ② 被覆管の局所水素化（初期）
- ③ PCI（ペレット・被覆相互作用）（中期～末期）
- ④ フレッチング腐食（初期～中期）

などを挙げることができよう。これらのほか、BWRでは、

- ⑤ 被覆管への腐食生成物（クラッド）の過度の付着（初期）

またPWRでは、

- ⑥ ペレットの焼きしまりに起因する被覆管のつぶれ（コラプス）（初期）

による破損が報告されている。

破損には至っていないが燃料の健全性を阻害し、熱水力学的に安全性を脅す可能性のある現象

としてPWRでの燃料棒の曲り（ボウイング）がある。（初期～中期）

商用発電炉ではまだ発生した事例はないが、試験炉では、

- ⑦ 燃料棒中心溶融
- ⑧ 過度の力学的相互作用
- ⑨ バーンアウトによる被覆管の過熱

などがある。以上のうちPCI破損を除いては、原因究明、対策とも十分であるが、PCIについては後で述べるように主として炉の運転方法に制限を加えることにより解決しているので、制限撤廃のための研究が続けられている。

(a) PCI 破損

重水炉も含めて水炉では長期間、低い出力で使用した燃料棒の出力を設計出力内でも急激に上昇させると破損する例が多い。例えば、BWRでは長時間挿入していた制御棒を引抜くと、制御棒先端部分の出力が局所的に大きく変化するし、PWRでは炉心の外側で使用した燃料体を中央の領域に移した直後、出力を立ち上げるときにこのような状態が生じる。

PCI破損のメカニズムは簡単には次のように考えられている。燃料棒の出力を上昇させると、 UO_2 ペレットの熱膨張率がジルカロイより大きいので、ペレット温度が高くなるため、ペレットの熱膨張が被覆管のそれより大きくなり、ギャップを埋めて、被覆管を内側から押広げる。またペレットは半径方向に放物線状の温度分布があるため「つづみ形」に変形し、ペレットの半径方向のクラックは出力上昇と共に外周部で開口する傾向があるため、これらの変形が重畳する場所の被覆管は大きい局所的応力を受けることになる。このとき被覆管内面が腐食性雰囲気にあると、応力腐食割れ（SCC）が発生し、さらに伝播して管の肉厚を貫通して破損に至る。腐食性FPとしては主にヨウ素およびその化合物が考えられているが、FPとしてのカドミウムによる脆性割れとする説もある。

PCI破損に影響を及ぼす主な炉運転上の因子としては、

- ① 出力急昇前の低出力照射（ベース照射）で蓄積された燃焼度
- ② 出力急昇時の最高出力
- ③ 出力急昇巾
- ④ 出力急昇速度
- ⑤ 最高出力における保持時間

破損が発生するためには、これらの間に経験的な相関関係が認められている。Fig 12には、破損を生じる最高出力と燃焼度についての例が示されている。

これらの研究は数多く行われ、高燃焼度に至るまでのPCIふるまいや、PCI改良燃料の試験が行われ、ジルコニウムライナ付被覆管などは米国BWRですでに実用化されている。これらの試験では発電炉でベース照射を行い、研究炉・試験炉で出力急昇試験を行うものが多い。次に出力急昇装置の例についてのべておく。

(b) 出力急昇装置

発電炉においても、実験的に制御棒を引抜き、燃料棒に出力急昇を与えた例があるが、Oskershamn炉（スウェーデン）での実験（1973）のように、PCI破損がまだあまりよく理解されていない頃では破損に至ったものがあり、炉内へのFP放出は炉の運転上好ましくないため、試

験炉・研究炉で出力急昇試験が行われている。最近では改良燃料のデモンストレーションのため、Quad City II (米) 炉などでは再び発電炉での急昇試験を行っている例もある。

試験炉・研究炉における出力急昇は大別して次の3種類の方法によっている。

①熱中性子の吸収断面積の大きい He^3 ガスの圧力制御による方法。試料となる燃料棒の周囲に He^3 用アニュラスを設けたりする。代表例として、原研 JMTR で使用している He^3 -BOCA (Boiling Capsule) 装置を Fig. 12 に示す。同様な例はノルウェー・ハルデン炉やスウェーデン・R2 炉内における高温高圧水ループを用いた出力急昇装置にも見られる。

②燃料棒試料周囲に遮蔽体を上下させるもの。

銀・インジウム合金等熱中性子吸収体をステンレス被覆に納めた円筒状遮蔽体を燃料棒試料で上下させて行う。ハルデン炉などで使用されている。急速な出力変動が可能である。

③燃料棒試料を炉心に近付ける方法。

オランダ・ペテン炉では BOCA キャプセル内に試料を格納し、BOCA を炉心に近付けたり引きはなしたりすることにより出力急昇を行っている。その機構としては炉心に接して BOCA のスタンドを取付け、スタンド上部をヒンジ状にして、振子のような形で BOCA を移動させる。

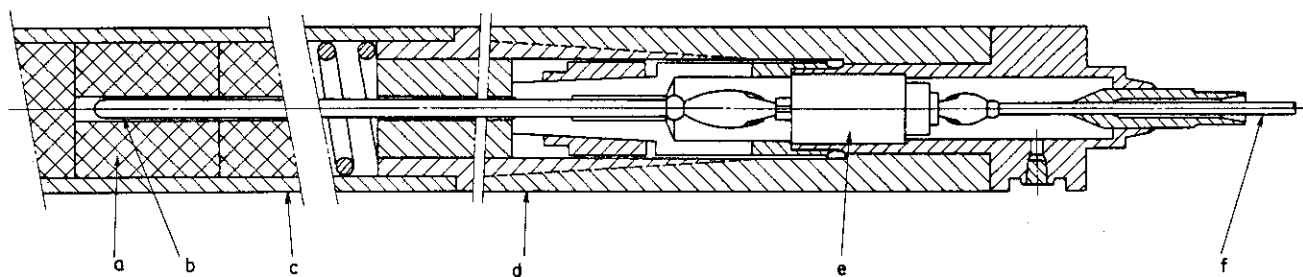
また同様な方法として炉心に入れた燃料棒試料をリール方式で急速に巻上げる方式も R2 炉で実用化されている。

(5) おわりに

(研究炉・試験炉による今後の軽水炉燃料・被覆材の試験)

軽水炉燃料の今後の主な課題は高燃焼度化と高燃焼時の負荷追従運転下でも、従来の燃料の健全性を維持することと云えよう。高燃焼度は経済性向上のため、現在の約 40,000 MWd/t (最高集合体平均) を少なくとも約 50,000 MWd/t まで、あるいはそれ以上に伸長しようとするもので、燃料被覆の腐食や、燃料棒内 FP ガス放出ふるまい、燃料の基本的特性変化研究などが行われている。発電炉での燃焼度伸長実証のほか、それらを用いた研究炉・試験炉での再計装等による試験が必要であることが認識され実施されている。

また高転換型軽水炉の開発が始められているが、これには高い Pu 濃度を有する MOX 燃料を高燃焼度まで使用することが必要とされている。このためには、従来軽水炉燃料開発に用いられたと同様な手順での着実な燃料照射開発が重要であろう。



a : Fuel pellet	d : End plug
b : W 3% Re / W 25% Re thermocouple	e : Gas tight penetration
c : Cladding	f : Chromel / alumel thermocoax cable

Fig. 1 Fuel center line thermocouple.

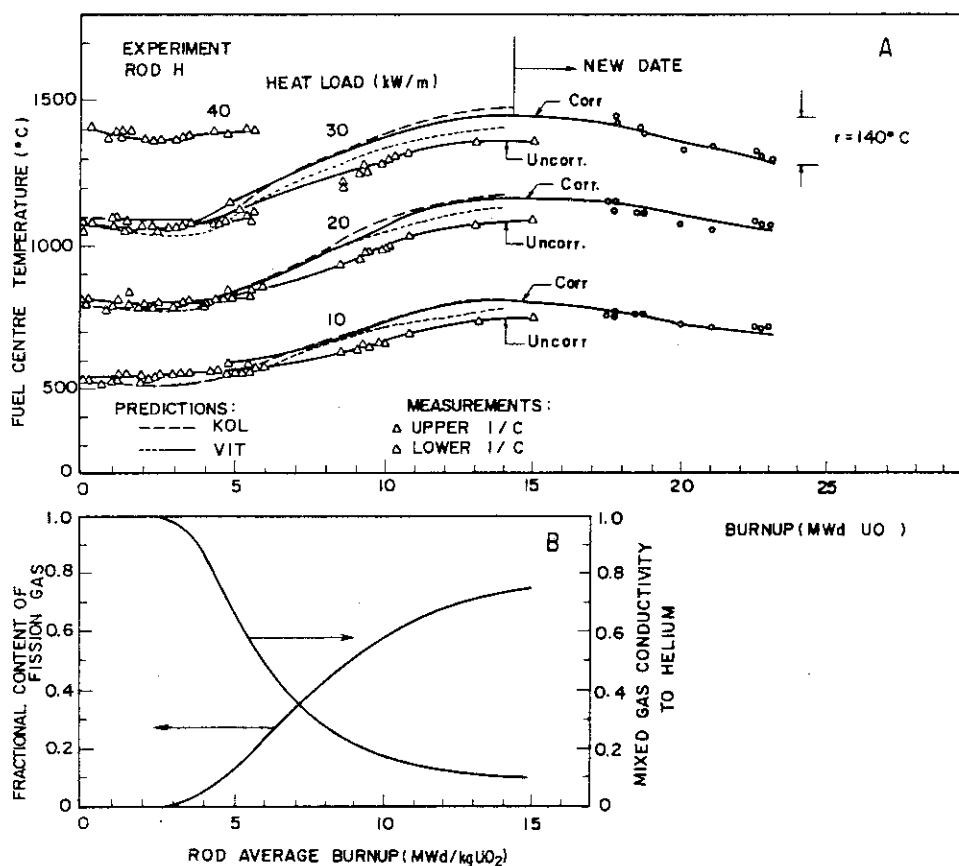
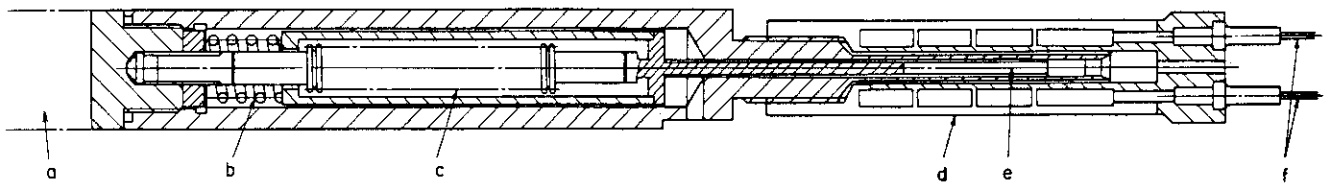


Fig. 2 Upper: Fuel center line temperature as the function of burnup.
 Lower: Fractional content of fission gas and mixed gas conductivity vs burnup.



a : Fuel rod	d : Differential transformer
b : Spring	e : Ferritic core
c : Bellows	f : Twin lead thermocox cable

Fig. 3 Fuel rod pressure transducer using a bellows sensor.

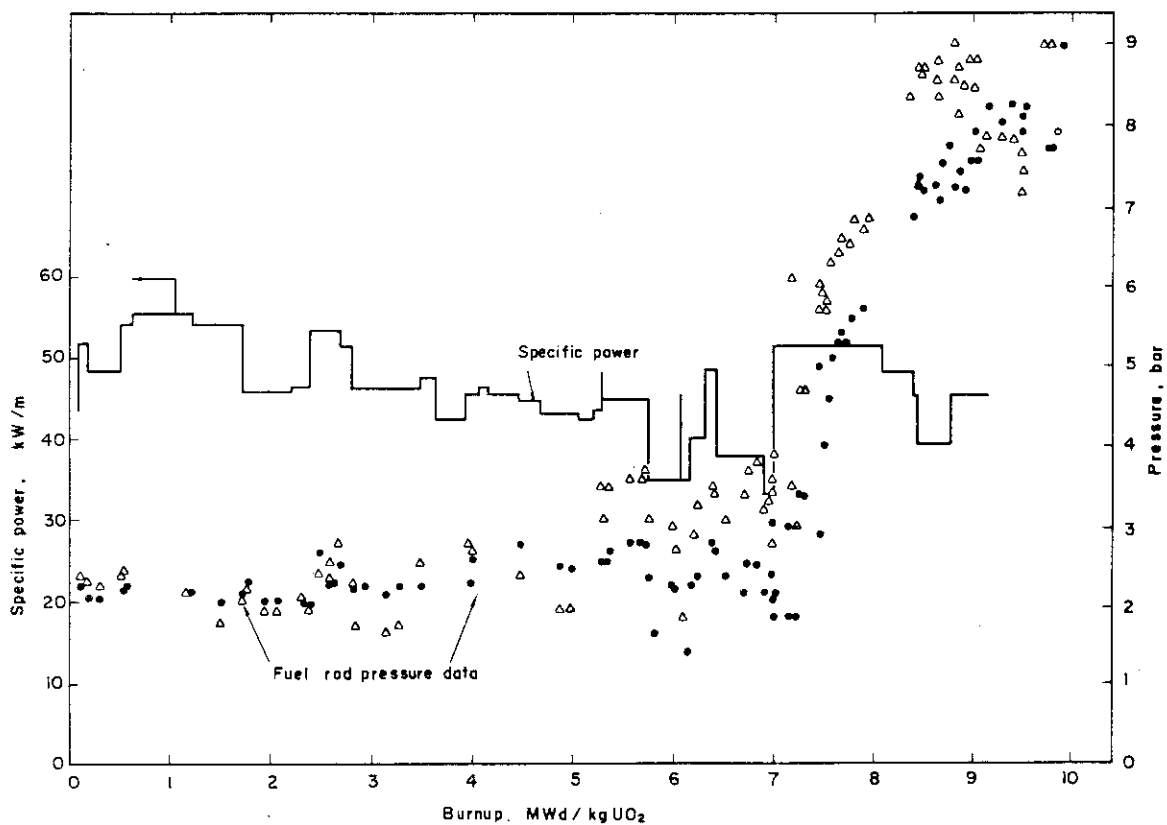


Fig. 4 Fuel rod internal pressure vs burnup together with power history.

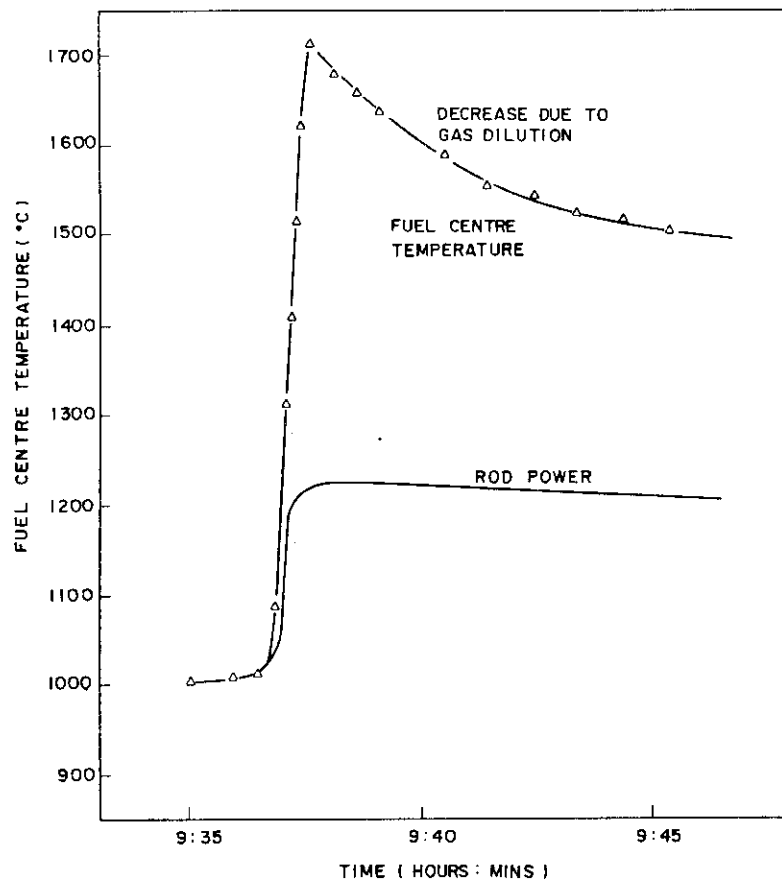
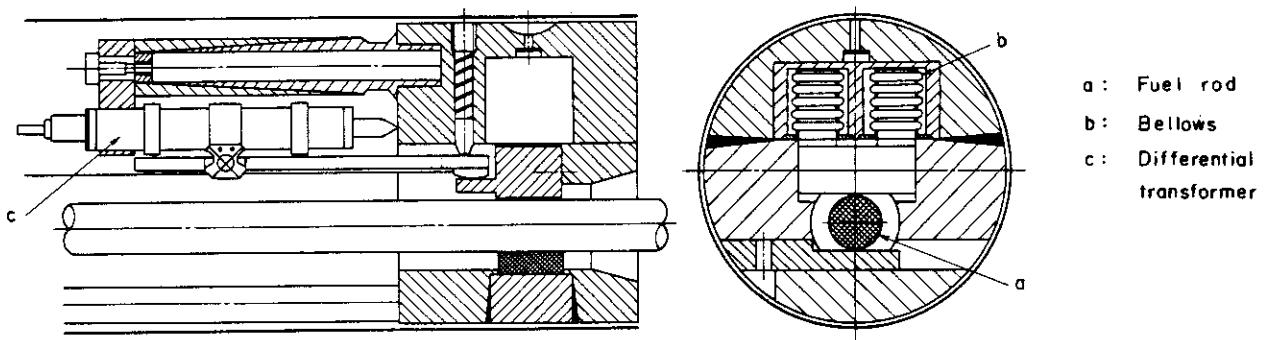


Fig. 5 Fuel center line temperature behaviour during a sudden power increase.



燃料棒ギャップメーター

Fig. 6 Gap meter rig.

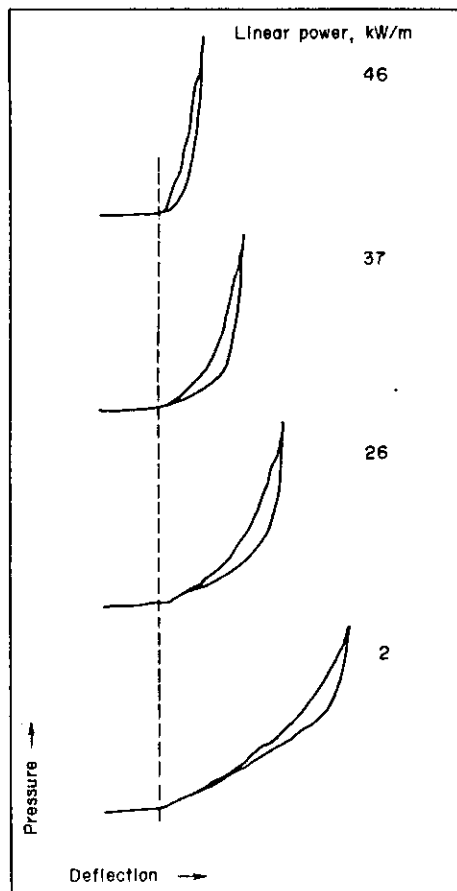


Fig. 7 Schematic presentation of in-core gap measurements on a fuel rod during a power ramp in a gapmeter rig. The gap is observed to close progressively with power increase.

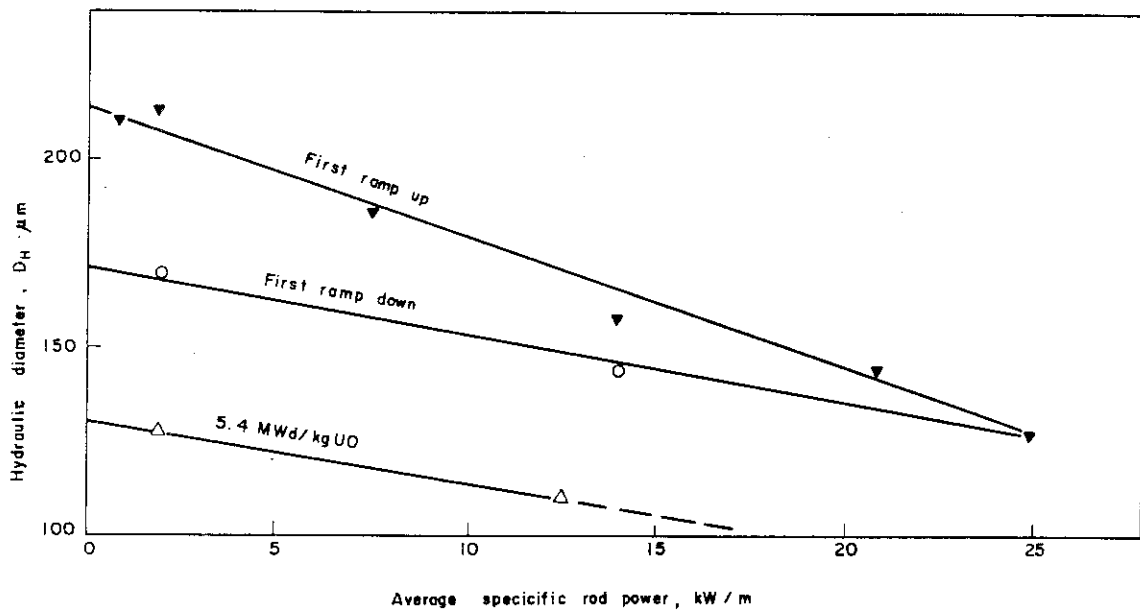
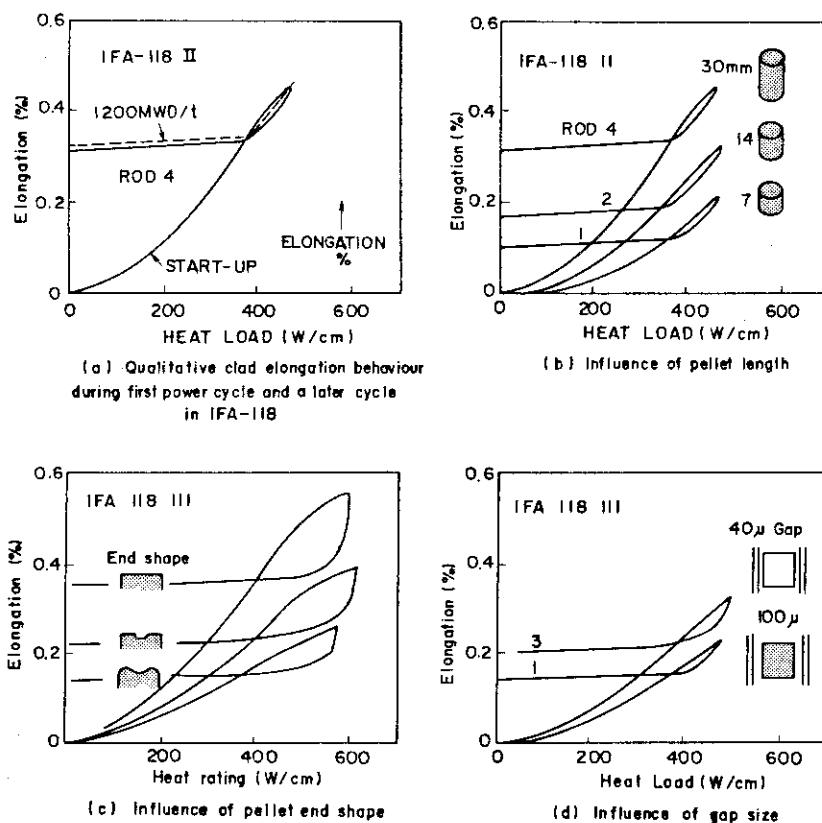
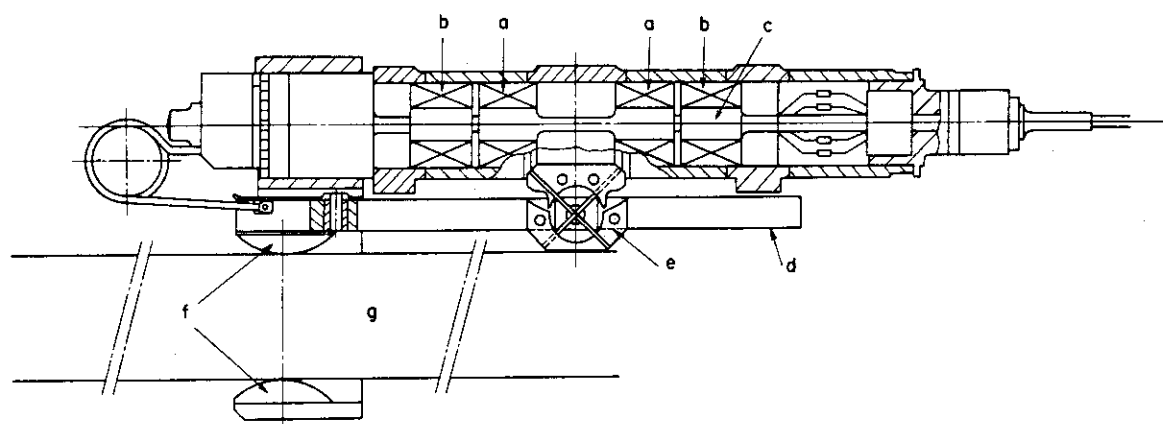


Fig. 8 A permanent gap decrease measured by a gas flow rig after first power cycle and that further cracking continue to occur as the burnup increase.



ペレット・被覆・相互作用による燃料棒の長さ変形例

Fig. 9 Fuel rod elongation by pellet-cladding interaction during a power cycle.



a : Primary coil	e : Cross spring suspension
b : Secondary coil	f : Feelers
c : Ferritic bobbin	g : Fuel rod
d : Ferritic armature	

燃料棒直径ゲージ

Fig. 10 Fuel rod diameter gauge.

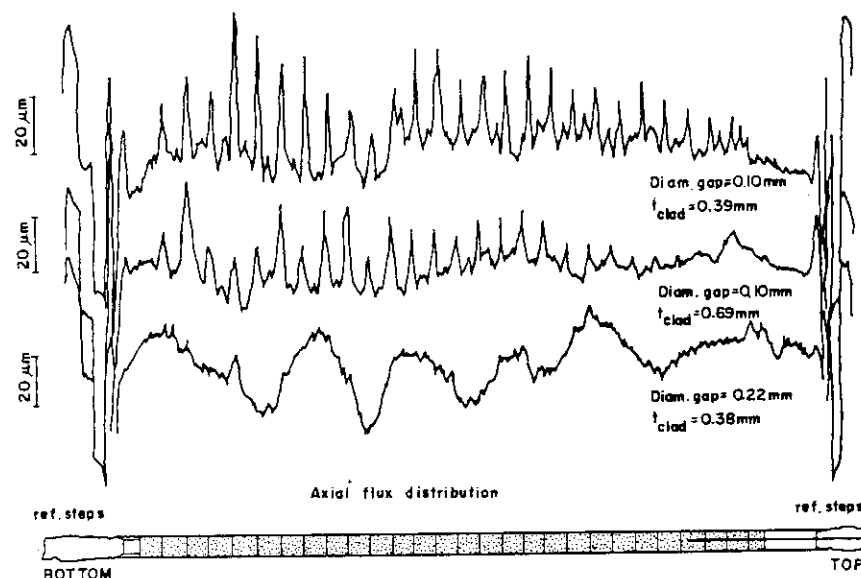


Fig. 11 Diameter recordings from three fuel rods with different fuel/cladding gaps and cladding wall thickness.

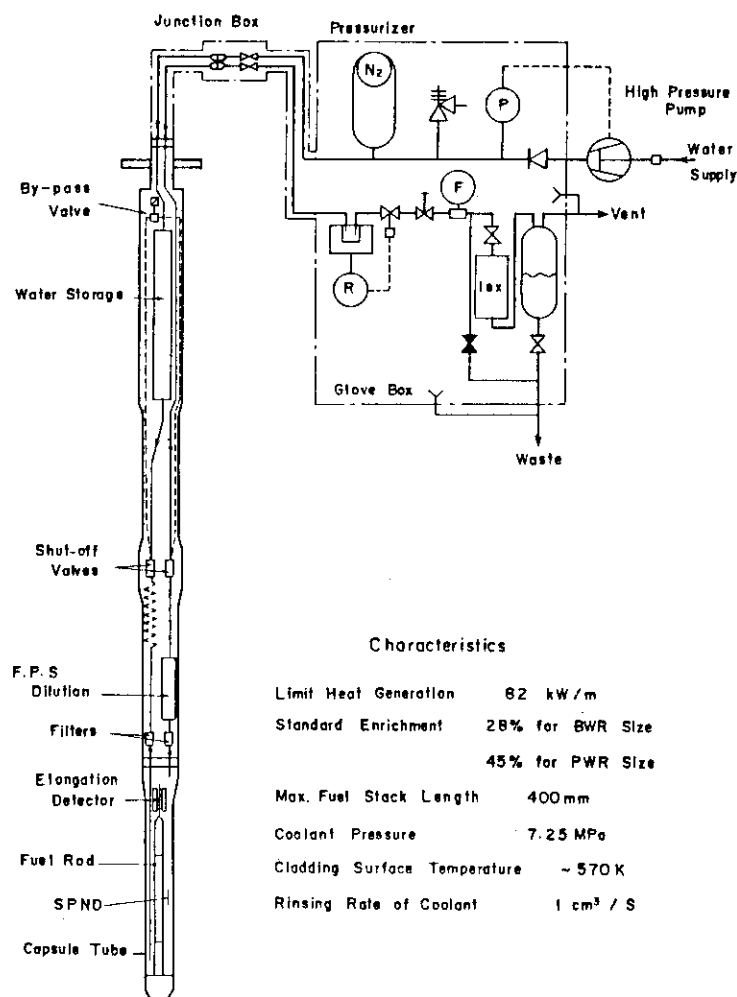


Fig. 12 Schematic configuration of the Boiling Water Capsule.

2.2.9 軽水炉用圧力容器材料

原研原子炉安全工学部 宮園昭八郎

(1) 照射研究の課題

軽水炉圧力容器の炉心に近い位置では、中性子照射によって鋼材が脆化するため、軽水炉の運転期間中における鋼材の脆化の程度を明らかにすることが重要な課題となっている。このため、実機では圧力容器の適切な位置に同一鋼材から製作した引張試験片、シャルピ衝撃試験片および破壊靱性試験片の小型監視試験片を組み入れた照射キャプセルを設置し、あらかじめ決められた時期にこれらの試験片を取り出して照射後試験を実施している。これらの試験結果から鋼材の中性子照射脆化の程度を評価し、軽水炉圧力容器の健全性を保持している。

この軽水炉圧力容器鋼材の中性子照射脆化に関連していくつかの課題が国内外で取りあげられている。第一は、加圧水型軽水炉（PWR）における加圧熱衝撃問題である。この問題は、圧力容器に内圧が負荷された状態で、圧力容器内面に低温の冷却材によって熱衝撃がかかったとき、内面からき裂が伝播して圧力容器が破損する可能性について評価することである。き裂が圧力容器鋼材を伝播する可能性があるかないかは、圧力容器鋼材が中性子照射によってどの程度脆化しているかに大きく依存する。同鋼材が中性子照射によって運転期間中にどの程度脆化するかを予測するのに、米国NRC（原子力規制委員会）で1977年に発行したRegulatory Guide 1.99（Effects of Residual Elements on Predicted Radiation Damage to Reactor Vessel Materials）が広く適用されている。第二は、このRegulatory Guide について現在米国NRCで改訂作業がすすめられていることである。第三は、圧力容器鋼材の中性子照射によって脆化する現象をさらに明らかにするための試験研究およびこの照射脆化を回復させるための試験研究である。第四には、IAEA（国際原子力機関）の援助のもとですすめられている圧力容器鋼材の中性子照射脆化に関する国際共同研究がある。

ここでは、以上述べた4つの課題について概要を紹介する。

(2) 加圧熱衝撃

PWRの圧力容器が加圧熱衝撃（Pressurized Thermal Shock, PTS）によって破損する可能性があるという記事が昭和56年9月27日付のニューヨークタイムズ紙に掲載された。この内容は次のとおりであった。米国で初期に建設されたPWRの中で、中性子照射によって圧力容器鋼材の脆化がすすみ、Regulatory Guide 1.99で規制されている無延性遷移温度（NDTT）の規制値を越えているものがある。このような圧力容器に内圧と熱衝撃が同時に負荷されたとき万一圧力容器内面に欠陥が存在していると、き裂が伝播して圧力容器が破損する可能性がある。この記事に掲載されていたPWRはTurkey Point 3,4号, Point Beach 1,2号, Oconee 2号などの13基であった。NRCでは、この問題に関連して44基のPWRを対象として圧力容器鋼材の中性子照射脆化の程度を明らかにするため、同鋼材の監視試験結果を軽水炉メーカーと電力会社に報告させ、評価を行った。

加圧熱衝撃によって圧力容器が破損する可能性の有無は、3つの要素が同時に重なったとき問題となる。第一の要素は、PWR配管系における小口径配管破断、蒸気系配管破断、過給水事故などによって圧力容器内面に過渡的熱応力が生じたとき、圧力容器に内圧が同時に作用している場合である。第二の要素は、中性子照射によって圧力容器鋼材が脆化し、き裂が伝播しやすい状

態にあること。第三の要素は、何らかの原因で圧力容器内面に欠陥が存在していることである。これらの3つの要素が重なったときに、き裂が伝播して圧力容器を貫通する可能性の有無を明らかにするため、米国の Oak Ridge National Laboratory (ORNL) では、NRC から委託を受けて圧力容器モデルによる加圧熱衝撃試験を実施している。現在までに得られた試験結果では、実機で想定される加圧熱衝撃よりもかなりきびしい条件下で試験を実施しても、き裂は伝播するが圧力容器壁を貫通する以前に停止することが明らかとなっている。

一方、わが国で運転中の PWR については、圧力容器鋼材の脆化は加圧熱衝撃の負荷によって問題となるほどすすんでいない。しかし、この加圧熱衝撃現象を明らかにしておくため、発電設備技術検査協会(旧発電用熱機関協会)は通産省からの委託を受けて試験研究計画をすすめている。この試験研究の内容は、実機を模擬して行うモデル試験と圧力容器鋼材の中性子照射試験からなっている。モデル試験については、60年度中に設計を終え、61年度から試験装置の製作を開始し、同年度から試験を行う計画となっている。圧力容器鋼材の中性子照射試験では、照射材の引張り試験、シャルピ衝撃試験および破壊靱性試験を実施するため、昭和60年1月から JMTR を利用して120個の試験片について照射試験を実施している。²⁾

(3) US NRCでのRegulatory Guideの改訂

軽水炉圧力容器の中性子照射による脆化の程度を調べるため、前述のように実機の圧力容器内に監視試験片を組み込んだ照射キャプセルをそう入し、運転開始後適切な時期に試験片を取り出して照射後試験を実施している。わが国では、これらの試験計画は「発電用原子力設備に関する技術基準を定める省令」(通産省告示第501号)および「原子炉構造材の監視試験方法」(日本電気協会電気技術規程-JEAC 4201-1980)に基づいてすすめられている。

一方、米国 NRC では、前述の Regulatory Guide 1.99 (1977) によって圧力容器鋼材の中性子照射による NDTT の上昇量を規制している。Fig.1 に Regulatory Guide 1.99 に記載されている中性子照射量と NDTT の上昇量(予測値)との関係を示す。同図から明らかのように、予測値は鋼材の中性子照射脆化に及ぼす不純物元素 Cu や P をパラメータにして作成されている。同図は1977年以来、各国で圧力容器鋼材の中性子照射脆化を評価するときの有力な指針として使われてきた。最近になって米国 NRC では、この Regulatory Guide 1.99 の改訂をすすめている。³⁾ この改訂作業をすすめている理由として、1) 1977年以来、許認可作業の中で多くの経験を得たこと、2) ASTM E-10 委員会および照射損傷に関する Task Group, Metal Council Properties の会議で技術的討論が十分なされたこと、3) 実機での監視試験データが多く蓄積されたこと、4) 加圧熱衝撃問題の解決のため多くの情報が集積されたことおよび5) G. L. Guthrie と G. R. Odette による解析データが大きな助けとなったことなどをあげている。

Regulatory Guide 1.99 の改訂の主な内容は、1) 母材と溶接部材を分けて取り扱っていること、2) 不純物元素として、P を除いて Cu と Ni を考慮していること、3) 中性子高照射量域での NDTT の上昇量を低く見積っていることおよび5) 圧力容器板厚方向における中性子照射損傷の減衰を考慮していることなどである。1例として、Fig. 2 に英国で計画されている PWR の Sizewell "B" の圧力容器鋼材を対象として、Regulatory Guide 1.99 の改訂版(案)に基づいて評価した結果を示す。⁴⁾

(4) 压力容器鋼材の照射脆化研究の動向

軽水炉压力容器鋼材の中性子照射による脆化現象は、まだ十分解明されておらず、国内外で多くの試験研究がすすめられている。特に、中性子照射脆化に及ぼす不純物元素として、Cu, Ni, P等の相乗効果を解明すること、高温領域での照射材の破壊靱性の定量的評価などが重要な課題となっている。また、压力容器の運転寿命を延ばすために重要な課題となっている焼鈍による中性子照射脆化の回復現象を明らかにすることと、この回復現象を実機の压力容器の寿命評価に適用するときの技術的問題を解決することも重要となっている。

ここでは、昭和49年10月8～10日にウィーン（オーストリア）のIAEA本部で開催された原子炉压力容器鋼材の照射脆化と監視試験に関する専門家会議で報告された論文について2, 3件紹介する。

フランスで高温の延性領域での压力容器鋼材の破壊靱性値に及ぼす照射の影響を調べた試験の結果が報告された⁵⁾。本試験では、A 533 BC 1.1, A 508 C 1.3および溶接部材を対象としてCT試験片を $\sim 3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 及び $\sim 8 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ で照射し、100～290℃でJ-R曲線を求めている。Fig. 3にA 508 C 1.3について非照射材と照射材との試験結果を示す。

米国のEPRI (Electric Power Research Institute)で、3種類の溶接部材を対象として $8 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ および $1.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ で照射し、340～454℃で168時間（1週間）焼鈍を行った試験の結果が報告された⁶⁾。この報告によれば、降伏強さ、NDTT, シャルピ上部棚エネルギー、上部棚破壊靱性値はすべての温度で脆化が回復することがわかった。この中で、上部棚破壊靱性値の回復が最も少ない。454℃, 168時間の焼鈍で、 J_{IC} は約50%回復する。シャルピ上部棚エネルギーは、454℃, 168時間の焼鈍でほとんど脆化が回復する。降伏強さおよびNDTTは高温での焼鈍を行えば、平均70～90%回復することがわかった。

本会議では、このほか中性子照射が鋼材の金属組織に及ぼす影響⁷⁾、照射脆化に及ぼす照射温度の影響⁸⁾、実機での監視試験の結果⁹⁾などが報告された。

(5) IAEA 鋼材照射国際共同研究

IAEAでは、原子炉压力容器鋼材の中性子照射脆化に関する国際共同研究を第1次、第2次および第3次計画と継続してすすめてきた。第1次計画は昭和46年から同49年まで、第2次計画は昭和52年から同58年まで実施された。第3次計画は昭和59年10月から開始され、5～6年にわたって実施されることになっている。第1次計画では、米国のLukens社製鋼材（HSST 03）を供試材としたが、第2次計画では、フランス製3鋼種、日本製3鋼種および西独製1鋼種を用いて共同研究がすすめられた。第2次計画では、現在実機の压力容器鋼材として使用されている新鋼種を対象として照射試験を実施し、これらの鋼材が中性子照射に対して感受性の低いことを明らかにした。第3次計画では、主として日本製17鋼種を供試材として照射試験を実施することになっている。第3次計画の目的は、鋼材の中性子照射脆化に及ぼすCu, Ni, Pの影響を明らかにすること、破壊靱性値による監視試験法を確立するためのデータを集積すること、照射脆化メカニズムを明らかにすることなどを目的としている。第3次計画には、15ヶ国が参加する予定となっている。Table 1に各参加国で計画している照射量、試験方法などを示す。

(6) 結び

わが国で現在稼働中の軽水炉は目立った事故もなく、順調に運転され、59年度には運転稼働率

は70%を超えている。このため、最近では軽水炉の長寿命化を計るための試験研究を実施すべきであるとの意見が出ている。運転寿命を延ばすためには、軽水炉の各構造機器の長期にわたる性能維持が必要である。この中で压力容器については、中性子照射による鋼材の劣化（脆化）を定量的に予測することが重要な課題となる。このため、同鋼材の中性子照射脆化に関する試験研究は今後も重要な研究課題であると考えらる。

参 考 文 献

- 1) R.H. Bryan, B.R. Bass and etc. : Quick-Look Report on the First Pressurized-Thermal-Shock Test, PTSE-1, ORNR/PTSE-1, (1984).
- 2) 原産新聞, 昭和60年4月11日付.
- 3) P.N. Randall : Basis for Revision 2 of U.S., U.S. NRC Regulatory Guide 1.99, Specialist Meeting on "Radiation Embrittlement and Surveillance of RPV Steels", held at the IAEA, Vienna, October 8-10 (1984).
- 4) L.M. Davies and T. Ingham : Overview of Studies in the UK on Neutron Irradiation Embrittlement of Pressure Vessel Steels, *ibid.*
- 5) P. Petrequiem, M.A. Mundheri and P. Soulat : Elasto-plastic Toughness of Pressure Vessel Steels, Effect of Irradiation, Determination from Tests on Round Notched Specimens, *ibid.*
- 6) R.G. Lott, T.R. Mager and etc. : Annealing and Reirradiation Response of Irradiated Pressure Vessel Steels, *ibid.*
- 7) C.A. English : Microanalytical Studies of Pressure Vessel Steels, *ibid.*
- 8) 4) と同じ.
- 9) A.L. Lowe : Comparison of Babcock & Wilcox 177A Reactor Vessel Material Surveillance Data with Regulatory Requirements, *ibid.*

Table 1 Summary of third IAEA coordinated research program on neutron irradiation of nuclear pressure vessel steels in participant countries.

	中性子照射量 (n/cm ²)			ドジメトリ		引張	シャビー 試験	破壊特性			金属 組織	その他		硬度
				放射硬化	照射損傷			コンパク テション	3点曲げ	動的 シャビー		焼鈍	熱時効	
アルゼンチン	未 定			○		○	○			○	○	○		○
チェコスロバキヤ		2 × 10 ¹¹		○		○	○	○	○					○
デンマーク	未 定			○				○	○					
フィンランド	未 定			○		○	○	○	○	○	○			
フランス			5 × 10 ¹¹	○	○	○	○	○	○	○	○	○		
西ドイツ	0.5 × 10 ¹¹	2 × 10 ¹¹	5 × 10 ¹¹	○		○	○	○			○	○		○
ハンガリー	未 定			○		○	○		○					○
インド		1 × 10 ¹¹		○	○	○	○		○	○		○		○
日本		2 × 10 ¹¹	5 × 10 ¹¹	○		○	○	○	○					○
スイス	0.5 × 10 ¹¹	(1-3) × 10 ¹¹		○		○	○	○	○	○			○	○
スペイン	0.8 × 10 ¹¹	1.5 × 10 ¹¹		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
英国		2 × 10 ¹¹		○	○	○	○	○		○	○		○	○
米国	未 定			○		○	○	○						

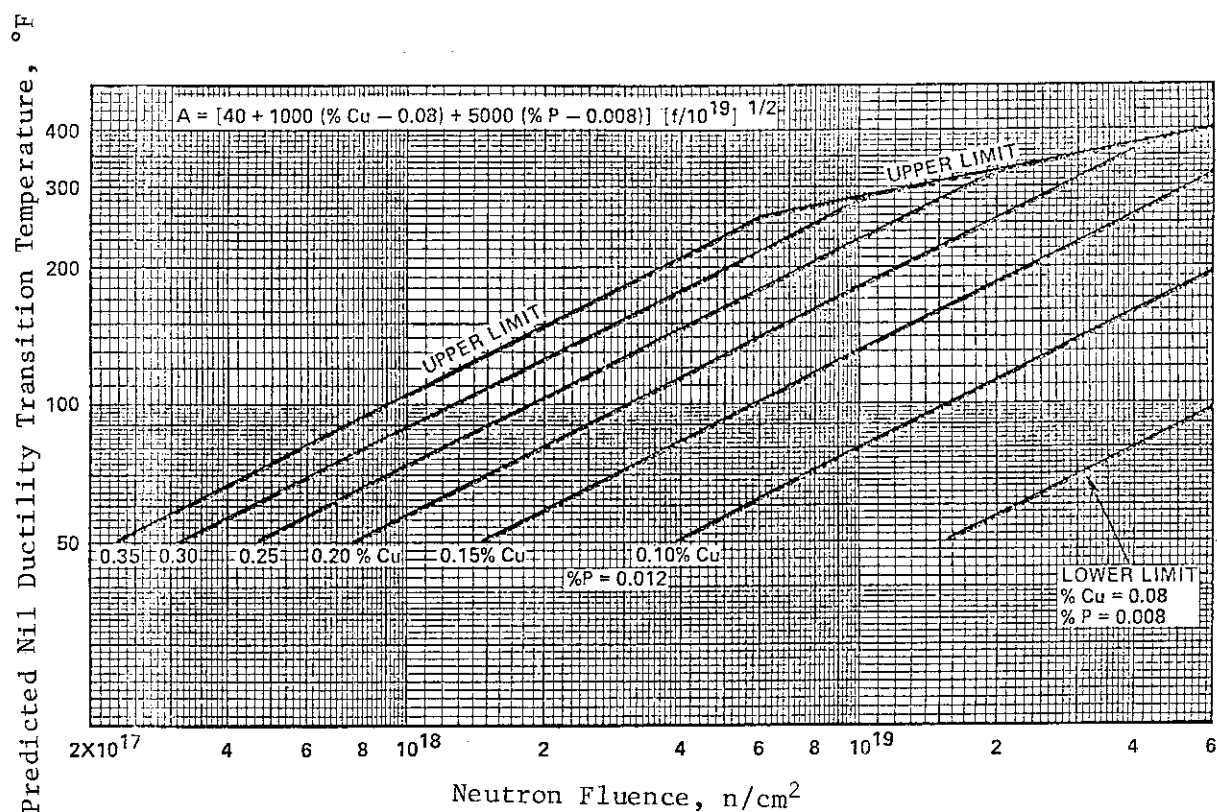


Fig. 1 Relationship between predicted Nil, ductility transition temperature and neutron fluence.

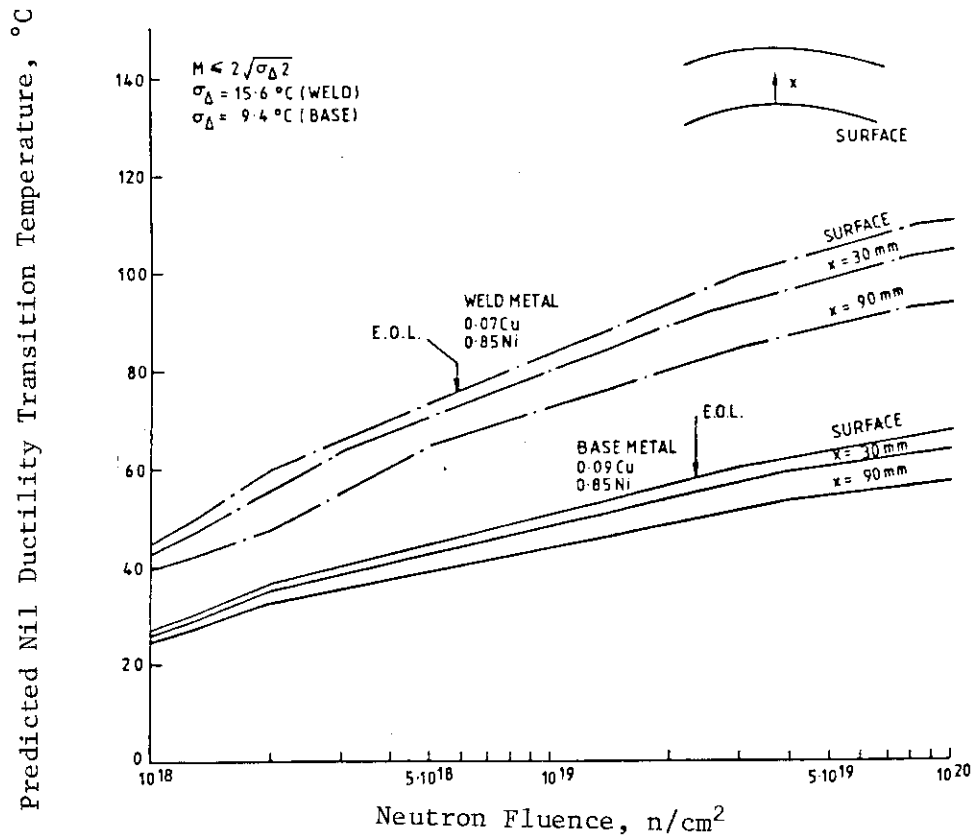


Fig. 2 Relationship between predicted Nil, ductility transition temperature and neutron fluence.

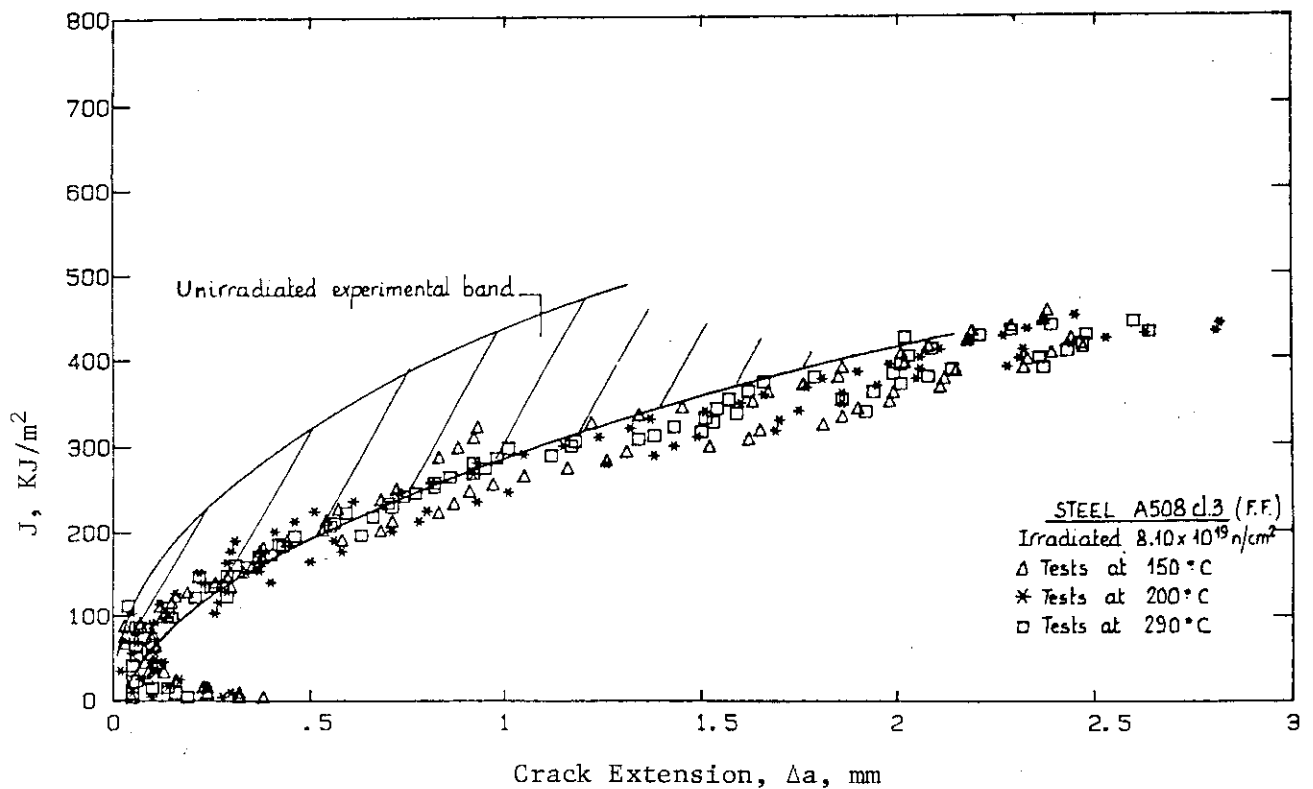


Fig. 3 J.R. Curves.

2.2.10 高速炉用燃料

原研燃料工学部 半田宗男

(1) プルトニウム燃料

高速炉として現在開発が進められている炉型は、金属ナトリウムを冷却材に用いた液体金属冷却高速増殖炉(LMFBR)である。燃料としては亜化学量論組成のウラン・プルトニウム混合炭化物燃料(プルトニウムの富化度が15~30%の $(U, Pu)O_{1.98 \pm 0.01}$ 、一般にMOX燃料と呼称されている)が使用されている。炭化物燃料は、軽水炉(LWR)での経験が豊富であり、大気中で取扱うことができる等の特長に加えて、実験用高速炉、原型炉、さらには本年8月に臨界が予定されているフランスの実証1号炉であるスーパーフェニックス(電気出力1,200 MW)用燃料として使用される等、これまで数万本に及ぶ照射実績を有している。しかし、MOX燃料は核分裂性物質密度が低く、かつ、熱伝導度が悪いために、本燃料を装荷したLMFBRの複利燃料サイクル倍增時間(CSDT)は、20~30年と推定されている。これに対して、ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料 $[(U, Pu)C_{1.05 \pm 0.05}]$ は、これらの諸特性に優れており、FBR用新型燃料として世界各国で開発が進められている。燃料工学部プルトニウム燃料研究室では、昭和49年に混合炭化物燃料の開発を目標に大洗研究所に燃料研究棟を建設した。内装整備に続いて、炭化物燃料の製造、特性試験、物性測定及び照射用燃料ピンの製作を進め、58年にはJRR-2を用いて我が国初の照射試験に成功した。本節では、はじめに炭化物燃料の特長について、MOX燃料と対比させながら簡単に紹介した後、米国、印度及び我が国における同燃料の開発現状について報告する。

(2) 炭化物燃料及び同燃料を装荷したLMFBRの特性

炭化物及びMOX燃料の特性をTable 1に示す。混合炭化物及びMOX燃料の密度はそれぞれ13.5及び11.08であり、重元素(U+Pu)密度は前者が約30%も高い¹⁾。さらに熱伝導度は、Fig 1に示すように3~5倍大きい²⁾。このため、炭化物燃料では、太径の燃料ピンを採用することができ、線出力も約2倍で運転することが可能である。再燃料を装荷した1000 MWeの非均質LMFBRの特長を米国の概念設計研究(CDS)に基づいてTable 2に示す²⁾。同表から分るように、炉心に装荷する燃料ピンの総数は、MOX燃料の約7.3万本に対して、炭化物燃料では約4.0万本と55%に減ずることができ、さらに両燃料の達成燃焼度はほぼ10at%であるために、太径の炭化物燃料ピンは、燃料ピン当たり約2倍のエネルギーを取出すことができる。炭化物燃料の製造は、化学的に活性な粉末を取扱う工程を不活性ガス雰囲気下で行う必要がある上に、燃料製造のために炭素熱還元工程が付加される。しかし、炭化物燃料サイクル費は、MOX燃料に比べて約20%安いと推定されている。

(3) 米国及び印度における炭化物燃料の開発

炭化物燃料の状態図を眺めて見ると、化学量論組成から少しでもC/M(M=U+Pu)比がずれると、金属及び超化学量論組成の第2相 $(U, Pu)_2C_3$ が析出することが分る。このため、化学量論組成の燃料を工業的に大量生産する技術の確立はむずかしいと判断される。一方、第2相を含んだ燃料母材とステンレス鋼被覆材の化学的相互作用(FCCI)は熱力学的に反応が進行することが分っており、実用化に対して大きな障害と考えられていた。この問題は、実際に米国のLANLがEBR-IIを用いて超化学量論組成の燃料を照射した結果、反応速度が遅いことが分り解決された²⁾。これに対して、MOX燃料のFCCIは、照射に伴って燃料と被覆管のギャップに拡

散したセシウム、ヨウ素、テルル等の核分裂生成物が媒体となってステンレス鋼被覆管の厚さの十分の一に及ぶ粒界酸化腐食が起ることが判明し、その防止策が検討されている。炭化物燃料ピンは燃料中心温度が低いために核分裂ガスの放出が少なく、従ってブレナム長さを MOX 燃料の約半分に減ずることができ、ナトリウム冷却材の圧損の低減化、炉心容器の小型化等が期待されている。一方、核分裂ガスの放出が小さいことは照射によるスエリング率が大きくなり、燃料と被覆材の機械的相互作用 (FCMI) が厳しくなる。この点に対処するために、燃料と被覆管の熱媒体に金属ナトリウムを用いた燃料様式が提案され開発が行われてきた。しかし、ナトリウムボンド燃料ピンは、製造技術がむずかしい上に、再処理に際してのナトリウムの経済的処理技術の開発が必要とされている。これに対して、ヘリウムボンド燃料ピンでは、スエリングを緩和するために低密度燃料ペレットの採用が提案され、米国の LANL では 85% T.D 程度の密度で被覆管を破損させることなく、16 at.% の高燃焼度を達成するに至っている。²⁾

LANL の開発成果を踏えて、印度は同国の熱出力 40 MW、電気出力 15 MW の高速実験炉、FBTR 用燃料に混合炭化物燃料を採用し、本年 8 月には初臨界に達する予定である。全炉心燃料に混合炭化物を用い、実際にエネルギーを取出すことに成功するのは、印度が世界ではじめての国となるであろう。³⁾

(4) 我が国における炭化物燃料の開発⁴⁾

燃料研究棟には、炭化物粉末を安全に取扱うことができるアルゴンガス雰囲気グローブボックス 8 台を含めて、総数で 31 台のグローブボックスが整備されている。アルゴンガス雰囲気グローブボックス中の酸素及び水分濃度は、それぞれ 3 及び 5 ppm 以下に保持されており、グローブボックスの負圧を一定に保持するために比例制御弁を採用し、負圧の安定化及びグローブの操作性が確保されている。これらのグローブボックスの積算運転時間は約 45000 時間に達しており、不活性ガス雰囲気グローブボックス技術は確立されたといえる。

混合炭化物燃料の製造は、経済的に大量生産が可能な機械混合した酸化物を黒鉛で炭化物に還元する炭素熱還元法を用いている。これまでに還元機構の速度的研究を行ったほか、高燃焼度を達成できる低密度燃料ペレットの製造技術を確立し、照射及び物性測定用試料に供している。

特性試験装置としては、燃料中のウラン、プルトニウム、炭素、酸素の定量装置に加えて、X 線分析、金相試験、EPMA の諸装置及び照射試験に必須のデータである高温放出ガスの定量装置が整備され順調に稼動している。

炭化物燃料の照射試験は、ヘリウムボンド型燃料に焦点を絞り、同燃料ピンの製作に必要な燃料ペレットのセンタレスグラインダ、燃料ピン上下端栓溶接装置及びピン表面除染装置を収納したグローブボックスを整備した。これらの諸装置を用いて、57 年秋には化学量論組成及び超化学量論組成を有した燃料ペレットを充填した 2 本の短尺 (全長 20 cm) の燃料ピンを高速原型炉、もんじゅ用に開発されたステンレス鋼被覆管を用いて製作した。本燃料ピンの外径は 6.50 と細く、炭化物燃料の特長の一つである 800~1000 w/cm の高線出力照射の実現はむずかしいことがその後の詳細計算で判明した。これらの 2 本の燃料ピンは、予備照射試験として 58 年度に JRR-2 で 450 w/cm の低出力で約 1.2 at.% 燃焼度まで照射した。炭化物用の太径のステンレス鋼被覆管は、PNC-DOE 燃料・材料ワーキンググループ会議を通して、米国の新型燃料開発プログラムで使用されている外径 9.40 mm のものを 58 年度に入手し、85% T.D の低密度燃料ペレットを充填した

燃料ピン2本を製作した。これらの燃料ピンは、60年度に JRR-2 で 650 W/cm の線出力で照射する予定である。

JRR-2 の炉心照射孔を用いた長期間の照射には限界があるため、3 及び 6 at. % 程度の中及び高燃焼度用の照射ベッドとして JMTR を利用する計画を策定した。これらの照射試験に供する燃料ペレット及びピンの製作が現在進められており、照射開始は61年度の見込みである。なお、高燃焼度用の炭化物燃料ペレットは、低密度で、かつ FCMI を緩和できるチャンファ型を採用する。これらの照射に続いて、高密度 (95% TD) の燃料母材中に大きな閉気孔を多数分散させた熱的に安定で、低密度のチャンファ型炭化物ペレットの調製を行い、63年に JMTR で照射することを目標に準備を進めている。以上に述べた我が国の炭化物燃料の照射計画をまとめて Table 3 に示す。

JRR-2 及び JMTR で照射した炭化物燃料ピンの照射後試験 (PIE) は、東海研の実用燃料試験室に依頼して、同室に整備されている2つの α , γ , アルゴンガス雰囲気セルを用いて61年度からバンクチャー試験、金相試験等の破壊検査を実施する方向で検討が進められている。

混合炭化物燃料の照射試験は、我が国においては全く未経験の分野であったために、上述したように照射ベッドに熱中性子炉を選び、二重密閉型のキャプセルを利用した照射試験から着手した。しかし、混合炭化物燃料は高速炉用新型燃料としての利用が目標であるために、本年度から高速実験炉、常陽または米国の FFTF (Fast Flux Test Facility) を照射ベッドに用いた照射試験計画の作成に着手する。このように、混合炭化物燃料の製造及び照射挙動に関しては、工学的に大きな技術的障害は見あらず、炭化物燃料サイクルの実用化に際して、今後解決しなければならない問題は、再処理のヘッドエンドに組み込みが予定されている炭化物を高温反応で酸化物へ転換する工程の技術を確立することであろう。

参 考 文 献

- 1) A.E. Waltar and A.B. Reynolds : Fast Breeder Reactors, Pergamon Press, New York, 415 (1981).
- 2) R.B. Matthews and R.J. Herbst : Nucl. Technol., 63, 9 (1983).
- 3) Nucl. India, 22, Nos. 7 & 8 (1984).
- 4) 半田宗男, 鈴木康文, 日本原子力学会誌, 26, 2 (1984).

Table 1 Properties of uranium and plutonium fuels.¹⁾

	Melting Point (K)	Heat of Fusion (kJ/kg)	Density 100% TD (g/cm ³)	Thermal Conductivity (W/m·K)		Specific Heat (c_p) (kJ/kg·K)		
				500°C	1500°C	at melting point	solid	liquid
Metal				30				
U	1408	38.2	19.0			0.12	0.16	0.20
Pu	913		19.9			0.18		
Oxide								
UO ₂	3138	277	10.97			0.24	0.77	0.50
(U _{0.8} Pu _{0.2})O ₂	3023(sol) 3063(liq)	277	11.08	4.0	2.3	0.26	0.64	0.50
PuO ₂	2670		11.46			0.35		
Carbide				16	17			
UC	2780	184	13.6			0.20	0.35	0.28
(U _{0.8} Pu _{0.2})C	2548(sol) 2780(liq)	186	13.5			0.19	0.43	0.28
PuC	1920		13.6			0.24		

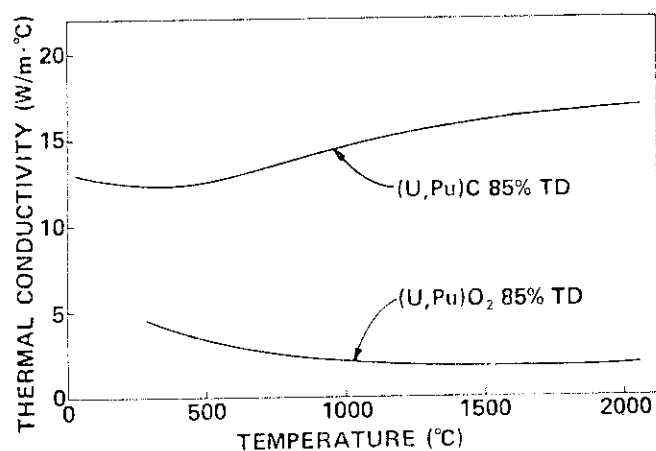
Table 2 Comparison of oxide and carbide fuels.²⁾

Characteristic	Oxide	Carbide
Irradiation and fabrication experience (number of pins)	Hundreds of thousands	Hundreds
Irradiation experience with advanced designs (number of pins)	334	348
Heavy metal atom TD (g/cm ³)	9.8	12.9
Melting temperature range (°C)	2750 to 2800	2300 to 2500
Thermal conductivity at 1000°C (W/m·K)	2.4	14.5
Sodium compatibility	Reacts	Compatible
Breeding ratio ^a	1.38	1.55
Compound system doubling time (yr) ^a	20	13
Fuel pin o.d. (mm) ^a	7.24	9.40
Peak linear power (kW/m) ^a	45	78
Burnup (MWd/kg) ^a	92	100
Number of fuel pins per core ^a	73 170	40 560
Fuel cycle cost (mill/kWh) ^a	6	5
Relative power cost (mill/kWh) ^a	16	15
Maximum hot channel cladding temperature during a loss-of-flow transient (°C) ^a	1040	690
Core disruptive accident behavior ^a	OK	Unknown

^aCDS data for the LDP.

Table 3 Irradiation plan of He bonded (U,Pu)C fuel pins.

Fuel Composition	Fuel Density (%T.D.)	Reactor	Irradiation (year)	No. of Pins	Pin O.D. (mm)	Linear Power (W/cm)	Burnup (at.%)
(U,Pu)C _{1.00}	94	JRR-2	1983	2	6.50	450	1.2
and	80-85	JRR-2	1985	2	9.40	650	1.5
(U,Pu)C _{1.05}	80-85	JMTR	1986	2	9.40	650	3.0
	80-85	JMTR	1986	2	9.40	800	6.0
	Chamfered						
	80-85	JMTR	1988	2	9.40	800	6.0
	Chamfered, Thermally Stable						

Fig. 1 Thermal conductivity of typical U-Pu oxide and carbide fuels as a function of temperature.²⁾

2.2.11 高速炉用金属材料

原研燃料工学部 中島 甫

(1) 高速炉材料の照射試験手段

高速炉で用いられる主要な金属製の構成部品のうち中性子照射を受けるものは、炉心では燃料被覆管、ラッパー管、プレナムスプリング、端栓及び燃料被覆管相互の間隔を一定に保つためのスペーサー等があり、炉心を若干はなれて炉容器材料がある。これらのうち、燃料被覆管が温度、圧力、中性子照射等のいずれの条件を取り挙げても最も厳しい環境で使用されることから、燃料被覆管を対象とした照射研究に最も大きな力が注がれており、解決すべき課題も依然少なくない。このような背景から本来高速炉材料の問題点を述べるには、燃料被覆管を主体として研究の現状に触れるのが筋であろう。しかしながら燃料被覆管の場合、問題の中心は高速中性子の重照射によって起る事象にあるのであって、高速炉が稼動し、高速炉を用いた照射試験手段が確立した現在、研究炉が果たす役割はもはや大きくはない。一方、1950～1960年代に行われた研究炉による材料照射研究が高速炉材料の開発過程で果たした役割はきわめて注目すべきものがあった。これらをつぶさに見ると、研究項目によっては今後とも研究照射の応用の可能性は残されているとも言える。とくに原子炉容器では必ずしも高速中性子の重照射を前提としなくても研究炉水準の照射で工学的な試験が意味を持つと考えられ、また燃料と被覆材の相互作用等でも研究炉の特色を生かした研究を展開することの出来る可能性が残されている。

(2) 燃料被覆管の機能と要求性能

Table 1 に世界の高速炉に用いられている炉心材料とその成分元素を示す。¹⁾ これより、材料の主流は AISI 316 のオーステナイトステンレス鋼であるといえる。また、原型炉「もんじゅ」の燃料被覆管の形状、寸法についてみると、外径 6.5 mm、肉厚 0.47 mm、全長約 2800 mm であり、20% の冷間加工材が使用されることになっている。^{2,3)}

このように、薄肉細管の形状をしている燃料被覆管の果たすべき機能は、

- ① 燃料の燃焼に伴い生成する放射性核分裂生成物を燃料被覆管の内に閉じ込めておく。
- ② 燃料と冷却材ナトリウムとの直接接触による燃料の損傷を防ぐ。
- ③ 燃料で発生した熱を効率良く冷却材に伝達する。

等である。燃料被覆管がこれらの機能を十分に果たするために要求される性質としては、

- ① 中性子照射による劣化（スウェリング、ヘリウム脆化等）の少ないこと。
- ② 高温強度（とくにクリープ性質）の優れていること。
- ③ 燃料及び核分裂生成物との両立性が良いこと。
- ④ 冷却材との両立性が良いこと。
- ⑤ 中性子経済に優れていること。
- ⑥ 熱伝導率の良いこと。
- ⑦ 加工性の良いこと。
- ⑧ 溶接性の良いこと。

等を挙げることができる。これらのうち、燃料被覆管にとってとくに重要な性質は耐スウェリング性及び耐クリープ性である。それらに関係する諸因子を含めた相互関係をまとめたものが Fig. 1 であり、ここでは複合効果についても配慮する必要があることが示されている。⁴⁾

高燃焼度化に伴って、燃料ペレットと燃料被覆管の相互作用も重要となろう。これら3つの項目についてみると、現在は研究炉を利用した研究は昔に比べて少ない。

研究炉に限定した動向について述べるまえに、まずこれまでの歴史的経緯を含めた炉心材料一般の動向を簡単に述べてみる。

(3) 高速炉燃料被覆材の損傷

(a) スウェリング

1960年代初期に行われた熱中性子炉を用いたオーステナイトステンレス鋼の高温照射脆化に関する研究結果から、熱中性子照射後のステンレス鋼が高温で延性低下を示す原因が鋼中の不純物硼素と熱中性子との核変換反応により生成するヘリウムであることが確認された。⁵⁾ したがって高速炉開発の初期段階においては、高速炉用炉心材料の工学的な問題は、ステンレス鋼の主要構成元素である鉄、ニッケル等と高速中性子との核変換反応により生成するヘリウムまたは水素による脆化であろうと予想されていた。⁶⁾

しかしながら、1967年にCawthorneらは高速中性子照射により金属材料中にボイドが形成されることを見出し、その結果としてスウェリング（ふくれ）現象の生じることが高速炉用炉心材料にとって重要な問題となる可能性のあることを指摘した。⁷⁾ その後の詳細な研究により、スウェリングは多量の高速中性子照射を受けた材料中に生成した格子間原子や原子空孔が集合し、格子間クラスターや空孔クラスター等の大きな欠陥に成長し、これらの欠陥の集積が材料の体積増加をもたらすことが明らかとなった。実験的にも高速炉を用いた照射研究の普及とともにスウェリング量に及ぼす種々の照射条件や冶金学的因子についての知見が集積されつつあり、これらの知見を応用した高性能材料の開発が進められている。^{4,8)}

こうした知見を基にした新しい耐スウェリング材料の開発についてみると、Fig. 2に示すようなアメリカの例がある。ここでは材料開発目標と現用材料及び市販の各種材料の耐スウェリング性の比較結果が示されている。⁹⁾ この開発計画における候補材料の化学組成はFig. 2に、それらの材料の耐スウェリング性の例はFig. 3に示されている。¹⁰⁾ これより候補材料の性能が現用の316鋼と比較して飛躍的に改良されていることがわかる。一方、我国においても、動力炉・核燃料開発事業団が中心となって炉心材料の開発を進めた結果、原型炉「もんじゅ」の初装荷燃料以降はアメリカにおけるD9鋼に相当する性能を持った燃料被覆管の使用が可能な見通しである。

(b) クリープ性質

燃料被覆管内に収納した燃料の燃焼に伴って生成する核分裂ガスにより燃料被覆管の内圧が上昇することから、照射下でのクリープ性質が重要となる。一般にクリープ性質は時間に依存する現象であり、本来照射下で刻々と起こる過程の把握が必要となる。また、高速中性子照射下では照射クリープと呼ばれる一般の熱的クリープとは異なる機構の時間依存変形が起こることもわかっている。¹¹⁾ 従って、とくに照射の影響を明らかにするためには、実際にクリープ応力を受けながら同時に中性子照射されるという実験を行わなければならない。実験の困難さもあり、またヘリウム脆化が熱クリープに与える効果も重要であることから、あらかじめ照射した材料についてのクリープ試験も工学的に意義があり比較的データも多い。このような目的では熱中性子成分の多い研究炉照射後の試験はヘリウム生成において一種の加速試験として意義

があると思われる。

Fig. 4 はアメリカの材料開発目標と現用材料及び市販の各種材料の最大クリープ歪に関する性能を比較したものである。⁹⁾ またこの開発計画における候補材料の中性子照射後のクリープ性質の一例を示したものがFig. 5であり、これらの候補材料の性能改良が著しいことがわかる。¹⁰⁾

(c) 燃料被覆管と燃料との相互作用には、化学的相互作用と機械的相互作用がある。

化学的相互作用による損傷形態には、全面腐食、粒界腐食あるいは燃料被覆管が溶解する溶損現象等があり、その最大侵食深さは約 $100\ \mu\text{m}$ 程度といわれており、セシウム、テルル、ヨウ素等の核分裂生成物が重要な役割を果たすと考えられている。一方、機械的相互作用は、燃料被覆管と燃料との間に設けてあるギャップが使用中に生じる燃料と被覆管材料のスウェリングや熱膨張の差、あるいは原子炉の過渡状態の影響等により狭くなり、燃料被覆管と燃料が接触し、燃料被覆管が変形することである。

燃料被覆管と燃料の相互作用を解明するためにベルギーの BR-2 炉で行った照射試験の結果では、化学的相互作用と機械的相互作用の重畳効果により燃料被覆管が破損する可能性のあることが示唆されている。¹¹⁾

(4) 高速炉用材料の開発と研究炉照射

(a) 炉心材料

前述のごとく高速炉用炉心材料の研究においては高性能の燃料被覆管を開発することに主力が注がれている。この場合の照射試験手段としては高速中性子の高密度かつ多量照射が必要となるため、我国においても高速実験炉「常陽」を主体とした実験が進められており、既に述べたように高速炉の稼動している現在研究炉の果たす役割はもはやあまり大きくないというのが一般的傾向であるのは否めない。一方、アメリカの HFIR のように熱中性子も多いが高速中性子もかなりの水準で期待できる研究炉の場合は、ニッケルによるヘリウムの大量生成など高速炉とは異なる特色があり、研究上は大いに利用する価値があろう。

(b) 構造材料

高速炉の炉内構造物用あるいは炉容器用材料の場合は、炉心用材料と比較して高速中性子照射量が少なく、またエネルギースペクトルもやや軟化することから、研究炉を用いた照射試験が有用性を持って来る。これらの構造物の設計に際しては中性子照射効果を導入した材料強度基準が適用されるため、種々の条件で照射されたときの対象材料の高温強度特性を把握する必要がある。照射条件の調整や実験の面で柔軟性の大きい研究炉の利用価値はここで十分に発揮されるものと考えられる。この場合、ステンレス鋼のようにニッケルを含んだ材料ではニッケルと熱中性子との 2 段反応により多量のヘリウムが生成される点が注目される。¹²⁾ すなわち、高速炉を用いた照射実験と比較すると研究炉のような混合スペクトル炉を用いた場合、ヘリウムの効果を強調して評価するという観点で一種の加速実験として位置づけることができる。

Fig. 6 に一例として高速実験炉「常陽」及び混合スペクトル炉「JMTR」を用いて AISI304 鋼を照射した後クリープ破断試験を実施した結果を示す。¹³⁾ これより混合スペクトル炉で照射した場合は熱中性子の寄与が多くなるため、照射によるクリープ破断寿命の低下の著しいことがわかる。

参 考 文 献

- 1) 井滝：原子力工業, 30, 2, 32. (1984).
- 2) 動力炉・核燃料開発事業団：高速増殖炉の開発 (1979).
- 3) 同上：高速増殖原建炉「もんじゅ」.
- 4) T. Kondo, et al. : Proc. Int. Conf on "Irradiation behavior of metallic materials for fast reactor", p.253 (1979).
- 5) P.R.B. Higgins, et al. : JISI, 204, 489 (1966).
- 6) H. Alter, et al. : J. Nucl. Mater., 16, 68 (1965).
- 7) C. Cawthorne, et al. : Nature, 216, 575 (1967).
- 8) Proc. Int. Conf. on "Radiation effects in breeder reactor structural materials", (1977).
- 9) J.B. Bennett, et al. : Met. Trans., 9A, 143 (1978).
- 10) B.A. Chin, et al. : Nucl. Tech., 57, 426 (1982).
- 11) O. Götzman : Nucl. Tech., 57, 90 (1982).
- 12) J. Weitman, et al. : Trans. ANS, 13, 557 (1970).
- 13) 菊地他：日本原子力学会「昭和60年会」予稿集, 230 (1980).

Table 1 Material selection for fuel cladding tube and sub-assembly wrapper of FBR in the world.¹⁾

○世界の高速炉に用いられている炉心材料

Country	Reactor	Cladding material	Sub-assembly wrapper
DEBENE *	SNR 300	L 4970	L 4981
France	Phénix	AISI 316	316 L
	Superphénix	316 Ti	316 Ti
JAPAN	Monjou	316	316
UK	PFR	M 316 (FV 348)	Nimonic PE 16 (AISI 321)
	CDFR	316	PE 16
USA	FFTF	AISI 316	AISI 316
USSR	BN 350	0Cr 15Ni 15Mo 2B	1Cr 18Ni 10Ti
	BN 600		

*

DEBENE: Abbreviation for Deutschland, Belgium, The Netherlands.

○炉心材料の元素成分

Denomination	C	Si	Mn	Cr	Ni	Mo	Ti	Nb	N	B	Ref.
AISI 316 (L 4919)	0.04~0.08	≤0.75	1.5~2.0	16 ~18	12 ~14	2 ~2.5	—	—	≤0.01	≤0.001	[15]
M 316	0.03~0.06	≤0.6	1.5~2	15.4~17.5	13 ~14	2 ~2.75	0.05 max.	0.05 max.	≤0.02	0.001	[5]
L 4981	0.04~0.1	0.3~0.6	≤1.5	15.5~17.5	15.5~17.5	1.6~2.0	—	0.4~1.2	0.01	≤0.001	[4]
0Cr 15Ni 15Mo 3B	0.05~0.09	0.6	≤0.8	15 ~17	14 ~16	2.5~3	—	0.6~0.9	—	0.005	[14]
L 4970	0.08~0.12	0.3~0.75	≤2.0	14.5~15.5	14.5~15.5	1 ~1.4	0.33~0.55	—	≤0.015	0.003~0.008	[4]
Nimonic PE 16	0.05~0.1	≤0.3	≤0.29	15 ~18	42 ~45	2.5~4	1.1~1.5	Al 1.1~1.5	0.011	0.001	[5]

Table 2 Nominal chemical compositions of candidate materials for FBR alloy development program in USA.¹⁰⁾

合金記号	Fe	Ni	Cr	その他*
316CW	Balance	1 2.0	1 7.0	Mo
D9	Balance	1 4.5	1 4.5	Mo, Ti
HT-9	Balance	0.5	1 2.0	Mo, V, W
D57	Balance	0.5	1 0.5	Mo, V, Nb
D21	Balance	2 5.0	8.5	Mo, Ti, Al, Zr, B
D66	Balance	4 0.0	1 0.5	Mo, Ti, Al, Zr, Nb
D68	Balance	3 5.0	1 2.0	Ti, Al, Zr, Nb, Hf, B

*すべての合金とも Si, Mn および C も含まれている。

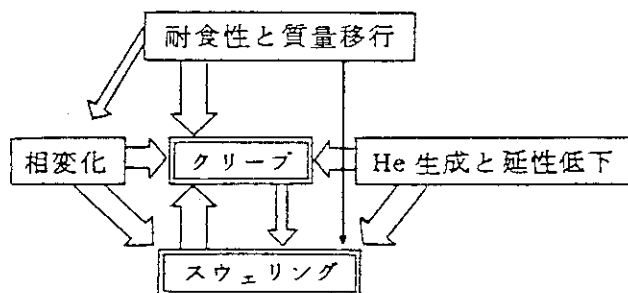


Fig. 1 Property requirement and its relation for FBR fuel cladding.⁴⁾

$$2.0 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2 \text{ (E > 0.1 MeV)}$$

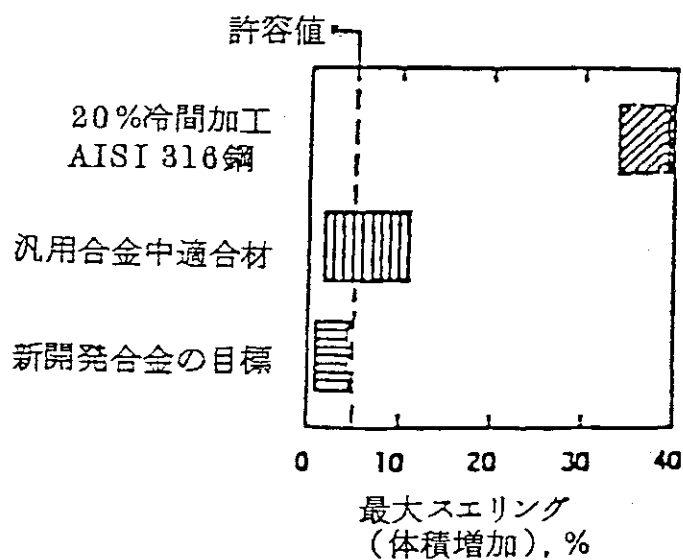


Fig. 2 Current status and development goals of swelling for FBR alloy development program in USA.⁹⁾

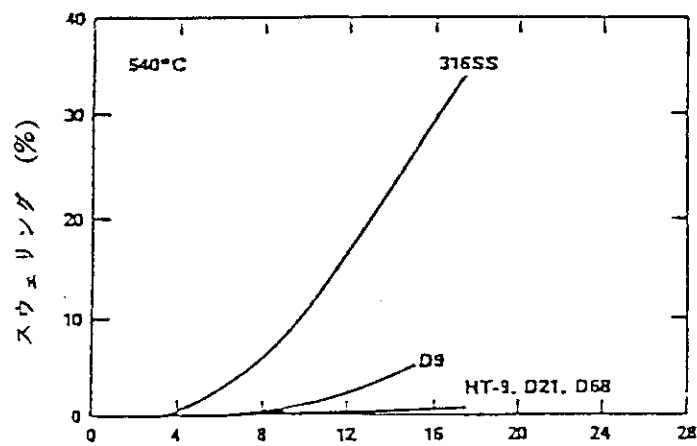


Fig. 3 Comparison of the swelling of advanced alloys.¹⁰⁾

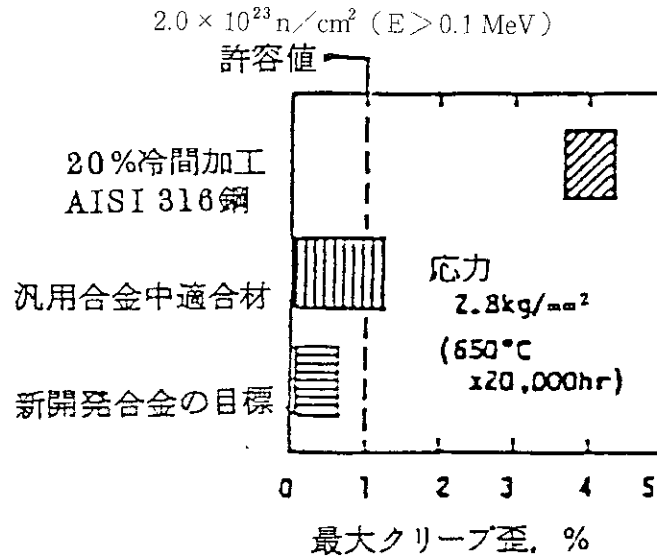


Fig. 4 Current status and development goals of creep strain for FBR alloy development program in USA.⁹⁾

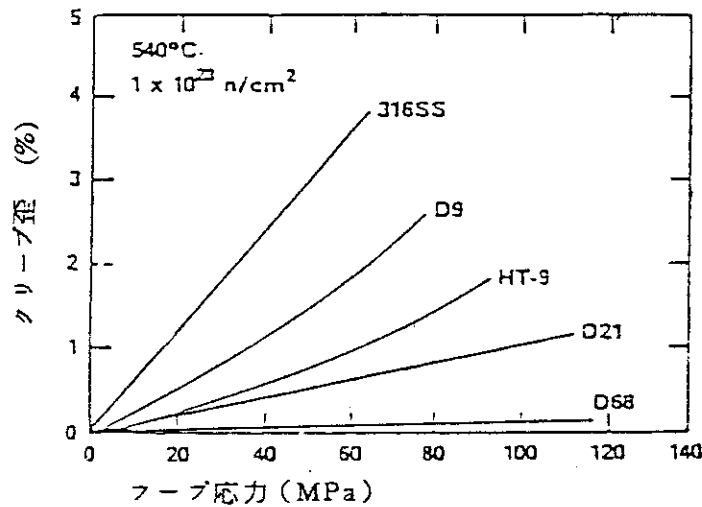


Fig. 5 Creep resistance of advanced alloys to irradiation.¹⁰⁾

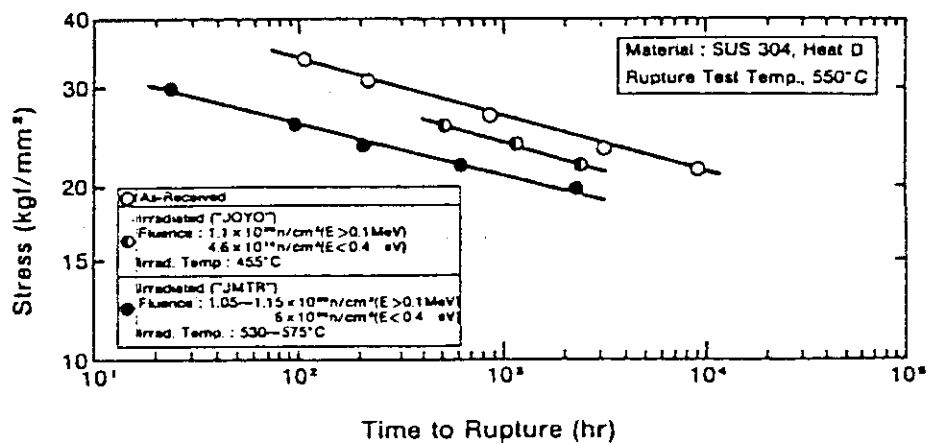


Fig. 6 Creep rupture life of 304 stainless steel irradiated by "JMTR" and "JOYO".³⁾

2.2.12 おわりに

原研燃料工学部 近藤達男

研究炉の活用の度合いは、既に述べられているように対象とする燃料材料を用いる原子炉システムの如何によって異なる。しかし注目する照射効果が中性子束や積算照射量においてあるしきい値を有し、炉の能力がそれを下まわる場合を別にして、今後照射の形態、精度、照射下の諸測定ならびに照射後試験等における技術の高度化燃料、材料、基礎、応用を問わず共通の課題であろう。

照射下の実験技術等で注目されるのは燃料材料の挙動を時間を追って逐一追跡するその場（in site）測定である。軽水炉や高温ガス炉に関しては研究炉の利用が依然有効な手段である。燃料では燃料の健全性、耐久性の評価には体積変化、変形、さらには燃料・被覆材相互作用や、応力腐食割れのような時間依存の諸現象の把握を一層定量化することなしには炉技術の指向する長寿命化や高燃焼率の達成に必要な基礎知見の確保は望み得ない。材料についてみると、とりわけ構造材料にとっては、今や中性子照射効果が単独で材料や構造の寿命や性能を決定する例はむしろ稀で、腐食やクリープ、疲労などの経年的損傷と複合して損傷が評価されねばならない場合の方が多い。

近年の研究の傾向から容易に予測できる問題として例えば軽水炉構造材料の経年損傷、とくに亜臨界亀裂成長と寿命予測の関係がとくに注目されている。当面圧力容器材料の高温水中の腐食疲労に対する中性子照射効果は、照射後試験では大きな問題ではないことを示す結果が得られている¹⁾が、照射下の問題としては今やっと研究が開始されたばかりである。照射下では材料内部材料と環境の界面、そして環境そのものにそれぞれ変化が起り、それらが腐食や亀裂成長などの経時損傷の速度や様式に影響を及ぼすことが予測されるようになった。軽水炉の炉内構造物においても、近年オーステナイトステンレス鋼の溶接熱影響部に見られた、いわゆる粒界型応力腐食割れ（IGSCC）によく似た割れが、熱影響とは無関係の部分に発生することが見出されている^{2,3)}。これは冶金学的には未知の要因によると言われるが、中性子照射による結晶粒界部の元素偏析がうたがわれる。中性子照射下で予想されるこの種の問題としては、これから開発がなされようとしている高転換炉の燃料被覆材のステンレス鋼や、水冷却をとり入れたINTORなどの核融合次世代装置の第一壁附近の構造材料において考慮されねばならない。この場合、材料の挙動評価のみならず、使用材の選択ないしは改良開発の時点にさかのぼり、ときにはそうした材料の使用を前提にしたシステム設計の妥当性にもかかわる問題となり得ることを考えると、むしろ現時点でとりかかるべき課題であると言えよう。したがって研究炉においては機械的性質の定量的評価にたえ得るような制御下の荷重や変位を試料に与えて、炉内で進行する損傷や破壊を連続的に追跡できる試験技術が必要となる。

核融合材料の節では、変位損傷と変換反応生成物蓄積の速度の近似の問題が示されている。これを最初に工学的規模で進めているのが日米協同試験におけるORRによるスペクトル調整（Spectral Tailoring）照射試験である。今後の研究炉の活用の一方向を示すものとして注目されて良い。また核融合燃料ともいうべきトリチウム増殖材料の照射試験では照射損傷とトリチウム放出挙動の二つのカテゴリーの問題が損われることが述べられているが、ここでも研究炉の使命としては、とくに後者での応用が現実的である。とくにスペクトル調整や試料側の同位体調整

を組み合わせるなどの工夫を加えることにより今後必要とされる多くの知見を得ることができるであろう。

参 考 文 献

- 1) Proc. IAEA Specialists' Meeting on Subcritical Crack Growth, 1st Meeting : Freiburg (1981), NUREG-CP-0044 及び 2nd Meeting : (1985) Sendai.
- 2) E. Lenz (KWU), 私信 (1985).
- 3) B. Roseborg (Studisuk), 私信 (1985).

2.3 放射化分析等の最近の動向

2.3.1 放射化分析の最近の動向

原研化学部 米沢伸四郎

(1) はじめに

放射化分析法は試料を中性子、荷電粒子および光子等で照射し、試料中の目的元素を放射性核種に変えた後、その放射能を測定して目的元素の量を求める方法で、1936年に Hevesy と Levi が $^{226}\text{Ra}-\text{Be}$ 線源からの中性子を用いて、Y 中の Dy を分析したのが最初とされている。その後原子炉、加速器等の大きな照射粒子源の開発により、高感度分析法として発展してきた。我国においても昭和32年 JRR-1 の臨界を期に放射化分析の研究が行われるようになり、今日では分析化学の主要な位置を占めるに至っている。Ge(Li) 検出器が一般化する以前の放射化分析法は、検出器の分解能が悪いため、多くの場合分析化学的素養をもつ研究、技術者による化学分離操作が必要であった。しかしエネルギー分解能の高い Ge(Li) 検出器が普及し、さらにはマルチチャンネル波高分析器とコンピューターが直結されるにおよんで、化学操作の必要性も少なくなり、非破壊で同時に数十元素の定量を行うことも可能となった。そのため環境試料、宇宙および地球科学的試料、生物学的試料、高純度物質、考古学的試料、および犯罪捜査のための試料の分析等、広範囲の分野で用いられるようになった。特に機器処理のみで化学分離が不要な方法は機器中性子放射化分析法 (Instrumental Neutron Activation Analysis, INAA) と呼ばれ、多数の試料の分析が容易であるため、環境調査¹⁾ のようなルーチン分析など多方面にわたって利用されている。放射化分析法は方法的にはほぼ完成に近づいた状態にあり、今はもっぱらその応用面に力が注がれているのが現状である。

しかし、近年になり原子吸光分析法、誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma, ICP) 発光分析法等の発展にともない放射化分析法の置かれている状況にやや変化が見られる。特に ICP 発光分析法は多元素同時定量法で、感度も高い上に、従来の発光分析法と異なり、溶液試料を用いるため元素量の較正 (キャリブレーション) が容易である。さらには原子炉のような大型施設を必要としないため急速に普及しつつあり、放射化分析法と一部競合するようになってきた。ICP 発光分析法と放射化分析法の分析感度を比較したものを Table 1 に示す。通常これらの方法間では分析感度の表示法が異なり、ICP 発光分析法では検出限界 ($\mu\text{g}/\text{m}\ell$) で表わすが、放射化分析法ではある一定の条件で照射した場合、目的とする放射性核種の生成量がターゲット元素の量に比例することから、感度は生成放射能を検出可能にするために要するターゲット元素量 (μg) で表わす。表には熱中性子束 $1 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ で計算した中性子放射化分析法の感度²⁾ と、バックグラウンドの 2σ から求めた ICP 発光分析法の検出限界³⁾ を示した。これらの値を単純に比較するには問題があるが、一応目安として、ICP 発光分析法の検出限界 ($\mu\text{g}/\text{m}\ell$) に分析に要する容量 (通常 $3 \sim 5 \text{ m}\ell$) を掛けた値 (絶対検出感度, μg) と比較すれば、表中○印を付けた元素については中性子放射化分析法の感度が高いことになる。改造炉のように熱中性子束 $10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 以上の原子炉を用いる場合、放射化分析法の感度は更に高く放射化分析法特有の利点、i) 分析元素の汚染の影響の少ないこと、および ii) 化学操作を行わない場合が多いので揮発による損失等の恐れが少ない、等の点から当然その重要性はつづくものと考えら

れる。このような中性子放射化分析法の特徴をふまえ、改造炉を使用した中性子放射化分析について考察する。ここでは本レポートの性格上、原子炉の中性子を使った放射化分析について言及し、即発 γ 線を測定する方法、および粒子トラック法についても省略した。

(2) 分析方法について

通常放射化分析法には比較法と絶対法がある。比較法では、試料と既知量の標準試料を同時に照射し、その放射能を標準試料と比較することにより分析する。標準試料としては実験者が自分で調製したもの、あるいは既存の標準物質を用いる。⁴⁾ 現在標準物質は世界各地の機関から頒布されており、放射化分析用としては米国標準局(NBS)⁵⁾の果樹葉(SRM-1571) 仔牛肝臓(SRM-1577)、ハウレンソウ(SRM-1570)、トマト葉(SRM-1573)、石炭(SRM-1632 a, 1635)、フライアッシュ(SRM-1633)等、米国地質調査所の岩石標準試料⁶⁾G-1, G-2, W-1, BCR-1等、及び日本の工業技術院地質調査所の岩石標準試料⁷⁾JG-1, JB-1等が良く使われる。また原研では原子炉材料の標準試料⁸⁾JAERI-ZI~Z16(ジルコニウム, ジルカロイ)、およびJAERI-R1~R9(耐熱合金)を頒布しており、これも利用することができる。

絶対法は一個もしくは数個のフラックスモニターの使用により測定した中性子束等から、計算で元素量を求めるもので、核データの充実とともにその正確さも改善された。またコンピューターの利用とともにデータ処理が簡単になり、INAAに良く用いられるようになった。この方法はフラックスモニターの数により、Monostandard法, Single Comparator法, Multiple Comparator法等と呼ばれる。単一の元素としてはCo⁹⁾, Au¹⁰⁾, Fe¹¹⁾等を用いる方法がある。さらに正確さを向上させるため複数個の標準体を用い、熱中性子束、熱外中性子束及び中性子スペクトルを求める方法が考案された。これはCo-In-Au¹²⁾, Ru(⁹⁷Ru-¹⁰³Ru-¹⁰⁵Ru)¹³⁾, Zr(⁹⁵Zr-⁹⁷Zr)¹⁴⁾, Fe-Ru^{15), 16)}, Co-Au-Lu及びCo-U-Lu¹⁷⁾などが用いられる。このための核データ等の整備も進み、分析値の正確さにもかなりの向上がみられる。Feを用いるMonostandard法による分析例¹¹⁾をTable 2に示す。分析値はNBSの表示値等と非常に良く一致し、正確さは比較法と遜色の無いところまで達している。絶対法では、正確な核データの整備、照射孔、測定器についての特性の測定、コンピューターの分析プログラムの作成、を行えば分析は自動化され、多数の試料の分析が可能になる。従って改造炉においては放射化分析の利用拡大のために、このような分析システムの確立が大いに望まれる。

これらの他にも、放射化分析法の弱点の一つと言われる精度、正確さの低さを高める努力が続けられており、最近安定同位体で希釈する同位体希釈中性子放射化分析法(Isotope Dilution Neutron Activation Analysis, IDNAA)¹⁸⁾が提案された。これは放射化により二種類以上の放射性同位体が生成する元素に対して適用され、同位体組成が天然のものとは異なる濃縮同位体で試料中の分析元素を希釈するとともに、この同位体希釈した試料、天然組成および同位体濃縮した元素を放射化し、それぞれに生成する二種類の放射性同位体の放射能比から試料中の元素量を求めるものである。本法をZr中のHfの分析に適用した例¹⁸⁾では含量1.8 ppmのHfの分析誤差がわずか0.93%であった。このように精度、正確さの点で勝れていることから標準試料の表示値を決めるための分析に適しており、Zr及びジルカロイ標準試料の分析に使用された。¹⁹⁾

また中性子のかわりに光子によるCa, Zn, Ceの放射化分析²⁰⁾にも適用された。

不足当量放射化分析についても多くの研究が行われているがこれについては文献²¹⁾を参照されたい。また放射化分析システムとして国内では武蔵工業大学にGAMA²²⁾という設備が設けられている。近年GAMAが改造され²³⁾さらに使いやすくなった。

(3) 放射化分析の応用

放射化分析の応用面はかなり広く、著者による把握が困難な分野もあるが、改造炉の将来を考慮して検討してみた。改造炉は他の国内の照射機関の原子炉と比べた場合、中性子束が高く、高純度材料の分析にその威力を発揮することが期待される。半導体用の単結晶シリコンの純度は99.999999999% (Eleven Nine) にもなるとされ、この中の極微量の不純物がシリコンの特性に大きく影響することが知られている。特に重金属不純物はライフタイム等に影響するのでその含量に注意がはられるが、この分析に放射化分析が使われる。²⁴⁾ 著者らもJRR-2およびJRR-4を使用してpptレベルまたはそれ以下のAu, Sb, As等28元素を定量した²⁵⁾が、現在これはJRR-2を使用してルーチン的に行われている。また次世代の半導体材料として注目されているGaAsでは、許容される不純物レベルが、化学分析法, SSMS (Spark Source Mass Spectrometry), SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry)の定量下限以下のものもあり、放射化分析にその期待が寄せられている。²⁶⁾ INAAおよび不足当量法を適用した分析も行われている。²⁷⁾ コンピューターのメモリー用のLSIについて、その構成材料に含まれるppbレベルのU, Thからの α 線による、いわゆるソフトウェアの問題が生じ、この問題に放射化分析法は大きくその威力を発揮した。²⁸⁾

原子炉材料中に存在する中性子吸収断面積の大きな元素量は、一般に中性子経済の面からかなり低い値に規制されている。一方放射化分析法では中性子に対する反応断面積の大きな元素ほど感度が高く、原理的にこれらの元素の分析法として最も適している方法といえる。この例には燃料被覆管材料のZr及びジルカロイ中のHfの分析があげられる。ジルカロイ中のHfは100 ppm以下に規制されているが、Hfの化学的性質がZrに非常に似ているため、一般にはその分析は困難である。しかし放射化分析法ではHfのかかなり低い濃度まで簡単に定量できる。それには半減期19 secの^{179m}Hfを測定する方法²⁹⁾、半減期42.45 dの¹⁸¹Hfを抽出クロマトグラフィーで分離して測定する方法³⁰⁾を用いる。¹⁸¹Hfを測定する方法はさらに精度、正確さを向上させるためIDNAA法¹⁸⁾、LINACで作った¹⁷⁵Hfをトレーサーとする方法³¹⁾に改良され、標準試料の分析に使用された。¹⁹⁾ これらの方法とICP発光分析法と比べた場合、例えばHf含量1.8 ppmのZr試料をIDNAA法では0.93%¹⁸⁾、¹⁷⁵Hfをトレーサーとする方法では3.6%³¹⁾、^{179m}Hfを測定する方法では4.5%²⁹⁾の誤差で分析できたが、ICP発光分析法ではこの試料の分析は困難で、30 ppmレベルの試料でもその誤差は10%³²⁾と大きな値を示した。その他、Zr, ジルカロイ中のppbレベルのUの放射化分析法が検討され³³⁾ その方法はJMTR一次冷却水中の放射性ヨウ素の発生源の探索過程において、原子炉構造材料中の微量Uの分析にも適用された。その結果中性子反射体のBeが主な発生源であることをみいだした。³⁴⁾ さらに黒鉛、耐熱合金中の微量不純物の分析^{35)~37)}、および原子炉の腐食生成物(クラッド)の分析³⁸⁾にも放射化分析法は応用されている。

動物、植物等の生体試料関係の分析³⁹⁾も盛んに行われており、特にがんの成因と微量金属の

関係に関心が持たれるなど、医学関係への応用が注目されている。例えば人体の必須元素で知られているSeは発がんリスクとの関係で現在注目されている。しかし、生体試料中のSeを原子吸光分析法、及びICP発光分析法で分析する場合は試料の分解の際蒸発による損失のおそれがあるため、試料の分解を必要としないINAA法が適切な分析法と期待される。Seの放射化分析法としては短寿命の ^{77}mSe （半減期17 sec）を測定する方法^{40,41)}がある。この方法では短時間に多くの試料の分析が可能であり、好都合である。改造炉においては特に短寿命の放射性核種による放射化分析用の設備が充実されるので、大いにこの方面からの利用が考えられる。

放射化分析法は一般の自然科学の分野にも広く応用されている。例えばアクチバブルトレーサーを用いる研究では、さけの回遊をEuを用いて調べた研究^{42), 43)}が有名であるが、農業関係^{42), 43)}及び大気汚染物質の移動拡散の調査^{44), 45)}にも利用されている。また、琵琶湖に生息する生物、堆積物及び水等の放射化分析から、琵琶湖の環境と化学成分の関係を調べ、過去の堆積環境の解析を行った研究⁴⁶⁾もある。さらに大きな話しではあるが、恐竜等が絶滅したのは約6500万年前に小天体が地球に落下して、地球の環境が変化したためである、という説⁴⁷⁾がIrの放射化分析の結果から発表されたことは有名である。その他考古学的試料の放射化分析による産地推定⁴⁸⁾及び犯罪捜査の試料の分析等広く用いられている。

(4) おわりに

現在原子炉を使った放射化分析法はかなり広い分野にわたって使われており、ICP発光分析法、原子吸光分析法、SSMS、SIMS等の新しい分析法が開発された現在でも依然として感度、正確さおよび操作性等の点からその重要性はゆるぎないものである。特に改造炉のような高中性子束炉を用いる場合においてはしかりである。さらに放射化分析法による生体試料及びアクチバブルトレーサー法等による分析では、多数の試料の分析を要求されることが多い。このためには改造炉において絶対法による自動分析法の確立が強く望まれる。

参 考 文 献

- 1) 狐塚 寛ほか：“放射化分析による環境調査 微量・多元素・同時分析の手法”，日本アイソトープ協会（1976）。
- 2) 日下 譲，平井昭二：“核現象と分析化学”，化学総説，No.29 第3章“放射化分析”，日本化学会編，学会出版センター，P.43-62（1980）。
- 3) V.A. Fassel, R.N. Kniseley : Anal. Chem., 46, 1110A (1974)。
- 4) R.A. Nadkarni, G.H. Morrison : J. Radioanal. Chem., 43, 347 (1978)。
- 5) NBS Standard Reference Materials Catalog 1979-80 Edition, NBS Special Publication 260 (1979)。
- 6) F.J. Flanagan : Geochim. Cosmochim. Acta, 37, 1189 (1973)。
- 7) 安藤 厚：ぶんせき，1984, No.8, 597。
- 8) 日本原子力研究所 核燃料・炉材料等分析委員会編：JAERI-4050 (1969)；JAERI-1249 (1977)；JAERI-M 83-241 (1984)；JAERI-M 85-038 (1985)。
- 9) F. Girardi, G. Guzzi, J. Pauly : Anal. Chem., 37, 1085 (1965)。

- 10) J.I. Kim, H. J. Born : J. Radioanal. Chem., 13, 427 (1973).
- 11) Shu-De Tu, K.H. Lieser : J. Radioanal. Nucl. Chem., 81, 345 (1984).
- 12) F. De Corte, A. Speecke, J. Hoste : J. Radioanal. Chem., 3, 205 (1969) ; 9, 9 (1971).
- 13) R. Van der Linden, F. De Corte, J. Hoste : J. Radioanal. Chem., 20, 729 (1974).
- 14) A. Simonits, F. De Corte, J. Hoste : J. Radioanal. Chem., 31, 467 (1976).
- 15) P.F. Schmidt, D.J. McMillan : Anal. Chem., 48, 1962 (1976).
- 16) P.F. Schmidt, J.E. Riley, Jr., D.J. McMillan : Anal. Chem., 51, 189 (1979).
- 17) M. Koyama, R. Matsushita : Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ., 58, No.2, 235 (1980).
- 18) C. Yonezawa, T. Komori : Anal. Chem., 55, 2059 (1983).
- 19) 日本原子力研究所 核燃料・炉材料等分析委員会編 : JAERI-M 85-038 (1985).
- 20) K. Masumoto, M. Yagi : J. Radioanal. Chem., 79, 57 (1983).
- 21) 鈴木信男 : ふんせき, 1983, No 10, 807.
- 22) Y. Murata, S. Hirai, K. Okamoto, H. Kakihana : J. Radioanal. Chem., 36, 525 (1977).
- 23) 鈴木章悟, 飯島伸一, 平井昭二 : 第 27 回放射化学討論会講演要旨集, P. 38, 名古屋 (1983).
- 24) 菊地 光 : “半導体プロセス材料実務便覧”, 第 2 節 “I. 高純度シリコン”, サイエンスフォーラム刊, 原 徹, 柏木正弘編, P. 28-47 (1983).
- 25) 米沢仲四郎, 榎井 積 : 未発表, 日本原子力研究所 (1980).
- 26) 小川智哉, 干川圭吾 : 日本学術振興会結晶加工と評価技術第 145 委員会第 26 回研究会資料, P. 1 (1984).
- 27) 小林健二 : 日本学術振興会結晶加工と評価技術第 145 委員会第 26 回研究会資料, P. 71 (1984).
- 28) 工藤 冽ほか : Radioisotopes, 31, 490 (1982).
- 29) 米沢仲四郎, 高島教一郎 : JAERI-M 8268 (1979).
- 30) 米沢仲四郎, 田村 則, 大西 寛 : 分析化学, 23, 764 (1974).
- 31) 米沢仲四郎 : 分析化学, 33, 336 (1984).
- 32) 日本原子力研究所 核燃料・炉材料等分析委員会編 : JAERI-M 85-028 (1985).
- 33) 米沢仲四郎, Md. Abdullah : 第 17 回理工学における同位元素研究発表会講演要旨集, P.49, 東京 (1980).
- 34) 横内猪一郎, 比佐 勇, 米沢仲四郎, 山本克宗, 田中 勲 : 日本原子力学会「昭 60 年会」講演要旨集, 第 II 分冊 P.115, 東京 (1985).
- 35) 米沢仲四郎, 田村 則, 大西 寛 : 分析化学, 22, 437 (1973).

- 36) N. Tamura : Z. Anal. Chem., 278, 283 (1976).
- 37) N. Tamura : J. Radioanal. Chem., 36, 29 (1977).
- 38) M. Hoshi ほか : J. Nucl. Sci. Tech. 投稿中
- 39) 例えば, 文献 2) 及び小山睦夫: ふんせき, 1984, No.12, 906 (進歩総説).
- 40) D.M. McKown, J.S. Morris : J. Radioanal. Chem., 43, 411 (1978).
- 41) 平井昭二, 蟻川芳子, 小沢竹二郎: 分析化学, 28, 738 (1979).
- 42) 渋谷政夫: ふんせき, 1981, No.6, 374.
- 43) 渋谷政夫: 生態化学, 5, No.4, 21 (1983).
- 44) 富永 洋, 今橋 強, 立川 登, 大歳恒彦: 第19回理工学における同位元素研究発表会講演要旨集, P. 38, 東京(1982).
- 45) 今橋強ほか: 第20回理工学における同位元素研究発表会講演要旨集, P. 98, 東京(1983).
- 46) 小山睦夫, 高松武次郎, 川嶋宗継: 原子力工業, 26, No.6, 48 (1980).
- 47) L.W. Alvarez, W. Alvarez, F. Asaro, H.V. Michel : Science, 208, 1095 (1980).
- 48) 馬淵久夫 : Radioisotopes, 28, 107 (1979).

Table 1 Comparison of analytical sensitivity between neutron activation analysis and ICP emission spectrometry

元素	NAA* 感度, μg	ICP** 検出限界, $\mu\text{g/ml}$	元素	NAA* 感度, μg	ICP** 検出限界, $\mu\text{g/ml}$
F	0.06	—	○ In	0.000004	0.03
○ Na	0.0003	0.0002	○ Sn	0.02	0.3
Mg	0.02	0.0007	○ Sb	0.0008	0.2
○ Al	0.0004	0.002	○ Te	0.001	0.08
○ Cl	0.002	—	○ I	0.00006	—
○ Ar	0.00006	—	○ Xe	0.001	—
○ K	0.002	—	○ Cs	0.00007	—
Ca	0.06	0.00007	Ba	0.1	0.0001
○ Sc	0.002	0.003	○ La	0.0003	0.003
Ti	0.02	0.003	Ce	0.02	0.007
○ V	0.00003	0.006	○ Pr	0.0001	0.06
Cr	0.02	0.001	○ Nd	0.0009	0.05
○ Mn	0.000006	0.0007	○ Sm	0.00005	0.02
Fe	8	0.005	○ Eu	0.0000004	0.001
○ Co	0.00001	0.003	○ Gd	0.001	0.007
○ Ni	0.001	0.006	○ Tb	0.004	0.2
○ Cu	0.0001	0.001	○ Dy	0.0000003	0.004
Zn	0.03	0.002	○ Ho	0.00003	0.01
○ Ga	0.0002	0.014	○ Er	0.00007	0.001
○ Ge	0.0004	0.015	○ Tm	0.002	0.007
○ As	0.0002	0.04	○ Yb	0.0004	0.0009
○ Se	0.001	0.03	○ Lu	0.00001	0.008
○ Br	0.0009	—	○ Hf	0.0003	0.01
○ Kr	0.003	—	○ Ta	0.007	0.07
○ Rb	0.005	—	○ W	0.0002	0.002
Sr	0.001	0.00002	○ Re	0.00003	—
Y	0.0002	0.0002	○ Os	0.0005	—
Zr	6	0.005	○ Ir	0.00002	—
Nb	0.001	0.01	○ Pt	0.003	0.08
Mo	0.01	0.005	○ Au	0.00005	0.04
○ Ru	0.002	—	○ Hg	0.001	0.2
○ Rh	0.00002	0.003	Tl	0.9	0.2
○ Pd	0.0002	0.007	○ Th	0.0001	0.003
○ Ag	0.00002	0.004	○ U	0.0001	0.03
Cd	0.03	0.002			

* 日下, 平井の計算値²⁾で熱中性子束 $1 \times 10^{13} \text{ n, cm}^{-2}, \text{ sec}^{-1}$ 及び熱外中性子束 $2 \times 10^{11} \text{ n, cm}^{-2}, \text{ sec}^{-1}$ で1時間照射し, 半減期1分以下のものは200 dps 1分~1時間のものは20 dps, 1時間以上のものは2 dps の放射能を生成するための元素量 (μg) を示す。

** Fassel, Kniseley³⁾の値で, バックグラウンドの標準偏差の2倍の値。

○ 印は放射化分析の方がより高感度で分析出来る事を示す。

Table 2 Analytical results¹¹⁾ for standard reference materials of orchard leaves (NBS SRM-1571) by the monostandard method

Element	Contents, ppm	
	Fe-monostandard	NBS value 等
As	11.0±2.9	10±2
Ba	47.3±2.7	46.3
Br	10.6±1.5	9.14
Ca(%)	2.14±0.11	2.09±0.03
Ce	1.03±0.07	1.0
Co	0.17±0.01	0.17
Cr	2.7 ±0.1	2.6±0.3
Cs	0.032±0.008	0.031
Eu	0.026±0.005	0.026
Fe	300 ± 23	300±20
Hg	0.122±0.028	0.155±0.015
K(%)	1.42±0.23	1.47±0.03
La	1.17±0.15	1.24
Rb	14±1	12±1
Sb	2.9±0.3	2.9±0.3
Sc	0.062±0.003	0.068
Sr	35.2±4.9	37±1
Zn	24.7±1.5	25±3

2.3.2 大学開放研究室における放射化を利用した研究

原研共同利用大学開放研 伊藤泰男

大学開放研究室で行われている照射研究のほとんどは中性子放射化を利用するものである。その中でも特に研究用の RI を生産することを目的としたものの以外のもをここで簡単に例示する。

(1) 放射化分析

放射化分析の一般的な動向については前節にあるので、ここでは大学開放研究室で行われているものに限定して述べる。

放射化分析の手法を開発する類いの研究は最近ではほとんど無い。これは従来の方式での放射化分析自体には基礎研究の余地が殆んど残されていないことを示していると思われる。放射化分析手法の開発の観点から行われた最近の例ではこれまでに試みられていない核種（例えば fall-out 核種 ^{129}I ）を検出する試みがされているくらいのものである。手法としての放射化分析に開拓の余地があるとすれば、短寿命核種の放射化分析法の研究であろう（後述）。また最近イオンビームを用いた微量元素分析（例えば PIXE）が盛んになるにつれて、感度・得失の比較などの観点から放射化分析法が比較検討されている。

放射化分析法は微量元素分析の標準的な手法としての位置を確立したことを反映して、放射化分析をテーマにした研究課題は、以下に示すような雑多な分野にわたっている。放射化分析を利用する研究者はその道の専門家ではない場合が多くなっているから、多くの人に使いやすい形で放射化分析法のルーチン化を計っていかなければならない。

宇宙科学分野，地球化学分野

宇宙塵，惑星間物質，いん石

岩石－水系におけるウランの挙動，海底土の分析，温泉水の元素分析

珪酸塩岩石中の元素分析，南極大陸における物質収支

考古学分野

古文化財の放射化分析，繭，絹の放射化分析

年代測定（フィッシュトラック法を含む）

環境科学分野

琉球亜熱帯土壌，植物の微量分析

エアロゾルの組成，環境中の粉塵の挙動

生体試料

生体内微量元素分析，藻類によるイオン取り込みの研究，食品中の微量元素分析

医学試料

腎透析患者の毛髪中の微量元素分析

材料中の不純物分析

純物質のキャラクタリゼーション，人工鉱物の不純物分析

アクチバブルトレーサ的な利用

ゼオライトに吸蔵されたクリプトンの定量

ゼオライトに固定化されたヨウ素の定量

(2) 短寿命核種を用いる放射化分析

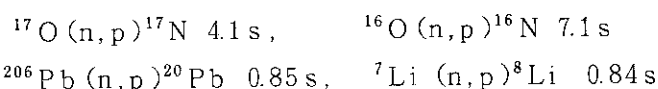
半減期が5～10分程度までの短寿命核種 (^{66}Cu 5.1 m, ^{29}Al 6.6 m, ^{80}Br 17.6 m, ^{101}Mo 14.1 m等) は大学開放研究室でも行われてきた。しかし照射試料の取り出しを経て、コンテナ詰め、開放研究室への運搬、カプセル開封、測定に至る時間は10分近くあるのでこれよりも短い寿命の核種を用いた放射化分析は行えない。その上、数多くの照射試料をこのように人力で運搬するのは前近代的である。

研究用原子炉のon site に測定室が整備されていることが望ましい。同時に既に述べたように、誰にでも使えるルーチン化されたシステムでなければならない。

このような短寿命核種放射化分析システムでは、分オーダーの核種の分析が可能になり、 ^{28}Al (2.3 m), ^{52}V (3.8 m), ^{37}S (5.1 m), ^{108}Ag (2.4 m), ^{192}Ir (1.4 m) などの分析が行われるようになるであろう。

これよりも更に寿命の短い核種を用いて分析を行いたい場合もある。1分以下の半減期の核種を用いて放射化分析する場合には、操作の迅速性は当然のこととして繰り返し照射が可能でなければならない。また解決されなければならない問題として、測定器の不感時間の変動に対する補正法の開発、カプセルの純度の問題、バックグラウンドを出来るだけ小さくすることなど研究課題は多い。原理的には中性子束の高い方が短寿命核種の放射化分析の感度が上がるが、高い中性子束は種々の理由でバックグラウンドを高める結果をもたらすようである。放射化の少ない高純度の材料を用いて気送管系を構成することを考えるか、あるいは低い中性子束の場を利用してバックグラウンドを小さくし、繰り返し測定によって計数をかせぐ方法をとるかいずれかで解決されるであろう。いずれにしても、1分程度以上の核種を扱う放射化分析と1分以下の核種を扱う放射化分析とでは、同じ短寿命放射化分析とはいっても本質的にシステムと手法が異なると思われる。

1分以下の半減期の核種を用いる放射化分析として、次のようなものが考えられている。



また、 ^{225}U , ^{238}U , ^{232}Th などを短時間照射したあと遅発中性子を測定するような手法を開発すれば、アクチノイド元素の分析にも応用を広げることが出来る。

(3) 放射化を利用した応用研究

オートラジオグラフィーを応用した研究は少なくなりつつあるが、最近行われた興味ある研究では、「退色した写真の救済」の実用研究がある。これは古くなって黄ばんだり輪郭の明瞭でなくなった写真中に残存する銀の粒子に着目し、これを原子炉照射で放射化して生成する $^{110\text{m}}\text{Ag}$ をオートラジオグラフィーの手法でX線フィルムに転写するものである。かなり鮮明な画像を回復することができる。このような実用的な研究がより多くされることが望まれる。

(4) ホットアトム化学

ホットアトム化学の研究の件数も最近減少しつつあるが、基礎化学としても重要な分野であることに変わりはない。ホットアトム化学反応生成物の分布を調べる古典的なホットアトム化学の限界を乗り越えるものとして、種々のアプローチがされている。EC壊変に伴って放出されるKX線エネルギーの精密分析、 $K\alpha/K\beta$ 線の強度比に及ぼす化学的效果、などが上げられる。

一方、最近核融合研究が盛んになっているのに伴って、トリチウム化学の研究が多くなっている。これは、リチウムに中性子を照射してトリチウムを生成させ、その回収や取り扱い技術进行研究する実用的研究と、トリチウムの反跳エネルギーを利用してインプランテーションによる化学反応の研究を行うものに大別される。ホットアトム化学の視点では後者が重要であるが、例えば ${}^6\text{Li}(\text{n}, \alpha)\text{T}$, ${}^3\text{He}(\text{n}, \text{p})\text{T}$ 反応を種々の有機物の存在下で行わせ、生成物中のトリチウムの分布を分析するものである。この研究ではトリチウムを含む化合物の生成機構を調べる。

トリチウムを含む化合物が、トリチウムの β^- 壊変に伴ってどのような化学形に変化していくかを調べることもホットアトム化学の重要なテーマであり、Decay induced ionchemistry(壊変誘起イオン化学とでも訳すか)という一分野を形づくっている。

ホットアトム化学の研究の発展のためには、炉内照射のような混合放射線場でなく、純粋な中性子場の開発が望まれる。

2.3.3 放射化分析の農林水産分野への利用

農業環境技術研究所 結田康一

農林水産分野において放射化分析は、基本的には微量元素等各種元素の高感度分析法として利用されている。

しかし、単に感度が他法に比べて高いというだけでは必ずしも利用されず、化学分離操作を省略して機器測定だけで簡単に分析できるという事が利用の大きな条件になる場合が多い。これは、この分野では分析すべき試料が膨大な数に達する事が多く、迅速・簡便な方法でないと利用しがたいためである。従って化学分離操作を省いた非破壊法が適用できる時には、他法に比べて感度が高くなくても本法を利用する例が少なくない。

最近の放射化分析利用の概要は、従来からの高感度分析法としての利用がさらに前進していることと、アクチバブルレーザー法の開発とその利用研究が著しく増大していることに要約される。

ここでは、日本原子力研究所（東海）内におかれている農林水産省試験研究機関の共同利用施設である農業環境技術研究所（農環研）開放研究室での研究を中心に最近の利用研究の概況を述べる。

(1) 高感度分析法としての利用

最も利用率が高いのは農環研の「ハロゲン元素の土壌・植物系における動態」研究への利用である。ハロゲン元素の中でもヨウ素と臭素の放射化分析法の定量感度と精度はきわめて優れており、この特徴を生かしなおかつ簡便・迅速に定量できる実用的放射化分析法が、土壌、植物、土壌溶液および雨水を対象に確立された。¹⁾ Table 1 に示すごとく、化学分離操作を省略できる非破壊法が適用できるもの、ハロゲン属としての化学分離が必要なもの、目的元素のみに単離する化学分離が必要なものに、各種試料の分析結果を通じて仕分けされた。又、放射化分析に用いた原子炉や熱中性子束を Table 2 に示す。

この分析法を用いて我国の土壌および植物中ヨウ素、臭素および塩素含量を明らかにし、^{2,3)} さらに現在世界各地の試料についてのデータが集積しつつある。その中で、Table 3 に示すごとく、我国の土壌は水田を除くと、ヨウ素と臭素含量が世界的に例をみないほど高いこと。しかしそこに生育する植物中両元素含量は平均的レベルにすぎないことなどを明らかにした。

さらに土壌溶液中ヨウ素および臭素について研究し、通常の畑水分下では土壌中高含量両元素はきわめてわずしか土壌溶液中に溶出してこないが、乾燥したり、逆に湛水状態になると著しく溶出し、特に湛水下では3～4桁も溶出率が増加すること。従って両元素高含有土壌が開田、水田の基盤整備などで湛水下におかれると著しく溶出率を増大させ水稻等植物に大量に吸収され過剰吸収害が生ずる一方、土壌下層に溶脱して数年もすれば土壌中含量が熟田なみに低くなること。さらに水分以外の環境因子とヨウ素、臭素および塩素の土壌からの溶出や土壌への吸着、土壌溶液中ヨウ素の化学形態などを明らかにし、湿潤気候下の我国の土壌が、海水起源で大気経由で土壌に負荷されたヨウ素と臭素を他に例をみないほど高濃度に集積したのか、その理由を究明しつつある。さらに実際問題として、臭化メチル等含臭素農薬の土壌くん蒸・消毒に起因する作物、土壌、地下水の臭素残留の実態を、食品中臭素残留規準との関連で明らかにした。⁴⁾ その中で、土壌くん蒸・消毒は作物の残留規準値を上まわる臭素吸収を引き起こすこと。土壌残留は

Fig. 1に示すごとく比較的少ないが、地下に滲透するものが全施肥量の90%にも達し地下水を汚染させることなどを明らかにした。また、全国で多発している水稻の赤枯れ病（ヨウ素過剰吸収による）の原因究明と対策研究にも、関係県農業試験場からの協力要請に、放射化分析法を駆使して答えてきた。

以上、ハロゲン元素の研究例について述べたが、マンガン、セレン、クロム、亜鉛、コバルト、セシウムなどの微量金属元素についても、農環研、畜産試験場、北海道農試、九州農試などにおいて、それぞれ土壌、植物、家畜等を対象とした非破壊法の確立とその利用研究、例えば土壌・植物・家畜系における動態研究⁵⁾などが行われている。

(2) アクチバブルトレーサー法としての利用

1) 魚類追跡

稚魚をアクチバブルトレーサーで標識し、一定期間後成長魚を捕獲し、魚体中アクチバブルトレーサーを放射化分析法で分析し、標識魚の識別、追跡をする方法である。現在までに研究対象となった魚種は、サケ、マス、マダイ、ヒラメなどであり、いずれも水産庁の遠洋水産研究所を中心に研究が進められ、現在も続行中である。白サケの例⁶⁾を述べると、石狩川支流の千歳川で人工ふ化させた稚魚120万尾にユウロピウム(Eu)の塩化物を混入した餌料を投与して約1ヶ月間飼育した後河川に放流した。その後河川や海より白サケを捕獲し、鱗10枚程度を採取して、JRR-4で20分間照射し、数ヶ月冷却して妨害核種の影響を可及的に少なくした後、¹⁵²Eu(半減期12.7年)の光電ピークエリアよりEuを定量した。この非破壊法による分析結果より、放流後14ヶ月でもEuが検出され降海後の沿岸滞泳期の状況も追跡できた(Fig. 2)。

マダイの場合はイリジウム(Ir)を用い、¹⁹²Ir(半減期74.7日)の非破壊法より追跡したが、1400日越えてもIr 0.1ppm以上の高濃度蓄積が認められ、生涯を通じての追跡が可能と推定された。

この手法の魚類資源追跡調査、栽培漁業技術開発等実用面で果す役割は今後ますます大きくなると考えられ、すでに栽培漁業協会等生産者レベルで養殖した魚種苗放流効果を知るため、放流後の種苗の回遊・成長の追跡などに実際に用いられている。

2) 牛等家畜の餌消化試験

新飼料の飼料価値評価の一環としての消化試験に、希土類元素等のアクチバブルトレーサー利用可能元素が、不消化性の指示物質(インナートーカー)であることを利用したアクチバブルトレーサー法が、畜産試験場や東北農業試験場で行われつつある。具体的には、インナートーカーとしてジスプロシウム(Dy)酸化物を添加した大麦ホールクロップサイレーズなどの新飼料を牛に給与し、糞及び飼料を武蔵工大原子力研究炉($1 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)の気送管で15秒間照射し、^{165m}Dy(半減期139分)及び¹⁶⁵Dyを非破壊分析して新飼料の消化率を明らかにした。

3) 土壌水の滲透追跡

土壌水の土壌表層から下層への滲透速度および量を把握するのに、土壌に吸着されがたく、土壌水中バックグラウンドが低いBr⁻を土壌水のトレーサーとして選択し、土壌中の任意の深さの土壌水を随時採取できる装置を開発して、これによって土壌水を経時的に採取してその中の

臭素を非破壊分析することによって追跡する手法が農環研で開発された。⁷⁾ 同法の現地適用例について述べる。神奈川県箱根山麓の火山噴出物起源土壌からなる2地点の林地(1つは礫質、もう1つは壤質土壌)に、土壌水採水管を深さ20 cm毎に300 cmまで埋設し随時採水できるようにした後、土壌表層から Br^- 水溶液を人工雨として散水した。その後経時的に採水し、0.1 ml づつろ紙にしみ込ませたものをJRR-2又はJRR-4気送管又はTパイプで約3分間照射した後1~3日冷却し、 ^{82}Br (半減期36時間)の光電ピークよりBrを非破壊分析した。得られた臭素濃度分布より求めた土壌水の浸透速度および浸透率(降水の地下浸透率)は、礫質土壌: 1500 cm/年, 80%, 壤質土壌: 220~270 cm/年, 60%で、先に谷田部町の壤粘質土壌について得られた80 cm/年, 38%に比べていずれもはるかに大きく水かん養機能が大きいことがわかる。

なお、農業土木試験場では現在地下水の移動追跡に、希土類元素等のキレート化合物を用いたアクチバブルトレーサー法の開発研究に取り組んでいる。

4) 圃場における作物の根活力分布検診

圃場に生育中の作物の根活力(養分吸収力)の土壌中での立体的分布を明らかにする手法として、アクチバブルトレーサー法の開発とその利用研究が、農環研、草地試験場、果樹試験場、各地域農業試験場や県農業試験場で展開されつつある。

農環研と兵庫県農試との共同研究例⁸⁾をあげると、キャベツ産地農家を対象に、キャベツ連作圃場と隣接する非連作圃場を対比させ、結球肥大期に根検試薬(塩化ユウロピウムを寒天糊状液に溶かしたもの)を、注入器によって土壌中の設定位置に注入した。15日経過後キャベツ外葉をごく少量採取し、JRR-2気送管で3分間照射し約1ヶ月間冷却後 ^{152}Eu の非破壊分析によりEuを定量し、Fig. 3に示すような根活力分布図を得た。連作圃場では株直下とそのごく周辺のみが根活力が高いのに対し、非連作圃場では広範囲にわたり活力根が分布しており、施肥および地力養分を効率よく吸収することがうかがえる。

キャベツ以外にも各種野菜、稲、大豆、牧草、さらに根分布域が広く根活力分布検診が偉力を発揮すると思われるブドウ、ナシなどの果樹も研究対象にあげられており、これら作物の施肥法や土壌管理法の改善に寄与すると思われる。

以上、放射化分析利用研究の現況を述べたが、まだまだ利用面の拡大と深化が期待されており関係者の一層の努力が要求されている。

参 考 文 献

- 1) 結田康一: 土壌, 植物, 土壌溶液および雨水中ヨウ素, 臭素および塩素の放射化分析法, 農技研報B, 35, 73~110(1983).
- 2) 結田康一・信沢由美子・赤部誠一・渋谷政夫・麻生末雄: 三面川(新潟県)および長良川流域の土壌および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量, 土肥誌, 55, 62~70(1984).
- 3) 結田康一: 本州中央部の黒ボク土壌および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量, 土肥誌, 55, 117~122(1984).
- 4) 結田康一: 土壌くん蒸・消毒剤による農作物, 土壌および地下水の臭素残留・汚染, 生態化

学, 7, 3~12 (1984).

- 5) 小山雄生・宮本 進・須藤まどか・菊地武昭・高橋政義・久馬 忠：土壤-植物-家畜系におけるセレンの動態について, 土肥誌, 55, 395~399 (1984)
- 6) K. Kato : Recent Information on Europium Marking Techniques for Chum Salmon, Proceedings of the eleventh U.S.-Japan meeting on aquaculture, salmon enhancement, Tokyo, Japan, October 19-20, 1982, p.67-73, NOAA Tech. Rep. NMFS 27.
- 7) 結田康一・渡辺久男・木方展治・渋谷政夫・鬼鞍豊・野 正：アクチバブルトレーサー法による土壤水の追跡技法の開発, 武蔵工大原子力研究所報, 5 (特集号), 34~39 (1983).
- 8) 渋谷政夫・二見敬三・藤井 浩：圃場における連作キャベツの根活力分布検診, 土肥誌, 56, 59~61 (1985)

Table 1 Classification of the non-destructive, group separation and isolation method

Element Sample	Iodine	Bromine	Chlorine
Soil	<u>Non-destructive</u> (over 10%30 ppm I) <u>Group separation</u> (below 10%30 ppm I)	<u>Non-destructive</u> (over 10%20 ppm Br) <u>Group separation</u> (below 10%20 ppm Br)	<u>Non-destructive</u> (over 200 ppm Cl) <u>Group separation</u> (below 200 ppm Cl)
Plant	<u>Non-destructive</u> (over 3%6 ppm I) <u>Isolation</u> (below 3%6 ppm I)	<u>Non-destructive</u>	<u>Non-destructive</u>
Soil solution and Rain water	<u>Isolation</u>	<u>Non-destructive</u> and Group separation	<u>Non-destructive</u> and Group separation

Non destructive: Without chemical separation

Group separation: Simultaneously separating iodine, bromine and chlorine

Isolation: Iodine isolation with chemical separation

— : Main method

Table 2 Reactor and thermal neutron flux for the neutron activation analysis of the halogen element

Sample Irradiation	I and Cl in the soil and plant (non-destructive)		Br in the soil and plant (non-destructive) I, Br and Cl in the soil and plant (group separation, isolation)	I, Br, Cl in the soil solution and rain water (non-destructive, group separation and isolation)
	Rikyo University and Musashi Institute of Technology Triga-II reactor		Japan Atomic Energy Research Institute JRR-2, JRR-3 Kyoto University KUR reactor	Japan Atomic Energy Research Institute JRR-4
Flux of the thermal neutron	5×10^{11} n/cm ² ·sec (Rikyo) 4.4×10^{11} n/cm ² ·sec (Musashi)		5.4×10^{13} n/cm ² ·sec (JRR-2) 1.8×10^{13} n/cm ² ·sec (JRR-2) 1.9×10^{13} n/cm ² ·sec (KUR)	8×10^{13} n/cm ² ·sec
Irradiation time	2~5 min.		2~15 min.	20 min.

Table 3 The average content of iodine, bromine and chlorine in soils and plants

Land utilization	Soil horizon	Number of samples	ppm/dry soil			Plant species	Number of samples	ppm/dry leaves		
			Iodine	Bromine	Chlorine			Iodine	Bromine	Chlorine
Forest lands	Aoo	[34]	3.2	14	343	Arbors	[70]	0.45	7.2	1580
	Ao	[31]	12	37	198	Herbs	[51]	0.53	23	6230
	A	[103]	43	104	117	Average of the total plants	[121]	0.49	14	3540
	B	[40]	32	59	69					
	C	[13]	7.2	14	32					
Upland fields	Plow horizon	[21]	43	95	113	Arbors	[8]	0.25	14	2380
						Herbs	[15]	0.98	74	7959
						Average of the total plants	[23]	0.73	53	6018
	Plow horizon	[31]	1.8	5.3	52	Rice plants	[30]	0.83	20	3880
	Upper subsoil	[28]	2.1	4.8	47					
	Lower subsoil	[16]	2.7	2.9	39					
World (average)	Surface soil		5.0	5.0	100	Total plants		0.42	15	2000

* Bowen (1966)

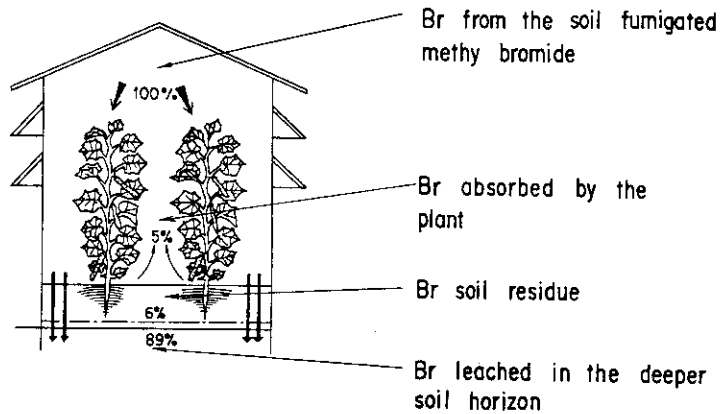


Fig. 1 Income and outgo of the bromine originated in the soil fumigated methyl bromide in the vinyl house.

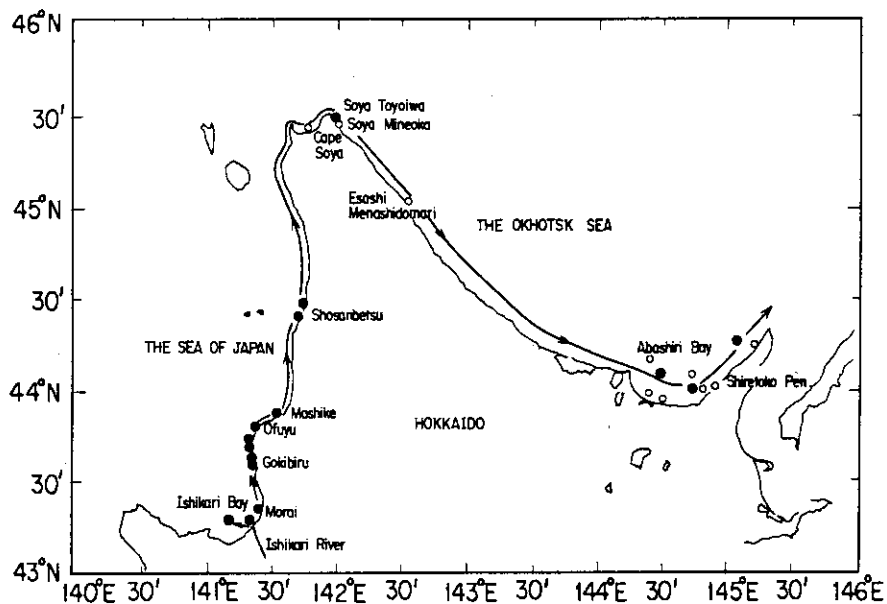


Fig. 2 The sampling stations of chum salmon juveniles (shown by open and closed circles), 1979. Closed circles mean europium-marked fish were obtained. Arrows indicate estimated migration route of chum salmon juveniles originating from Ishikari River System.

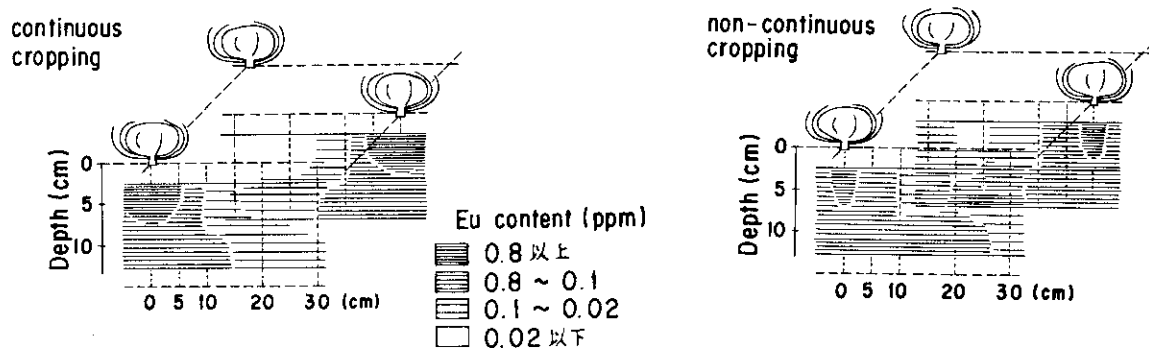


Fig. 3 Root activity distribution of cabbage.

2.4 RI 製造の最近の動向

2.4.1 RI の製造

原研アイソトープ部 山林尚道

(1) RI 製造開発の経緯

アイソトープ部では昭和31年原研設立以来、独自の技術開発を積み重ねて、多くの精製 RI、線源 RI 及び有機標識化合物の製造技術を開発してきた。 ^{132}Cs 、 ^{237}Pu など加速器で製造する一部の核種を除き、大部分の RI 製品は原子炉の中性子照射によって製造している。原子炉は大量の中性子が長期間にわたって利用できる優れた中性子源であり、その中性子による (n, γ) 、 (n, p) 、 (n, α) 、 (n, f) 反応等を利用して、医療用、工業用、学術研究用などの数多くの RI を製造頒布している。このため RI の製造技術の開発は原子炉の開発の歴史と表裏一体をなして発展して来た。

昭和37年 RI 販売許可の取得と共に JRR-1 を利用し、 ^{24}Na 、 ^{42}K 、 ^{82}Br 、 ^{64}Cu 、 ^{32}P 、 ^{198}Au の6核種の精製 RI 及び21核種の基準照射物質の製造頒布を開始した。

昭和39年にラジオアイソトープ製造棟が竣工し、ほぼ同時に JRR-2 による製造を開始した。さらに昭和41年には JRR-3 の利用が開始されて、製品を32核種に拡大すると共に、製品の放射能も著しく向上した。昭和43年には JRR-4、そして昭和45年には JMTR による製造を開始し、 ^{32}P 、 ^{35}S 、 ^{131}I 、 ^{198}Au の量産体制を整備し、非破壊検査用 ^{192}Ir 線源の製造、 ^{197}Hg 金属水銀の製造技術を確立した。昭和50年には JMTR 照射により $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ を製造し、これを原料として一貫した有機標識化合物の製造を実現することができた。その後、 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応を利用した ^{99}Mo 720 GBq (20 Ci) / バッチ製造、 (n, γ) 法による ^{99}Mo 11 TBq (300 Ci) / バッチ製造、医療用 ^{192}Ir 、 ^{198}Au 小線源製造、トリチウム 3.7 TBq (100 Ci) / バッチ製造と大量の非密封 RI を安全かつ定常的に扱う技術開発を着実に進めている。

(2) RI 製造技術の開発

原子炉による RI 製造技術の開発のためには、(1)利用する核反応の選定、(2)ターゲットの決定、(3)原子炉照射技術の開発、(4)化学処理のためのプロセス及び遠隔操作装置の開発、(5)製品の放射能検定および化学検定技術の開発、(6)輸送容器の開発、(7)大量 RI 取扱い装置、設備の開発などが必要である。これらの技術開発の進展に従って新しい RI 核種が定常生産体制に移行して行くことになる。

アイソトープ部で製造技術を開発した RI を Table 1 に、そして定常化した RI の製造工程を Fig. 1 に示す。

1) 利用する核反応の選定

核反応の選定では、例えば ^{32}P を生成する核反応として、 $\text{Cl}(n, \alpha)^{32}\text{P}$ 、 $\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 及び $\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$ 反応が考えられる。無担体又は高比放射能の製品が要求される場合には、 $\text{Cl}(n, \alpha)^{32}\text{P}$ 及び $\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応を利用する。一方、比放射能は低いが大量の放射能が要求される場合、 $\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$ が利用される。高い同位体純度を必要とする場合には、 $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応では $^{33}\text{S}(n, p)^{33}\text{P}$ 反応の影響をさけられないので、 $^{31}\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$ 反応を利用しなければならない。これらの点を考慮して、製品仕様を満足させる目的核種に最も有利な核反応が選定される。

2) ターゲットの決定

原子炉照射中、物理、化学的に安定で熱分解や放射線分解を起しにくいターゲットが選ばれる。安定度の高い化学形としては金属、酸化物、窒化物、炭酸塩の順であり、形状については線状、板状、粒状、ペレット状成型焼結体、粉末状のいずれかを用いるが、照射中の安全解析や照射後の化学処理と汚染度を考慮して決める。

半減期の短い(n, γ)反応を利用する RI の製造では、照射後時間をかけて精製のための化学分離を行うことは好ましくないので最初から化学的純度の高いターゲットを選ぶ。この場合、あらかじめ表示純度の高い何種類かの市販化学薬品を放射化分析し、最適のターゲット物質を選び、その品質管理を行っている。

3) 原子炉照射技術

RI を製造するためのターゲットには ^{32}P を得るための硫黄のように原子炉照射中、融点(114°C)を越し、溶液状態となり蒸気圧の上昇をとまなうもの、 TeO_2 、 Li のように揮発性の ^{131}I と ^3H の生成をとまなうもの、 Au 、 Ir 、 HgO のように中性子吸収断面積が大きく中性子自己遮蔽効果の大きいもの、ハロゲン化合物のように放射線分解を生じ易いもの等がある。これらのターゲットを安全に照射するためある程度の耐圧及び気密性を有する試料容器及び照射容器(キャプセル)を照射後の誘導放射能や開封方法をも考慮して開発する必要がある。容器内では熱伝導が優れ、そして中性子自己遮蔽効果の影響の少なくなるようにターゲットを配置する。さらに中性子束密度の上下、左右方向の勾配を検討し、均一な製品を確保する技術が必要である。

^{60}Co 、 ^{198}Au のように熱中性子を利用する場合は、熱中性子束密度が高く、かつ安定(制御棒位置による影響が小さく、フラックス・パターションが小さく、再現性が良い)した照射孔が選ばれる。 ^{198}Au の製造では熱外中性子束による $^{198}\text{Au}(n, \gamma)^{199}\text{Au}$ 反応のため放射化学的純度の低下を考慮する必要がある。

$^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ 反応は熱外中性子による放射化断面積も高く、燃料領域に近い照射孔(JRR-2, 3A 孔)で照射する。速中性子を利用する $\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 、 $\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応などでは中性子スペクトルのハードな燃料領域の照射孔を選んでいく。

発熱量が大きい $\text{U}(n, f)$ 反応を利用する UO_2 の照射にはフィン付キャプセルを使用し、冷却効果の高い照射孔で照射する必要がある。

生化学の研究に使用される ^{51}Cr 、 ^{64}Cu は毒性の問題とならない高比放射能製品が要求される。 ^{51}Cr を得るには ^{50}Cr 安定濃縮同位体(濃縮度96%, 天然存在比4.31%)をターゲットとしJRR-2, VT-1実験孔やJMTR第1層照射孔の中性子束密度 10^{14} 領域で照射する方法、又は K_2CrO_4 をターゲットとしJRR-3 VR 孔で照射し、Szilard-Chalmer反応を利用して ^{51}Cr を濃縮する方法がある。前者では13 TBq(350 Ci)/g. Cr, 後者で7.4 TBq(200 Ci)/g. Crの比放射能製品が得られほぼ満足すべき結果を得ている。Szilard-Chalmer反応を利用することによって熱中性子束密度 10^{13} 領域での照射で通常の(n, γ)製品の200~10,000倍の比放射能を有する諸外国に例を見ない高比放射能製品 ^{32}P 、 ^{51}Cr 、 ^{64}Cu を製造することができる。この場合、反跳効果、再結合、放射線分解、アニーリング等を詳細に検討した基礎研究の成果にもとづいてJRR-2, 3, 4による照射技術を確立した。

4) その他の技術開発項目

JRR-3にこだわらず原子炉照射に関連した項目に重点をおき述べてきたが、以下照射後の製造技術開発について簡単にふれる。

a. 化学処理のためのプロセス及び遠隔操作装置の開発

短寿命RI (^{24}Na , ^{42}K , ^{64}Cu , ^{198}Au など)では、照射後化学処理又は詰替作業を数時間で安全・確実に実施することが要求され、作業の単純化と自動化により合理化が進められている。照射済ウランを化学処理し、 ^{99}Mo を得る方法では遠隔操作による溶媒抽出、アルミナカラム処理技術等を完成させると共に、 ^{132}I , ^{131}I , ^{133}Xe 等揮発性RIの安全取扱い技術および大量の核分裂生成物及びウランを含む廃液の処理技術を実用化した。

工業用 ^{192}Ir 製品では、360ヶ/バッチと大量の製品を処理する作業には自動測定仕分け装置を開発した。また ^{197}Hg 製品では、200本/バッチの製品を遠隔希釈配分装置によって製造している。このように特に大量の製品の製造では作業の安全性及び能率を高めると共に、作業者の被曝低減化を実現するための装置の開発が重要である。

b. 製品の放射能検定および化学検定技術の開発

製造した製品の放射能を測定し比放射能や放射能濃度を値付けするための絶対測定技術の開発、電離箱の校正、標準化などの管理方式の実用化が進められるとともに、主元素量、酸性度、不揮発成分など化学検査法を核種ごとに対応して組み上げてきた。最終製品の一部を検定する方法から、製造工程の各ステップでの検定技術の開発を進め、工程管理による製品品質の向上をめざしている。時に大量のトリチウム3.7~37TBq (100~1000Ci)製造において照射後の全放射能を熱量計式測定法で評価する方法で多大な成果を得ている。

c. 輸送容器の開発

JRR-2, 3, 4およびJMTRからの照射済試料を搬入し、また製造した製品を出荷するためのA型及びB型の各種輸送容器(保護容器を含む)を製作・管理している。棟内管理区域内での製品移送容器や廃棄物を移送する容器を用途により開発してきた。特にJRR-2, 3 A孔およびVT-4照射孔での照射済試料をRI棟に直接搬入する移送容器には種々の改善が加えられた。また最近のRI輸送に対する規制の強化に対応して、これらに適合する輸送容器を開発し実用化している。

d. 大量RI取扱い装置、設備の開発

放射性ヨウ素を大量に扱うための活性炭フィルターユニットの設置や照射済核燃料の化学処理にともなう廃液タンクの設置そして、大量のトリチウムを安全に取り扱うためのトリチウム除去装置を製作した。

5) 定常生産の要件

前記の製造技術が確立されたとしても、定常製造を行う上でいくつかの課題がある。

医薬品原料である半減期の短い ^{198}Au ($T_{1/2}=2.7\text{d}$)や ^{99}Mo ($T_{1/2}=66\text{h}$)のような核種では作りだめがきかないので、毎週製造する必要がある。原子炉の稼働率が高く、運転途中に照射試料の交換ができることは勿論、停止期間中でも他の2~3の代替炉が使えない限り定常生産は困難である。JRR-2, 3, 4およびJMTRの運転が絶えまなく行われ、全部一度に停止している期間がないよう運転計画がたてられることを望んでいる。

アイソトープ部の要望と研究炉管理部の多大な協力のもとで、JRR-2, 3A孔およびVT-4照射孔(SPND付)に運転途中試料交換装置を製作、設置することができた。これによって ^{32}P , $(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$, $^{42}\text{K}-2\text{N}$ (高比放射能製品), ^{197}Hg , 医療用 ^{192}Ir , ^{198}Au 線源等を定期的に製造することが可能となった。

(3) 改造3号炉によるRI生産の評価

JRR-3(天然金属ウラン及び二酸化ウラン燃料)は炉心が大きく、中性子スペクトルがソフトで変動が少ない安定した熱中性子束密度の得られるVC孔, VR孔, VG孔, 時間照射孔および気送管などをもち、照射ベッドの大きい原子炉であった。 ^{24}Na , ^{42}K , ^{64}Cu 等短寿命RI, 医療用線源RIそして (n, f) 反応を利用した ^{99}Mo の製造などに定常的に良品の製品を得ることができた。しかし、速中性子束密度が低いため (n, p) , (n, α) 反応を利用する ^{32}P などの製造には不向きであった。サーマルカラムはソフトな線質に優れ、 (n, γ) 反応を利用する場合の副反応生成物を低減するのに適していた。

熱中性子束密度がVC孔でも $2 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ と低く、高比放射能製品はJRR-2, VT-1実験炉やJMTRでの照射へと移行した。他の原子炉にない特記すべきことは、Szilard-Charmer反応を利用した ^{51}Cr の製造(VR孔照射)に適し、JRR-3照射によってのみ定常的な $^{51}\text{Cr}-2\text{R}$ 製品の製造頒布を行うことができたこと、高比放射能医薬品原料 ^{198}Au 製品を毎週出荷するためサイクル途中一時運転を停止し試料交換を行う(VR孔)ことを継続できたことなどであった。

JRR-3を含め、アイソトープ部で取扱った原子炉別放射能量をTable 2に、頒布したRIの年間売上げ高をFig. 2に示す。

改造3号炉は完成後RI製造用専用として気送管($\phi_{\text{th}} = 6 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$), 水力ラビット($\phi_{\text{th}} = 1.1 \times 10^{14} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)が各1本整備される。さらに共用としてRG照射孔($\phi_{\text{th}} = 9 \times 10^{13}$, $\phi_{\text{f}} = 1.5 \times 10^{14} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$), BR照射孔($\phi_{\text{th}} = 1.3 \times 10^{14}$, $\phi_{\text{f}} = 8 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)が各々4本放射化分析用気送管($\phi_{\text{th}} = 3.9 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{max}$)が1本使用可能となる。しかし、現在使用しているJRR-2の3A孔及びVT-4照射孔に相当する垂直孔での運転途中試料交換装置はなく、水力ラビットに頼らざるをえない。気送管及び水力ラビット照射試料は実験利用棟詰替セルに取り出された後、RI棟詰替セルに転送される。

垂直照射孔試料についてはバスケット、リグ、キャプセル等で照射後、炉室詰替セルよりキャスクでRI棟詰替セルに直接搬入するか、ホットラボに搬出し、解体後ホットラボよりRI棟に搬入する。

RIの詰替のため、RI棟東側に約 176m^2 の建屋を建設し、鉄遮蔽厚さ300mmの詰替セルを設置する。実験利用棟詰替セルから転送設備により、気送管及び水力ラビット照射済試料の直接搬入を行う予定である。

現在カタログ化している核種について改造3号炉による生成量の評価を行った結果をTable 3に示す。これに基づき定常生産という立場からアイソトープ部のワーキンググループによって核種ごとに評価を加えた結果は次の通り要約される。

(1) 短寿命RI (^{24}Na , ^{42}K , ^{64}Cu など)

気送管照射により、現行又はそれ以上の品質の製品を最大年36週出荷可能である。

(2) $^{42}\text{K}-2\text{N}$, ^{197}Hg など

水力ラビット照射により現行品質の製品出荷は可能であり、出荷日数も約2倍以上に増加可能である。

(3) 大需要 RI (^{32}P , ^{35}S , ^{51}Cr)

^{35}S 及び ^{51}Cr は BR 照射孔で現行より優れた製品出荷が可能である。 ^{32}P は RG 照射孔による1サイクル照射では生成量に問題が無いが、キャプセル線量が高くなり作業時のセル表面漏洩線量が問題となる。

(4) 中小需要 RI (^{65}Zn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{124}Sb など)

BR 照射孔による数サイクル照射により、優れた品質の製品が得られる。

(5) Szilard-Chalmer 反応を利用した製品 (2R 製品)

γ 線や熱の問題があり、実照射後に判定する。

(6) ^{14}C (A/N)

BR 照射孔を独占することとなるため不適當 (JMTR 優先)

(7) 医療用小線源 (^{192}Ir , ^{198}Au)

気送管、水力ラビット照射により現行品質の製品出荷は可能であるが気送管による長時間照射 (現計画 20 分間まで) の開発が必要である。

(8) ^{60}Co 小線源

水力ラビットにより現行品質の製品出荷は可能である。

(9) 工業用 ^{192}Ir

BR 照射孔 1～3 サイクル照射により、現行品質の製品出荷は可能と考えられるが、反応度、フラックス勾配、出荷時期のタイミングに問題があると思われる。実照射実験が必要である。

(10) 新規開発核種 (^{109}Cd , ^{125}I , ^{153}Gd , ^{155}Eu 等)

原子炉照射条件内で開発を行う。

RI 定常生産面から総括すると、改造3号炉は旧 JRR-3 より優れていて、JRR-2 の代行も可能と思われる。

熱中性子束 $2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 領域が利用でき、しかも稼働率が約 70 % を目標としていることから RI 製品々質面では何ら問題はなく定常生産、安定出荷に大きな期待がよせられている。従来の研究炉にない高い稼働率を生かし、効率良い RI 生産を行うためには改造炉に今後 JRR-2、インコア (3A 孔) や VT-4 照射孔で実現した垂直孔での運転途中試料交換装置を設けることが必要である。

これにより医療用 RI のトップをしめる ^{99}Mo (23.7 TBq/週) を年間 50 週に近い出荷 (JRR-3 で 36 週, JMTR で約 10 週) で供給することが可能となり、懸案となっている国産化が実現することになる。さらに気送管の照射時間を 12 時間程度まで延長できれば、水力ラビット照射と 3 者を組合せて利用することにより、急増している医療用線源 RI (^{198}Au , ^{192}Ir 等) の需要や製品コスト面への改善もかねた安定供給が実現できることになる。垂直孔サイクル照射も含め照射技術が高めることによりばらつきの少ない高品質の製品や生物科学に利用されるより高比放射能の製品が得られると期待されている。

改造3号炉建設と並行して、RI 棟に詰替セルを新設し、キャプセル、リグ、バスケット等長尺試料を直接搬入でき、さらに実験利用棟からは気送管、水力ラビット試料を転送搬入する。詰

替セルではキャプセル類の搬入、切断、解体、詰替、貯蔵、固体廃棄物処理も可能とするほか、従来から使用してきたキャスクによる他の原子炉からの照射試料の詰替も可能とし効率よく安全・確実な作業ができるよう計画を進めている。

Table 1 Radioisotopes produced in JAERI

Processed radioisotopes	Significant demand radioisotopes	^{14}C (37GBq), ^{32}P (560 GBq), ^{35}S (74GBq), ^{51}Cr (370GBq), ^{99}Mo (11TBq), ^{131}I (740GBq), ^{198}Au (1.1TBq)
	Processed radioisotopes	^{24}Na , ^{42}K , ^{82}Br , ^{65}Zn , ^{75}Se , ^{124}Sb , ^{197}Hg , Other 23 Nuclides
	Radioisotopes by means of Szilard-Chalmers effect	^{51}Cr , ^{64}Cu (High specific activity) ^{32}P (High purity and High specific activity)
	Radiation sources	^{60}Co , ^{170}Tm , ^{192}Ir , ^{198}Au
Nuclides by accelerators	Labelled compound (key materials)	K^{14}CN , $^{14}\text{C}_6\text{H}_6$, $^{14}\text{CH}_3\text{OH}$, $\text{CH}_3^{14}\text{COOH}$
		^{132}Cs , ^{237}Pu
	Special characteristic radioisotopes and Labelled compounds	^{18}F , ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{140}Ba - ^{140}La , ^{152}Eu , $\text{PCB}-[^{14}\text{C}]$, $\text{CF}_3\text{CHCl}^{82}\text{Br}$, $^{14}\text{C}_6\text{H}_4\text{BrOH}$, $\text{CH}(^{14}\text{C}_6\text{H}_5)_3$, $\text{CH}(\text{C}_6^3\text{H}_5)_3$ etc.

() : Activity per batch

Table 2 Annual amounts of radioactivities produced
by reactors in JAERI

Department of radioisotopes (unit: Ci)

Fiscal years \ Reactor	JRR-2	JRR-3	JRR-4	JMTR
'66	1,200	580		
'67	3,500	1,250		
'68	2,780	1,630		
'69	6,200	8	1	
'70	5,800 (801)	1,600 (529)	120 (73)	7,900 (118)
'71	15,106 (695)	1,897 (483)	134 (39)	3,751 (248)
'72	7,876 (448)	532 (76)	470 (122)	25,480 (400)
'73	1,390 (218)	1,469 (148)	345 (117)	28,773 (299)
'74	— —	2,740 (269)	481 (205)	9,210 (219)
'75	— —	1,866 (204)	382 (142)	24,683 (316)
'76	10,170 (208)	253 (9)	249 (86)	17,854 (228)
'77	33,819 (217)	21,403 (56)	405 (61)	23,057 (160)
'78	70,251 (261)	33,817 (66)	21 (74)	13,549 (64)
'79	6,244 (208)	207 (77)	29 (75)	27,282 (216)
'80	7,363 (95)	134 (133)	38 (75)	26,864 (129)
'81	3,614 (121)	4 (10)	23 (65)	31,585 (248)
'82	23 (38)	17 (38)	38 (76)	39,622 (154)
'83	9,794 (131)	— —	45 (146)	34,723 (65)
'84	8,052 (126)	— —	26 (122)	48,168 (136)

(): Number of short size capsules

1 Ci = 37GBq

Table 3 Estimation of activity by irradiation in the upgraded JRR-3.

Product Radioisotope	Half-Life	Nuclear Reaction	Formula	Target Form	Weight (g)	Type of Capsule	Reactor Irradiation			Activity Total (Ci)	Specific Activity (Ci/g)	Method of Transport
							Hole	Neutron Flux ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	Period			
^{14}C	1)	$^{14}\text{N}(n,p)$	$\text{AlN}^{(N)}_{0.342}$	Pellet	34	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	3y (28x9x34d)	0.71	0.061	Cask
^{24}Na	1)	$^{23}\text{Na}(n,\gamma)$	$\text{Na}_2\text{CO}_3^{(Na)}_{0.434}$	Powder	0.7	Rabbit (Polyethylene)	Pn	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	20min	0.10	0.35	Pneumatic tube
^{32}P	1)	$^{32}\text{S}(n,p)$	S	Powder	60	Basket (Al)	RG	$\phi_{th}=1.3 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	168.	2.8	Cask
^{35}S	1)	$^{35}\text{Cl}(n,p)$	$\text{KCl}^{(Cl)}_{0.476}$	Crystalline Powder	4	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	1.77	0.93	Cask
^{42}K	1)	$^{41}\text{K}(n,\gamma)$	$\text{K}_2\text{CO}_3^{(K)}_{0.567}$	Powder	4.7	Rabbit (Polyethylene)	P	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	20min	0.090	0.034	Pneumatic tube
^{45}Ca	1)	$^{44}\text{Ca}(n,\gamma)$	$\text{CaCO}_3^{(Ca)}_{0.400}$	Powder	2	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	0.055	0.068	Cask
^{51}Cr	1)	$^{50}\text{Cr}(n,\gamma)$	$\text{Cr}^{(Cr)}_{0.95}$	Powder	0.030	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	6.2	210.	Cask
^{56}Mn	1)	$^{55}\text{Mn}(n,\gamma)$	Mn	Grain	0.15	Rabbit (Polyethylene)	Pn	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	5min	0.78	5.2	Pneumatic tube
^{60}Co	1)	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)$	Co	Wire	0.010	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1-2cycle (28-56d)	0.12-0.24	12-24	Cask
^{64}Cu	1)	$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)$	Cu	Grain	0.10	Rabbit (Polyethylene)	Pn	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	20min	0.074	0.74	Pneumatic tube
^{65}Zn	1)	$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)$	Zn	Grain	0.10	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1-2cycle (28-56d)	0.056-0.12	0.56-1.2	Cask
^{77}Ga	1)	$^{76}\text{Ga}(n,\gamma)$	$\text{Ga}_2\text{O}_3^{(Ga)}_{0.744}$	Powder	0.50	Rabbit (Polyethylene)	Pn	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	20min	0.11	0.31	Pneumatic tube
^{75}Se	1)	$^{74}\text{Se}(n,\gamma)$	Se	Grain	0.20	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	0.16	0.80	Cask
^{76}As	1)	$^{75}\text{As}(n,\gamma)$	$\text{As}_2\text{O}_3^{(As)}_{0.757}$	Powder	0.20	Rabbit (Polyethylene)	Pn	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	20min	0.073	0.48	Pneumatic tube
^{82}Br	1)	$^{81}\text{Br}(n,\gamma)$	$\text{KBr}^{(Br)}_{0.671}$	Powder	0.10	Rabbit (Al)	HR	$\phi_{th}=1.1 \times 10^{14}$	7h	0.33	5.0	Hydraulic tube
^{86}Rb	1)	$^{85}\text{Rb}(n,\gamma)$	$\text{RbCO}_3^{(Rb)}_{0.588}$	Powder	0.050	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	0.23	7.7	Cask
^{90}Y	1)	$^{89}\text{Y}(n,\gamma)$	$\text{Y}_2\text{O}_3^{(Y)}_{0.787}$	Powder	0.020	Rabbit (Al)	HR	$\phi_{th}=1.1 \times 10^{14}$	48h	0.15	9.8	Hydraulic tube
^{99}Mo	1)	$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)$	$\text{MoO}_3^{(Mo)}_{0.666}$	Pellet	200	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	300.	300.	Cask
^{110m}Ag	1)	$^{109}\text{Ag}(n,\gamma)$	Ag	Plate j Wire	0.050	Rabbit (Al)	BR	$\phi_{th}=1.1 \times 10^{14}$	1-2cycle (28-56d)	0.09-0.18	1.8-3.6	Hydraulic tube
^{124}Sb	1)	$^{123}\text{Sb}(n,\gamma)$	Sb	Grain	0.030	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	1cycle (28d)	0.11	3.6	Cask
^{134}Cs	1)	$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)$	$\text{CS}_2\text{CO}_3^{(Cs)}_{0.816}$	Powder	0.0050	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	5cycle (28x5d)	0.18	46.	Cask
^{140}La	1)	$^{139}\text{La}(n,\gamma)$	$\text{La}_2\text{O}_3^{(La)}_{0.853}$	Powder	0.0050	Rabbit (Al)	HR	$\phi_{th}=1.1 \times 10^{14}$	2d	0.26	60.	Hydraulic tube
^{185}W	1)	$^{184}\text{W}(n,\gamma)$	$\text{WO}_3^{(W)}_{0.793}$	Powder	0.030	Basket (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	2cycle (56d)	0.20	8.7	Cask
^{197}Hg	1)	$^{196}\text{Hg}(n,\gamma)$	$\text{HgO}^{(Hg)}_{0.926}$	Powder	0.50	Rabbit (Al)	HR	$\phi_{th}=1.1 \times 10^{14}$	65h	6.5	14.	Hydraulic tube
^{198}Au	1)	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)$	Au	Wire	0.10	Rabbit (Polyethylene)	Pn	$\phi_{th}=6.0 \times 10^{13}$	20min	0.17	1.7	Pneumatic tube
^{204}Tl	1)	$^{203}\text{Tl}(n,\gamma)$	$\text{Tl}_2\text{O}_3^{(Tl)}_{0.895}$	Powder	0.30	Rabbit (Al)	BR	$\phi_{th}=1.2 \times 10^{14}$	5cycle (28x5d)	43.	430.	Hydraulic tube
										0.50	1.3	Cask

Product Radioisotope	Half-Life	Nuclear Reaction	Target		Type of Capsule	Reactor Irradiation		Activity	Specific Activity (Ci/g)	Method of Transport
			Formura	Form		Hole	Nutron Flux (cm ⁻² s ⁻¹)			
⁶⁰ Co (CNB-1) ²⁾	5.271y	⁵⁹ Co(n,γ)	Co	Needle (0.46φx10φ)	Rabbit (Al)	HR	φ _{th} =1.1x10 ¹⁴	0.001/Needle	0.067	Hydraulic tube
⁶⁰ Co (CNB-2) ²⁾	"	"	"	"	"	"	"	0.005/"	0.060	"
⁶⁰ Co (CNB-3) ²⁾	"	"	"	"	"	"	"	0.010/"	0.012	"
⁶⁰ Co (CNB-4) ²⁾	"	"	"	"	"	"	"	0.020/"	0.024	"
¹⁹² Ir (IPB-1) ²⁾	74.2d	¹⁹¹ Ir(n,γ)	Ir	Pellet (2tx2t _{mm})	Basket (Al)	BR	φ _{th} =1.2x10 ¹⁴	~13/Pellet	100	Cask
¹⁹² Ir (IWB-1) ²⁾	"	"	"	Wafer (3φx)	"	"	"	~6/Wafer	100	"
¹⁹² Ir (IHS-1) ²⁾	"	"	"	Hair Pin (0.65φx93φ)	Rabbit (Polyethylene)	Pn	φ _{th} =6.0x10 ¹³	0.020/Pin	0.033	Pneumatic tube
¹⁹² Ir (ISS-1) ²⁾	"	"	"	Single Pin (0.65φx47.6φ)	Rabbit (Al)	HR	φ _{th} =1.1x10 ¹⁴	0.010/Pin	0.034	"
¹⁹² Ir (ISDS-1) ²⁾	"	"	"	Seed (0.50φx3.0φ)	"	"	"	0.001/Seed	0.077	"
¹⁹² Ir (ISDS-2) ²⁾	"	"	"	"	"	"	"	0.002/Seed	0.15	"
¹⁹² Ir (ITS) ²⁾	"	"	"	Wire (φ _{th} x 20φ)	"	"	"	0.004/Wire	0.0002/mm	"
¹⁹⁸ Au (AGS-1) ²⁾	2.696d	¹⁹⁷ Au(n,γ)	Au	Grain (0.8φx2.5φ)	"	"	"	0.009/"	1.0	"

1) Processed Radioisotopes

2) Radiation Sources

1Ci = 37GBq

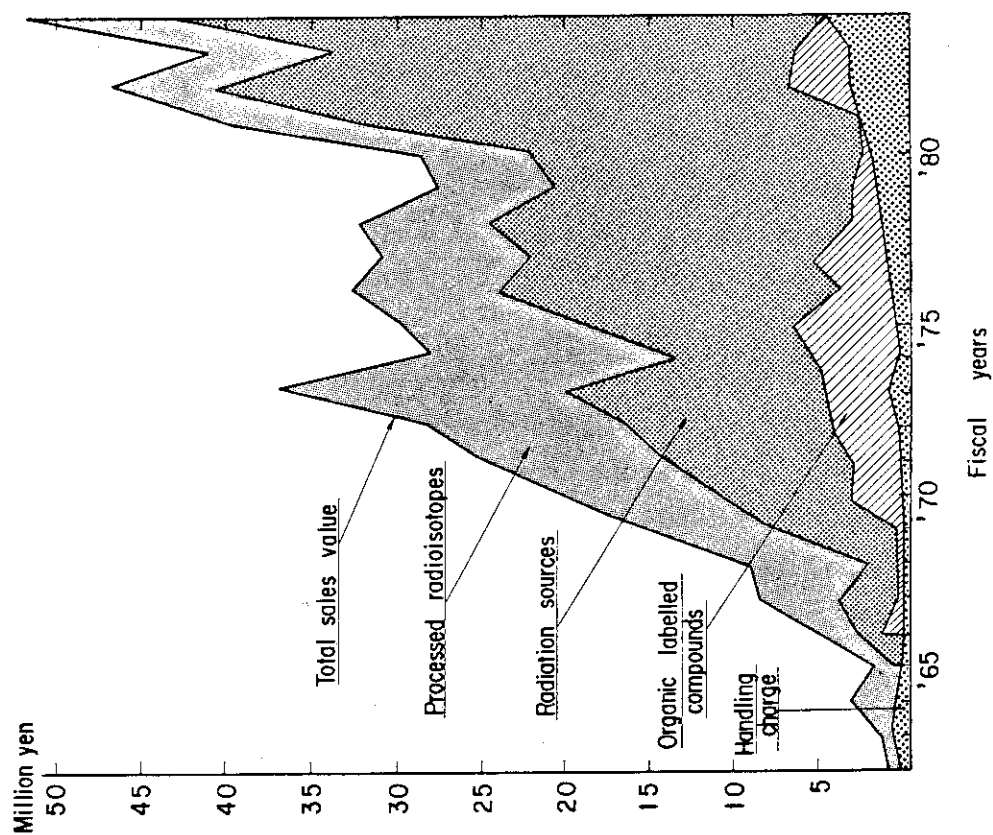


Fig. 2 Annual sales value of radioisotopes produced by JAERI. (1962-1984).

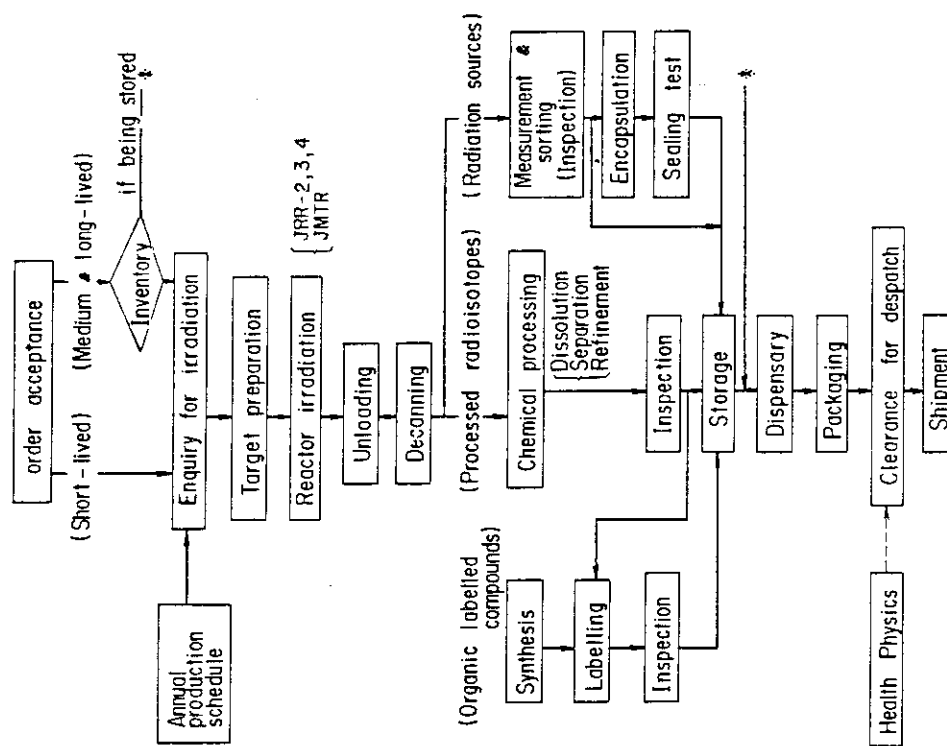


Fig. 1 Radioisotope production procedure.

2.4.2 医療用線源 RI

原研アイソトープ部 加藤 久

近年臨床医学における癌の治療は、その難治性という背景から数多くの方法が試みられている。最も一般的な癌治療法としては、手術による腫瘍切除、薬剤投与による化学療法そして放射線による治療などが挙げられる。しかし腫瘍の部位、種類さらに進展度などにより各治療法の役割は様でなく、一つの手段では制御が難しい場合が多い。したがって、上記の治療法あるいは他の治療法との組み合わせによる併用療法が良く用いられるが、とりわけ最近、放射線治療に依存する割合が大きく増加している。

放射線治療には電子加速器を用いた超高压X線、電子線そして γ 線などによる外部照射法と、密封小線源により組織内に直接刺入あるいは体腔内に挿入する組織内及び腔内照射法がある。

このうち、密封小線源治療 (Brachytherapy) による組織内あるいは体腔内照射は、外部照射に比べるとその適用範囲は限定されるが、癌組織にたいして線量を集中して組織破壊を図るため非常に効果的であり、さらに臓器切除を行う手術にたいし体力的に耐えられない場合の治療法という点で最も実績のある手段である。しかし、我が国における密封小線源を用いた治療法の発展は、その臨床経験の豊かさにもかかわらず比較的低調であった。これは、超高压放射線装置による外部照射法の進歩、抗生物質や麻酔法の進歩にともなう手術の適応拡大などによる影響もあったが、さらに小線源治療に携わる医療従事者の放射線被曝にたいする問題と、線源の刺入法から生じる患者への苦痛などが大きな原因となっていた。これらの問題の解決に、すなわち、医療従事者の被曝低減化と腫瘍組織への確実な刺入による患者の苦痛低減化の目的にそって、フランスの Pierquin らによって開発された“後装填法 (Afterloading technique)”が導入された。後装填法とは、腫瘍組織内あるいは体腔内にあらかじめ中空の案内管を入れておいて、模擬線源で十分に位置確認をおこない、さらに電算機による高精度の線量分布の評価をしたのち実線源に置き換える手法であり、照射時だけ組織内に刺入するために用いる一时装着線源に適した方法である。その利用例を Fig. 1 に示す。

後装填法に適した線源は、比較的低エネルギーの γ 線を放出し、線源自身が柔軟性を備えていることである。これらを条件に治療用密封小線源を考える場合、すべての点で満足できる線源は見出しがたい。最も古く、現在でも一部で用いられている ^{226}Ra 線源は、Rn ガスの漏出による汚染を引き起こし易く、また線源の柔軟性にも優れているとは言えない。 ^{226}Ra 線源に代わる最も有力な ^{137}Cs 線源は、欧米では広く利用されているが我が国では線源製造上難しい面を持っている。 ^{60}Co 線源は安価であるが γ 線エネルギーが高いため遮蔽が難しく、小線源治療の線源としては望ましくない。ただし、比放射能の高い線源が容易に得られることから高線量用線源として用いられている。

以上我が国における治療用密封小線源の事情から、日本原子力研究所 (以下原研) では、昭和53年度から厚生省がん研究助成金による「新しい密封小線源ならびにその治療装置の開発と臨床応用」の研究 (班長、重松 康阪大教授) に参加して、医療用の ^{192}Ir 密封小線源の製造技術の開発を行った。イリジウム金属は白金との合金として細線状に加工した場合柔軟性に富み、また、 ^{192}Ir からの γ 線エネルギーが平均0.38 MeV 程度と比較的低いため放射線防御も容易であることから、後装填法による一时装着のための組織内照射用線源として最適の条件を備えている。

^{192}Ir 線源の特徴を製造・利用の両面からみると以下の5点に要約できる。

- 1) 線源用ターゲットの加工が容易である。
- 2) 原子炉における中性子照射によって容易に放射能を生成することが出来る。
- 3) 後装填法が可能である。
- 4) γ 線のエネルギーが比較的 low、医療従事者の被曝防護が容易である。
- 5) 線源が柔軟性を持つため、患者の苦痛が少ない。

これらの点から、癌治療用密封小線源としての ^{192}Ir が着目され、その国産化が強く望まれるようになった。

原研で開発された ^{192}Ir 小線源は、ターゲットに白金・イリジウム合金（イリジウム含有率：25重量%及び20重量%）を用い、全体が厚さ0.1mmの白金で被覆されている。白金被覆は ^{192}Ir からの β 線を弱める効果と、さらに ^{192}Ir 線源の密封化の役目を備えている。 ^{192}Ir 線源の種類は形状から分類して、ヘアピン、シングルピン、シード、シンワイア及びシードを組み合わせたシードアセンブリの5種類である。各線源の仕様を Table 1 に示す。

各線源の寸法及び放射能は、使用する部位に適合するように決められたものである。例えば、ヘアピン、シングルピンはおもに口腔内癌、咽頭癌及び舌癌などの腔内照射用線源として頻用され、シード及びシードアセンブリは直腸癌、肛門癌、子宮癌及び脳腫瘍などの組織内照射に広く利用されている。シンワイアは最も柔軟性に富み、多種類の長さを持つため極めて適用範囲が広く、乳癌、皮膚癌、肺癌さらに胆管癌などの組織内照射として利用されている。ヘアピン及びシングルピンによる舌癌の治療例を Fig. 2^{注)} に示す。

一時装着用 ^{192}Ir 小線源にたいする永久刺入用線源としては長年 ^{222}Rn シードが用いられていたが、ガス漏出による環境汚染及び医療従事者への被曝の問題などから、1975年以降廃止された。そのため ^{222}Rn 線源にかわる永久刺入線源として、半減期が短く γ 線エネルギーも比較的 low、さらに製造上及び使用上からも取り扱いが安全である ^{198}Au が着目され、早急な国産化が強く望まれた。原研では ^{222}Rn の廃止と時期を合わせ 1975年 ^{198}Au 線源（以下 Au グレイン）の製造技術開発を開始した。Au グレインの1粒の外径は0.8mm、長さ25mmであるが、その構造は直径0.5mmの純金の粒が β 線の放出を減少させるため肉厚0.15mmの白金の鞘で被覆されている。両端は白金によるメッキが施され密封線源としての条件を備えている。臨床時における Au グレインは ^{222}Rn 線源時代と同一の方式が採用され、専用マガジンに装填された Au グレイン（14粒）は刺入器にセットされて直接腫瘍組織に刺入される。Au グレインの適応は、おもに口腔領域の悪性腫瘍にたいするケースが多く、舌癌、口腔底癌などが挙げられる。Au グレインを用いた頬粘膜臨床例のX線写真を Fig. 3^{注)} に示す。Au グレインは、各医療機関において毎週水曜日の午前9時30分で185 MBq（5 mCi）になるように照射される。

各医療用 ^{192}Ir 小線源及び Au グレインは、臨床時において電算機による精密な線量評価が行われる。したがって、各線源の放射能強度はあらかじめ規定された値にたいし高い精度が必要である。また、ヘアピンの様に長い線源の場合線源間の放射能強度の均一性ととも、同一線源内の放射能分布の均一性も品質面からみて重要な問題である。これらの問題を解決するためには、原子炉における中性子照射時間を調整すること、中性子束密度及びその分布をあらかじめ把握し適切な照射孔、照射位置を選択すること、さらに照射キャプセル内でのターゲットの配列法など

について吟味することが必要である。医療用線源の品質向上のため、58年度に研究炉管理部研究炉利用課と協力してJRR-2の炉心タンク内反射体領域に設置されているVT-4垂直照射孔を改造し、SPND制御による自動照射装置の開発を行った。これにより、従来JRR-2気送管で照射されていた各線源の放射能強度の均一性は大幅に改善され、十分要求に応えるものが確保できるようになった。（現在でもJRR-4のTパイプを一部使用している）各線源のVT-4孔における照射時間をTable 2に示す。過去1年間においてVT-4孔を使用して得たAuグレイン1粒当たりの放射能分布をFig. 4に示す。またヘアピン自身の長さ方向における放射能分布Fig. 5に示す。

原研における ^{192}Ir 小線源及びAuグレインの国産化とともに、国内における臨床例は大幅に増加してきた。それにともない治療成績の向上が期待されると同時に、一方利用が拡大するにつれて医療側からの要望も多岐にわたって求められるようになった。すなわち、前述の放射能強度の均一性等品質面をより向上させることとともに、緊急の患者にたいし臨機応変の治療が可能となるよう、受注後直ちに必要な線源が供給できる体制を確立することなどが挙げられる。これらの要望は、とくに医療用線源にたいしてのみならずRI製造に関して最も本質的な問題であり、RI製造のための専用照射孔、原子炉運転中における自動挿入・取り出し装置、あるいは照射試料にたいして中性子を均一に当てるための自動駆動装置等の原子炉付属設備の設置が、将来のRI製造の発展のためにぜひとも必要であると考えられる。

上述のように、癌治療のための医療用線源は現在国内の多数の医療機関において利用されており、特に ^{192}Ir 小線源の製造量は年々増加の一途をたどっている。（Fig. 6参照）それにともなうて密封小線源に関する多くの臨床例が報告され、それらの結果から手術困難な症例を救いうる有力な手段の一つとして密封小線源の利用に大きな期待が寄せられている。

最後に、59年度現在医療用 ^{192}Ir 小線源によって癌治療を実施している医療機関を列記すると次の通りである。

北海道大学付属病院	都立駒込病院
新潟大学付属病院	愛知県がんセンター病院
東京慈恵会医科大学	広島大学付属病院
慶応義塾大学病院	癌研究会付属病院
東邦大学病院	千葉県がんセンター
大阪大学医学部付属病院	大田原赤十字病院
国立札幌病院	兵庫県成人病センター
国立がんセンター病院	国立病院九州がんセンター
国立東京第二病院	

注) 愛知県がんセンター病院による資料

Table 1 Specifications of brachytherapy ^{192}Ir sources.

Type	Diameter (mm)	Length (mm)	Radioactivity (MBq [mCi])
Hairpin	Pt-Ir alloy (Ir:25wt.%) : 0.45 Platinum sheath thickness 0.1 : O.D. 0.65	93	740 [20]
Single-pin	Pt-Ir alloy (Ir:25wt.%) : 0.45 Platinum sheath thickness 0.1 : O.D. 0.65	47.6	370 [10]
Seed	Pt-Ir alloy (Ir:20wt.%) : 0.3 Platinum sheath thickness 0.1 : O.D. 0.5	3.0	37 [1]
Seed assembly	10 seeds with in nylon spacers in a polyethylene tube (1 ϕ)	93	370 [10]
Thin wire	Pt-Ir alloy (Ir:20wt.%) : 0.1 Platinum sheath thickness 0.1 : O.D. 0.3	20	7.4/mm[0.2/mm]
		30	"
		50	"

Table 2 Irradiation time for brachytherapy sources in VT-4 of JRR-2.

Sources	Irradiation time (hr)
^{192}Ir Hairpin	2.2
Single-pin	2.2
Seed	6.4
Seed assembly	—
Thin wire	31
^{198}Au Grain	1.9

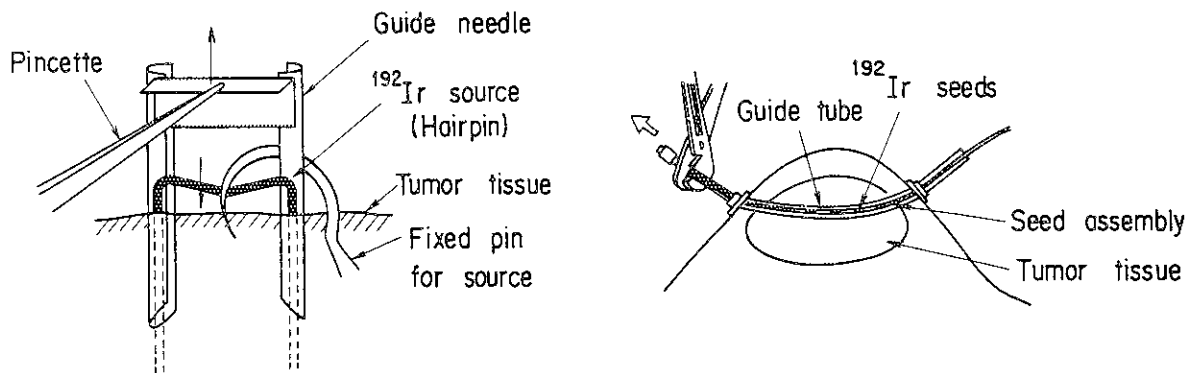


Fig. 1 After loading technique with ^{192}Ir sources.

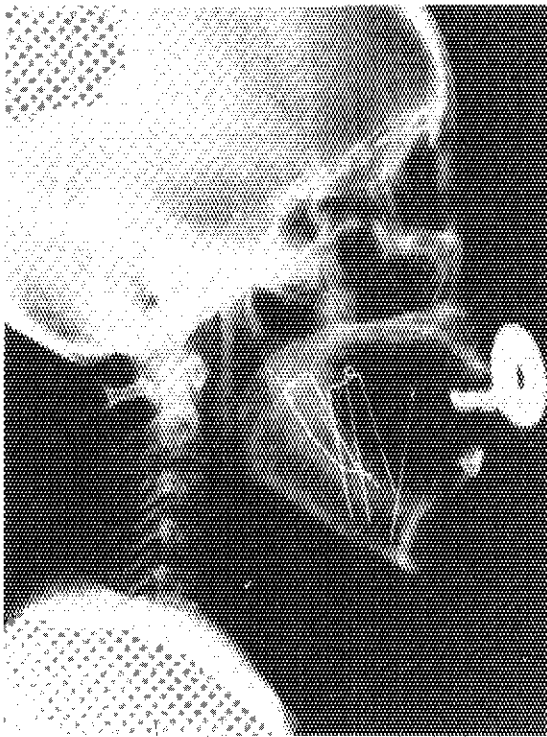


Fig. 2 Lateral radiogram. Two hairpins and two single-pins implanted in the tongue.



Fig. 3 Lateral radiogram. Several ^{198}Au grains implanted in the buccal mucosa.

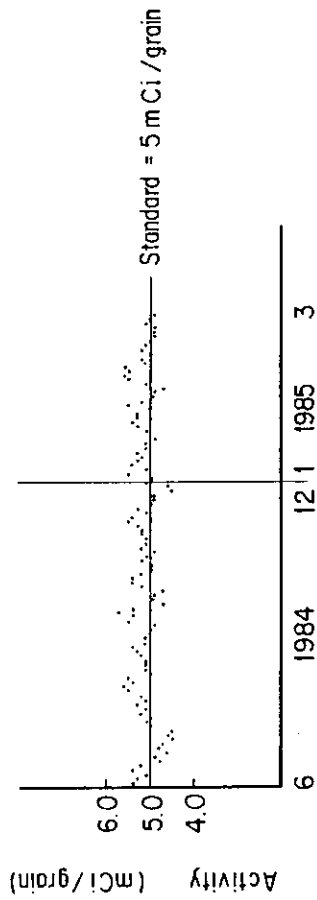


Fig. 4 Deviation of radioactivity of ^{198}Au per grain at the beginning of use.

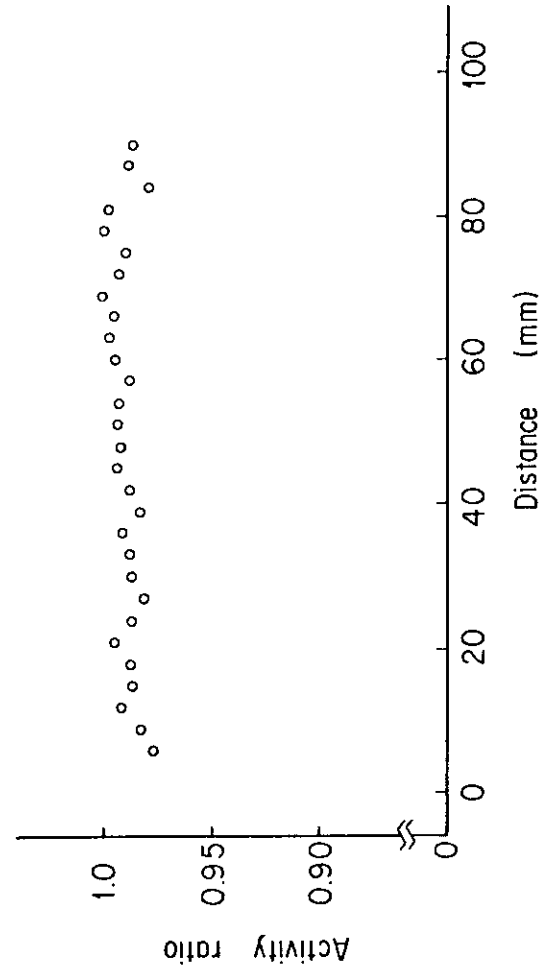


Fig. 5 Linear distribution of radioactivity of hairpin type ^{192}Ir source.

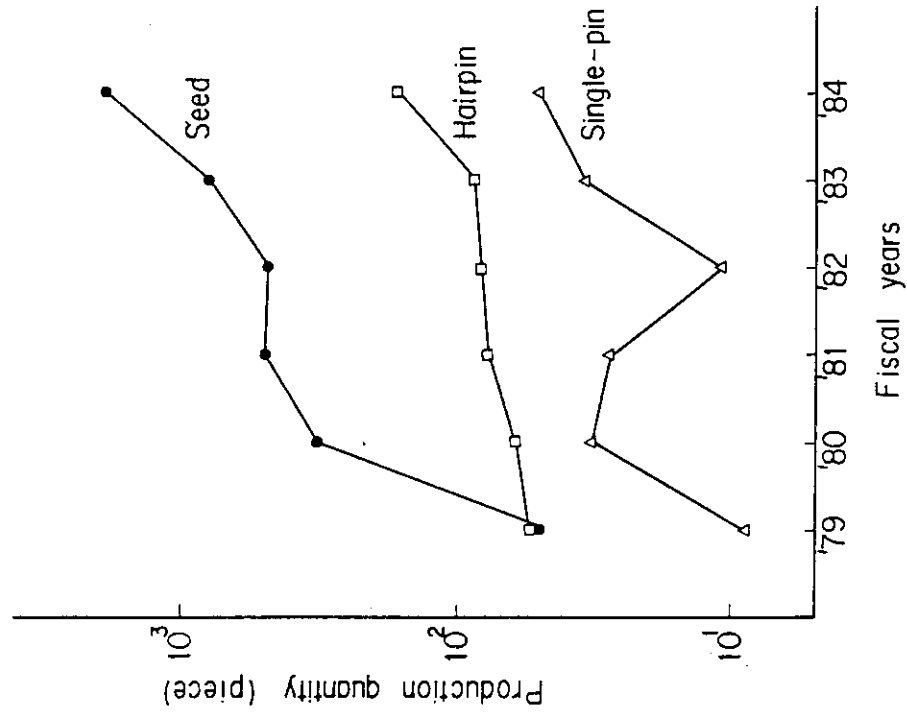


Fig. 6 Annual production quantity of ^{192}Ir sources for brachytherapy.

2.4.3 研究用 RI

原研共同利用大学開放研 伊藤泰男

大学における研究用原子炉の利用の形態として研究用 RI の生産が依然として多い。これを利用目的別に分けると、放射性核種または放射線自体が研究の対象になる場合と、何等かの目的のための線源として用いる場合がある。

(1) 核または放射線自体が研究の対象になる場合

放射性核種の核準位、崩壊図式の精密決定の目的で行われる。これは近年 γ 線、X 線測定のエネルギー分解能が向上していることが背景となっており、加えて同時計数法、反同時計数法を駆使してデータを精密化していくものである。S/N の向上のために濃縮同位体を照射して目的核種を得ることも多い。

1) ^{115}Cd , ^{115}Cd の崩壊様式

濃縮同位体 ^{114}Cd を 1 サイクル照射して ^{115}Cd , ^{115}Cd をつくり、それぞれの γ 線のエネルギーと強度を同時計数法によって決定。 γ - γ 同時計数法によって互いに相関のある γ 線を選び分けたり、従来ダブルレットとして報告されていた 2 本の γ 線を分離することが出来た。

2) ^{99}Mo および ^{95}Zr の崩壊様式

^{99}Mo の内部転換電子と X 線の同時計数、 γ - γ 同時計数によって γ 線の内部転換計数および多重極度を決定し、また 21 本の γ 線についてそれぞれの相関、従来ダブルレットとされていた 2 本の γ 線の分離などが行われた。

3) γ 線エネルギーの精密決定

^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu , ^{156}Eu (それぞれ対応する Sm の濃縮同位体をサイクル照射してつくる), ^{192}Ir , ^{177}Lu , ^{124}Sb , ^{182}Ta などの γ 線の強度を 0.5 % の精度で決定した。 ^{177}Lu では γ - γ 角相関を行うことによって γ 線の混合比を求めた。

4) 陽電子消滅 γ 線の精密測定

陽電子消滅 γ 線は、電子の運動量によるドップラー効果で数 keV の幅をもっている。この幅を精密に測定すれば陽電子消滅角相関測定で得られるのと同じ情報を得ることが出来る。現在 γ 線測定のエネルギー分解能が十分でないので角相関測定ほどの精度は出ないが簡便に測定できるというメリットがある。大学開放研究室関係でも数グループがこの研究を行っている。消滅 γ 線の測定にあたって、511.0 keV の前後に比較校正用の γ 線源が必要である。例えば ^{103}Ru の 497 keV γ 線、 ^{147}Nd の 531 keV γ 線が原子炉で作って用いられている。

陽電子消滅 γ 線の測定は、 γ 線のドップラーひろがりやを精密に測定する場合と、消滅 γ 線の重心を精密に決定する場合とがある。前者では物質中の電子の運動量が測定されるが、アルカリハライド中の電子構造に異方性があることが見出だされたり、ポジトロニウム化学の種々の研究に用いられている。後者は、高電場下でのように陽電子が一定方向にドリフトして消滅する場合、消滅時のエネルギーが $2m_0c^2$ からずれる場合などに有効であるが、実際水中の消滅 γ 線エネルギーが m_0c^2 からわずかにずれていることが見出され、物質中のポジトロニウムの結合エネルギーに関する知見が得られようとしている。

(2) 研究の目的のために線源を調整する場合

個々の目的にそった種々の線源が工夫して作られる。

1) 陽電子線源

10 年程前には、陽電子消滅測定用の線源として 1 Ci ほどの ^{64}Cu が JRR-2 で頻繁に作られたが、現在は ^{22}Na (原子炉では作れない) が好んで使われている。これは ^{22}Na が 2.8 年の長い半減期を持っており、陽電子崩壊率も大きいためである。このため現在では ^{64}Cu や ^{58}Co が用いられる例は少なくなっている。しかし高価であることと、最近より強い陽電子線源が望まれるようになってきているため、 ^{64}Cu (^{63}Cu の熱中性子吸収によって作る) または ^{58}Co (^{58}Ni の (p, n) 反応によって作る) が見直されるようになるかもしれない。

2) メスバウアー効果測定用線源

線源の半減期の関係から、一般の研究室で行えるメスバウアー効果測定は核種が鉄、錫などに限定される。研究用原子炉の近くにメスバウアー効果測定装置が設置されていれば、半減期の制約を受けずに多くの元素について研究をすることができる。

大学開放研究室ではこの目的のために、低温メスバウアー効果測定装置を設置してある。これまで主として金を含む種々の化合物や錯体の分子構造の研究を行っている。 ^{196}Pt (n, γ) ^{197}Pt 反応で生成した ^{197}Pt を線源とする。

大学開放研究室ではさらに ^{197}I のメスバウアー効果の測定も手懸けつつある。これには ^{126}Te (n, γ) ^{127}Te の反応を利用して線源を作る。

3) 摂動角相関

磁気モーメントを持つ原子核の状態は、核外磁場との相互作用を通して調べることが出来る。これは原子核の磁気モーメントの測定に応用されるが、一方磁気モーメントの分かっている原子核を物質中においてやるとその局所場に関する情報を得ることができる。このため摂動角相関測定は核物理だけでなく、ひろく物性の研究に応用される。大学開放研究室で行っている摂動角相関測定の例として、 ^{180}Hf (n, γ) ^{181}Hf , ^{168}Yb (n, γ) ^{169}Yb を作り、それらの β 崩壊で生じる ^{181}Ta , ^{169}Tm の励起状態を利用するものがある。

2.5 シリコンドーピングの最近の動向

放射線照射振興協会 辻村重男

1 はじめに

シリコン結晶に中性子照射し、リンをドーピングする方法は、始めベルテレフオン研究所の M. Tanenbaum と A. D. Mills によって研究され、1961年に発表された。この方法は、シリコン同位体のなかの ^{30}Si (同位体存在率 3.1%) が熱中性子との反応により ^{31}Si となり、次いで β 崩壊して ^{31}P に変換することに基づいている。

Tanenbaum の研究後約 10 年間は、シリコン放射線検出器への適用が若干研究された以外とくに進展はなかったが、1973年にシーメンス社が本法による発電所向け大型サイリスタの製作に成功し、一躍脚光を浴びるようになった。それ以来各国で急速に実用化が進み、半導体デバイス製作において重要な地位を占めるに至った。

ここでは、原子炉照射による中性子ドーピングの特徴、各国原子炉による照射の状況、および本法の技術的課題について述べる。

2 シリコン半導体生産の概要

中性子照射によるドーピング (Neutron Transmutation Doping, 以下 NTD という) の特徴について述べる前に、シリコン半導体全般の生産状況を説明しておく。

半導体デバイスは大きく分類して、集積回路 (IC) とディスクリート素子 (サイリスタ、パワーランジスタ等) に分けられる。近年 IC の生産が著しく増大し、全デバイス中の IC の比率は売上高で 80% 以上となっている。

またシリコン単結晶の製造法には引上げ法と浮遊帯法がある。引上げ法は、シリコン多結晶塊を石英るつばに入れて加熱熔融し、種結晶を漬けて引上げる方法で、本法を最初に試みた Czochralski に因んで CZ 法と称せられる。浮遊帯法は、シリコン多結晶ロッドを直立に保持して、その一部を高周波加熱により熔融し、高周波コイルを移動させることにより、ロッドの一端 (種結晶をおく側) から順次単結晶化させる方法で、FZ (Floating Zone) 法といわれる。

CZ 法と FZ 法の特徴、および各種半導体デバイスがそれぞれ必要とする特性から、IC には主として CZ 単結晶が用いられ、ディスクリート素子には FZ 単結晶が多く用いられる。全デバイス中の IC 比率が極めて高いことから、CZ 法と FZ 法では前者の生産が圧倒的に大きく、1984 年のシリコン単結晶生産は全世界で約 3,000 t であるが、そのうち FZ 単結晶は 200 t 程度である。

NTD 法によってドーピングを行う結晶は、その特徴を生かすため、FZ 単結晶に限られる。NTD シリコンが初めて実用化したのは大電力サイリスタであったが、現今でも用途は高耐圧大電流のサイリスタ、ならびにパワーランジスタ、スタックダイオード等が主で、IC には全く使われていない。NTD シリコンの生産量は現在約 100 t と推定される。Fig. 1 に NTD シリコン生産工程を示す。

3 NTD 法の特徴

NTD シリコンは、各種のディスクリート素子製作に欠かせない存在になったが、その基となるドーピングの均一性について簡単に述べる。

Fig. 2 は従来の不純物添加法及び NTD 法によってリンをドーピングしたシリコン結晶からウェーハを切り出し、抵抗を測定した結果を示したものである。従来法では“Striation”といわれる抵抗の周期変化が生ずるが、NTD 法ではウェーハ全面にわたって極めて一定であることがわかる。このようなすぐれた均一性のために、耐絶縁破壊性の大きい素子が製作可能となり、さらに単結晶直径の増大化と相俟って、高耐圧大電流容量のサイリスタが実現するに至った。なお Fig. 2 に示した NTD の均一性は照射中にロッドを回転させることにより達成されるもので、静止照射では均一性はこれより低下する。

また抵抗が均一であることは、一つのウェーハから小さいサイズのデバイスを多数つくる場合、特性の同じ製品が得られることを意味し、製品収率の向上につながる。このことはロッドの軸方向抵抗分布に関してもいえることで、NTD 結晶は従来法に比し平坦な分布を有するので、一つのロッドから同一特性のデバイスをより多くつくることが可能となった。

NTD 法のもう一つの特徴は、照射中性子量（フルエンス）により、シリコン結晶の抵抗値を精度よく制御できることである。フルエンスの測定には SPND (Self Powered Neutron Detector) が最もすぐれ、出力電流を積算することにより、炉内中性子束の変動にかかわらず、フルエンスを正確に測定し、目標抵抗値の製品を高収率で得ることができる。

4 各国の NTD の状況

NTD シリコンを最初に実用規模で生産したのはトップシル社（デンマーク）で、1974年にリゼ研究所の原子炉を利用して始められた。1975 年前後に各国の原子炉でシリコン照射が開始され、日本でも 1977 年に原研の JRR-4 による定常照射が行われるようになった。

Table 1 にシリコン照射を行っている主な原子炉を示す。本表は 1976 年以来隔年に開催されている NTD 国際会議（Table 2）における発表を参考にしてまとめたものである。

総体的に見てアメリカよりヨーロッパの方が優勢である。とくに英国はハーウエル研究所の DIDO, PLUTO の 2 基を使用して 35 t/y の照射能力を備え、世界の座を占めている。フランスは表に示したように多くの原子炉で照射が行われているようであるが、どの原子炉がどの程度使用されているかは把握しにくい。

アメリカは以前ジェネラルエレクトリック社の GETR が使われていたが、同炉が 1977 年に運転を停止して以来、定常的にまとまった量の照射を行っているのはミズーリ大学の MURR (10 t/y) のみで、他はユニオンカーバイド社等が少量実施している程度と見られる。しかしながらアイダホ国立工学研究所 (INEL) の大型材料試験炉 ATR (250 MW) によるシリコン照射の構想が打ち出されており、他の原子炉では需要に応じ切れないとき、あるいは 6 インチ以上の大口径シリコンロッドの照射が必要になったときは、照射計画を進める用意があるとしている。容量は 5 インチ径ロッドを少なくとも 20 t/y 照射できるほか、6～8 インチ径ロッドの照射スペースも十分とれるという。

西ドイツとカナダは NTD 国際会議における発表がなく、シリコン照射に関する実状は確かなところは不明である。また発展途上国は研究炉利用の一つとしてシリコン照射を計画することが多い。中国は 1979 年より照射を開始し、現在 2 t/y の照射を行っているといわれる。

5 NTD 法の技術的課題

NTD 法は実用照射が始まってから 10 年を経過して技術的に十分成熟し、ディスクリート素

子製作工程の中に定着するに至ったが、半導体産業の進展にともない、解決すべき問題がいくつか生じている。以下2～3の重要と思われる事項について述べて見たい。

(1) ロッド軸方向の照射均一性の向上

NTD シリコンの軸方向の抵抗均一性は3で述べたように製品収率に関する問題である。NTD 法は従来の不純物添加法に比べ軸方向でも平坦な分布を有し、製品収率の増加がもたらされたが、収率向上の要求には限りがなく、完全に一定な分布を目指して各国の技術開発が進められている。

軸方向の照射均一性を高める方法としては、フィルタ法、反転法、及び定速移動法がある。

1) フィルタ法

ロッドの周りに中性子束の空間分布に対応した形状の中性子吸収材をおき、ロッド全長に亘り照射を均一にする方法である。中性子束分布は、原子炉運転条件等いろいろの要因により複雑に変化するので、各種の条件を考慮してフィルタ形状を最適化する必要がある。中性子利用が不経済になるという欠点を有する。リゼ研究所、ハーウェル研究所、及びフランスの各炉で実施されている。

2) 反転法

照射フルエンスが所定値の半分になった時点で、ロッドを反転させる方法である。中性子束分布がリニアに近い形の場合により結果が得られる。反転操作を行うスペースの確保、照射作業スケジュールの複雑化が問題になる。ミズーリ大学のMURRは本法を採用している。

3) 定速移動法

ロッドを一定速度で炉内に送り、照射孔をワンスルーに通過させる方法である。中性子束の時間変動がなければ、原理的には完全な軸方向均一照射が達成される。同一照射フルエンスのロッドは続けて連続的に送り込むことができる。ステュドヴィックの炉で実施されている。

以上3つの方法にはそれぞれ長所短所があり、どの方法がよいか一概にはいえない。各々の原子炉の構造、特性、運転条件などに合せて一番よい方法をえらぶべきである。我が国ではまだ軸方向均一性向上の方策はとくに採っていないが、対応を検討する必要があると思う。

(2) 5インチ径ロッドの照射

シリコン単結晶の直径は年々増大し、CZ法では今や8インチ径が主流となって来た。FZ法は大型装置の製作が容易でないため、CZ法より大口径化はおくれているが、1984年に5インチ単結晶の製造が開始された。Fig. 3にFZ法単結晶直径の年次変化を示す。

5インチFZ単結晶がふえとの予想のもと、各国の原子炉は5インチ照射孔の整備を進め、2～3の国では照射可能になったといわれる。我が国で最も大きいシリコン照射孔はJRR-4 Lパイプの108 mmであり、5インチ照射孔の設置について検討を行う必要があると考える。

(3) シリコンの放射線損傷とアニーリング

シリコン結晶は原子炉照射により放射線損傷を受け、原子配列が著しく乱れるので、これを正規の結晶構造に戻すため加熱処理（アニーリング）を行う。放射線損傷の原因としては、高速中性子によるノックオンが大きいので、カドミウム比の小さい原子炉ほど損傷が大きい。

アニーリングの問題は、一般に半導体材料・デバイスメーカーにおいて検討されている。現

在アニーリング条件は一応確立され、JRR-4などカドミウム比の小さい原子炉による照射でもとくに問題はないようであるが、将来デバイスメーカーのNTDシリコンにたいする要求が高度化し、原子炉照射にさかのぼって検討を要する問題がおこることも考えられる。

6 おわりに

シリコンの中性子ドーピングは、実用化して10年を経過し、半導体産業の一環を支える重要な地位を占めるに至った。原子炉利用の面でも、NTDは産業活動に直結するユニークな存在といえる。

我が国のNTDは、原研の研究炉を利用した定常照射が関係者の尽力により1977年に開始され、現在約2 t/yの照射を行っているが、半導体産業の進展に対応して、より高度の照射を達成すべく、技術開発につとめる必要がある。

Table 1 Reactors for silicon irradiation

	Reactor	Moderator	Power (MW)
Risø, Denmark	DR-3	D ₂ O	10
Harwell, England	DIDO	D ₂ O	26
"	PLUTO	D ₂ O	26
Studsvik, Sweden	R-2	H ₂ O	50
Saclay, France	OSIRIS	H ₂ O	70
"	ORPHEE	D ₂ O	14
Fontenay-Aux-Roses	TRITON	H ₂ O	6.5
Grenoble	MELUSINE	H ₂ O	8
"	SILOE	H ₂ O	30
Missori Univ., USA	MURR	H ₂ O	10
JAERI, Japan	JRR-4	H ₂ O	3.5
"	JRR-2	D ₂ O	10

Table 2 International Conference on Neutron Transmutation Doping

No.	Date	Place	Proceeding
First	April 1976	Oak Ridge, Tennessee, USA	*2 *3 *4 *5
Second	April 23-26, 1978	Columbia, Missouri, USA	
Third	August 27-29, 1980	Copenhagen, Denmark	
Fourth	June 1-3, 1982	Gaithersburg, Maryland, USA	
Fifth*1	February 9, 1984	San Jose, California, USA	
*1 Held as a satellite conference to the Symposium on Semiconductor Processing			
*2 J. M. Meese: Neutron Transmutation Doping in Semiconductors, Plenum Press (1979)			
*3 J. Guldberg: Neutron-Transmutation-Doped Silicon, Plenum Press (1981)			
*4 R. Larrabee: Neutron Transmutation Doping of Semiconductor Materials, Plenum Press (1984)			
*5 D. C. Gupta: Semiconductor Processing, ASTM Special Technical Publication 850 (1984)			

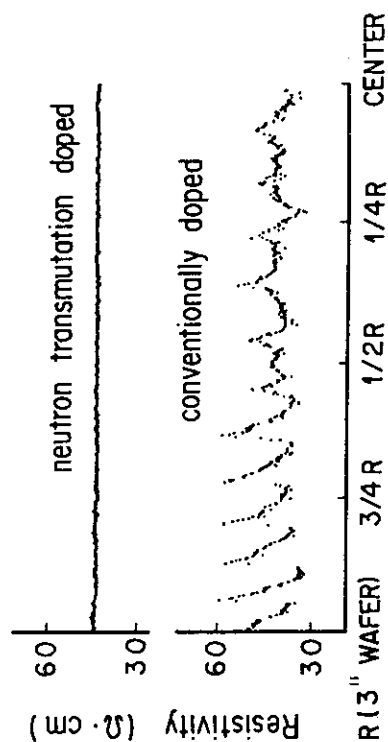


Fig. 2 Spreading resistance profiles across the radius of silicon wafers doped by NTD and conventional method.

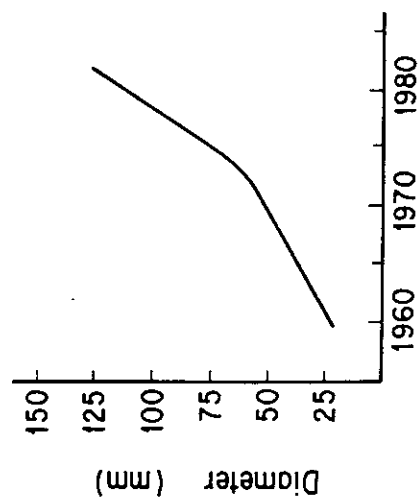


Fig. 3 Diameter of FZ single crystals in 1960 ~ 1985.

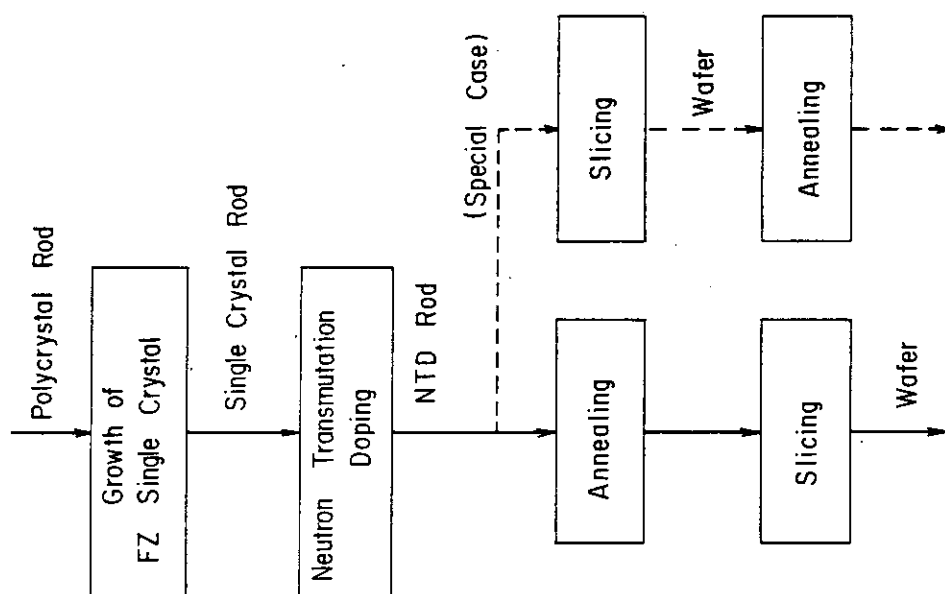


Fig. 1 Flowsheet for production of NTD silicon wafers.

3. 中性子ビーム実験

3. 中性子ビーム実験

3.1	全体配置計画	宮坂靖彦	(原研研究炉管理部)	167
3.2	中性子ビーム実験設備	高橋秀武	(原研研究炉管理部)	171
3.2.1	冷中性子源設備			171
3.2.2	水平実験孔設備			171
3.2.3	中性子導管設備			172
3.3	中性子ビーム実験装置			182
3.3.1	高分解能粉末中性子回折装置(HRPD)	船橋 達	(原研物理部)	
3.3.2	3軸中性子分光器(偏極中性子機能付き)(TAS-1)	皆川宜明	(原研物理部)	184
3.3.3	中性子トポグラフィ・精密光学実験装置(PNO)	富満 広	(原研物理部)	186
3.3.4	偏極中性子散乱装置(PANSI-II)	伊藤雄而	(東大物性研究所)	190
3.3.5	3軸中性子分光器(TAS-U1)	藤下豪司	(東大物性研究所)	192
3.3.6	4軸型中性子回折装置(FONDI)	坂田 誠	(名大工学部)	194
3.3.7	東北大学中性子分光器(TOPAN)	遠藤康夫	(東北大理学部)	197
3.3.8	中性子ラジオグラフィ(TNR)	鶴野 晃	(原研研究炉管理部)	200
3.3.9	3軸型中性子分光器(TAS-U2)	中井 裕	(阪大理学部)	204
3.3.10	3軸型中性子分光器(TAS-U3)	山口泰男	(東北大金属材料研究所)	206
3.3.11	2軸中性子回折装置(PND)	山口泰男	(東北大金属材料研究所)	208
3.3.12	中性子トポグラフィ・精密光学実験装置(NDT)	富満 広	(原研物理部)	209
3.3.13	3軸中性子分光器(TAS-2)	船橋 達	(原研物理部)	210
3.3.14	中性子後方散乱装置(BS)	西 正和	(東大物性研究所)	211
3.3.15	中性子小角散乱装置(SANS-U)	新村信雄	(東北大理学部核理研)	215
3.3.16	中性子スペクトル変調装置(NSM)	伊藤雄而	(東大物性研究所)	218
3.3.17	冷中性子ラジオグラフィ(CNR)	鶴野 晃	(原研研究炉管理部)	222
3.3.18	中性子スピネコー分光器(NSE)	遠藤康夫	(東北大理学部)	223
3.3.19	中性子小角散乱装置(SANS)	飯泉 仁	(原研物理部)	225
3.3.20	超冷中性子発生装置(UCN)	吉城 肇	(高エネルギー物理研究所)	227
3.3.21	中性子干渉計・中性子光学用回折装置(NDIO)	菊田 惺志	(東大工学部)	231
3.3.22	中性子回折カメラ(NDC)	日高昌則	(九大理学部)	234
3.3.23	低エネルギー3軸分光器(LTAS)	船橋 達	(原研物理部)	238
3.3.24	中性子散乱技術開発装置(DINT)	船橋 達	(原研物理部)	239

3.3.25 中性子回折映像化装置(DIVE)	船橋 達 (原研物理部)	240
3.4 中性子散乱の最近の研究動向(総論)		241
3.4.1 熱中性子及び冷中性子による新しい材料研究の発展	飯泉 仁 (原研物理部)	241
3.4.2 中性子散乱による物性基礎研究と新素材開発	遠藤康夫 (東北大理学部)	252
3.4.3 冷中性子散乱の生物学への応用と生命現象	伊藤雄而 (東大物性研究所)	256
3.5 中性子散乱の最近の研究動向(各論)		262
3.5.1 機能材料の相転移と結晶構造		262
(1) 水素吸蔵物質	藤井博信 (広大総合科学部)	262
(2) 超イオン導電体・一次元電気伝導体	藤下豪司 (東大物性研究所)	265
(3) 黒鉛層間化合物	池田宏信 (お茶の水大理学部)	268
(4) 非晶質金属	早稲田嘉夫 (東北大選鉱精錬研究所)	270
	福永俊晴 (東北大金属材料研究所)	
(5) 金属間化合物	山口泰男 (東北大金属材料研究所)	274
(6) ファイン・セラミックス	大野英雄 (原研燃料工学部)	277
(7) セメント	土井健治 (原研物理部)	280
(8) 形状記憶合金に関する最近の研究動向	梶谷 剛 (東北大金属材料研究所)	283
(9) ゼオライト	高石哲男 (豊橋技術科学大学)	287
3.5.2 非平衡状態のゆらぎ		290
(1) 1次相転移の過程とスケーリング則	山田安定 (阪大基礎工学部)	290
(2) 合金の相分離	片野 進 (原研物理部)	295
(3) 1次相転移の動力学	好村滋洋 (広大総合科学部)	298
(4) 外部から駆動された系	飯泉 仁 (原研物理部)	303
3.5.3 原子・分子の集合状態		307
(1) 液体金属	田巻 繁 (新潟大理学部)	307
	武田信一 (新潟大医療短大)	
(2) 高分子溶液	和泉義信 (北大理学部)	311
(3) 液体・熔融塩及び超イオン導電体中の 原子ダイナミックス	佐久間隆 (茨大理学部)	313
(4) 高分子	梶 慶輔 (京大化学研究所)	315
3.5.4 磁性研究の最近の動向		320
(1) 金属磁性	船橋 達 (原研物理部)	320
(2) 乱れたスピン系	勝又紘一 (北大応用電気研究所)	323
(3) 希土類非晶質合金の局所磁気異方性	八田真一郎 (学習院大理学部)	326

(4) 磁性超伝導体	石川征靖 (東大物性研究所)	330
(5) 核磁性と中性子散乱	河原崎修三 (阪大理学部)	334
3.5.5 生体物質の構造		337
(1) ミトコンドリア・コアの構造と機能	新村信雄 (東北大理学部核理研)	337
(2) 蛋白質の溶液中の構造	矢吹貞人 (群馬大教養学部)	340
(3) 筋肉の収縮機構	若林克三 (阪大基礎工学部)	343
	浜中俊明 (阪大基礎工学部)	
	三井利夫 (阪大基礎工学部)	
3.5.6 中性子光学と超冷中性子		347
(1) 中性子トポグラフィの応用	富満 広 (原研物理部)	347
(2) 中性子光学の応用	菊田惺志 (東大工学部)	352
(3) 超冷中性子の物理と応用	吉城 肇 (高エネルギー物理研究所) ...	355
3.6 中性子ラジオグラフィの最近の動向		358
3.6.1 中性子ラジオグラフィの特長と応用	山本 章 (原研大洗研究所)	358
3.6.2 開発研究の動向	和田延夫 (原研アイソトープ部)	365

3. Neutron beam research

3.1	Arrangement of neutron research facilities	Y. Miyasaka (JAERI)		167
3.2	Neutron beam facilities	H. Takahashi (JAERI)		171
3.2.1	Cold neutron source			171
3.2.2	Horizontal beam tube			171
3.2.3	Neutron guide tube			172
3.3	Neutron beam experimental facilities			182
3.3.1	High resolution powder diffractometer (HRPD)	S. Funahashi (JAERI)		182
3.3.2	Triple-axis neutron spectrometer (TAS-1)	N. Minakawa (JAERI)		184
3.3.3	Neutron Topography-precise neutron optics apparatus (PNO)	H. Tomimitsu (JAERI)		186
3.3.4	Polarized neutron spectrometer (PANSI-II)	Y. Ito (Tokyo Univ.)		190
3.3.5	Triple-axis neutron spectrometer (TAS-U1)	H. Fujishita (Tokyo Univ.)	...	192
3.3.6	Four-circle neutron diffractometer (FDNDI)	M. Sakata (Nagoya Univ.)		194
3.3.7	Polarization analysis spectrometer (TOPAN)	Y. Endo (Tohoku Univ.)		197
3.3.8	Thermal neutron radiography (TNR)	A. Tsuruno (JAERI)		200
3.3.9	Triple-axis neutron spectrometer (TAS-U2)	H. Nakai (Osaka Univ.)		204
3.3.10	Triple-axis neutron spectrometer (TAS-U3)	Y. Yamaguchi (Tohoku Univ.)	...	206
3.3.11	Double-axis neutron diffractometer (PND)	Y. Yamaguchi (Tohoku Univ.)	...	208
3.3.12	Neutron topography-precise neutron optics apparatus (NDT)	H. Tomimitsu (JAERI)		209
3.3.13	Triple-axis neutron spectrometer (TAS-2)	S. Funahashi (JAERI)		210
3.3.14	Backscattering neutron spectrometer (BS)	H. Nishi (Tokyo Univ.)		211
3.3.15	Small-angle neutron scattering facility (SANS-U)	N. Niimura (Tohoku Univ.)		215
3.3.16	Neutron spectral modulation spectrometer (NSM)	Y. Ito (Tokyo Univ.)		218
3.3.17	Cold neutron radiography (CNR)	A. Tsuruno (JAERI)		222
3.3.18	Neutron spin-echo spectrometer (NSE)	Y. Endo (Tohoku Univ.)		223
3.3.19	Small-angle neutron scattering facility (SANS)	H. Iizumi (JAERI)		225
3.3.20	Ultra cold neutron generator (UCN)	H. Yoshiki (High En. Phys. Lab.)		227
3.3.21	Neutron diffractometer for interferometry and optics (NDIO)	S. Kikuta (Tokyo Univ.)		231

3.3.22	Neutron diffraction camera (NDC)	H. Hidaka (Kyushu Univ.)	 234
3.3.23	Low-energy triple-axis spectrometer (LTAS)	S. Funahashi (JAERI)	 238
3.3.24	Development instrument for neutron technology (DINT)	S. Funahashi (JAERI)	 239
3.3.25	Diffraction image visualization equipment (DIVE)	S. Funahashi (JAERI)	 240
3.4	Recent trends on neutron scattering research (General remarks)		 241
3.4.1	Progress of new material research by thermal and cold neutron scattering	H. Iizumi (JAERI)	 241
3.4.2	Basic research in physics and development of new materials by neutron scattering	Y. Endo (Tohoku Univ.)	 252
3.4.3	Application of cold neutron scattering to biology and life phenomena	Y. Ito (Tokyo Univ.)	 256
3.5	Current topics of neutron scattering research (Special remarks)		 262
3.5.1	Phase transition and crystal structure of functional materials		 262
(1)	Hydrogen absorbed materials	H. Fujii (Hiroshima Univ.)	... 262
(2)	Super ionic conductor·one-dimensional electric conductor	H. Fujishita (Tokyo Univ.)	... 265
(3)	Intercalated graphite	H. Ikeda (Ochanomizu Univ.)	... 268
(4)	Amorphous metals and alloys	Y. Waseda (Tohoku Univ.)	 270
		T. Fukunaga (Tohoku Univ.)	
(5)	Intermetallic compounds	Y. Yamaguchi (Tohoku Univ.)	... 274
(6)	Fine ceramics	H. Ohno (JAERI)	 277
(7)	Cement	K. Doi (JAERI)	 280
(8)	Shape memory alloys	T. Kajitani (Tohoku Univ.)	... 283
(9)	Zeolite	T. Takaishi (Toyohashi T.S. Univ.)	 287
3.5.2	Fluctuation of non-equilibrium state		 290
(1)	Process of first-order phase transition and scaling law	Y. Yamada (Osaka Univ.)	 290
(2)	Phase transition of alloys	S. Katano (JAERI)	 295
(3)	Dynamics of first-order phase transition	S. Komura (Hiroshima Univ.)	... 298
(4)	Driven systems	M. Iizumi (JAERI)	 303
3.5.3	Condensed state of atoms and molecules		 307
(1)	Liquid metals	S. Tamaki (Niigata Univ.)	 307
		S. Takeda (Niigata Univ.)	

(2)	Polymer solution	Y. Izumi (Hokkaido Univ.)		311
(3)	Atomic dynamics in liquid-molten salt and super ionic conductor	T. Sakuma (Ibaraki Univ.)		313
(4)	Polymer	K. Kaji (Kyoto Univ.)		315
3.5.4	Magnetism			320
(1)	Magnetism in metals and alloys	S. Funahashi (JAERI)		320
(2)	Random spin system	K. Katsumata (Hokkaido Univ.)		323
(3)	The local magnetic anisotropy in rare earth amorphous materials	S. Hatta (Gakushuin Univ.)	...	326
(4)	Magnetic super conductor	M. Ishikawa (Tokyo Univ.)		330
(5)	Nuclear magnetism and neutron scattering	S. Kawarazaki (Osaka Univ.)	...	334
3.5.5	Structure of biological materials			337
(1)	Structure and functions of nucleosome core	N. Niimura (Tohoku Univ.)		337
(2)	Structure of protein in solution	S. Yabuki (Gunma Univ.)		340
(3)	Contraction mechanism of muscle	K. Wakabayashi (Osaka Univ.) T. Hamanaka (Osaka Univ.) T. Mitsui (Osaka Univ.)	..	343
3.5.6	Neutron optics and ultra cold neutron			347
(1)	Use of neutron topography	H. Tomimitsu (JAERI)		347
(2)	Use of neutron optics	S. Kikuta (Tokyo Univ.)		352
(3)	Ultra cold neutron	H. Yoshiki (High En. Phys. Lab.)		355
3.6	Recent trends on neutron radiography			358
3.6.1	Features of neutron radiography	A. Yamamoto (JAERI)		358
3.6.2	Trends on research and development	A. Wada (JAERI)		365

3. 中性子ビーム実験

原研研究炉管理部 宮坂靖彦

3.1 全体配置計画

中性子ビーム実験設備は、原子炉外に中性子を導き出し、散乱実験等の中性子ビーム実験に供するための設備である。

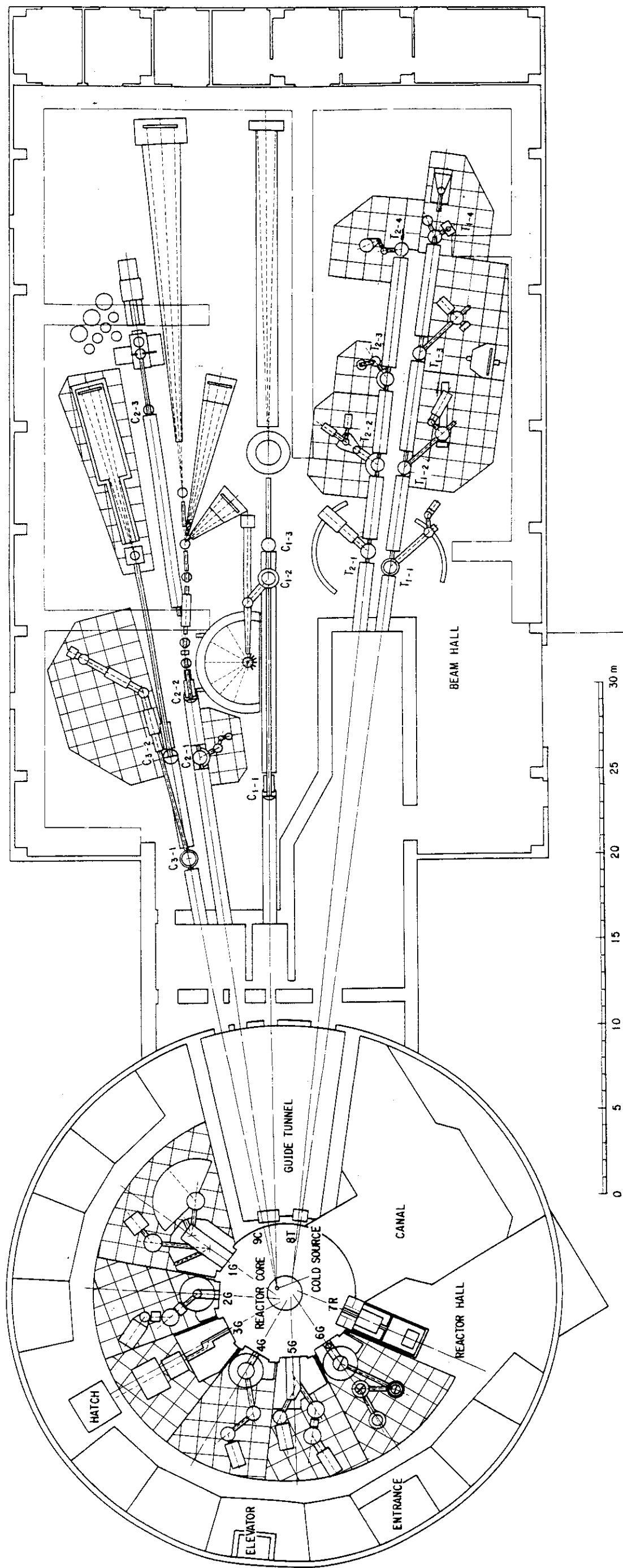
中性子ビーム実験は、従来は JRR-2, JRR-3 で行われてきたが、近年、エレクトロニクスの発達による計測技術の進歩、電子計算機の発展に伴うデータ整理、解析の進歩、さらに冷中性子利用による研究分野の拡大などのために、実験規模の拡大、質の改良などが要望されてきた。

JRR-3 改造に当たり、これら研究の進展に対応できるよう原子炉周辺設備を整備するとともに、中性子の線質の向上も図っている。特に、水平実験孔の配置に考慮し、中性子ビーム取出し数を極力多くするとともに、熱中性子を効率良く導き出すようにしている。また、従来は炉室内だけに止まっていたビーム実験を、中性子を炉室外にまで中性子導管により効率良く導き出すことによって、炉室外の実験利用棟 2 階のビームホールでも多数のビーム実験が行われるようにしている。さらに冷中性子源装置 (CNS) を設置し、冷中性子の利用を行えるようにしている。

水平実験孔は、できるだけ多く配置することを検討し、原子炉プール及び重水タンクの構造上から 9 本を配置した。このうち、冷中性子源用及び熱中性子用は、実験孔の中で、それぞれ 3 本及び 2 本のビームが取出すことができるので、実質 12 本相当である。これに中性子散乱実験等の研究者側の実験装置が据付けられる。

ビーム実験装置の配置計画は、JRR-2 及び JRR-3 に設置されていた基数を確保すると共に、将来、ビームホールでの実験が相当に増加するものと考え立案した。このビームホール設計に当たっては、フランスのオルフェ炉を参考に約 16 台の中性子散乱実験装置の設置が可能な大きさとした。

これまでの研究者側の要望に基づくビーム実験装置の全体配置計画図を Fig. 1 に示す。これは、装置の特性、専事床面等を考慮し検討したものである。炉室には、一般水平実験孔 (1G-6G) に散乱実験装置等 7 基、及び中性子ラジオグラフィ 1 基 (7R) を配置する。また、ビームホールには、冷中性子用ガイドチューブ 3 本及び熱中性子用ガイドチューブ 2 本を用いて 17 基を配置する予定である。なお、各装置の概念は 3.3 に述べる。



原子炉建家内ビーム実験装置			中性子導管利用ビーム実験装置		
No	装置名	研究分野	No	装置名	研究分野
1G	高分解能粉末中性子回折装置	結晶構造、相転移	C1-1	中性子小角散乱装置 (大学)	高分子生体研究
2G	3軸型中性子分光器	原子スピンの動力学	C1-2	中性子後方散乱装置 (大学)	準弾性散乱
3G	中性子トポグラフィ	格子欠陥	C1-3	未定	
4G	偏極中性子散乱装置 (大学)	磁性、生物高分子	C2-1	低エネルギー3軸型分光器	高分解能
5G	3軸型中性子分光器 (大学)	物性物理	C2-2	中性子スペクトル変調装置 (大学)	物性研究
5G	4軸型中性子分光器 (大学)	結晶構造	C2-3	中性子ラジオグラフィ	中性子透過写真
6G	偏極3軸型分光器 (大学)	材料研究	C2-4	超冷中性子発生装置 (大学)	中性子物理
7R	中性子ラジオグラフィ	非破壊検査	C3-1	中性子スピニング分光器 (大学)	高分解能非弾性
			C3-2	中性子小角散乱装置	合金の研究

Fig. 1 Neutron research facilities at upgraded JRR-3.

3.2 中性子ビーム実験設備

原研研究炉管理部 高橋秀武

3.2.1 冷中性子源装置 (Fig. 1 参照)

約 20 年以前, ヨーロッパにおいて研究が始められた冷中性子源装置 (以下「CNS」と略称する) は, その後, ヨーロッパ諸国並びにアメリカ合衆国の研究炉に設置され, 中性子散乱等の実験に利用されている。

従来から利用されている原子炉からの中性子には, 約 1 % 程度の冷中性子が含まれているが, 一部の限られた実験に利用されているに過ぎなかった。これを本格的に利用するためには原子炉内に冷減速材を配置し, 熱中性子を冷減速材と熱平衡させることにより減速し, 冷中性子量を増加させる必要がある。

JRR-3 の改造に際して設置する CNS は, スイミングプール型炉の炉プール内での設置が容易であるという特徴を生かして, 縦型構造とし, 重水タンク内に設置する。冷減速材には, 重水素に比して減速効率の優れた液体水素 (温度約 20 K) を使用する。(Table 1 参照)

本 CNS は, Fig. 1 のように CNS 本体設備, ヘリウム冷凍設備, 及びその他の付属設備から構成する。CNS 本体設備は, 炉内の重水領域に, 液体水素を貯留するための設備であり, Table 2 に示すように減速材容器, 真空容器, 低温流路管から成るクライオスタット, コンデンサ, 水素緩衝タンク, 補助設備から構成する。水素緩衝タンクコンデンサ, クライオスタットは, 一体の容器となって水素を格納し, 後 2 者は低温を保つために, 外側に真空断熱層を有している。水素は, ヘリウム冷凍設備からの低温ヘリウムガスとコンデンサで熱交換し, 液化されて低温流路管内を流下し, 減速材容器中に貯留される。貯留された液体水素は, 炉心の核加熱や侵入熱によってガス化し, 低温流路管を通してコンデンサ部に上昇し, ここで再び液化される。これによって水素はガス相から液相へと変化を繰り返すサーモサイフォンを構成して系内を循環する。従って, 水素の循環には機械動力を用いない閉回路で行うという単純な構造になっている。また, 水素と空気が混合して, 水素爆発が生じないようにするため, 水素の密封に係る弁を 2 重にするなど密封性を確保するとともに, 万一容器等に漏洩が生じても空気が侵入しないように, 水素を格納する機器を全て水中に設置している。

冷中性子源の設置位置は炉心中心から 550 mm 離れた重水の中であり, 熱中性子束 1.6×10^{14} n/cm²・s (Table 4) が得られるところである。液体水素を通った後の冷中性子のスペクトルと利得は Fig. 2 に示す。4 Å, 5 meV の長波長, 低エネルギーの冷中性子で約 7 倍, 10 Å, 0.8 meV で約 20 倍の利得が得られる。この冷中性子源はグルノーブルの HFGR, サクレの ORP-HEE に次ぐビームが得られる見込みである。

ヘリウム冷凍設備は, コンデンサに低温ヘリウムを供給するためのもので, Table 3 に示すようにヘリウム圧縮機, コールドボックスユニット, ヘリウム貯槽, ヘリウム精製装置, 液体窒素供給設備等から構成する。ヘリウム冷凍サイクルはブライトンサイクルを用い, 冷凍能力はコンデンサ入口で約 15 K において 1.2 KW のものを計画している。

3.2.2 水平実験孔設備

水平実験孔は、重水タンクより中性子を炉外に導き出し、種々の実験に供するものである。水平実験孔はFig. 3に示すように合計9基を設け、それぞれはビームチューブ、ビームチューブ接続管、プラグ及び補助遮蔽体から構成され、その形状は実験目的に応じたものとしている。重水タンク内の水平実験孔の配置を、炉心に対して接線方向に設けることによって、中性子ビーム実験にとって外乱となるガンマ線や高速中性子の成分が少ない熱中性子を導き出す。

水平実験孔1G～6Gの6基は、Fig. 4のように炉室内での一般のビーム実験用に供する。Fig. 5に示す水平実験孔7Rは、炉室内でのニュートロンラジオグラフィに供するためのものである。

Fig. 6およびFig. 7水平実験孔8T、9Cは、中性子導管に接続し、実験利用棟でのビーム実験に供するもので、8Tは熱中性子用で2本のビームを取り出し、9CはCNSからの冷中性子を3本のビームとして取り出す。

各水平実験孔の先端の熱中性子束は、Table 4に示すように、最大 $2.4 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ である。2G、4G、6Gは、炉心中心より10 cm低い位置に設置する予定であるが熱中性子束の軸方向のピーク値に近い位置になっている。一方、1G、3G、5Gは、構造上の制約から炉心中心より10 cm高い位置であるため、約1割ほどピーク値より低い値となっている。これらの値は、JRR-2の値の2倍以上となっている。

中性子ラジオグラフィ用の7Rの先端は、取りだしビームの強度を調整するため重水タンク外周部に近い位置としたため、 $5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ となっている。

3.2.3 中性子導管

中性子導管は、中性子の波長に比例する全反射角度を利用して、線源からのガンマ線および高速中性子を除去し、所定のエネルギーの中性子を効率良く遠くまで導くためのものである。JRR-3改造炉では、水平実験孔8Tに2本の中性子導管を接続孔9Cには3本の中性子導管を接続して、前者は熱中性子を後者は冷中性子を、それぞれ実験利用棟のビームホールに導きビーム実験に供する。中性子導管の諸元概要をTable 5に示す。

中性子導管は、Fig. 8に示す構造で、中性子を反射して遠くまで導く鏡管と、鏡管を支持し、精度良く設置するための架台及び調整機構、及び遮蔽体から構成する。鏡管は平滑なガラス面に約1000 Å程度の薄いNiのコーティング膜を施した4枚の板を、Ni膜を内面にして張り合わせたもので、内面寸法幅20 mm、高さ200 mm(9Cでは高さ120 mm)、長さ850 mmで1ユニットを構成する。この1ユニットの鏡管を、炉室のガイドトンネル内にある水平実験孔8T、9Cから実験利用棟のビームホールまでの約60 m間に、架台上に水平に、かつ所定の曲率に調整機構で調整して並べることによって、中性子を効率よく実験利用棟に導く。中性子導管配置図をFig. 9に示す。

ビームホールで中性子導管により、中性子ビームを分割して取り出すことによって、従来は原子炉炉周りで水平実験孔数程度の実験装置しか配置できなかったものが、広大なビームホールでのスペースと相まって、飛躍的にビーム実験数を増加させることが可能となった。さらに、中性子導管を用いて、所定の波長、エネルギーの中性子を取り出すことが可能となり、低エネルギーの冷中性子を利用することができることによって、中性子ビーム実験及び利用の分野の拡大が大きく期待できる。

参 考 文 献

- 1) 大友昭敏, 高橋秀武, 坂本正誠: 冷中性子スペクトルの計算, 未公開資料 (1985).

Table 1 Cold Neutron Source (CNS) Facility

項 目	内 容
型 式	縦型熱サイフォン循環式
基 数	1 基
冷 減 速 材	液体水素, 約 20 K
減速材容積	約 800 cc
減速材位置	重水タンク中, 熱中性子束約 $1.6 \times 10^{14} \text{ n/sec} \cdot \text{cm}^2$
主要構成機器	炉内設備 { クライオスタット (減速材容器, 真空容器, 低温流路管) コンデンサ (約 800 W) 水素緩衝タンク 炉外設備 ヘリウム冷凍設備 (冷凍能力約 1.2 KW)
水素爆発の安全対策	水素系は水中設置 真空断熱槽による二重封入

Table 2 In-Pile Components of CNS

機 器 名	仕 様
クライオスタット 減速材容器	① 形 状：水筒形曲面構造 ② 材 質：A 286 ③ 寸 法：高さ約 200 mm, 巾約 120 mm, 厚さ約 50mm ④ 内 容 積：900 cm ³
真空容器	① 形 状：円筒胴全半球鏡 ② 材 質：JIS A 6061 ③ 寸 法：外径約 154 mm, 内径 138 mm, 長さ 150 mm
低温流路管	① 形 状：3 重同心円管 ② 材 質：JIS SUS 304L ③ 寸 法：全長約 7 m
コンデンサ	① 型 式：縦型シェルアンドチューブ ② 材 質：JIS SUS 304L ③ 熱交換量：最大 800 Watt ④ 流体条件：管側－水素, 温度約 20 K 胴側－ヘリウムガス, 温度約 15 K
水素緩衝貯蔵タンク	① 型 式：縦置（シールガス槽付 2 重）円筒容器 ② 材 質：JIS SUS 304L ③ 内 容 積：約 600 ℓ

Table 3 Out-Pile Components of CNS

機 器 名	仕 様
ヘリウム圧縮機	① 型 式：スクリー式 ② 流 量：2300 Nm ³ /h/基（予備1基） ③ 主 材 料：炭素鋼 ④ 寸 法：約2100 W×3800 L×2500 H mm
コールドボックス	
熱交換器	① 型 式：アルミニウム・プレートフィン式 ② 流 体：ヘリウムガス ③ 主要材料：ステンレス鋼
膨脹タービン	① 型 式：静圧式ガスベアリング式 ② 流 体：ヘリウムガス ③ 流 量：約990 Nm ³ /h/基（予備1基） ④ 主要材料：ステンレス鋼
コールドボックス 容器	① 断熱方式：積層真空断熱 ② 主要材料：ステンレス鋼
ヘリウム貯槽	① 型 式：円筒堅型 ② 内 容 積：約6 m ³ ③ 主要材料：ステンレス鋼
ヘリウム精製装置	① 低温精製器型式：活性炭低温吸着 ② 乾 燥 器：活性アルミナー ③ 再生用ヒータ：約6 KW
液体窒素供給設備	① 型 式：縦型2重タンク ② 容 積：約15,000 ℓ ③ 主要材料：JIS SUS 304 L
コントロールヒータ	① 型 式：シース型 ② 容 量：約1 KW

Table 4 Estimated Unperturbed Neutron Fluxes
of Experimental Holes

Position	Expt. Hole	Neutron Flux (n/cm ² ·sec)	
		Fast	Thermal
D ₂ O Reflector	1G	6.9×10^{12}	2.1×10^{14}
	2G	9.4×10^{12}	2.4×10^{14}
	3G	5.6×10^{12}	1.9×10^{14}
	4G	7.6×10^{12}	2.1×10^{14}
	5G	5.4×10^{12}	1.8×10^{14}
	6G	7.6×10^{12}	2.3×10^{14}
	7R	4.0×10^{10}	8.5×10^{13}
	8T	8.5×10^{12}	2.3×10^{14}
	9C	1.1×11^{12}	1.6×10^{14}

Table 5 Neutron guide tube.

型 式	鏡管真空方式				
中性子反射面	ほうけい酸ガラス表面, Ni 蒸着膜				
鏡管要素の形状・長さ	矩型, 85 cm				
導管の種類・基数	熱中性子用 2基 (T ₁ , T ₂) 冷中性子用 3基 (C ₁ , C ₂ , C ₃)				
主要構成機器	鏡管 鏡管支持調整機構 鏡管架台 遮蔽体 真空系				
導管特性	導管	特性波長	断面寸法	曲率半径	全長
		Å	cm	m	m
	T ₁	2	20×2	3337	58
	T ₂	2	20×2	3337	57
	C ₁	4	12×2	834	37
	C ₂	4	12×2	834	44
	C ₃	6	12×2	371	27

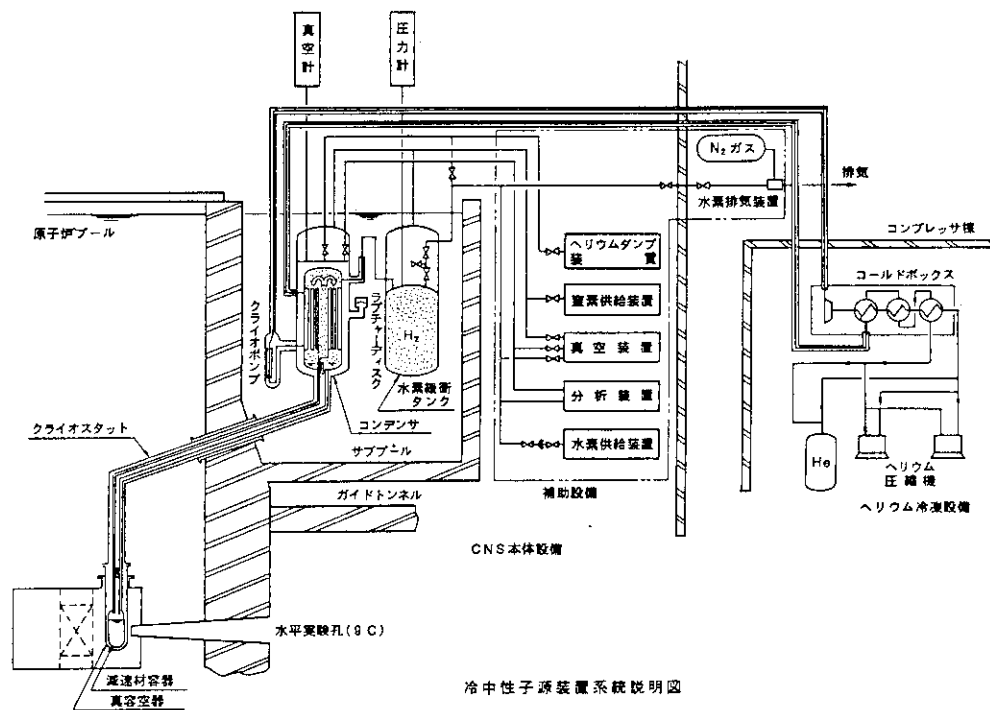
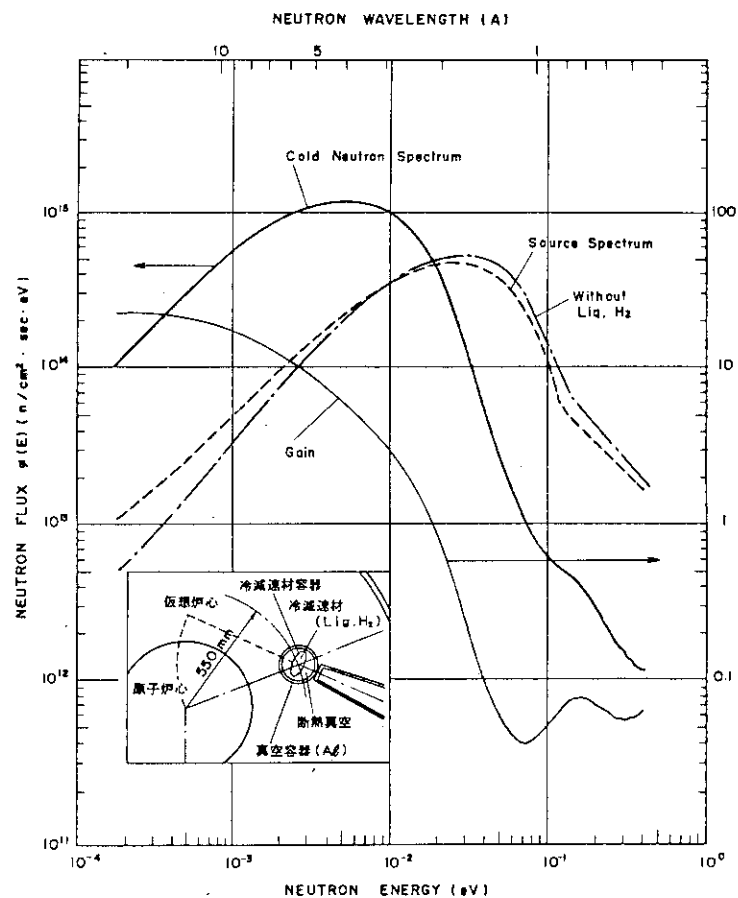
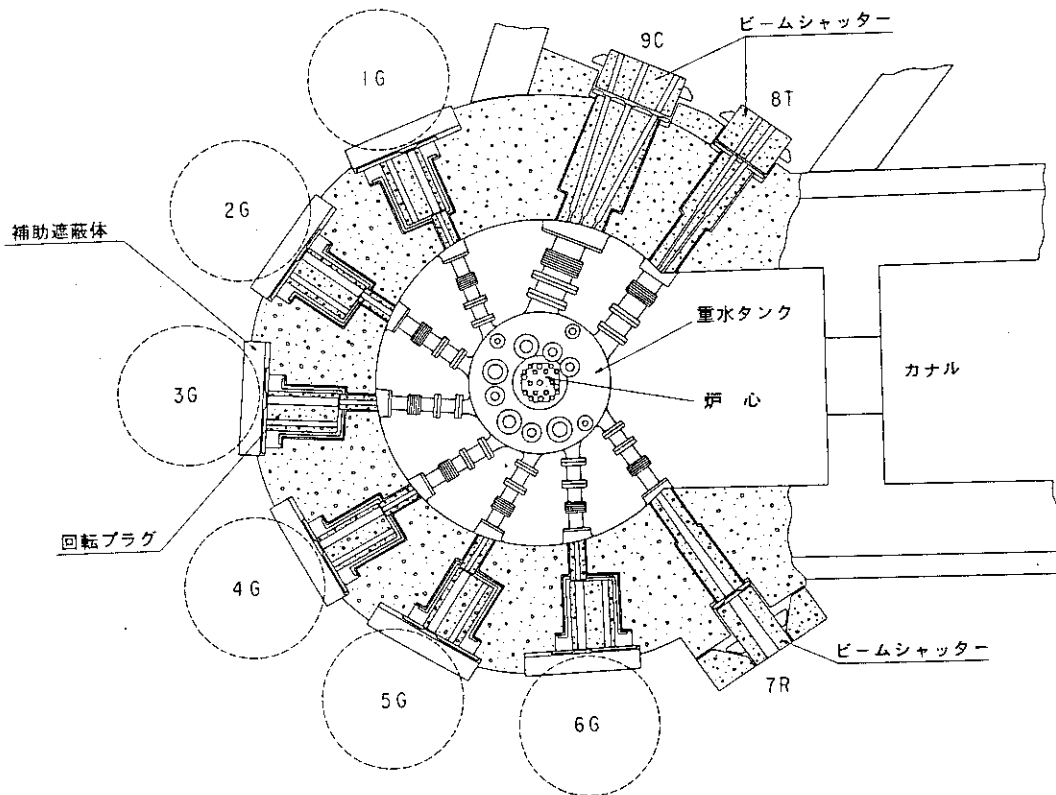


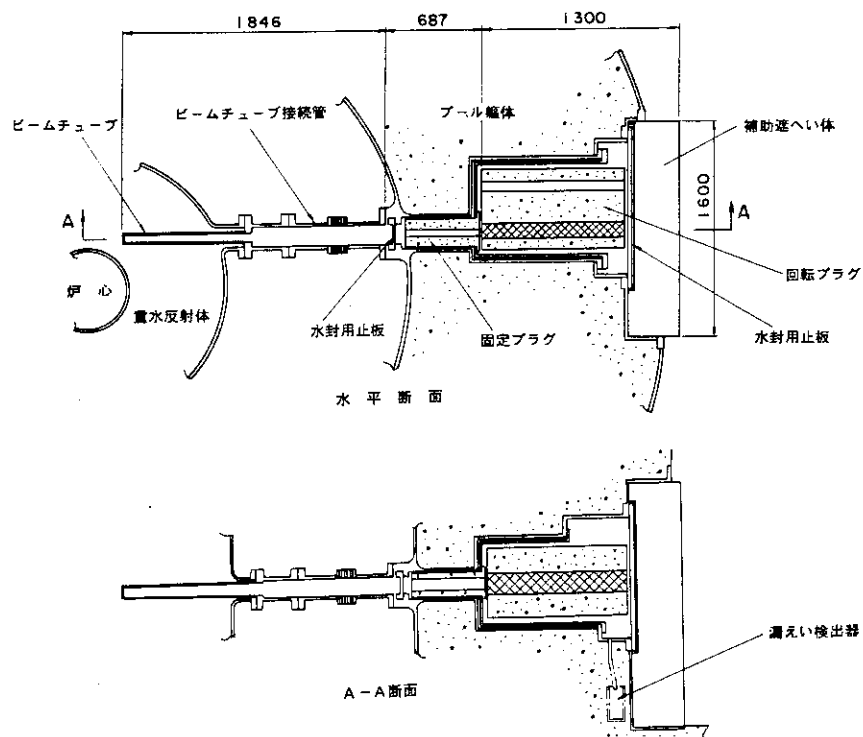
Fig. 1 Schematic diagram of cold neutron source. (CNS).

Fig. 2 Cold neutron spectrum and gain.¹⁾



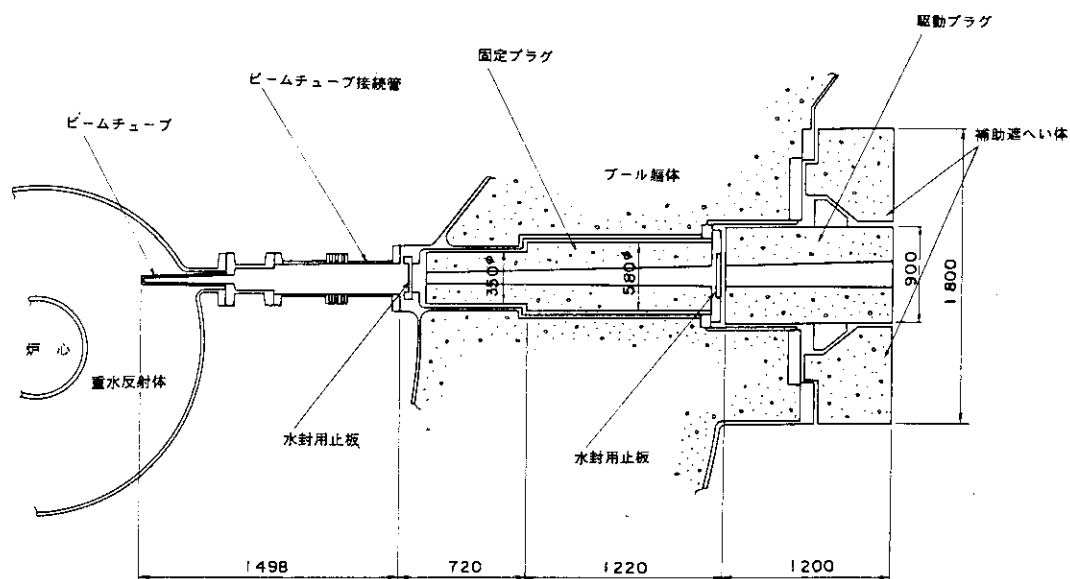
水平実験孔配置

Fig. 3 Horizontal beam tube arrangement.



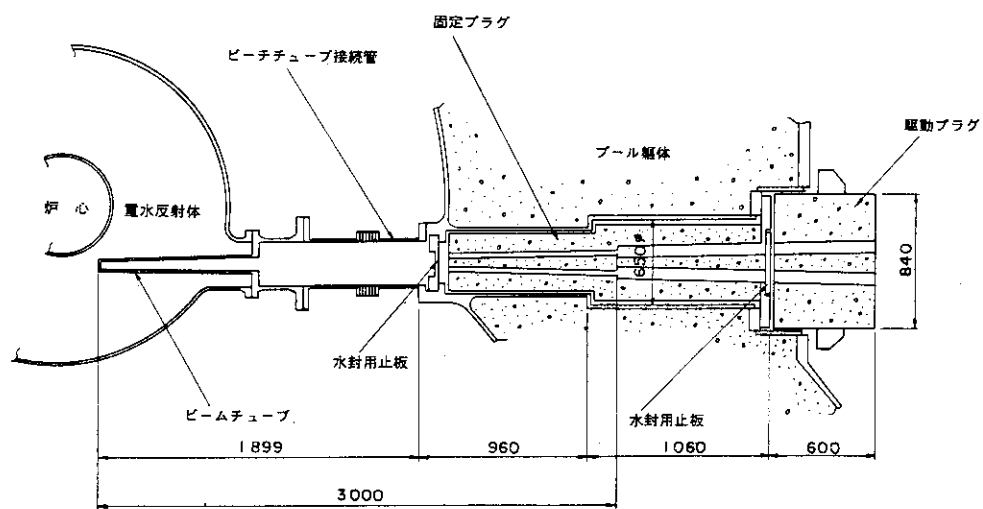
水平実験孔 (1G~6G) 構造

Fig. 4 Beam tube (1G~6G).



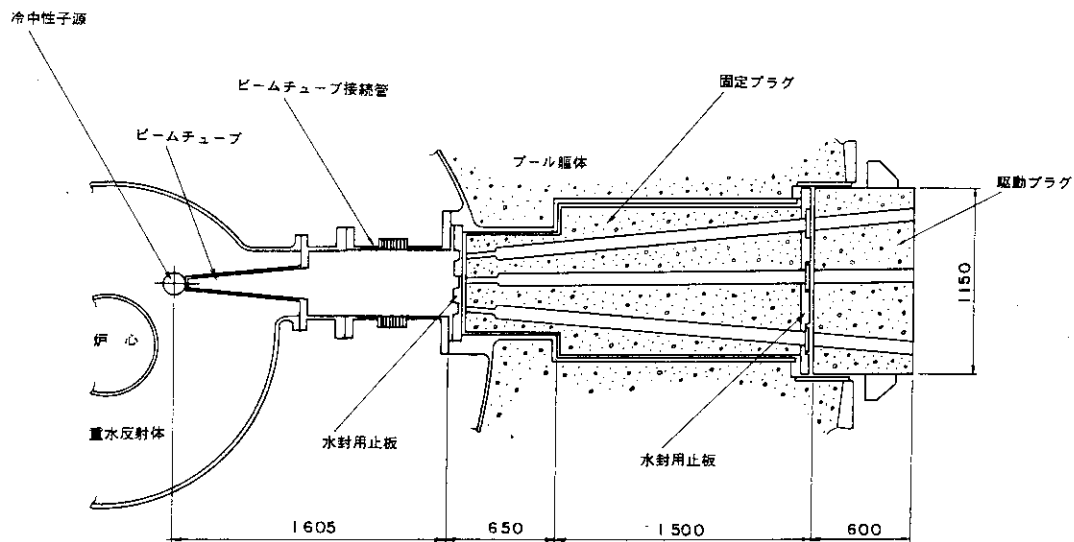
水平実験孔 (7R) 構造

Fig. 5 Beam tube (7R).



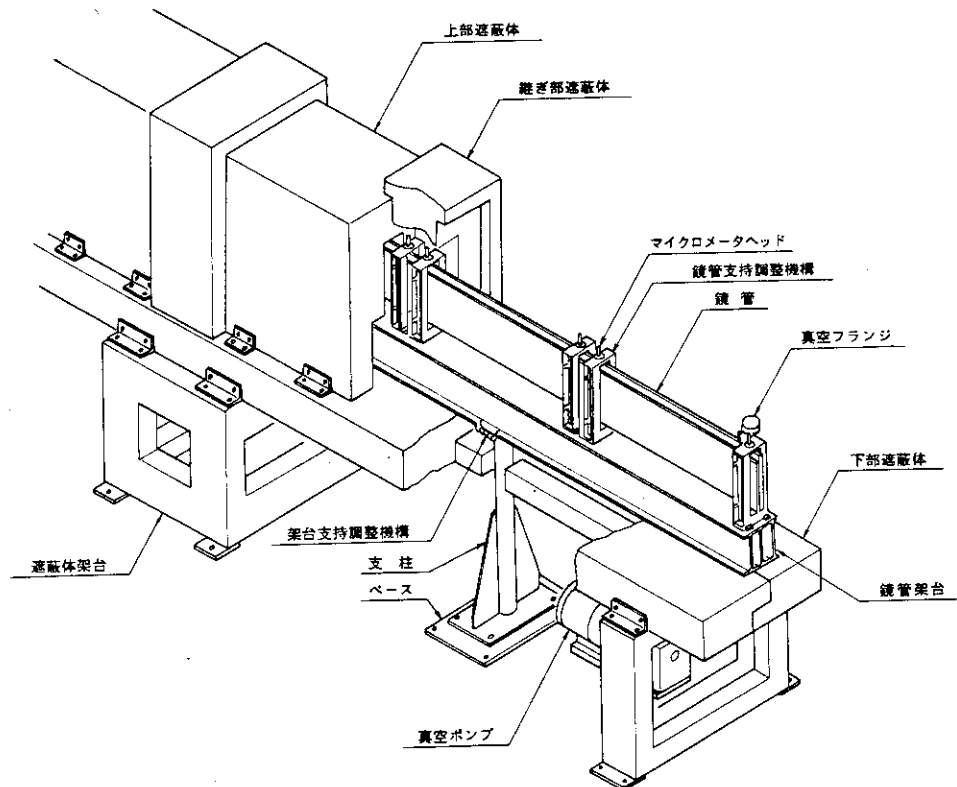
水平実験孔 (8T) 構造

Fig. 6 Beam tube (8T) for thermal neutron guide tube.



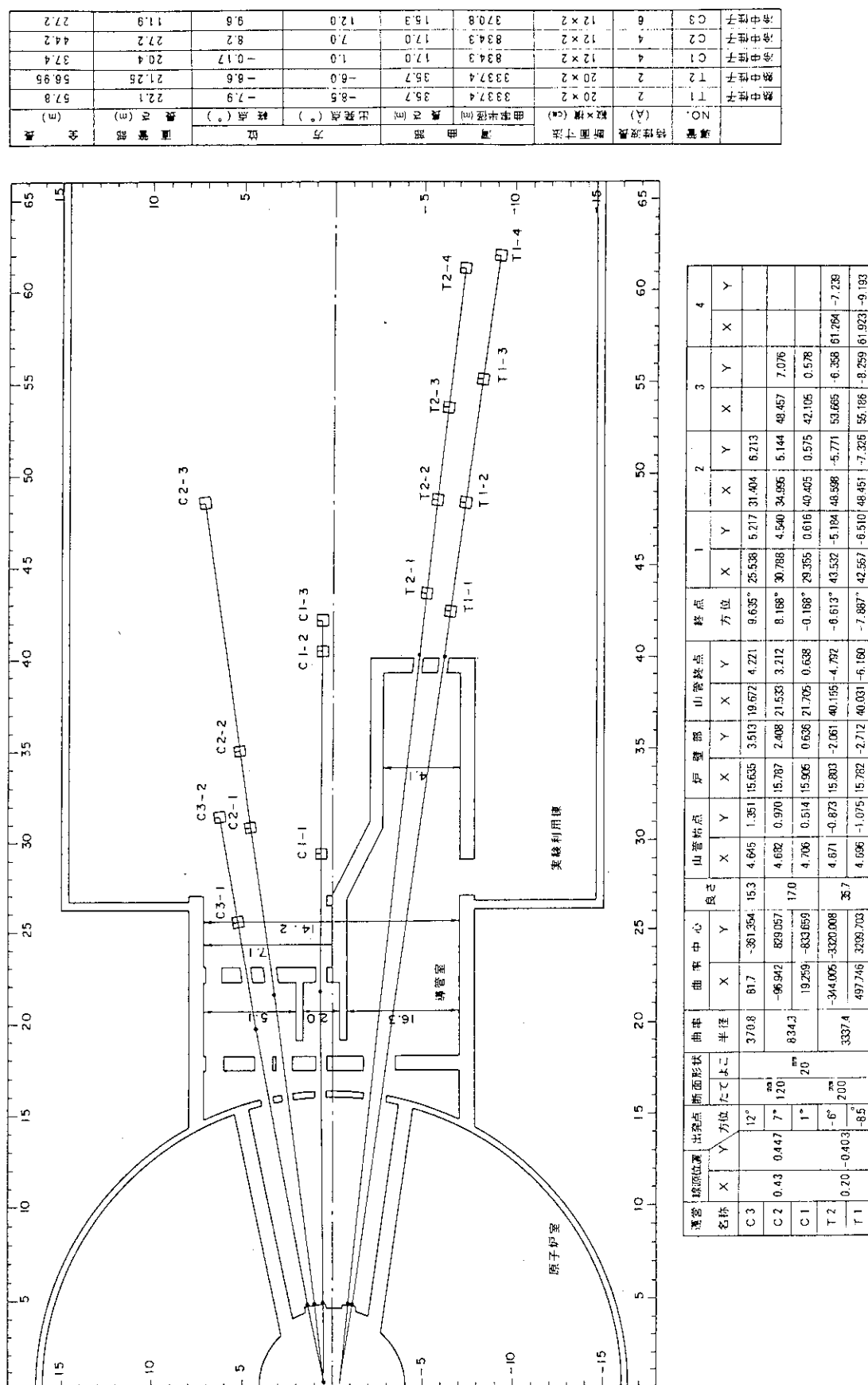
水平実験孔 (9C) 構造

Fig. 7 Beam tube (9C) for cold neutron guide tube.



中性子導管鳥瞰図

Fig. 8 Isometric view of neutron guide tube.



3.3 中性子ビーム実験装置

3.3.1 高分解能粉末中性子回折装置 (HRPD)

原研物理部 船橋 達

この装置は炉室内実験孔 1 G に設置する空気浮上方式の回折装置である。モノクロメーター遮蔽体の中でビームを上下に 2 分し、高分解能粉末中性子回折装置と単結晶回折装置で利用する。

- (1) 高分解能粉末中性子回折装置は、複雑な構造をもった物質の構造解析を行うことをめざすものである。多結晶試料を使用する構造解析に一般的に使用できるが、特に期待がよせられるのは機能性材料などの構造解析である。たとえば、ファインセラミックスなど、最近開発されつつあるすぐれた特性をもった新素材は多くの場合複雑な組成をもっている。単位胞の大きさが大きく、中性子回折パターンも複雑になるが、これを解析するためには、なるべく多数の回折線を分離しかつ散乱強度を精度よく測定しなければならない。

1) カウンター

こういうことを実行するためには、第 1 コリメーター (原子炉-モノクロメーター間) と第 3 コリメーター (試料-カウンター間) の発散角 (α_1 と α_3) をともに狭くする必要がある。このとき、 $\alpha_1 = \alpha_2 (= \alpha)$ とするのが最適条件であるが、大ざっぱに言えば回折線のピークの高さも幅も α に比例し、したがって積分強度は α^2 に比例して小さくなる。散乱角 (2θ) のステップ幅も α とともに小さくしなければならないので、全体として α^3 に比例して強度を失うことになる。しかし、多結晶試料を対象としているので、多数のカウンターでいくつかの散乱角での測定を同時に行うことが可能である。また、円筒形試料を完浴条件で使用するとして、試料の量はできるかぎり多い方がよい。散乱角の低いところが問題にされない場合には、試料を縦方向に長くすることは許される。中性子の吸収が多くなれば半径方向に大きくすることができる。

これらの条件と空間的制約を考慮して、発散角 0.1 度のソーラーコリメーターを 5 度間隔で 31 本並べたカウンター系をとることにした。こうしてすべてのカウンターを一体として動かすと、0.1 度幅で 50 ステップ測定することによって 155 度の散乱角を覆うことができる。

2) モノクロメーター系

モノクロメーターの散乱角 ($2\theta_M$) は、分解能の点からいうと、90 ~ 120 度がのぞましいが、空間的制約があり、試料の格子定数によっても変える必要があるので、90 度・45 度・20 度の 3 つの固定角度から選べるようにする。モノクロメーターは 4 個常設し用途に応じて遠隔操作により交換する。

1 次データは計測系に接続した記憶装置に蓄積するが Rietvelt 法などの複雑な処理は計算センターの大型計算機に転送して行う。

(2) 単検出器回折装置

この装置は標準型の 2 軸回折装置である。単結晶試料を使用する構造解析に適した汎用型の回折装置であり、上記の高分解能粉末回折装置と相補的役割を担うものである。

付属装置として 4 サークルゴニオメーターを準備する。

また、高温・低温・高圧・磁場等の環境下での測定が行えるよう、試料テーブルの耐荷重を大きくとる。

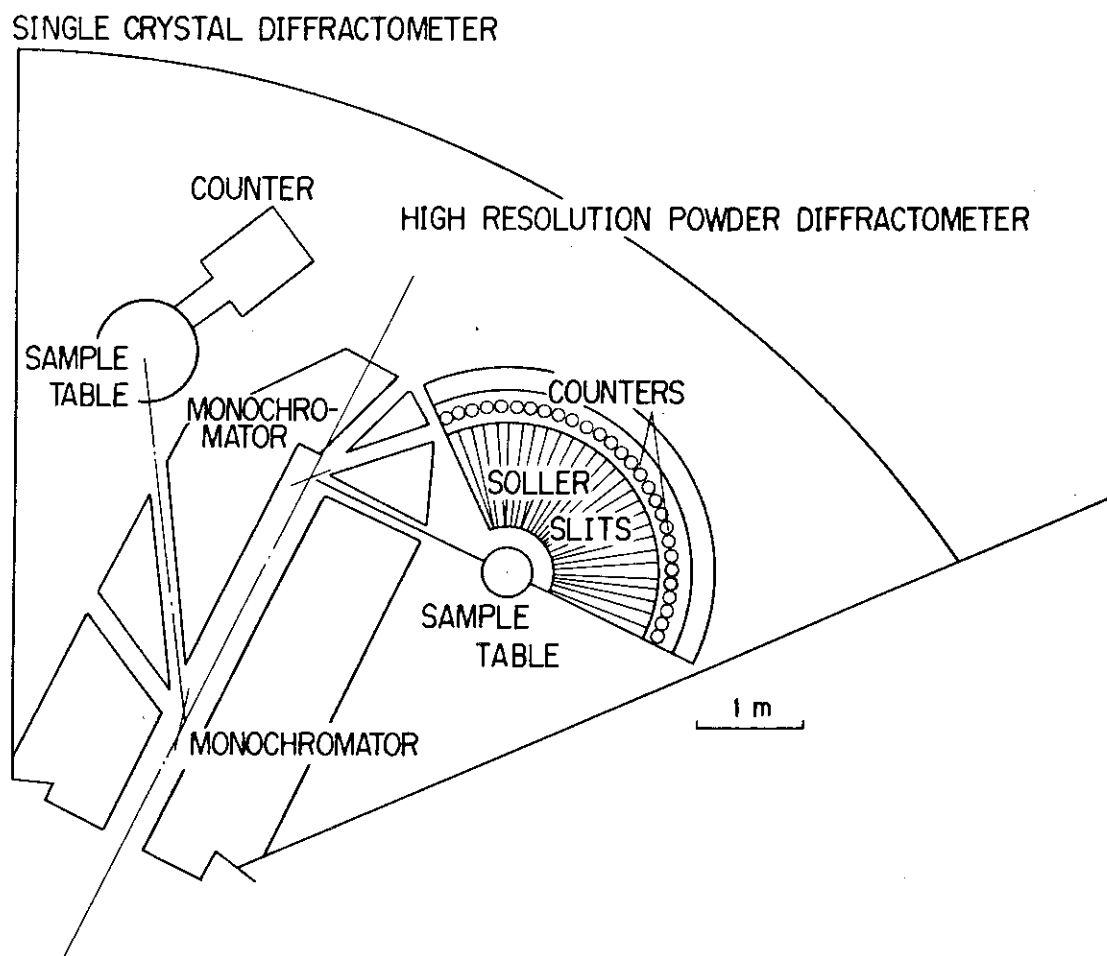


Fig. 1 Schematic layout of the high resolution powder diffractometer.

3.3.2 三軸中性子分光器（偏極中性子機能付き）（TAS-1）

原研物理部 皆川 宣明

(1) 目 的

この装置は原子炉2 G水平実験孔に設置し、中性子のエネルギー変化を伴った散乱（非弾性散乱）を測定する装置である。

中性子散乱において物質とのエネルギー及び運動量の授受を測定することによって、格子振動で代表される物質中の原子の集団運動や、スピン波で代表される磁性原子スピンの集団運動等、動的構造を調べることが出来る。

形状記憶合金の記憶現象や、種々の磁気変態その他、温度・圧力・応力・磁場等、種々の環境変化によって生ずる相変化の機構を原子間力のレベルから、原理的に解明することを主目的とする。

原子核による散乱と磁気スピンによる散乱は、しばしば重畳して発生し解析を不確実にするが、本装置には偏極中性子機能が設備され、散乱に磁気スピンが関与したか否かの判別が明瞭に出来る。

(2) 機 能

モノクロタンク入射側に冷却器付きサファイヤフィルターを設置すると共に、反射側にはパイロリテック黒鉛等を取付けS/Nの改善を行う。

選択エネルギー範囲を10～330 meV (0.5～3 Å)とするために、モノクロ結晶を複数用意し外部より測定目的に合ったモノクロ結晶及び偏極用単結晶を選択出来る上下移動とターレット方式を組み合わせた機構とする。

単色化中性子線束としては $\sim 1 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ を目標とし、Cd比は10以上を目標とする。

角度駆動範囲は、モノクロメーター角度を $-5^\circ \sim 60^\circ$ 、散乱角度は $-5^\circ \sim 140^\circ$ 、アナライザー角度は $-5^\circ \sim 140^\circ$ とする。

これらの駆動は空気浮上方式とし $90^\circ/20 \text{ sec}$ で駆動出来るものとする。

各部が分離合体出来る構造とし、磁気散乱測定時にはモノクロタンクと試料テーブル間に偏極中性子飛行管等が接続される。更に偏極解析を行う場合には、試料テーブルとカウンターの間に偏極解析器が接続される。

これらの一連の計測・制御・データ収集は、小型計算機を介して行われる。データ処理は中央計算機により実験目的に合った処理が行われ即座にその結果が、CRT、プロッター、プリンター等に出力される。

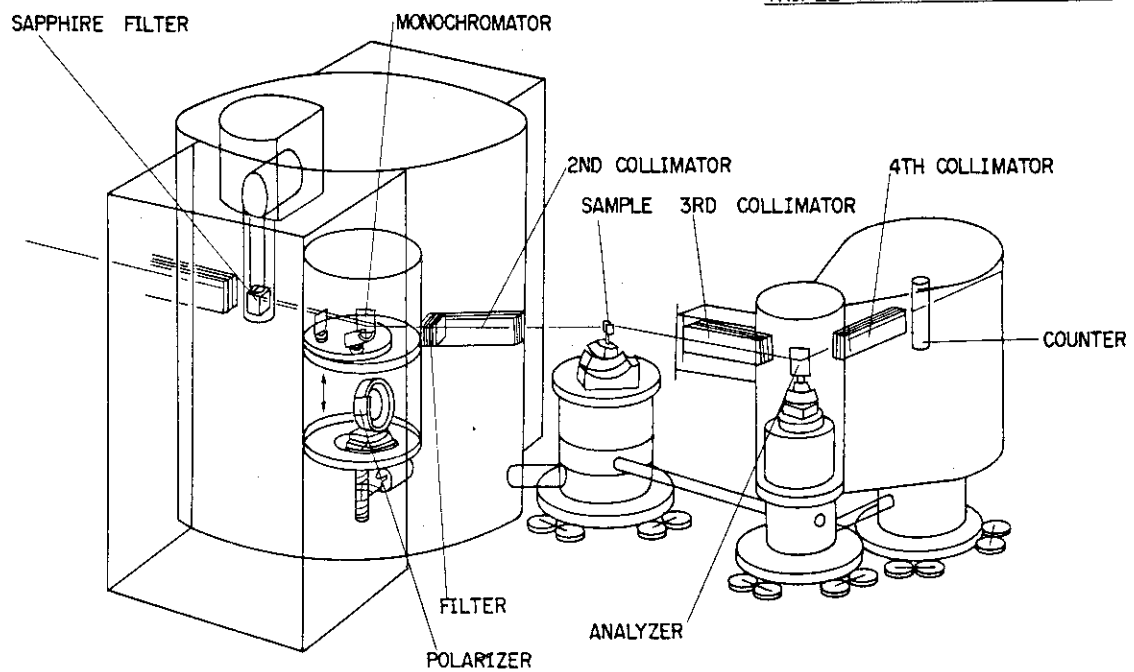
TRIPLE-AXIS SPECTROMETER

Fig. 1 Schematic view of the triple-axis spectrometer.

TRIPLE-AXIS SPECTROMETER

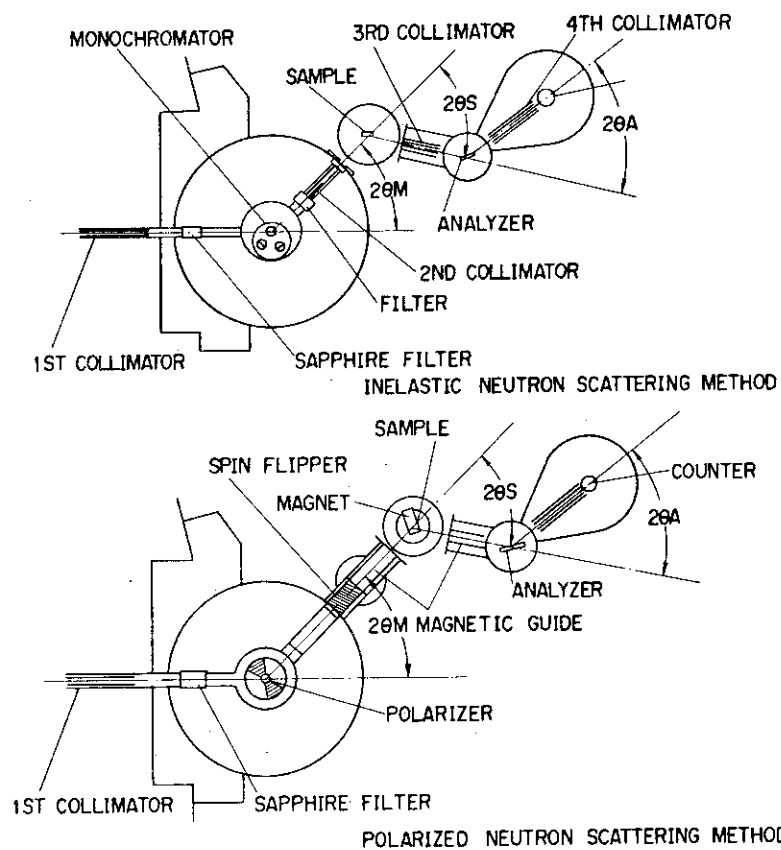


Fig. 2 Schematic layout of TAS for two arrangements.

3.3.3 中性子トポグラフィ・精密光学実験装置 (PNO)

原研物理部 富満 広

本装置は、炉室実験孔 3 G に設置する予定で、第 1 図に示すような構成である。さて本装置は、下記のような諸元・特徴を有し、物性研究、材料研究、核データ収集を効率よく、高精度で遂行できるように設計されている。

(1) 単色波取出部

- 1) コリメータは、発散角 $2'$, $30'$, 1° の 3 種類各一本が、炉壁部回転シャッター内に設置されており、遠隔操作で切り替えられる。また検出器入口に、ノイズ除去用として発散角 $30'$ のものを設置する。
- 2) モノクロメータは、所謂二結晶式で、二枚の結晶で (+, -) 反射させて単色波を取り出すので、中性子線束は、波長に拘らず一定の場所に取り出せる。従って、使用波長には、熱中性子領域の範囲で制限はない。モノクロメータ結晶としては、PG (熱分解黒鉛) のみならず、必要に応じて Ge, Si 等をも使用できるように、モノクロメータ駆動機構の第二結晶軸は単独に角度精度 $0.01''$ で設定でき、更にこの部分にも一定の温調を施す。また、この部分の遮蔽体は固定式で、 $2 \times 2 \times 2 \text{ m}^3$ の体積を有し、鉛、重コンクリートで充分な遮蔽機能を持たせ、ノイズ低減を図っている。

(2) 実験部

- 1) ゴニオメータは、精密光学実験用 (ステップモータ駆動、角度精度 $0.01''$, $\pm 5^\circ$ あおり二軸、手動全周可、粗設定用 $1^\circ/1000$ エンコーダ装備) 二台と、トポグラフィ用 (入射スリット、回折スリット、フィルムカセット載台、走査機構具備、角度精度 $1''$) 一台とを準備する。何れも耐荷重 300 kg 程度の範囲で、できるだけ小型にまとめ、実験台上での位置移動は手動で行える。
- 2) ビームスリットは、ストローク $\pm 15 \text{ mm}$ 程度のマイクロメータ使用で、上下幅、左右幅を各 0.01 mm の精度で手動設定できるものとする。また高さもストローク $\pm 30 \text{ mm}$ 可変とする。スリット片材質は、Cd 板 + ボロンゴムである。
- 3) 以上 1), 2) は、防振台を兼ねた実験台に磁気ロック方式で固定される。防振台は、使用面積 $1.5 \times 1.2 \text{ m}^2$ で、空気バネ方式で地震その他、数 Hz の低周波振動をも効率よく吸収・遮断する。
- 4) 上記 1), 3) は、高精度で制御された恒温室 (容積 $1.5 \times 2 \times 2 \text{ m}^3$) に収められる。高さ 2 m に設置された恒温ユニットは、冷房系 (400 W) と暖房系 (1 kW) とを内包し、それぞれは独立に制御され、実験空間を自然対流式で室温 $\pm 0.05^\circ\text{C}$ に保つ。この部分の温度調節の様子は後述制御系でモニターされる。
- 5) 上記 1), 4) は、圧空移動台に搭載されている。これは必要に応じて空気浮上して、手動で位置決めできるもので、実験台を有効利用できる。これは他方、定常実験時には、地震等で暴走しないよう、ゴムパッドで大理石床面に吸着・固定されている。

(3) 記録計・計測系・制御系

- 1) トポグラフィ実験用の記録系としては、通常のフィルムカセットによる写真撮影方式に加えて、TV 方式も使用できる。これは中性子シンチレータ、オプティカルプレートにイメー

ジ管を組み合わせる方式により、回折線束断面内の中性子強度分布を、可能な限り拡大して（走査線の影響を排除して）in situ 観察やビデオ記録を行う。更に、その二次元データは I/O インターフェイスを通して外部大型計算機に接続され、三次元表示も随時行なえる。この記録系は更に、後述の干渉計実験における干渉縞の迅速観察にも利用される。

- 2) 精密中性子光学実験において、透過線束、回折線束の強度を同時測定、比較処理ができるように、検出系は正副二系統を有し、必要に応じて計算機制御される。検出器 (BF_3) は何れも充分な遮蔽体に収められ、中性子線束を正面から受けるよう水平面内で線束に垂直な横移動及び回転が可能で、位置、方位の微調整が可能である。更に、簡便な遮蔽体に収まった ^3He の検出器が、実験台上での種々の位置決めに使用される。
- 3) 制御系：極小角散乱実験や精密光学実験は、簡易なソフトウェアの下、計算機制御で 0.01° 程度の微小角送り、測定、試料出し入れをルーティンワークとして行う。その際、温度変化の異常をモニターし、温度の変化幅が一定値を超えると、一時的に測定を中断し、温度安定化を待つなど、その影響を排除するよう制御される。

以上のように本装置は、振動や温度変化の影響を極力排除した環境で、複数の完全結晶の逐次反射を高精度で行うもので、極めて精密な実験が可能である。典型的な応用計画例としては次のようなものがある。

- (イ) 中性子回折トポグラフィ実験：回折中性子線束内の場所的な強度分布を二次元的に記録するもので、X線回折トポグラフィ (XDT) や電子顕微鏡 (暗視野法, EM) と同等の原理に基づいている。その際、中性子の物質透過能が極めて大きいことや、磁気感受性が比較的大きいことなどの特徴を活用することにより、前記 XDT や EM に対して相補的であるのみならず、独特の長所を持つ直接的な観察手段となる。

特に、製作したばかりの合金単結晶の物性研究の基礎的データである結晶完全性の点検などを、簡便に信頼性高く行なえる。また、電気炉や TV 系を組み合わせることにより、結晶成長途中の様子を直接観察することも可能であり、興味ある応用として期待される。

また、磁性結晶の磁区分布・磁壁の直接観察も容易に行える。その際、偏極モノクロメータを併用すれば、更に興味ある応用が可能となろう。

- (ロ) 中性子極小角散乱実験：第一の完全結晶で精度よく回折した中性子ビームの、試料透過による進行方向の乱れを第二の完全結晶で精密に分析する。その回折強度曲線の様子を、試料のある場合と無い場合とで、分解能 0.1° 以下の高精度で比較することができ、その結果、試料内の原子配置の長距離の乱れに関する統計的情報を得ることが可能である。この方法により、X線等では実験しにくいガラス体や金属試料等の、重イオンや中性子による照射効果や、更に磁性体に対する磁場印加の効果の研究等に、既に初歩的に用いられている。
- (ハ) 中性子干渉計：一個の完全結晶を、逐次に三回の回折を繰り返すように切り出したブロックを用いる。これは、第一の結晶片で入射方向と回折方向に分離された二つの中性子ビームが、第二の結晶片でそれぞれ回折されて第三の結晶片で再び合成される時に規則的な干渉縞を生ずるのであるが、その際一方の光路上に位相物体としての試料を挿入すると、先の干渉縞の様子が著しく変化する。この原理の一つの応用として、熱中性子領域の種々の物質の散

乱半径を有効数字五桁の高精度で、しかも系統的に収集することができる。

このように本装置は、種々の精密な回折実験が可能であり、謂わば汎用型として設計されているので、他にも多くの興味ある応用が期待される。なお本装置は 3.3.12 の装置と、使用波長等の点で相補的に用いられる予定である。

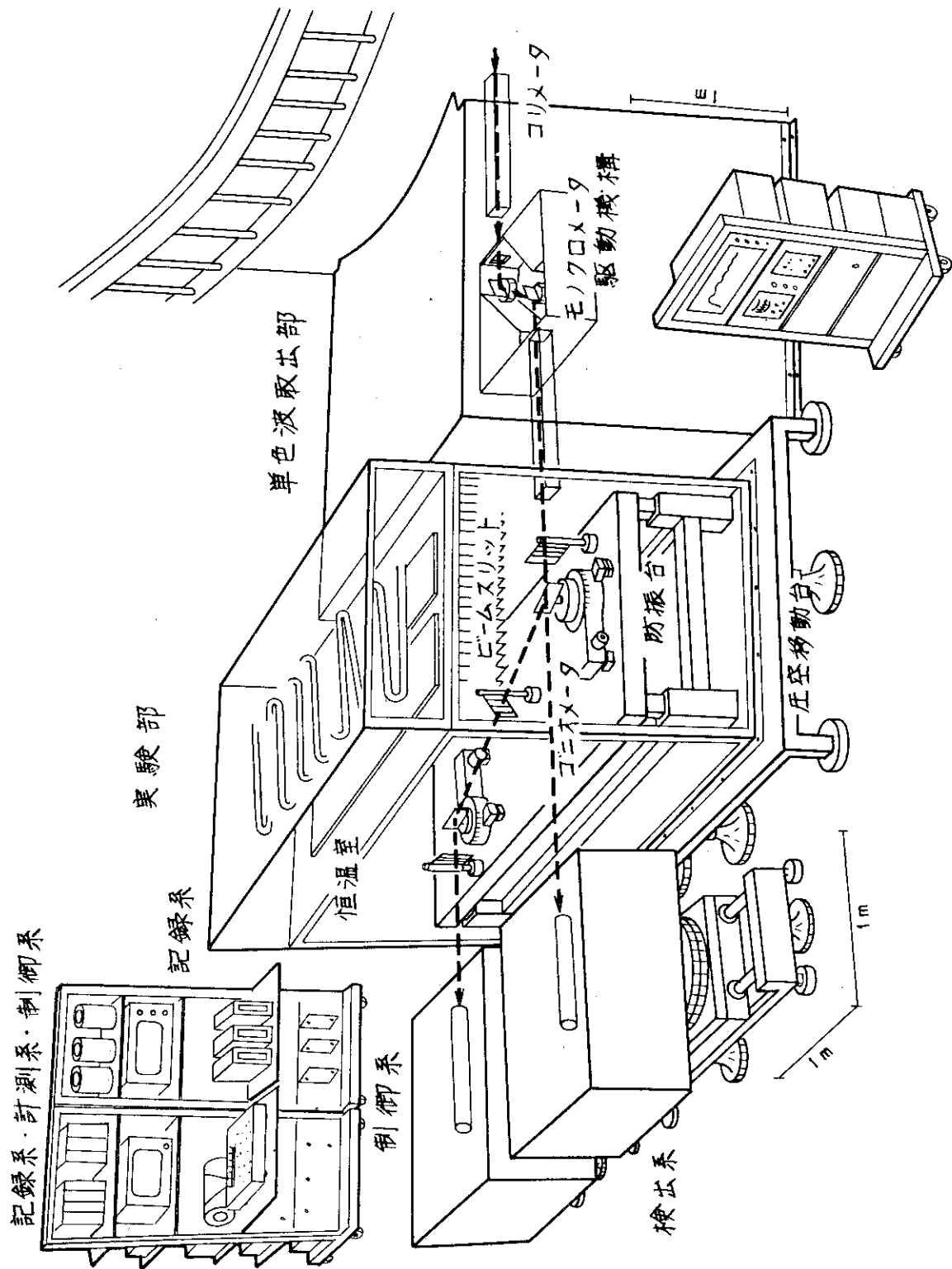


Fig. 1 Neutron topography-precise neutron optics apparatus.

3.3.4 偏極中性子散乱装置 (PANSI-II)

東大物性研 伊藤 雄而

(1) 概 要

本装置は、炉室内 4G 水平実験孔に設置予定の汎用型偏極中性子散乱装置で、基本的には、現在 JRR-2 で稼動中の PANSI スペクトロメーター (中性子偏極解析装置) の性能アップ・モデルである。従って、偏極中性子を用いる偏極回折、偏極解析実験に加えて、非偏極ビームによる従来型の 3 軸分光器としても利用でき、従来からの固体物性研究の中心である磁性体、誘電体、分子結晶、非晶質等の構造や素励起の研究に、中心的役割を果たす装置となる。そのため、試料環境の多様化 (強磁場、高圧、極低温、高温等) に特別の配慮をする。

a) 設置場所: 炉室内 4G 水平実験孔

b) 目 的: 偏極中性子による磁気散乱の分離、干渉性・非干渉性散乱の分離を行い、構造の精密測定及び物質系の素励起 (マグノン、フォノン等) の精密分離測定を行う。

(2) 構 成

基本的には、モノクロメーター・ドラム、サンプル・テーブル、アナライザー・テーブル、カウンターの標準的三軸分光器と同じ構成である (Fig.1 参照) が、偏極ビームを中心に考えるため、各構成部分間はすべて磁気ガイドで接続されており、コリメーターは磁気ガイド中に組込まれる。また、サンプル・テーブルの前後には、スピン・フリップパーが置かれ、各種の偏極実験に用いられる。偏極、非偏極ビームの変換は、モノクロメーター結晶台のエレベーター移動機構で行う。偏極ビームの強度を少しでも高めるため、ベント・フォーカス型の偏極モノクロメーターを用いる。またコンスタント k_I , k_F が共に可能であるように、モノクロメーター・テーブルの角度駆動は、ドラムの回転とは独立にコンピューター制御される。特に PANSI と異なる点としては、各構成部回転軸の平行独立回転を行う点で、そのため、角度送りは格段に早くなる。カウンターはアナライザー軸中心のギヤ接続とし、距離の短縮、インター・ロック機構の簡素化を計る。特に試料環境の変更と、試料位置での偏極条件の設定が、迅速且つ簡単に行なえるよう考慮する。

(3) 各部仕様

a) モノクロメーター遮蔽部

モノクロメーター固定部及び冷却ベリリウム・フィルター室、回転ドラム、偏極・非偏極モノクロメーター変換エレベーター機構からなり、漏洩中性子・ガンマ線 (特に 2 次ガンマ線) の少ない遮蔽構造とする。

モノクロメーター・ドラム回転角: $-10^\circ \leq 2\theta_M \leq 90^\circ$

モノクロメータ: (ベント) PG, (ベント) ホイスラー, Ge, Co, ^{92}Fe , 0.8 etc.

エネルギー範囲: $5 \sim 200 \text{ meV}$ ($0.6 \sim 4 \text{ \AA}$)

b) ゴニオメーター機械部

サンプル・テーブル, アナライザー・テーブルは空気浮上方式とする。

散乱角 (アナライザー散乱角共): $-140^\circ \leq 2\theta_S \leq 140^\circ$

サンプル (アナライザー) テーブル角: $0^\circ \leq \theta_S \leq 360^\circ$

コリメーターの交換, スピン・フリップパーの脱着, 磁気ガイドのセット等は容易に行える。特

にサンプル・テーブル周辺は、強磁場、高圧、極低温、高温等の試料環境設置及び変更が容易に出来るよう、スペース、耐荷重、フリー回転機構に留意する。

c) 制御・検出部

カウンターとして二系統、モニター用フィッション・カウンター、及び散乱中性子検出用の He^3 カウンター（2"φ縦型）を用いる。制御はCAMAC インターフェースを中心に、マイクロ・コンピューターによるON・LINE 制御を行う。このマイクロ・コンピューターはディスプレイ、プリンター、ローカル・メモリ等と合わせたインテリジェント・ターミナルの一部として、中央の制御コンピューター系列に属し、他の中性子散乱装置、並びに中央計算機室、モニター室等と交信できる。

d) その他

アナライザー・テーブルとディテクター部は容易にサンプル・テーブルから取りはずしが出来、必要に応じて2軸用の2次元カウンター・システムと交換される。また、オプションとして、必要ならば、飛行時間測定用TOF ディテクター・バンクと接続することもできる。

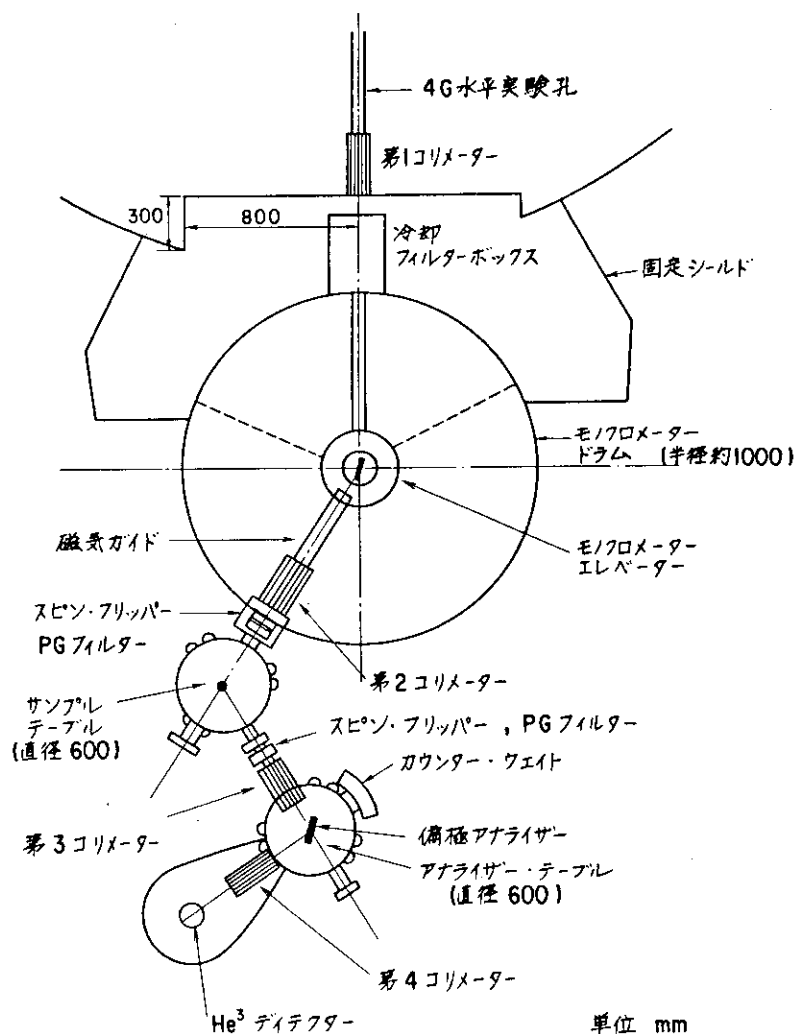


Fig. 1 Schematic layout of the polarized neutron spectrometer.

3.3.5 3軸型中性子分光器 (TAS-U1)

東大物性研 藤下 豪司

原子炉から得られる熱中性子のエネルギーは物質内の原子や原子のもつ磁気モーメント（スピン）の運動のエネルギーと同程度であるため、中性子が物質にそのエネルギーの一部を与えたり、逆に物質からエネルギーをもらったりした時の、散乱中性子のエネルギー変化の割合はきわめて大きく、容易に測定できる。このようなエネルギーが変わる散乱を非弾性散乱という。物質内の原子やスピンの運動を知るためには非弾性散乱を測定することが必要であり、3軸型中性子分光器は定常炉で用いる中性子非弾性散乱測定装置としては代表的なものであり広く用いられている。

3軸型中性子分光器では運動量変化とエネルギー変化を同時に指定して測定することができるので、これで例えば結晶の格子振動のエネルギーを測定すると、振動の空間的様相まで指定した情報が得られる。これは中性子のみがもつ、物質の性質を研究するうえでの大きな特徴である。この手段により例えば、結晶の構造変化（相転移）に際して格子が不安定になる様子が手に取るように理解される。

3軸型中性子分光器は前述のような測定ができるので、特別高い分解能が必要な場合を除き、広い分野で各種の非弾性散乱の測定に用いられている。例えば結晶・非晶質体のフォノンやスピン波の研究、液体のフォノンや拡散モードの研究などが上げられよう。

5Gにつける本分光器の概念図をFig. 1に示す。3軸型中性子分光器は通常のもので変わるところはなく、まずモノクロメータと呼ばれる結晶による回折を利用して一定のエネルギーの中性子を選び出す。この中性子線が試料に入射する。試料物質により散乱された中性子は、次にアナライザーと呼ばれる結晶によりエネルギーが分析され、最後に中性子検出器に到達する。

先に述べた3軸型中性子分光器の特徴を生かすために実際には次のような機能を持つことが要求されよう。すなわち、比較的低いエネルギー変化の測定には14 meV 付近の、中程度のエネルギー変化の測定には80 meV 程度までのエネルギーの入射中性子線が効率よく得られることである。なお低いエネルギー変化の測定に5 meV 以下の入射中性子線が取り出せることが望ましい。また中性子非弾性散乱の散乱強度は非常に弱いので、原子炉から検出器に到る距離がなるべく短くなるような設計にする必要がある。なお本実験孔を共有する4軸型中性子回折装置との入射中性子線の分け方については現在検討中である。

付属装置として、10K 位から100℃までの間の測定にはヘリウムガス循環式冷凍器を、10K 位より下での測定には液体ヘリウムを用いたクライオスタットを、室温から800℃位まで使用できる高温炉を用意する予定である。

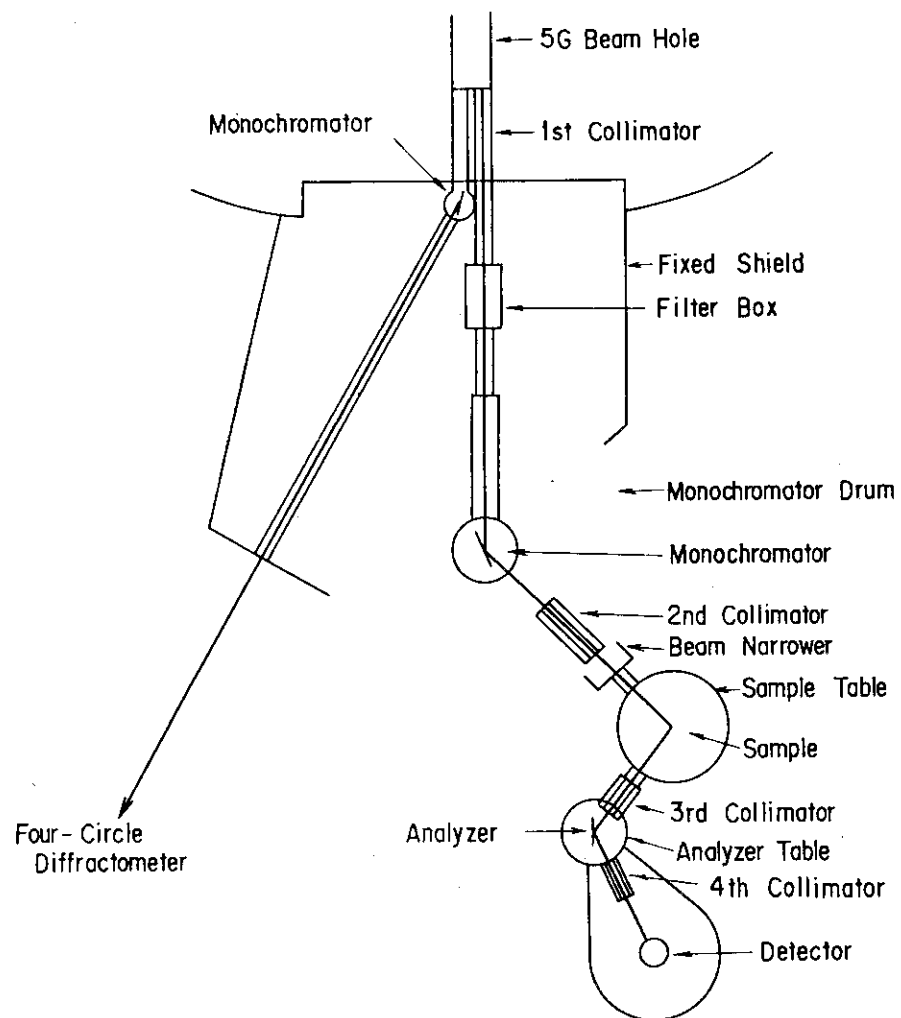


Fig. 1 Conceptual design of triple-axis neutron spectrometer.

3.3.6 4軸中性子回折装置 (FONDI)

名大工学部 坂田 誠

JRR-3 改造炉に設置を計画している 4 軸中性子回折装置 (Four-circle Neutron Diffractometer) は、弾性散乱の測定専用とし、アナライザー結晶は取り付けない。このことは、FONDI が対象とする研究分野が、Bragg 反射を測定する結晶の平均構造の解析、および弾性的散漫散乱を測定する平均構造からのゆらぎの解析を含む広い意味での構造解析であることを意味する。よって、構造解析にともなう消衰効果等の回折結晶学の基礎的問題も重要な課題となる。やゝ具体的にいくつかの研究題目を掲げてみると、構造相転移の前後における構造決定、生体高分子結晶の水分子位置に対する 2, 3 のモデルの判定、 UO_2 低温相で行われた様な構造解析の精密化による結晶構造および磁気構造の決定、Mn 等負の散乱径を持つ原子を含む合金の無秩序相における短範囲秩序の測定等がある。

一般に、結晶構造解析は X 線回折によりなされるが、中性子回折による構造解析は X 線回折にはない種々のメリットがある。良く知られていることとしては、1) 水素原子等軽原子位置の決定および、隣接原子の区別、2) 磁気構造の決定、3) 核散乱を利用することにより、熱振動と化学結合による異方性の区別等がある。これらは、中性子回折が実用化された当初から既に良く知られたことで特に目新しいことではないが、その有用性は、例えば水素吸蔵合金の出現等により益々増大している。上述した研究題目は、これらの特徴のいくつかを生かしたものである。

最近、X 線回折の分野では、我が国でも新しい X 線源として軌道放射光 (SR) が高エネルギー物理学研究所放射光実験施設 (PF) において実用化され、FONDI と同じタイプの 4 軸回折計を用いて現在活発な研究活動が展開されている。又、同研究所ブースター利用施設にはパルス中性子源 (KENS) に 4 軸回折計 (FOX) が稼動している。FONDI を加えると 3 つの異なった線源に全く同形の回折装置が設置されることになり、これらの装置の特徴を明らかにしていくことは非常に興味がある。しかも、これらの装置は全て全国共同利用に供され全国の研究者に開放されており、それぞれの特徴を生かすことにより、ユニークな研究が行われることが期待される。例えば、最近磁性原子を僅かに含んだ稀薄合金の領域では、スピングラスあるいはシクト磁性等の興味ある研究が行われているが、この様な研究では原子配列における短範囲規則 (SRO) とスピン配列の SRO との相関が重要となる。この様な場合には、SR による測定と FONDI の結果とを総合的に解釈することにより新たな知見が得られるものと期待出来る。

上記の点に加えて、中性子の透過力の大きいことが、クライオスタット、高温炉等の付属装置の性能を高めるのに役に立つ場合が多いことを指摘しておく。一例をあげると、X 線回折の場合、X 線の通過する窓の材料としては、X 線に対する透過係数の大きいベリリウムが良く使われるが、ベリリウムガスは猛毒で、非常な高温を出す炉には適当でない。FONDI は、中性子回折装置の利点を最大限に生かすことを眼目に、付属装置の充実もはかる。

装置の概念図は Fig. 1 に示す。FONDI は、炉室内実験孔 5G に 3 軸型分光装置と共に設置される。それ故、設置場所がかなり制限されるので出来るだけコンパクトに作り、最大回折角 ($2\theta_{\text{Max}}$) を犠牲にしない様にする。ビームの取り出し法は現在検討中であるが、左分に分ける可能性が高い。この様な事情により波長選択の自由度が制限されることは止むを得ない。

性能その他基本的事柄は Table 1 にまとめた。いくつかの特徴を説明すると、1) クライオ

スタット等の付属装置の装着を容易に行える様に、 χ - ϕ オリエンターを ω テーブルの中心よりずらせる言わゆる off center 配置とする。2) χ サークルは $\pm 180^\circ$ の可動範囲を持つ full circle とする。3) 相転移近傍等精密な温度制御を必要とする実験では、2軸用のクライオスタットの方が適当であることも多いので、2軸回折計としても使える様に χ - ϕ オリエンターは detachable とする。4) 4軸の駆動に関しては、特に高精度を必要としないが、送り速度は出来るだけ速くする。又、回転範囲も制限も出来るだけ設けない様にする。5) 結晶の方位を決めるUBマトリックスの精度を高めるため、half slit を取り付ける。6) 散漫散乱の測定等で分解能を変更したい時のために、カウンターの前にsoller slit を取り付けることが出来る様にする。7) 2次元検出器(2D-detector)を取り付けることが出来る様な構造にする。このことにより、3次元的な散漫散乱強度の測定が容易に行える様にする。通常の測定では ^3He カウンターを用いる。

等々掲げられる。

Table 1 FONDI の基本的仕様

χ - ϕ オリエンター	Full Circle Off Center Detachable 内径 $\sim 300\phi$		
4軸の駆動性能	2θ	回転範囲 $-150 \sim 150^\circ$	精度 0.01°
	ω	$-180 \sim 180^\circ$	送り速度 $200^\circ / \text{m}$
	χ	$-180 \sim 180^\circ$	$300^\circ / \text{m}$
	ϕ	$-180 \sim 180^\circ$	$300^\circ / \text{m}$
附属装置	He 循環式Cryostat Permanent SmCo Magnet Furnace ($RT \sim 1200^\circ\text{C}$)		
その他	2-D Detector設置可 Half Slit 取りつける Soller Slit 取り付け可にする		

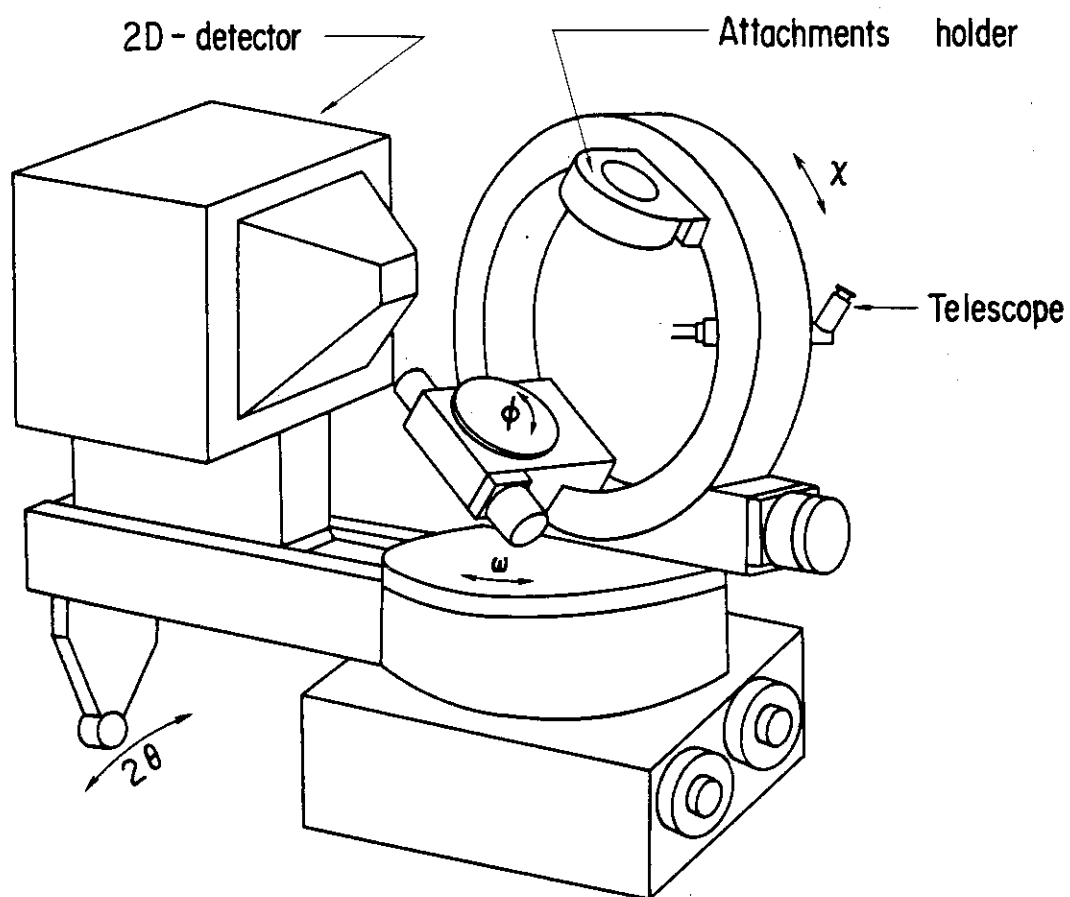


Fig. 1 General view of FONDI with 2D-detector.

3.3.7 東北大学中性子分光器 (TOPAN)

東北大・理学部 遠藤 康夫

(1) 研究分野

東北大学は理学部、金研を中心に磁性及び磁性材料研究では我が国の代表的研究機関であり、強い磁性体の中性子散乱が中心となる。偏極中性子を試料に照射し、散乱中性子の偏極度解析を行い、もろもろの散乱から磁気モーメントの寄与のみを取り出すことがこの新しい装置の中心的役割である。希土類、ウランを始めとするアクチナイド化合物の磁性、遷移金属化合物の磁性研究が研究対象の中心となろう。その他極端条件（極低温、強磁場、高圧）下での中性子散乱を目ざしている。比較的条件的な環境（10 mK, 10 Tesla, 30 kbar）で精密に散乱スペクトル、回折像を測る予定である。新機能材料開発の為に基礎的な構造解析、非弾性散乱による格子振動等の研究が特に金研を中心としたグループで計画されている。

(2) 分光器の概要

東北大中性子分光器 (TOPAN) は偏極・非偏極中性子散乱を可能にする典型的な3軸型結晶分光器である。分光器の構成は Fig. 1 に示す如く、ダンシングフロア型式による、軸間距離可変型の結晶分光器であり Fig. 2 に示すような概観になる。

性能と諸元は次の通りである。

(イ) モノクロメーター

PG, Be, Ge 及び Si

Be については現在東北大が窓口になり現在 ILL と MPI との共同開発で世界最高性能の Bent Monochromator が入手出来ることになっている。Si は Si ウェーハーを人工的にベントすることによってモザイクコントロールをし、高次反付に依る $\lambda/2$ の混入のないきれいな単色光ビームが得られる見込みがついている。

(ロ) Cu ホイスラー偏極子

大型 Cu ホイスラー単結晶作製を開始し、PG のように集中型偏極ミラーの作製を予定している。

(ハ) コントロール方式

測定条件のオンライン化及び測定データ転送等従来にない性能を持つよう設計している。

(ニ) 諸 元

遮蔽部

形式 固定遮蔽部, 円型回転部接合型

表面許容線量 1 mR/h 以下

モノクロメーター 偏極, 非偏極モノクロメーター自動可変

回転角 $-10^\circ \sim +100^\circ$ (± 0.005)

機械部

型式 試料台, アナライザー台 空気浮上方式

試料台 回転 $\psi: 360^\circ$

ゴニオメーター角 $2\theta_M: -170^\circ \sim 170^\circ$

軸間距離 可変

アナライザー

回転 ψ : 360° ゴニオメーター $2\theta_A$: $120^\circ \sim 120^\circ$

軸間 アナライザー・試料台間可変

アナライザー検出器間カスケード (不変)

制御系

C A M A C 型式

機械制御, 周辺機器制御, 監視, 検出信号の集積転送, データ解析, 科学計算処理。

原研, 東北大間のデータ通信

(3) 付属装置

クライオスタット

C T - 14 型 温度可変クライスタット 2 台

クライオミニ装着冷凍器付クライオスタット 1 台

4 K 固定クライオスタット 1 台

J A N I S 1.3 K 用クライオスタット 1 台

 $\text{He}^3 - \text{He}^4$ 希釈冷凍器付クライオスタット 10 mK (オックスフォード) 納入予定

磁石

5 T 縦型スプリットコイル 1 台

3 T 横型コンポジットコイル 1 台

7 T 縦型スプリット・コイル 1 台

高温炉

汎用型 ($\sim 500^\circ\text{C}$) 1 台

高圧用セル 5 kbar クランプセル 数台

(4) 設置予定実験孔 6 - G

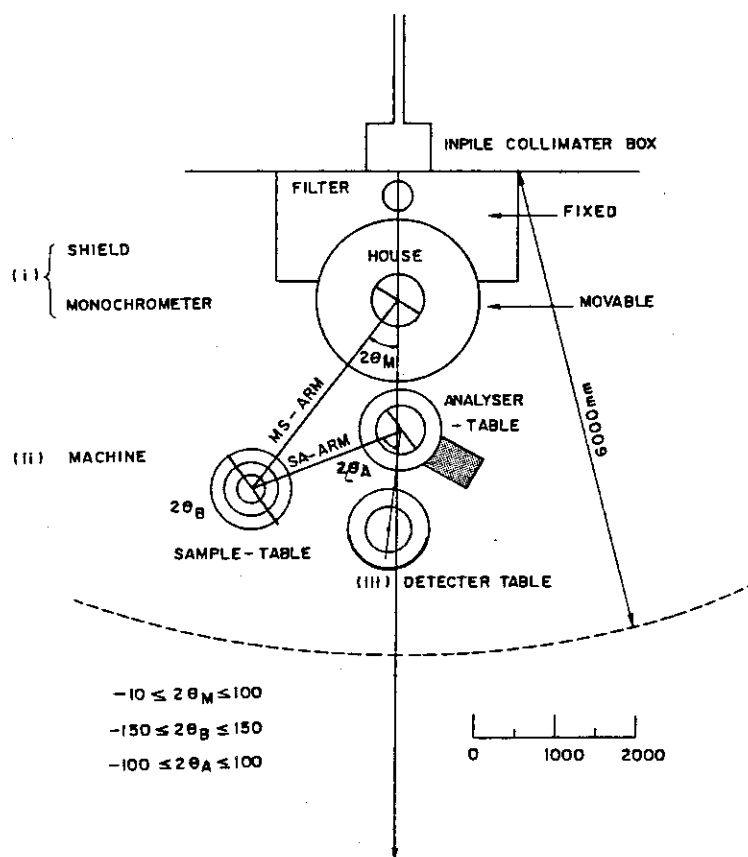


Fig. 1 Schematic layout of TOPAN.

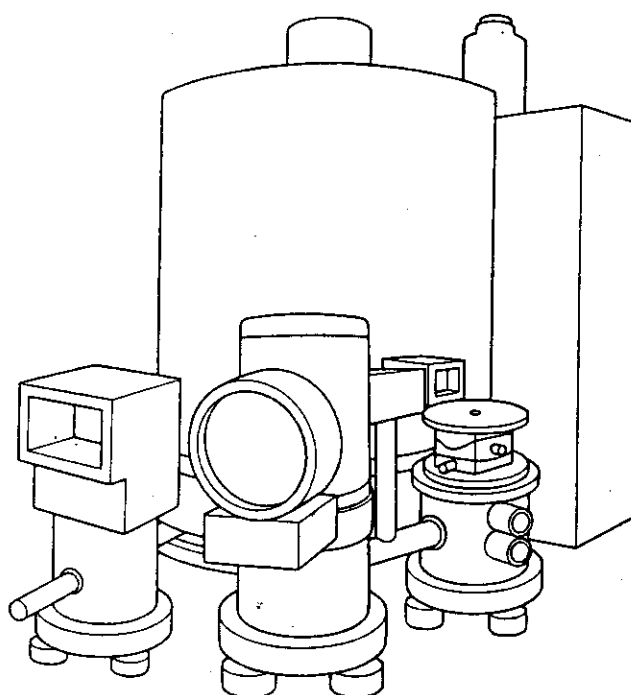


Fig. 2 Outside view of TOPAN.

3.3.8 中性子ラジオグラフィ (TNR)

原研研究炉管理部 鶴野 晃

中性子ラジオグラフィは中性子と物質との相互作用を利用して、被写体の透過像を得るものである。中性子と物質との相互作用は、特に熱中性子領域において特異性を示す。この特異性を利用すれば、X線又は γ 線ラジオグラフィでは不可能な被写体の透過像が得られることは、1932年中性子が発見された直後から考えられていたことである。当時は強力な中性子源がなかったため実験室規模で終わったが、1960年代に至り研究用原子炉から豊富な中性子が得られるようになって、中性子ラジオグラフィは非破壊検査の一部門として急速に発展した。

本装置は熱中性子のみを使用する中性子ラジオグラフィ装置であるため、ここでは熱中性子ラジオグラフィ（以下TNRとする）の特性と研究分野について述べる。熱中性子と物質との相互作用において際立った特長は、①水素など低原子番号の物質のいくつかに大きく吸収される、②稀土類元素のいくつかで大きく吸収される、③ウラン、鉛など重金属を比較的容易に透過する、等々である。現在、TNRの応用として考えられ、一部実用化されているのはすべてこれらの特長を利用したものである。原子力研究分野では、TNRは照射後試験法の一つとして、すでに実用化されているが、この場合は上記の特長に加えて特殊な撮影法が関係する。TNRにおいて透過像を固定するのは、一般的にX線フィルムを使用するが、熱中性子はほとんど感光作用を持たない。このためコンバータを必要とするが、基本的に二種類のコンバータが使用される。第1は、熱中性子を感光作用のある光子、荷電粒子などに変換するもの。第2は、コンバータ自身が熱中性子により放射化され、透過像を潜像として保存するものである。第2の場合、写真フィルムを必ずしも熱中性子束のなかに置く必要がない、したがって熱中性子以外の放射線のまったく関与しない透過像を得ることができる。照射後試験法としてのTNRは高放射性物質を対象とするが、被写体から放出される強い放射線に無関係に透過像を得ることができる。これが、TNRが照射後試験法の一つとして、他の応用に先駆けて実用化された最大の理由である。

本装置は水平実験孔7Rに設置される。装置はコリメータ、第1撮影部及び第2撮影部から構成され、これに付属するものとして、キャスク及び画像解析室がある。以下にその概要を説明する。

(1) コリメータ

水平実験孔がそのままコリメータの主要部をなしており、ビームチューブ・固定プラグ・ビームシャッタから成る。ビームシャッタが開の状態では、断面が長方形の拡散型のボイドとなる。

ビームチューブ先端からビームシャッタ外面まで全長 $L = 4,638 \text{ mm}$ 、In-letは一辺が30mm角で拡散角は左右方向が半角 0.88° 、上下方向は半角 12° である。ビームチューブは先端が約500mm、重水タンクに挿入されている。すべてアルミニウム製で中間の接続部に成形ベローズが使用されている。ライニングが施されていない代り、中間点にボラル板のリングが取付けられている。

固定プラグは重コンクリート埋込の段付スリーブで、中心にコリメータとしてテーパ付スリーブがある。スリーブはアルミニウムとステンレス鋼で作られ、ライニングは窒化ボロン板である。両端にアルミニウムの水封用止板が取付けられ、ヘリウム・ガスが充填されている。

ビームシャッタはモータによる上下駆動式で、遮蔽体は B_4C 入りプラスチックと鉛である。

開の状態でコリメータの一部，長さ 1,200 mm となる。

(2) 第1撮影部

照射後試験専用として，高放射性物質の取扱いのためセル構造とする。試料は，キャスクをセル天井にセットするトップローディング方式にて搬出入を行う。試料ハンドリング装置は上下，左右，回転の動作が可能であり，任意の位置で撮影ができる。検出系は同接法及びトラックエッチ法を用い，フィルム又はコンバータはセル外より遠隔操作により装着脱を行う。試料の確認はファイバースコープにより行う。セル内は常時負圧に保つ必要があり，実験利用設備排気系に接続されている。

主要性能

撮影室No.1	長さ 1,950 mm，幅 1,800 mm，高さ 3,100 mm 遮蔽体 鉛 300 mm，ボロン入りパラフィン 150 mm
照射野	幅 115 mm，長さ 432 mm
中性子束	$1.0 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ (目標)
Cd 比	10 (目標)
L/D	187
試料	放射能 最大 $1 \times 10^4 \text{ Ci}$ (1 MeV) 最大寸法 100 mm ϕ $\times$ 1,000 mm L 最大重量 100 kg
負圧	10 mmAg

(3) 第2撮影部

第1撮影部に続く撮影室を第2撮影部として，非照射物を対象とする TNR の研究を行う。撮影室は試料ハンドリング装置を中心として中性子遮蔽材で囲われており，使用時には第1撮影部と第2撮影部の間に簡易シャッタとコリメータを仮設する。

試料の搬入は通常側面の出入口より行うが，重量物はクレーンにより搬入するため，天井部が取りはずせるよう設計してある。

検出系は直接法，間接法，トラックエッチ法のほか，動的な物体をリアルタイムで撮像するため中性子TVを設置する。

主要性能

撮影室No.2	長さ 2,250 mm，幅 1,800 mm，高さ 2,250 mm 遮蔽体 ボロン入りパラフィン 150 mm
照射野	幅 225 mm，長さ 305 mm
中性子束	$1.0 \times 10^6 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ (目標)
Cd 比	10 (目標)
L/D	221
試料	最大寸法 600 mm L $\times$ 500 mm W $\times$ 600 mm H 最大重量 100 kg

(4) 付属装置

キャスクは高放射性物質をホットラボより移送するのに使用する。遮蔽体は鉛 200 mm とし，

I型運搬容器に適合するものを使用する。

画像解析室は、直接法・間接法・トラックエッチ法で得られた透過像の解析を行うほか、中性子TVの画像を静止画としてディスクにファイルする機能や解析によって断面像を再構成する中性子CT (Neutron Computored Tomography) を設置する。

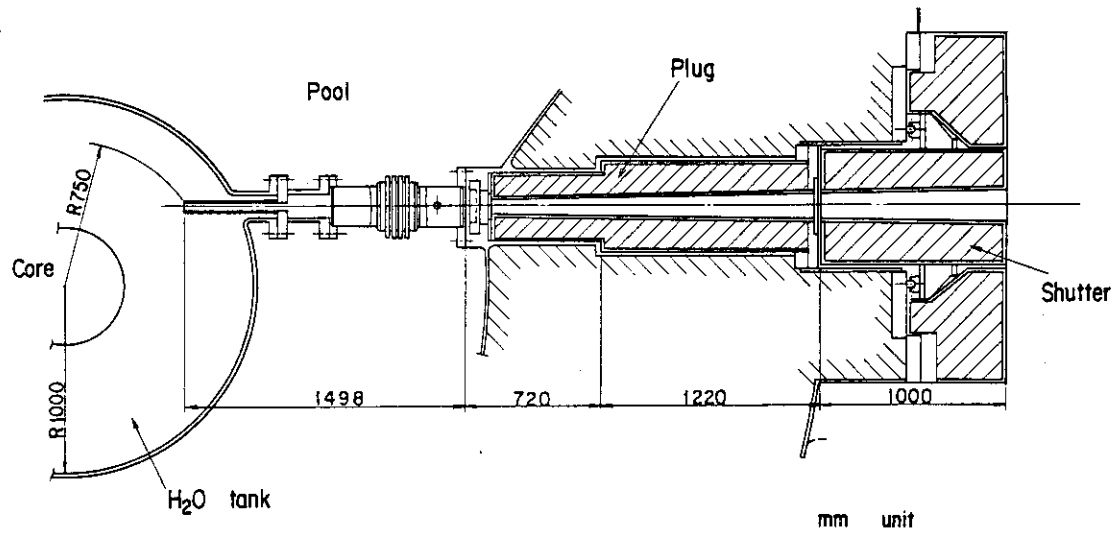


Fig. 1 Collimator for TNR.

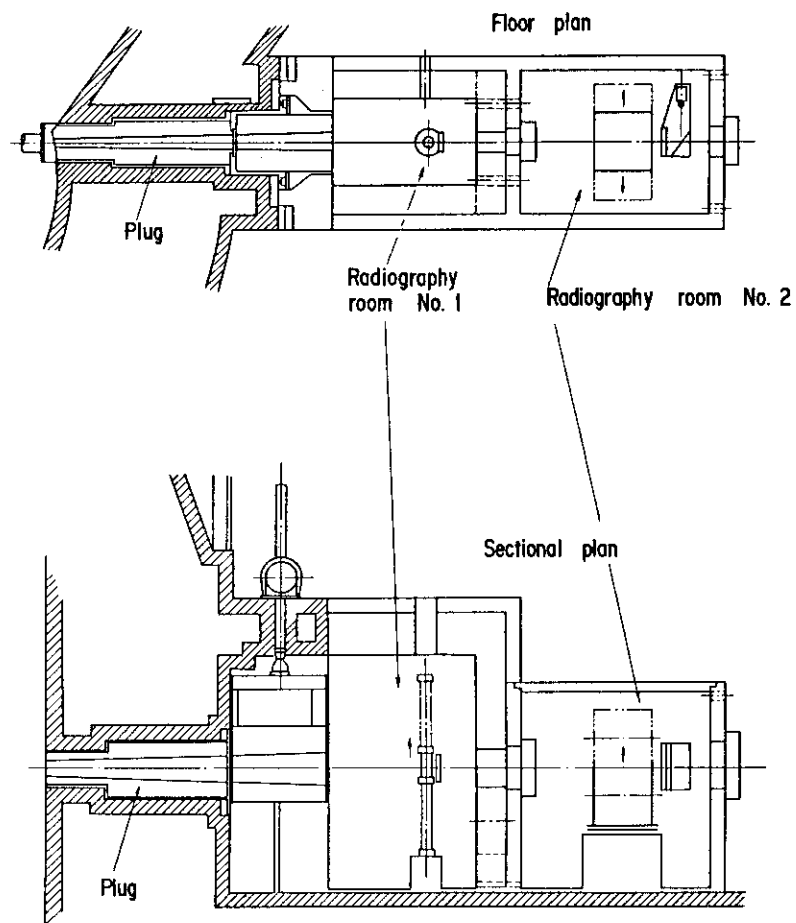


Fig. 2 Thermal neutron radiography facility.

3.3.9 3軸型中性子分光器 (TAS-U2)

阪大理学部 中井 裕

運動量 $\hbar \vec{q}$ の分解能のみ又はエネルギー $\hbar \omega$ の分解能のみを向上させる実験方法は種々あるが、 $(\hbar \vec{q}, \hbar \omega)$ 空間での分解能をバランスよく向上させるには3軸型熱中性子分光器が最も適していると考えられる。

(1) 研究分野

高分解能3軸型熱中性子分光器を使って、物質中の collective dynamics の研究を行う予定であるが、特に現在計画中的のものは次の2テーマである。

イ) 新しい磁気秩序相の研究

磁性の分野では、核磁性のように今迄無視されていたタイプの磁氣的相互作用が主として効いてくる系やスピン・グラスのように複数の磁氣的相互作用が競合する系では、今迄見られなかった新しいタイプの磁気秩序相の存在が予測され、現在活発に研究が進められている。これらの系では、運動量 $\hbar \vec{q}$ が大きい (例えば反強磁性逆格子点近傍) にもかかわらず励起エネルギー $\hbar \omega$ の低い励起が重要な役割をするものと考えられている。この研究のように大きな運動量を持ち且つ低いエネルギーの励起を調べるためには、冷中性子を利用する方法は不適當であり、熱中性子の高分解能中性子分光が不可欠である。これらの研究を通じて、従来の強磁性、反強磁性等の磁気秩序以外の新しい磁気秩序相の機構が解明され、磁性の分野に新しい展開が期待される。これらの新しい磁気秩序相は極低温で形成されるために、試料を極低温に保持する必要がある、そのための付属装置が必要となる。

ロ) Lattice dynamics と相転移

Lattice dynamics と結晶相転移の関係は古くから研究されていて、ソフトモードの概念による相転移の説明など数々の成果があげられているが、最近注目されている非線形効果の相転移への影響や圧力誘起相転移では必ずしも従来のソフトモードの概念だけでは説明できない部分がある。その概念の拡張又は新しい概念の導入が必要とされる。結晶相転移のより詳しい研究によってこれらの理解が深まるものと期待される。これらの研究を進めるためには、試料を高温又は高圧下に保持しながら、中性子分光法の分解能をあげて測定する必要がある。即ち試料環境の多様化を目指す必要がある。

(2) 装置概要

この装置では分解能は $\Delta q \sim 0.05 \text{ \AA}^{-1}$, $\Delta E \sim 50 \sim 100 \text{ \mu eV}$ を目標とする。主として入射中性子のエネルギーを低くすることによって分解能をよくするものであるから、概念的には従来の3軸型分光器と著しく異なるものではないが、装置を使い易くするためのハード面及びソフト面での種々の改良を試みるつもりである。特に試料環境の多様化を目指しているので、中性子散乱実験には馴染の少い極低温、高圧、高温等の極端条件発生の専門家にも使い易いような工夫が必要である。

装置の概念図を Fig. 1 に示す。 $T_1 - 1$ ガイド取出し位置で、高さ 20 cm のビームの下半分 10 cm を彎曲型ベリリウム単結晶モノクロメータ又は彎曲型パイロリティック・グラファイト単結晶モノクロメータのブラッグ反射を使って単色化した中性子ビームを試料に導く。高分解能又はゴニオテーブル付近の実験空間に余裕を持たせるためにはベリリウム単結晶を、入射中性子の

強度を必要とする場合はグラファイト単結晶をモノクロメータとして使用する。更に、実験空間の確保のためにモノクロメータとゴニオメータテーブル間の距離は可変（1～3 m）とする。ゴニオメータテーブルは重量のある付属装置を載せられるように最大耐圧荷重は1トンになるように設計する。分光器の制御は分光器近傍及び実験準備室の両方から操作が可能になるようにする。

(3) 付属装置

付属装置として考慮中のものは、

イ) 極低温クライオスタット

到達温度 数mK

$^3\text{He} - ^4\text{He}$ 希釈冷凍器方式

ロ) 高圧装置

到達圧力 静水圧で 30 キロバール

試料容積 0.5 ～ 1.0 cm³

非弾性散乱実験に適するように、散乱角は 0° ～ 360° まで可能とする。

ハ) 高温炉

到達温度 2000 °C

長時間保持可能

である。しかし研究の進展と共に付属装置は順次追加されていくものと考えられる。

(4) 設置予定実験孔

T₁ - 1

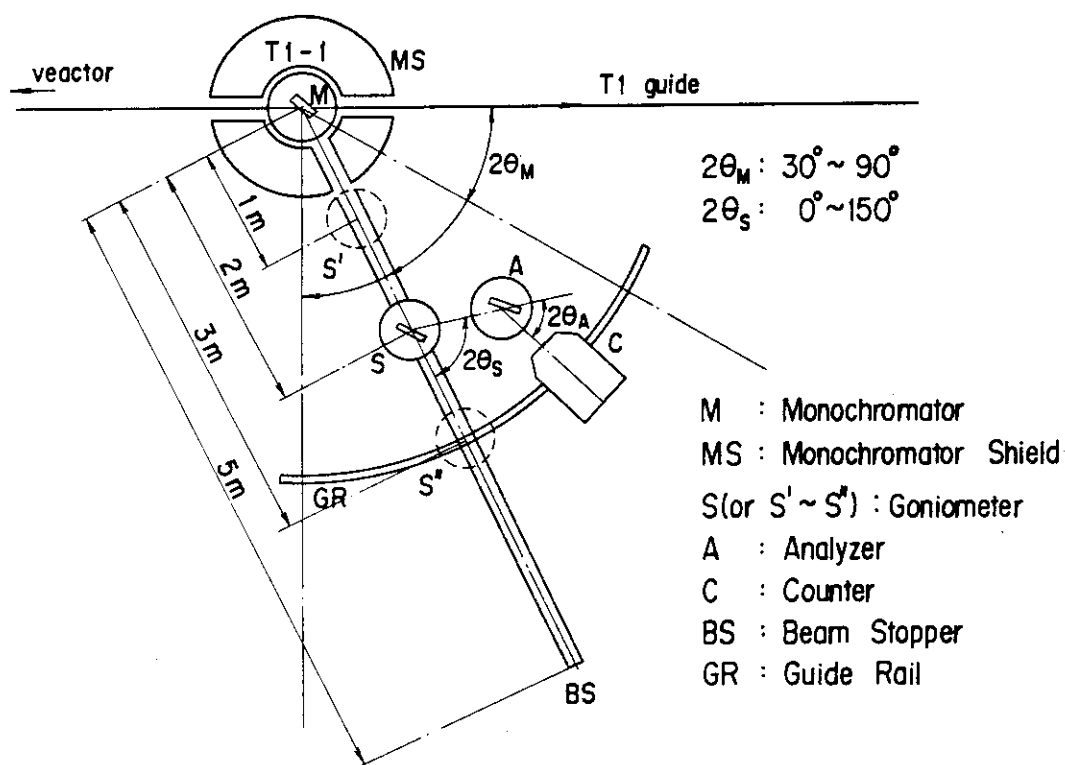


Fig. 1 Triple-axis neutron spectrometer.

3.3.10 3軸型中性子分光器 (TAS-U3)

東北大金研 山口 泰男

(1) 研究分野

本装置では、磁性に関する問題を主として取上げる。3d 遷移金属を主とした磁性体は、磁気構造的な問題は殆んど実験され、次の段階として磁気励起等の測定に移っており磁性の本質に迫る研究がなされている。一方、稀土類元素と、3a 遷移元素との金属間化合物では次々に新しい化合物が創り出されており、磁気構造的な研究も、まだ残されている。また、これらの元素とアクチニド元素との化合物については、まだその研究は、日が浅く、未知の物性が展開されることが期待できる分野である。これらの化合物について、まずその磁気構造を決めること、次に、その磁気励起状態を知ることにより、磁気相互作用の性質を解明することを目指す。

稀土類と3a 遷移金属との金属間化合物については、約12年前に SmCo_5 を中心とした永久磁石が、従来の3d 遷移金属同志の合金に較べエネルギー積 $(BH)_{\max}$ で、2倍大きな値を取り、画期的な永久磁石とされていたのであるが、最近 $\text{Na}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ が非常に大きな異方性を持つことが見出され、これを中心とした永久磁石が我国で開発された。この磁石は $(BH)_{\max} = 40 \text{ MGOe}$ と Sm-Co 系磁石の更に2倍の性能を有することが見出された。このように、金属間化合物では、元素の組合せによって、結晶構造が異なり、それに伴って物性も、全く新しいものが出てくる上に、元素の組合せは、無限に近く存在するわけである。その中から有用な物性を示し、新素材として役立つものが出てくることが期待される。本装置では、このような金属材料研究の特に磁性の面での研究を行うことを予定している。

(2) 装置概要

装置は、Fig.1に示すような、3軸型分光器であるが、中性子強度を稼ぐことを目指して、試料と、アナライザー、カウンター間の距離をできるだけ短くした。そのために、カウンターアーム上でのカウンターシールドのスライド機構により、アナライザー角を変える方式をとっている。また、必要に応じ、偏極ビームを用いられるようにし、強磁性体や、フェリ磁性体の磁気モーメント分布を精度よく測れるようにする。また、試料テーブルには、電磁石等の重量物が乗せられるよう、十分な耐荷重を持たせるようにする。

(性能)

角度範囲	$-180^\circ < \theta_c < 180^\circ$
	$-10^\circ < 2\theta_s < 130^\circ$
	$13^\circ < 2\theta_A < 90^\circ$

角度精度	0.01°

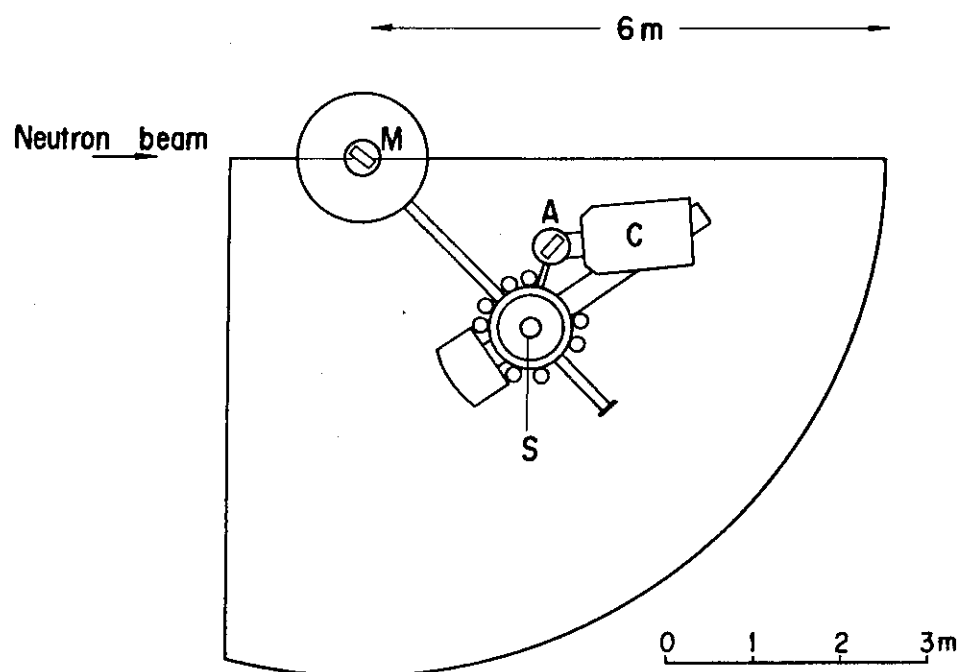
試料テーブル	耐荷重 1000 kg

(3) 付属装置

電磁石	最高 15 kOe
冷凍器	10K ~ 300 K
クライオスタット	1 K ~ 300 K
高温炉	300 K ~ 700 K

(4) 設置予定実験孔

熱中性子ガイド管	T ₁ - 2



M : Monochromater
 S : Sample
 A : Analyzer
 C : Counter

Fig. 1 Schematic layout of the triple axis neutron spectrometer.

3.3.11 2軸中性子回折装置 (PND)

東北大金研 山口 泰男

(1) 研究分野

本装置は、試料テーブル上に4軸ゴニオメーターを乗せ、単結晶用の4軸回折計として使用する他に、一次元位置敏感カウンターを用いて、多結晶試料の回折データも、効率よく集められるよう工夫されており、主として物質の結晶構造についての研究を行う。

結晶構造解析で、中性子回折が得意とする分野の一つに、X線ではとらえにくい軽元素の位置の決定がある。本装置では、金属水素化物中の水素位置の決定や、金属中に固溶した酸素と水素の相互作用等を、結晶構造の立場から研究することを目指している。また、これに近い分野として、金属酸化物の構造解析があり、現在、新素材として注目されているセラミックスの構造の研究が考えられている。

更に、中性子回折が得意とするもう一つの分野に、周期律表において近接する原子同志の合金の構造の研究がある。この特性を生かして、3d および 4d 遷移元素を中心とした高温耐熱材料についての研究が予定されている。

(2) 装置概要

本装置は、Fig.1 に示すような、通常型の2軸回折装置であるが、試料テーブル上に4軸ゴニオメーターを乗せることによって、単結晶用の4軸回折計として使用できる。また、一次元位置敏感カウンターを備え多結晶試料の回折データを効率よく集めることができる。

(性能)

角度範囲	$-180^\circ < \theta_c < 180^\circ$
	$-10^\circ < 2\theta_s < 130^\circ$
	$-180^\circ < \phi < 180^\circ$
	$-40^\circ < \chi < 90^\circ$
角度精度	$\theta_c, 2\theta_s$ は 0.01°
	ϕ, χ は 0.02°
一次元カウンター分解能	0.3°

(3) 付属装置

高温炉	最高 1900 K
冷凍器	10K ~ 300 K
クライオスタット	4.2 K ~ 300 K

(4) 設置予定実験孔

熱中性子ガイド管 T₁-3

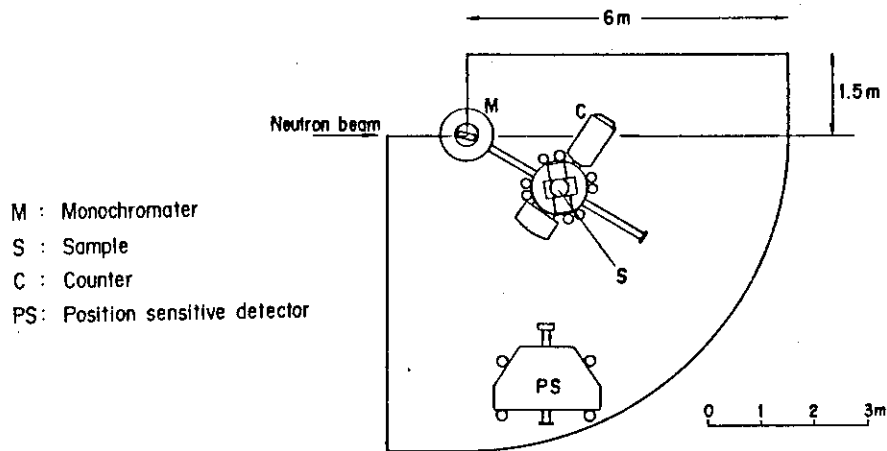


Fig. 1 Schematic layout of the double-axis neutron diffractometer. The four-circle goniometer and the one-dimensional position sensitive are available.

3.3.12 中性子トポグラフィ・精密光学実験装置 (NDT)

原研物理部 富満 広

本装置は、実験利用棟熱中性子導管 T_2-1 に設置する予定で、下記のような諸元・特徴を有し、先の 3.3.3 の装置とは使用波長などの点で相補的に、物性研究、材料研究、核データ収集等に利用される予定である。以下に、3.3.3 の装置との相違点などを、簡単に記す。

(1) 単色波取出部

- 1) コリメータは、試料入射用に発散角 $3'$ 、 $30'$ の二種類各一本が準備されており、また検出器入口にノイズ除去用として発散角 $30'$ のものを設置する。
- 2) モノクロメータは、ガイド・チューブ内のビーム高 20 cm のうち、最下部の 5 cm 分を結晶モノクロメータの反射で "切り取って" 使用する形である。モノクロメータ結晶としては PG, Ge, Si 等を適宜使用する。

また、この部分の遮蔽体は波長変更に対処する為に、ビーム取り出し角可変式 (蛇腹式) である。

(2) 実験部

ゴニオメータ、ビームスリット、実験台、恒温室 (容積 $1.2 \times 1.5 \times 2\text{ m}^3$)、圧空移動台の仕様は 3.3.3 のそれとほぼ同一である。なお、防振台を兼ねた実験台の使用面積は $1.2 \times 1.0\text{ m}^2$ である。

(3) 記録系・計測系・制御系

トポグラフィ実験用の記録系、精密中性子光学実験用の検出系、および制御系についても、3.3.3 のそれらと、同一の仕様を備えている。

3.3.13 3軸型中性子分光器 (TAS-2)

原研物理部 船橋 達

この装置は現在 JRR-2 に設置されている高分解能 3 軸型中性子分光器 (DMNS) を熱中性子導管 T2 の終端 (T₂₋₄) に移して使用するものである。

DMNS は昭和 50 年に設置された二重モノクロメーター型の中性子分光器で、誘電体の構造相転移にかかわる格子振動のソフトモードや黒鉛層間化合物のアインシュタイン型振動など、低いエネルギー領域の励起の測定にみづかしの成果をあげてきた。

改造 3 号炉に移設の後も 5 ~ 20 meV の入射エネルギーでの高分解能 3 軸分光器として、格子振動・スピン波その他非弾性散乱の研究に供する。

移設するにあたっては、モノクロメーター系を更新し、それに関連した部分および実験利用棟内の設置場所の状況に合わせて他の部分にも若干の変更を加える。

- (1) モノクロメーター。現在はダブルモノクロメーター方式である。その利点は入射ビームの方向が一定で、遮蔽体が単純化されることである。しかし、実験利用棟では炉室ほど厚い遮蔽体を必要としないので単一モノクロメーター方式に変える。DMNS の入射エネルギーは可変であるが、ほとんどの場合パイロ黒鉛フィルターの有効な 14 meV 近傍で使用し、ごくまれにベリリウムフィルターの有効な 4 meV を使っているだけである。導管では短波長成分は少ないので、多くの場合 1/2 波長の混入を防ぐためのフィルターを必要としない。したがって移設後はエネルギーをもっと自由に変えることができる。

一方、導管の短所はビームの発散角が臨界角で制約されてしまい、必要以上に発散角が小さく、それだけ中性子線強度が低下することである。そこで、導管に移設するにあたっては、導管の高さ方向 20 cm 全面のビームを擬湾曲モノクロメーターによって収束し中性子線強度の利得をはかる。現在 DMNS では 1 cm 幅のパイロ黒鉛 7 枚を使った固定曲率の擬湾曲モノクロメーターで、平面モノクロメーターの約 3 倍の強度を得ている。新モノクロメーター系ではエネルギーに合わせて曲率の変えられる機構を備えた擬湾曲型モノクロメーターにする。

移設によるもう一つの改良点は、ビームを導管の終端から取り出すので、高い散乱角の位置までカウンターをもってゆくことが可能になることである。これまでより高い Q までの測定が可能になるので、格子振動の測定に有利な場合が多いと期待される。

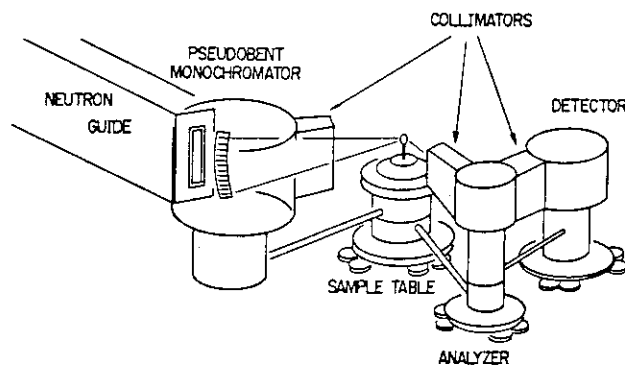


Fig. 1 Schematic view of the triple-axis spectrometer at T₂₋₄.

3.3.14 中性子後方散乱装置 (BS)

東大物性研 西 正和

(1) 装置の特徴

中性子後方散乱装置は原理的には3軸型中性子回折装置であるが、冷中性子源より得られる長波長の冷中性子を利用し、特にエネルギー分解能を上げるためモノクロメーター及びアナライザーに同一の完全結晶を使用し、それらの散乱角 2θ を 180° 又は 180° に近い角度にセットする。モノクロメーターを前後に振動させ、そのドプラー効果により冷中性子のエネルギーをわずかに変化させ、エネルギー高分解能の中性子非弾性散乱実験を行う。

(2) 装置の歴史

中性子後方散乱の実験は1966年頃から西独のミュンヘンにある原子炉FRM及びユーリッヒのKFAのFRJ 2においてMaier Leibnitz, Alefeld, Birr, Heidemann等ミュンヘン工大のグループによって開始された。試料がない場合のSiのみによる散乱では $0.4 \mu\text{eV}$ のエネルギー分解能が、又Vを標準試料としたときに $0.6 \mu\text{eV}$ のエネルギー分解能が得られた。更に1974年からフランスのグルノーブルにあるILLにおいてHeidemann等により本格的な実験が行われている。

(3) 装置概要

冷中性子源からのガイド管 $C_1 - 2$ から波長 $6.3 \text{ \AA}$ の中性子を仮想湾曲PG (002) 反射でとり出す。ガイド管の断面積 $7 \times 2 \text{ cm}^2$ を試料位置において $1 \times 1 \text{ cm}^2$ に集束するように14分割したPG片の集合体で散乱させ、集束型のガイド管により単色中性子線を試料位置まで導く。エネルギー高分解能非弾性散乱のためのモノクロメータードライブ装置は最高速度 $v_{\text{max}} = 30 \text{ cm/sec}$ 、速度精度 $\Delta v / v_{\text{max}} < 10^{-4}$ 、周波数 $10 \sim 100 \text{ Hz}$ 、二段式等加速度分割型波形の往復運動ができる電磁駆動又は油圧駆動とする。アナライザーにはSi (111) 反射を用いるがモノクロメーターは $\pm 15 \mu\text{eV}$ のエネルギー領域にはSi (111) 反射を用い、 $24 \pm 15 \mu\text{eV}$ には CaF_2 (111) 反射を使用する。装置の詳細はTable 1に示す。エネルギー分解能を犠牲にせず

にできるだけ強度を上げるため工夫が必要である。中性子線を試料位置で $1 \times 1 \text{ cm}^2$ に絞ることは損失因子を0.8として、 $7 \times 2 \times 0.8 = 11$ 倍に強度を上げる。試料とカウンターの中心間を20 cm上下に離すことによりアナライザーから反射された中性子が再び試料で散乱することを避ける。そのためアナライザー面は上下二中心の楕円面となり高度の工作技術を要するが、チョッパーが不要となるため中性子強度は二倍以上得る。又 $2\theta_A = 180^\circ$ からのずれをできるだけ小さくし、エネルギー分解能の犠牲を抑えるため試料とアナライザー間は、できるだけ長くしなければならぬ。それ故、巨大なアナライザーを持つ巨大な装置とならざるを得ない。装置半径を3 mとし、試料、アナライザー間を2.5 mとできれば $2\theta_A = 175.42^\circ$ となり、それ程エネルギー分解能を落さずに済む。一方、アナライザーとモノクロメーターの温度差がつくと格子定数の温度変化によりエネルギーがシフトする。そのため両装置部分とも $\pm 1^\circ\text{C}$ 以内で温度制御を行う。そこで実験条件によりエネルギーをシフトさせたいときはモノクロメーター部分の温度を希望のエネルギー領域に対応するところまで変化させる。中性子の通過経路はできるだけヘリウムガスに置換して空気による散乱をさける。そのために充分大きなガス収容器が必要である。

(4) 冷中性子ガイド管と装置の配置

中性子後方散乱装置は入射中性子の波長に対応して、 C_1 のガイド管と平行を保ちながら ± 20 cm 程度全体が移動できるようにガイド管と垂直にレールを敷く。Fig. 1 に示すように装置の外周りが半径 3 m の円を切断した形状をしているため C_2 のガイド管との間隔の大きな下流側に設置する。そうすることにより $C_2 - 1$ から取り出す予定の L T A S の場所も充分確保しうる。Fig. 2 に示すように A と B の PG により散乱させながら中性子を導き、モノクロメーター D の位置では $2\theta_M = 178.85^\circ$ の反射をする。個々の位置での中性子ビームサイズは A : 70×20 , B : 62×19 , D : 43×16 , B' : 23×12 , E : $10 \times 10 \text{ mm}^2$ である。B と B' は上下に重なっている。ガイド管からのビーム取り出しは Fig. 3 に示すようにガイド管を約 50 cm 切断する。下側は $C_1 - 1$ の小角散乱ビームが通過するために上側 $70 \times 20 \text{ mm}^2$ を利用し、PG 結晶は下向きのゴニオに設置する。中性子後方散乱装置では約 $6.3 \text{ \AA}$ 前後の中性子を使用するので、 $4 \sim 6 \text{ \AA}$ の波長領域で使用可能な装置をすぐ後方の $C_1 - 3$ に設置できる。

(5) 研究分野

現在 K F A と I L L に計 3 台の中性子後方散乱装置があるが、B N L でも設置しようという要望がある。数少ない装置ではあるが、広い分野にわたり大きな成果をおさめている。

(a) 固体の相転移と臨界現象

Sr Ti O_3 の相転移点近くで現われるセントラルピーク $\frac{1}{2}$ (113) について線幅を測定したが $0.05 \text{ } \mu\text{eV}$ より大きな広がりも観測されなかった。

pterphenyl の T_c 近くでの臨界散乱より緩和時間が $\tau_c \sim 1.15 \times 10^{-8} \text{ sec}$ と非常に長くなる、いわゆる臨界スローイングダウンの現象も観測されている。

ガラス転移点 T_g の低いスピングラスにおいて緩和時間の温度変化から励起エネルギーを決定している。

(b) 水素原子の動力学

Nb や Pt 中の水素による非干渉散乱のエネルギー解析により水素が結晶格子のどの位置に捕獲されたかあるいは跳躍拡散をしているかが解明されている。

CH_3 基又は NH_4 基をもつ化合物においてそれぞれの基の回転周波数や水素のトンネル分岐を観測することにより水素結合の様子や周囲の原子の作るポテンシャル等を定量的に議論している。

(c) 超微細構造

V_2O_3 , V_3O_5 , V_3O_7 , CoP , UH_3 等の化合物において原子核の超微細構造が観測され、内部磁場の値をもとに磁性イオンの電子状態について議論している。

(d) その他

合金中や超イオン伝導体の原子の拡散運動などの研究にとっても中性子後方散乱装置は重要である。将来には原子核整列状態における核スピン波の測定等、エネルギー高分解能装置を利用する研究分野はますます多岐にわたるものと期待される。

Table 1 Instrument Details

Beam tube	C ₁₋₂
Beam size at sample	1 × 1 cm ²
Detectors	6 ³ He counters
	2 monitors
Back ground	15 ~ 60 cts/hour
Analyzer	Si(111)

Monochromator	Si (111)	CaF (111)
Incident energy (meV)	2.08	2.06
Incident wave length (Å)	6.28	6.31
Energy resolution (μeV)	0.5 < δE < 2	1 < δE < 2
Energy range (μeV)	-15 < E < 15	9 < E < 39
Q resolution (Å ⁻¹)	0.05	0.05
Q range (Å ⁻¹)	0.07 < Q < 2	0.07 < Q < 2
Flux at sample (S ⁻¹ cm ⁻²)	10 ⁴	10 ⁴

Ancillary equipment Cryostat	1.5K < T _s < 300K
(Sample) Cryostat	80K < T _s < 900K
Furnace	300K < T _s < 1900K
(Monochromator) Cryostat	-20°C < T _M < 300°C

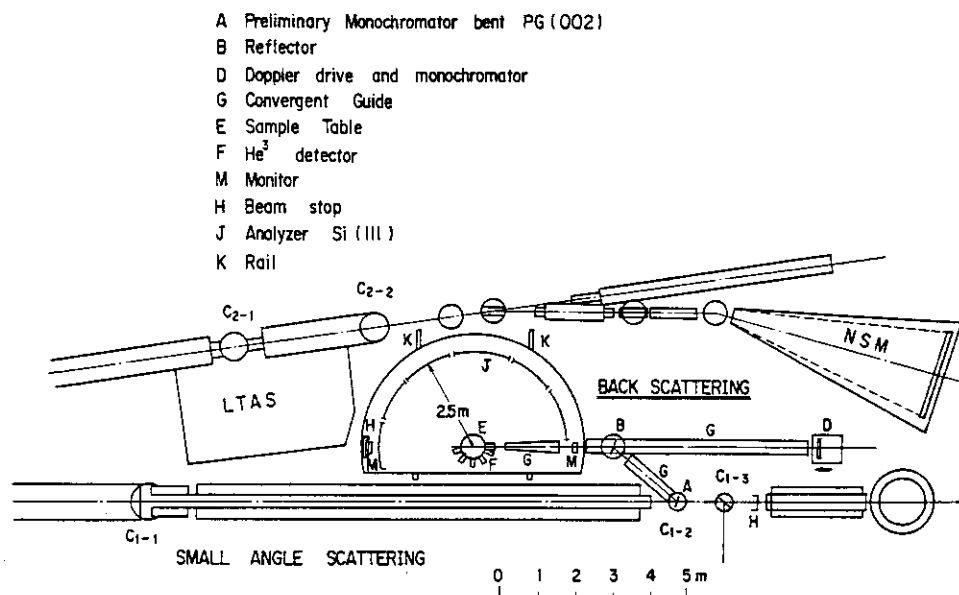


Fig. 1 Schematic view of the backscattering spectrometer.

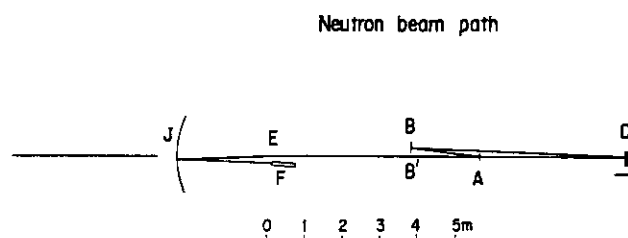
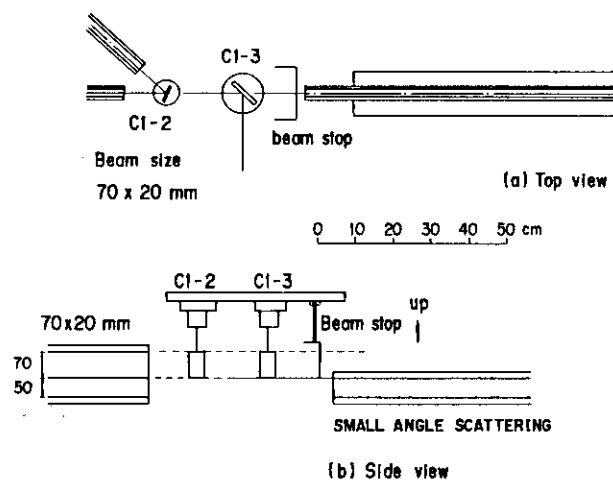


Fig. 2 Neutron beam path.



Neutron beam separation

Fig. 3 Neutron beam separation.

3.3.15 中性子小角散乱装置 (SANS-U)

東北大・核理研 新村 信雄

小角散乱の定義を散乱角の小ささのみで行うのは適当でない。むしろ、試料中にある10～1000 Å程度の不均一なものからの散乱が小角散乱であると定義した方がより適切であろう。ここでいう不均一とは、散乱長密度 ρ ($\rho = \sum b_i / V$ で定義) が平均の $\bar{\rho}$ からずれている箇所として定義される。小角散乱強度は $(\rho - \bar{\rho})^2$ に比例する。 $(\rho - \bar{\rho})$ はコントラストと呼ばれる。溶液中での生体物質や高分子、合金系でのクラスター、磁性体のドメイン等は小角散乱の測定対象になる。

X線小角散乱は1930年代後半に始まったが、中性子小角散乱装置の開発は1970年に入ってからである。これは冷中性子源、Position Sensitive Detector (PSD)、及びデータ処理系の技術開発がなされたことによる。

中性子小角散乱装置の構成は、冷中性子源、ガイド管、単色器、コリメーター、試料容器、散乱槽、PSD、データ集積と処理系となろう。改造3号炉に小角散乱装置を設置するに当り、効率の良い装置とするためには、個々の構成要素を充分検討する必要がある。それに際してやはり、ILLのD11の小角散乱装置は大いに参考になる。

まず、装置を設計するにあたっての制約を記す。

i) 使用ビームホールはC₁-1

ii) 炉壁から散乱装置として使用できる距離は約45 m

iii) ビームを縦方向に、最終的には3分割して、他の分光器と同時使用する。

(1) ビーム分割と単色器

単色器として単結晶あるいは速度選別器が考えられる。単結晶は波長分解能が良く、取扱いが容易であるという利点があるが、使用可能な波長範囲が狭いのが大きな欠点である。一方、速度選別器は、回転数を制御することで波長を変えられるので便利である。また縦方向のビーム分割と、速度選別器の共存は可能である。つまり他の分光器がビームの下側を使いたい場合は、速度選別器の上流側でその分光器へのビームが取り出せるし、上側を使いたい場合は、速度選別器の上流、下流どちら側からでも取り出せる。D11同様、目的に応じ、波長分解能の異なるローターを備えておくとう便利であろう。

(2) コリメーター

コリメーターの選定は、強度分解能に直接関係するので重要な因子である。D11ではガイド管の出口で規定されるビーム・サイズ ($\Delta x_E \times \Delta y_E = 30 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$) と試料の前に置かれたスリット ($\Delta x_S \times \Delta y_S = 15 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$) でピンホールを形成している。D11のQの分解能は

$$(\Delta Q/Q)^2 = (\Delta \lambda / \lambda)^2 + (\cot \theta \cdot \Delta \theta)_i^2 + (\cot \theta \cdot \Delta \theta)_s^2$$

と表わされる。検出器の位置の分解能を10mm×10mmとし、入射と散乱の距離を等しくすると、Fig. 1に示すように、 $\Delta Q/Q$ は検出器の中心からの距離Dにのみ依存することがわかる。波長分解能が50%の場合、検出器の中心から8 cm程は使えない。入射側の角度のゆらぎを小さくする必要があるが、これは強度の減少になる。これを救う一つの方法は2次元集束コリメータの利用である。長さ2 m、上流側5.7 mm、下流側3.6 mmのメッシュの集束コリメータを利用すると、検出器の中心から2 cm まで充分使えるコリメータ系を実現することができる。我々は、

すでに長さ 2 m, 上流側 4.0 mm, 下流側 2.7 mm のメッシュの集束コリメーターを製作した経験を有しているので、技術的困難さはない。この集束コリメーターで散乱長 10 m までは若干分解能は悪くなるが使用可能であろう。しかし散乱長 20 m では、ピンホール方式か集束コリメーター方式か更に検討が必要であろう。長さ 2 m, 上流側 1.8 mm, 下流側 1.5 mm の集束コリメーターが製作できれば、これを使用すると良からう。

(3) P S D

従来、小角散乱用 P S D として使用されるものの大部分は、比例計数管で、位置決定の座標系は直交系である。小角散乱の分解能は既に述べたように、P S D の中心からの距離 D の逆数に比例するので、中心付近は位置の分解能が良く、中心から離れるにつれ分解能が甘くなる P S D が理想である。これを直交座標系、比例計数管で実現させるのは困難であるが、この方式の技術はすでに確立しているので、信頼性の点で安心である。

小角散乱装置の性能向上の意味で、極座標系検出器の設置は大変重要である。そこで我々は数年前から、この種の検出器の開発研究を開始している。一つの可能性はアンガー・カメラ方式でシンチレーション光分布の重心の位置決め方式を従来は専ら直交座標系で行っていたが、これを極座標系に変更することは可能である。アンガー・カメラ方式の位置分解能は、光電子増倍管の光電面のサイズと、シンチレーターの発光量に依存する。 ^6Li ガラス・シンチレーターの総発光量から 1 mm 位置分解能を得ることは将来可能である。欠点は、時定数が μsec であることと、direct beam に対する工夫を考える必要があることである。もう一つの可能性はエンコード方式を併用したリング状 P S D である。リングの幅は、分解能を考慮し、リングの半径に比例して広くなるようにしておくと、分解能の補正が非常に容易になる。散乱の角度方向に異方性がある場合は、リング内を分割しておく必要がある。

極座標系は小角散乱装置には理想的であるが、ある種の実験では直交座標系の方が良いというものもある。そこで、極座標系が開発完了するまで直交座標系を用い後日極座標系を導入すると良からう。

(4) データ集積・処理系

2 D-P S D を使用するため、集積されるデータ量は多い。そのため実験の効率的遂行上、データ集積・処理系は重要である。但し、この分野の技術的進歩は日進月歩であるので、その時点で、その時点で最適のものを選択すると良い。可能な限り、オンラインで最終的なデータとして表示されるようなハードウェア・ソフトウェアを備える必要があろう。

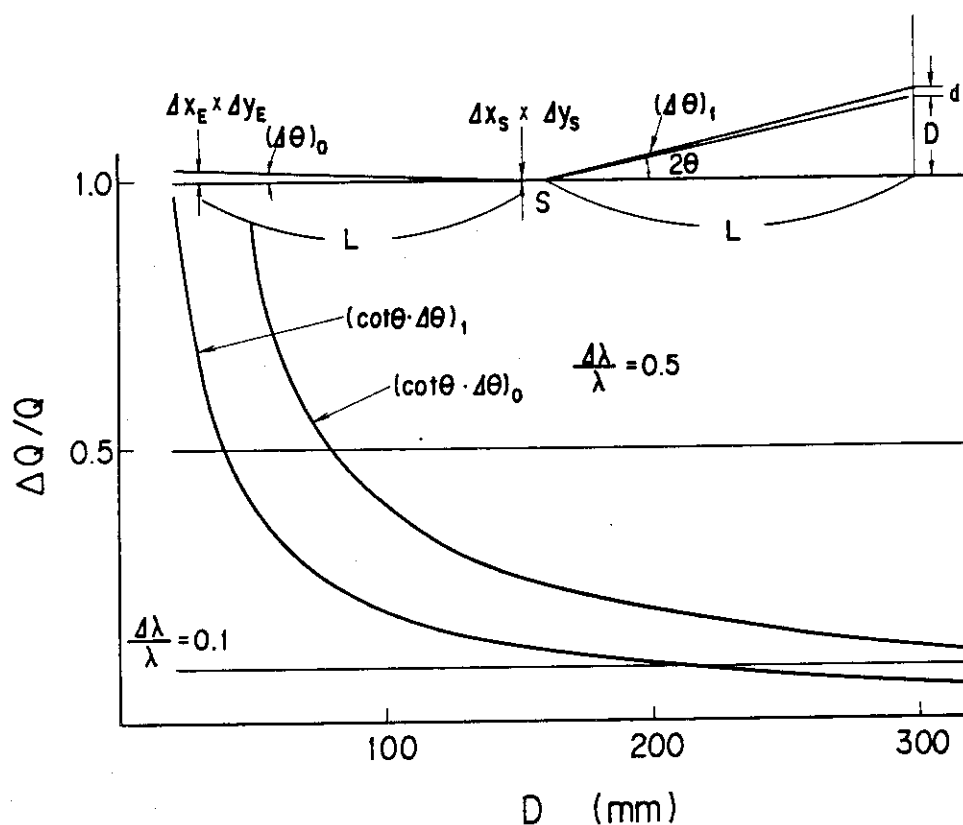


Fig. 1 Resolution function.

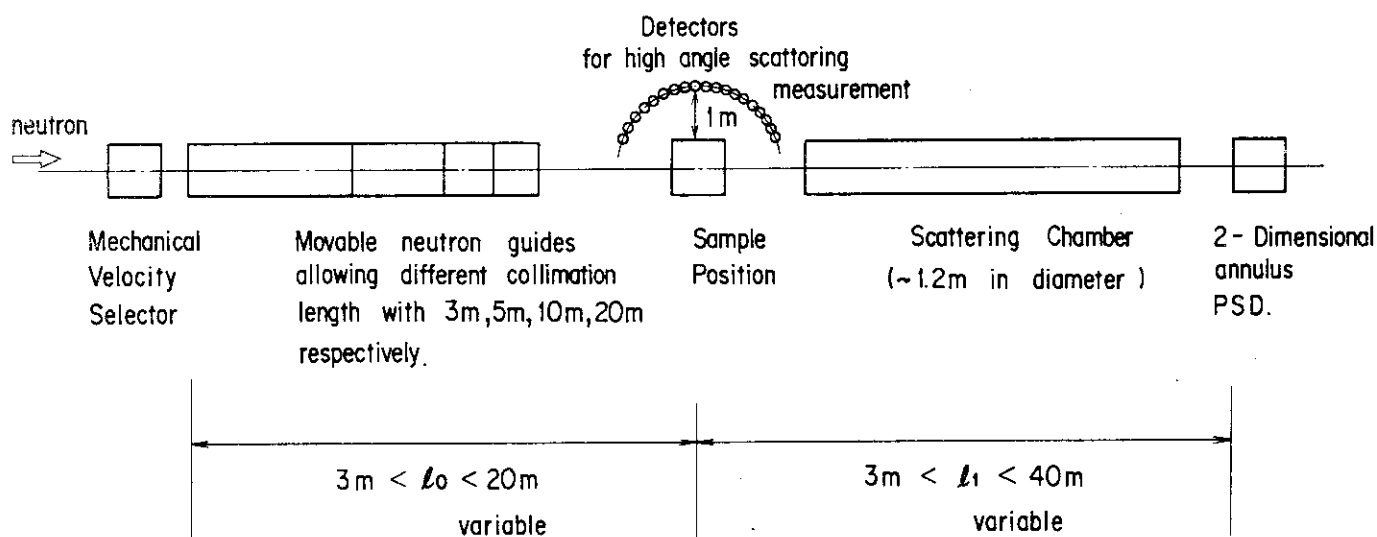


Fig. 2 Schematic layout of small-angle scattering facility.

3.3.16 中性子スペクトル変調装置 (NSM)

東大物性研 伊藤 雄而

(1) 概 要

本装置は、物性研で開発された新しい中性子散乱法（中性子スペクトル変調法—NSM—）に基づく装置で、その意味で、世界で始めての新装置である。原理の詳細については、文献¹⁾に述べられているが、要約すると、入射中性子の波長の広がりの中に正弦波の変調を施し、試料からの散乱情報を、この波長の広がりの中にエンコードする。飛行時間分析法により測定されたデータのパターン解析から、散乱関数の詳細についての情報を、高いエネルギーと運動量の分解能で得ようとする方法である。すなわち、従来の中性子散乱の方法では、3軸分光法、飛行時間分析法共、高いエネルギー分解能を得ようすると、当然、入射中性子の波長の広がりを極端に小さく押さえることが必要となり、ために中性子の強度が極度に弱くなった。中性子スピン・エコー (NSE) の方法で、始めてこのエネルギー分解能と強度との相関を分離することに成功したが、そのために、NSE法では、散乱関数の詳細に関する微妙な情報を犠牲にしなければならず、主に準弾性散乱に情報が限られる。新しいNSM法では、NSE同様、波長の広がり、エネルギー分解能とをdecoupleして、しかも、散乱関数の微少な変化をも観測することを目指す。

中性子スペクトル変調装置は、その動作原理や、高いエネルギー分解能から、小角散乱と組合せて、セミ・マイクロ領域の時空間での現象の観測に最も適している。従って、超微粒子、非晶質やガラス物質等のダイナミックス、あるいはフラクトンの観測、そして特に、溶液中の生体高分子や超分子、またヴィールス等のダイナミックスの研究に偉力を発揮するであろう。

a) 設置場所： 実験利用棟内冷中性子ガイド，C₂-2 ポート

b) 目 的： 新しい中性子スペクトル変調法を利用して、溶液中の生体高分子や、その複合体、超微粒子やガラス物質等、セミ・マイクロ領域での collective excitation の精密測定を行う。

(2) 構成

臨界波長 $4 \text{ \AA}$ のガイド管 C-2 の上流から、先ずヘリカルスロット型速度選別機、コースコリメーター、偏極用スーパー・ミラー又は、多重マルチレヤーが配置されて、波長分解能 5~10% の偏極冷中性子ビームが取り出される。次に高速フリッパー (f.f.) と第 2 マルチレヤーにより、ビームはパルス化される。次いで、ラーマー回転用コイルを通過してスペクトル変調を受けた中性子ビームは第 3 マルチレヤーにより強度変調に変換される。第 3 マルチレヤーから試料位置迄は、可変スリット系で、入射ビームの角度分解能を選ぶ。サンプルテーブルより下流には、散乱ビーム用の飛行管が、小角散乱、中角散乱、広角散乱用に 3 組配置される。真空に排気されたそれぞれの飛行管には、TOF に用 H^3 のディテクターが数十本配備され、ディテクターバンクを形成している。(Fig. 1 参照) サンプルテーブル上の試料チャンバーについては、温度、PH、磁場等試料環境の変更、ブランラン等が迅速且つ精確に行えるよう配慮する。

(3) 各部仕様

a) モノクロメーター部

臨界波長 $4 \text{ \AA}$ の冷中性子ガイド C-2 の上流にヘリカルスロット型の速度選別機、コースコリメーター、phased cutter、ポーライザーとして、スーパーミラー (又は多重マルチレヤー

一) 高速スピントリッパー, そして第2ポーラライザーが並びモノクロメーター部を構成する。

速度選別機と phased cutter で中心波長 $4 \sim 10 \text{ \AA}$ につき, 波長幅 $\Delta\lambda/\lambda \simeq 5 \sim 10\%$ の波長を取り出し, ポーラライザーで $P_0 \geq 95\%$ の偏極度を持つ強い偏極ビームを取り出す。特にポーラライザーについては, 広い angular acceptance に留意する。高速スピントリッパーと, 第2ポーラライザーで, ビームをパルス化する。パルス幅は単発バーストモードでは最小 $2 \mu\text{s}$, 擬ランダムシーケンスでは最小約 $5 \mu\text{s}$ が可能。フリッパーコイルは約 2mm 厚で, 例えば $6 \text{ \AA}$ 中性子では, 通過時間は $3 \mu\text{s}$ である。

b) スペクトル変調部

入射中性子の速さの広がりによりラーマー回転の位相角を対応させて, それぞれの中性子に印をつけるのがスペクトル変調部の役割である。そのためのラーマー回転用コイルの前後には, 磁気ガイド, 補償コイル, $\frac{\pi}{2}$ -フリッパー及び調整用 π -フリッパーが置かれる。プリセッションコイルは長さ約 2m , 最大磁場 1kOe , 磁場均一度は中心で 10^{-4} 以下。位相角変化を強度変化に変換するための第3ポーラライザーは集束型として, 強度の増加に留意する。

c) 入射コリメーターと試料テーブル

第3ポーラライザーから試料テーブル迄は, 数mに渡り, 入射コリメーターと試料テーブルとが位置可変で配置される。コリメーター系は角度分解能により, ピンホールスリット, 集束コリメーター等が必要に応じて用いられるが, フライトパスは真空中に排気される。試料テーブル上には, 試料チャンバーが実験に応じてセットされるが, 飛行距離が最適になるよう配慮する。

d) ディテクター・バンク

小角, 中角, 広角用の3つのディテクターバンクが同時に配置される。小角散乱用ディテクター・バンクは, コーン状の前方フライトチャンバーと, 同筒状の後方フライトチャンバーとより成り, 後方の円筒フライトチャンバー内を一列に並んだ H^3e ディテクターの組が, 前後に移動可能な状態で置かれる。試料からの最大距離は 20m である。フライトチャンバー内は真空である。必要に応じて TOF 用 H^3e ディテクターは, 小角散乱用の2次元カウンター・システムと取り換え可能である。

中・広角散乱用ディテクター・バンクもまたコーン状の前方フライトチャンバーと後方ディテクター・シールドからなり, 後方シールド内に H^3e ディテクターの組が一列に並ぶ。フライトチャンバー内は真空である。ディテクター・バンク全体は, サンプル軸を中心に, 数十度に渡ってエアクッションで回転可能である。

e) 計測制御部

擬ランダムパルスの発生, TOF シーケンスコントロール, プリセッションコイル系のモニター等は CAMAC インターフェースを中心に, マイクロコンピュータによる ON-LINE 制御で行う。

散乱データは, ディテクター位置と到着時間チャンネルをコードして, 特殊インターフェースを通じて逐次バッファメモリーに取り込み, ON-LINE で交差相関計算及びそのディスプレイが行えるよう, ミニコンピュータが処理する。

参 考 文 献

- 1) Neutron Spectral Modulation as a New Thermal Neutron Scattering Technique, I. General Theory, Y. Ito, M. Nishi and K. Motoya, Nucl. Instru. and Meth. 198 (1982) 497.

Neutron Spectral Modulation (NSM)

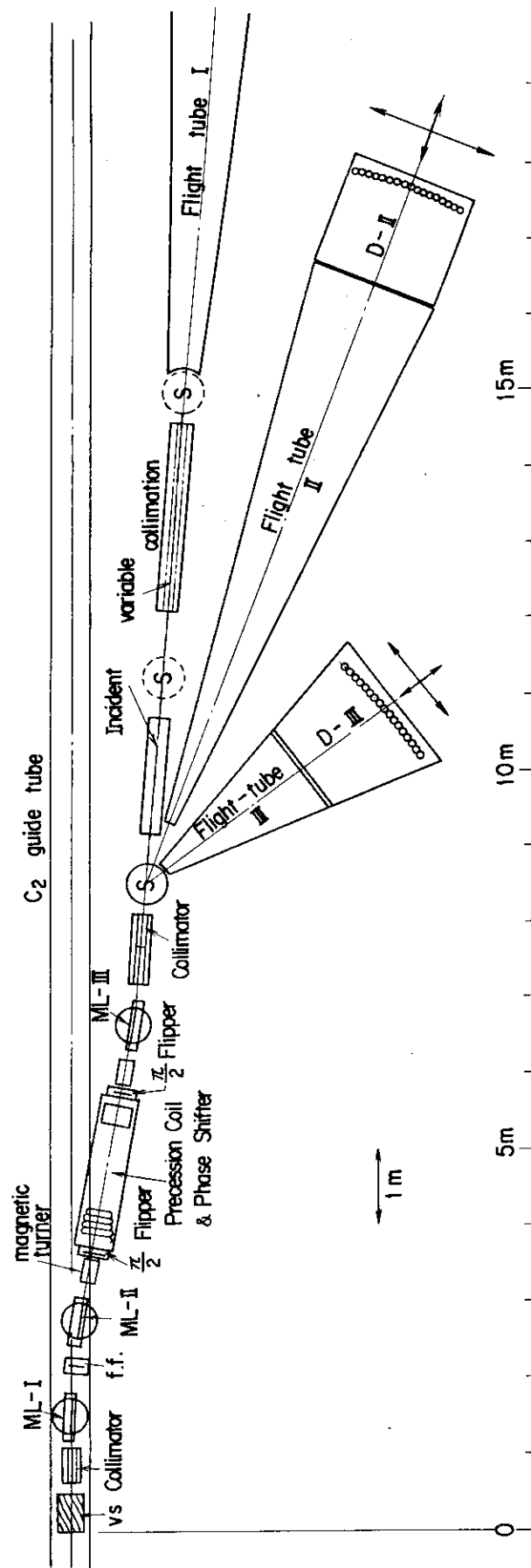


Fig. 1 Neutron spectral modulation spectrometer.

3.3.17 冷中性子ラジオグラフィ (CNR)

原研研究炉部管理部 鶴野 晃

中性子と物質との相互作用には中性子のエネルギーによる依存性がある。熱中性子領域ではこの相互作用にさまざまな特異性が見られ、これを利用して熱中性子ラジオグラフィ (TNR) が研究され、一部ではすでに実用化が行われている。冷中性子領域でも少数ではあるが、特異な相互作用があり、例えば、中性子エネルギーが 0.005 eV (24°K , $4 \text{ \AA}$) において、Be, Fe の吸収断面積に Bragg Break が現われ、極端に吸収が少なくなる等の特異性が上げられる。これを利用すれば、被写体の特殊な透過像が得られ、非破壊検査に応用することが可能である。

本装置は実験利用棟 ビームホールにおいて冷中性子導管 $C_2 - 3$ に設置する。装置の構成はコリメータ、スキャナ検出部及び遮蔽体である。コリメータは断面が $20 \times 60 \text{ mm}$ から $1 \times 60 \text{ mm}$ のもの数本を交換して使用する。He 充填となるが、一部にフィルタが挿入できるようになっている。

スキャナは被写体及び検出系 (コンバータ, フィルム, フォイル等) を保持して上下・左右に走査するとともに、回転機能を持つもので、最大保持重量 100 kg , 保持台は $1,000 \times 1,000 \text{ mm}$, 高さ $2,200 \text{ mm}$ を最大とする。作動は自動制御にて行う。

検出部は蛍光コンバータ, イメージ増倍管, TV カメラ, 画像ディスクファイルから成る。ファイルされたデータの解析は TNR の画像解析室にて行う。

遮蔽体は照射中のスキャナ, 検出部を全体としてカバーするもので、鉛, パラフィン, B_4C を組合わせて製作する。着脱はホイストを使用する。

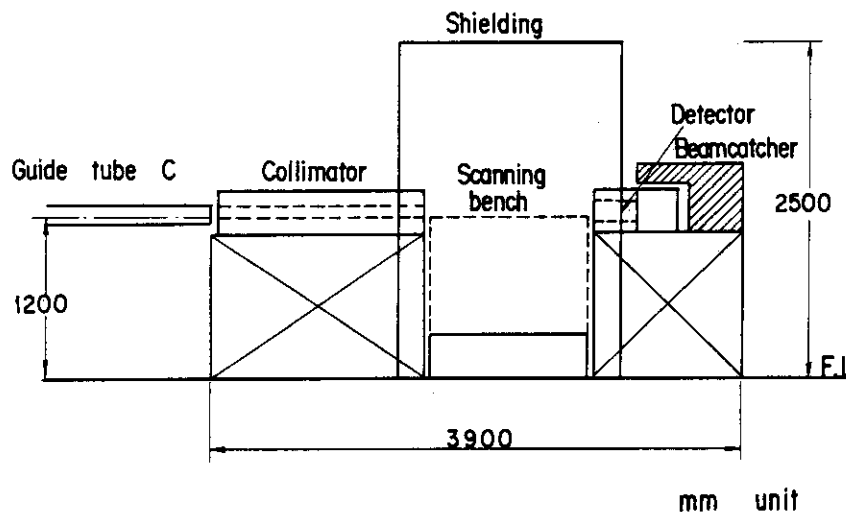


Fig. 1 Cold neutron radiography facility.

3.3.18 中性子スピネコー分光器 (NSE)

東北大理学部 遠藤 康夫

(1) 研究分野

中性子スピネコー分光器は中性子の偏極度 (スピンになぞらえる) を時計代りに使う。スピンは磁場の廻りに Larmor 才差 (ω_L) とする。Larmor 才差角 (ϕ) は積分磁場 ($B\ell$) と中性子の速度 (v) で決まる。つまり才差角度は一定の磁場中で中性子を通すと速度分布が才差角の広がりを与えることになる。この原理を応用したのが中性子スピネコー法である。

中性子の速度分布で広がったラーモア才差角は、中性子を同じ道筋を戻してやれば元の出発状態のスピンに戻るはずで、これを実現する為に積分磁場の中間点でスピンを反転してやればよい事に気づく。これが謂ゆるエコー条件に相当する。(Fig.1) 中間点に試料を置き、その位置で中性子を散乱させてやると、もし散乱の際に中性子と相互作用をしてエネルギーの授受があればエコー条件が破れ、積分磁場通過後の中性子の偏極度は出発前の状態に戻らないので、エコーがくずれる。このエコーの「シフト」を観測すれば逆にエネルギーの授受の量がわかる。この方法の最大の特徴はエネルギー分光の感度が偏極度で表わされることであり、直ちにエネルギー分解能が中性子の速度分布に無関係になるという利点があげられる。逆に欠点はラーモア才差の制御の完全性が要求されること及び、エネルギー (ω) のフーリエ成分を測ることになる為に散乱中性子のエネルギースペクトルを知る為には逆フーリエ変換を施すことになり一般的な散乱実験になり難い。しかし乍らエネルギー感度や中性子の経済性等を考慮すると中性子の用途として非常に有力な方法であることは云う迄もない。特に高分子や液体分子の拡散モードや、磁気ドメイン、スピン、原子分子の変位の緩和過程等の研究には適した方法で、化学、生物々理、高分子物理、固体物理へと応用範囲も広い。

この後に測定原理を知る為に数字的記述をつけ加える。

$$\phi = \omega_L t = -r B \ell / v \quad (\text{ラーモア才差角を与える式})$$

エネルギー感度を与える式

$$\Delta E / E = 2 \Delta \lambda / \lambda = 2 \Delta N / N \sim 2 / N$$

N を才差回転数として 1 回転を感度とすると

$$\Delta E = \frac{2}{N} E = - \frac{2(2\pi^2)\hbar^2}{r m B \ell \lambda} \cdot \frac{h^2}{2 m \lambda^2} = \frac{h^4}{2 |r| m^2 B \ell} \cdot \frac{1}{\lambda^3}$$

又 Larmor 一才差回転に要する積分磁場は

$$B \ell = - \frac{(2\pi)^2 \hbar}{r \lambda} = \frac{135.65}{\lambda} \quad [\text{Oe cm A}^{-1}]$$

装置としてエネルギー誤差の入る要素は

$$\delta N / N \propto \frac{\delta(B \ell)}{B \ell} = \frac{\delta B}{B} + \frac{\delta \ell}{\ell}$$

検出感度として10neVをねらう為には、 ΔN の1/10迄検出しかつ全才差回転を 10^4 以上に
する必要があり、その時の $\delta B/B$ は 10^{-4} となり、この数字は決して易しくない。

(2) 装置概要

中性子スピネコー分光器の構成

速度選別器

偏極子 (ポラライザー, アナライザー)

プレセッション・コイル

スピNFLリッパ

中性子検出器 (ディテクター, 回路)

計算機及び制御装置

Fig. 2にILL (grenoble)のIN11分光器の概念図を載せておく。

(3) 其他

中性子スピネコー装置の建設はそれ程易しくないし始めにも申したように一般受けをしない
装置でありこれを使って有効な研究をする分野も限られている。従って先に述べた研究分野のユ
ーザーの強力な要請と援助がなければ成功はおぼつかない。現在KUR, KEKの施設にも同じよ
うな中性子スピネコー装置の建設予定があり、これらをうまく調整して各々協力し乍ら機能さ
せることが望まれる。

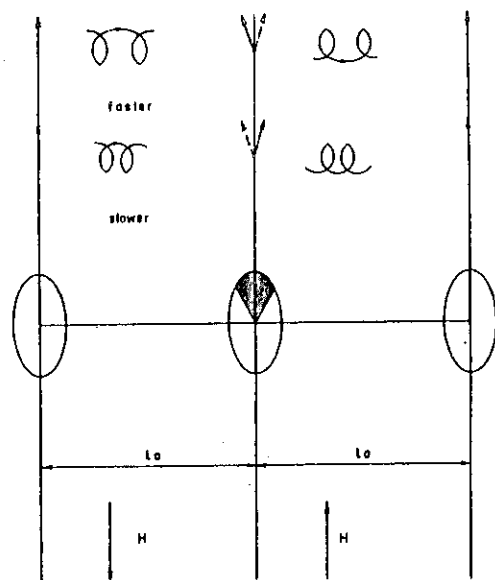


Fig. 1 Principle of NSE.

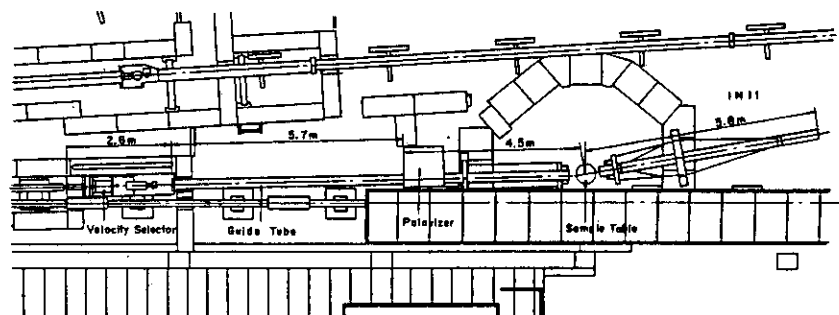


Fig. 2 NSE Spectrometer IN11 in ILL.

3.3.19 中性子小角散乱装置 (SANS)

原研物理部 飯泉 仁

改造後の JRR-3 におけるビーム実験の最重点は冷中性子の利用にある。種々の冷中性子用中性子散乱装置が計画されているが、そのなかで中性子小角散乱装置は最も重要な装置である。中性子小角散乱の応用範囲は金属材料から生体組織まで広範な広がりを見せており、多岐にわたる利用が予想される。原研グループとしては合金の析出、照射によるボイドなど、材料のマイクロ構造の測定を主目的とする。しかし大学グループの設置する高分解能中性子小角散乱装置との相補性を考慮し、中、あるいは低分解能用の汎用中性子小角散乱装置として設計する。主な特徴は

- 1) 低いし中程度の分解能
- 2) 強い散乱強度
- 3) 大きな Q (散乱ベクトル) までの測定
- 4) 多重ブラッグ反射を起さない波長 (金属材料で)

などである。

装置 (Fig. 1) は臨界波長 $6\text{ \AA}$ のガイド管の終端に設置される。ガイド管からの中性子ビームを先ずヘリカルスロット型速度選別機で、5~20%の波長分解能に単色化した後、10mのスリット系を用いて、測定に適合した角度分散に絞る。スリット系は高分解能の場合はピンホール配置、低分解能にはスリットとガイド管を用いる。またガイド管全面のビームを有効利用するため、集束コリメータの利用も考える。これらのスリット系はスライドシステムにより、適宜交換することができる。これらのスリット系の最適設計により、中程度の分解能の測定の場合最大限の強度が得られるよう工夫する。

散乱中性子分布の測定は2次元マルチワイヤー型カウンター (測定面積: $50\text{ cm} \times 50\text{ cm}$ または $64\text{ cm} \times 64\text{ cm}$, 画素要素はいずれも $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$) を用いて行う。試料からカウンターまでのパスには低真空に引いた中性子飛行管を設置する。カウンターは薄いアルミ窓を隔ててこの飛行管の外部に置かれるので、カウンター位置は、連続可変ではない。飛行管を組合せ構造とし、カウンターを試料から 2 m, 5 m, 10 m のいずれかの位置に設置できるようにする。エアクション駆動により、カウンター系全体を入射方向から 10° まで振ることにより、高い Q ($Q_{\text{max}} \sim 0.4\text{ \AA}^{-1}$) までの測定を可能とする。

データ収集処理には専用のミニコンピューターをあて、効率的なグラフィック処理を図る。将来実時間で中性子小角散乱、すなわち中性子小角散乱の時間変化の時分割測定が可能となるようなデータ収集システムを準備しておく。

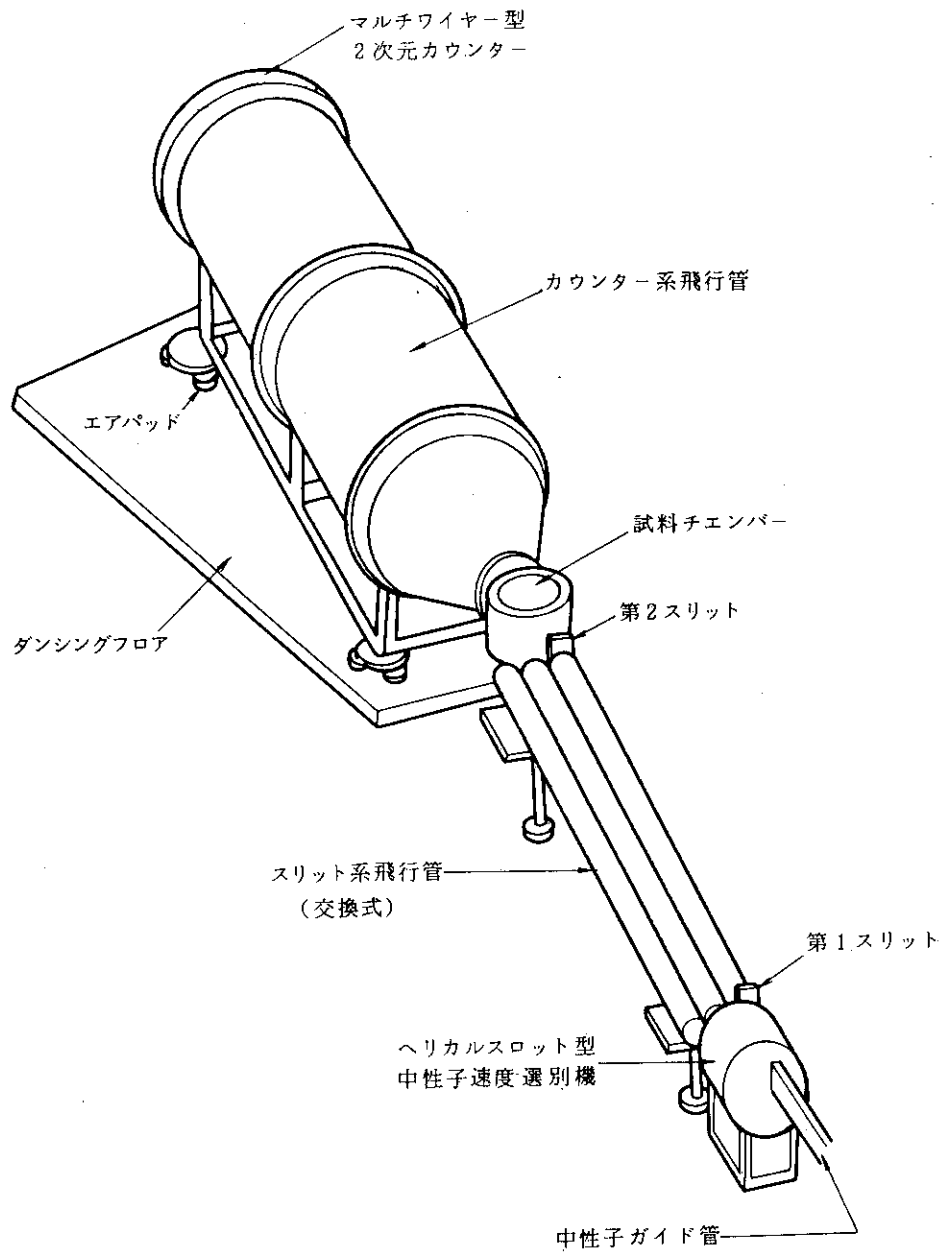


Fig. 1 JAERI small-angle neutron scattering facility.

3.3.20 超冷中性子発生装置 (UCN)

高エネルギー物理研究所 吉城 肇

本節を始めるにあたり超冷中性子 (Ultra Cold Neutron, 略して UCN) とは何であるか簡単に説明して置く。中性子エネルギーの極めて低い領域 ($kr_n \ll 1$, k は中性子の波数, r_n は核力のレンジ) では散乱振幅 ψ は $\psi \sim 1 - a/r$ の様書き表される。 a は effective range と呼ばれるパラメータであるが、散乱をボルン近似で取扱うのはエネルギーが低くて正しくないのにも拘らず、敢えて Fermi は擬ポテンシャル V を導入して a に次の様な Fourier 表現を与えた。

$$a = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int V(r) e^{i(k_i - k_f)r} d\tau \quad (1)$$

$V(r)$ の解として次は上式(1)を満足する。

$$V(r) = \frac{2\pi}{m} \hbar^2 a \delta(r) \quad (2)$$

中性子が外部から或る物質中に入っていく時、 $V(r)$ は上式(2)の核の空間的分布についての加重平均となる。従ってポテンシャルは物質表面でステップ函数的に変化しその変化分は物質中の原子核の effective range a とその空間密度 N の積に比例する量である。この変化分、Effective Potential は種々の物質によって異なるが概ね絶対値が $10^{-7} \sim 10^{-8}$ eV 程度であり、正の場合中性子の運動エネルギーがそれより小さければ吸収のない限り中性子は入射角によらず全反射される。Table 1 に種々の物質の Effective Potential を示す。超冷中性子 (UCN) とは一般に運動エネルギーが Effective Potential より小さいため金属等の面から入射角によらず全反射する遅い中性子のことを言い、速度は約 6 m/s 以下である。金属等の面から反射することから、その様な物質で作った箱の中に UCN を蓄積することが出来るのは UCN の大きな特長の一つである。

UCN は炉内の中性子や¹⁾ 冷中性子の中に、²⁾ ボルツマン分布に従って勿論存在するが、それとは別に UCN を大強度で発生させるための装置の開発が行われていて、その主なものに二つあるのでそれに就いて述べることにする。

その一つは中性子タービンと呼ばれるものである。蒸気タービンやガスタービンでは高速の気流をタービン内に導入して動力を得るがその際気流はエネルギーを失って冷却する。これと類似した原理で接線速度 25 m/s 程で回転する湾曲した羽根 (例えば銅製) に 50 m/s 程の中性子を当てる。反射角が適当に小さければ ($\sim 15^\circ$) 羽根と中性子の相対速度が 25 m/s であっても中性子は羽根面から全反射され、湾曲面に沿って数回反射が行われて反対側に UCN が生じる。³⁾ 又湾曲羽根の代りにスーパーミラーという特殊な多層膜鏡から成る三面鏡羽根を用いたタービンも開発されている。この場合反射角が大きく 3 回の反射ですむ。⁴⁾ 同様な原理で Doppler Shifter と呼ばれる回転する人工雲母羽根による UCN 発生⁵⁾ の報告もある。この場合反射はブラッグ反射による一回のみで回転速度は 220 m/s, 入射中性子速度は 400 m/s であった。中性子タービンの特徴は発生効率の高いこと、構造が簡単であり取扱いやメンテナンスが容易であることである。発生場所が広いこと、空間密度に次に述べるスーパーサーマル・コンバータのようなビルドアップがないことは長所であると同時に短所でもある。

UCN を発生させる他の有力な方法として超流動状態のヘリウムと約 $9 \text{ \AA}$ ($\sim 500 \text{ m/s}$) の中

中性子を反応させる方法がある⁶⁾。量子流体である超流動ヘリウムはいわゆるフォノンやロトンが発生消滅を繰返しているがその運動量-エネルギーの関係は Fig. 1 の様に通常の粒子とは異なる曲線となる。 $E = p^2/2m_n$ という中性子の運動量-エネルギー曲線(放物線)とこの曲線が交わる所では、入射する中性子と発生するフォノンの間に運動量-エネルギーの保存が成立し、この時入射する中性子の運動量-エネルギーはすべてフォノンに移され自らは静止する。交点の近傍でもフォノンを発生した後の中性子のエネルギーは超冷中性子領域に落ち込む。その全反応断面積は数十 μbarn に達する。具体的には超冷中性子を閉込めて置くことの出来る様な物質(例えばステンレススティール等は工作が容易なのでよく使われる、又これに Ni や Be をコートしたもの、BeO, SiO₂ 等で作ったバルブ付き容器に液体ヘリウムを溜め、³He 等で更に温度を 1 °K 以下に冷やし、冷中性子線に当てる。この時冷中性子は容器の壁を突き抜け外から中に入り、UCN は外には出られなくなるので、容器内の UCN 密度は次第に増加するのがこの方法の大きな特徴である。充分超冷中性子が溜った所でバルブを開きこれを取り出して他の実験に使う。もしその実験が e. d. m. (3.5.6 (3)参照) 実験の様に一回の測定に数十秒の時間のかかるものであれば、この間バルブを閉じ次の測定のための UCN を溜めることが出来る。ILL グループは長さ 3 m の水平型クライオスタットを製作し、0.49 °K で $\sim 20 \text{ UCN}/\text{cm}^3$ の密度を容器内で得たと報告した⁷⁾。我国では現在高エネルギー物理学研究所で水平型クライオスタットを製作中である。Fig. 2 にその冷凍部分の基本設計図を示す。A 及びこれより右につけられる長さ 1 乃至 3 m の空洞部分(図示されていない)に超流動状態の液体ヘリウムが蓄えられ、図の右方から飛来する冷中性子ビームによってここに UCN が生成する。空洞は UCN 管と呼ばれる管 B を介して上部にある分子ポンプによりあらかじめ高真空にして置く。これは液体ヘリウムや容器の壁面に存在する不純物が蓄積時間を短くするからである。C に蓄えられた 4.2 K の液体ヘリウムは溜め D に於いて減圧され超流動状態となりスーパーリーク E を通って A の中に入る。E は He³ を分離するために設置されている。液体ヘリウムは更に He³ ポット F によって冷却される。F は全く独立した循環系統に属し He³ がポット内で減圧され蒸発する結果空洞内液体ヘリウムが 1 K 以下に冷却される。この装置はプロトタイプであった Mark-280⁸⁾ を継承するもので Mark-3000 と呼ばれ今秋からテストに入る予定である。

Fig. 3 に冷中性子導管の C₂-3 出口への装置の配置計画図を示す。

参 考 文 献

- 1) V.I. Luschnikov, et al. : Sov. Phys. JETP Lett. 9, 23 (1969),
A. Steyerl : Phys. Lett. 29B, 33 (1969).
- 2) I.S. Alterav, et al. : Phys. Lett. 80A, 413 (1980).
- 3) A. Steyerl : Nucl. Inst. Meth. 125, 461 (1975).
- 4) 宇津呂雄彦他：京都大学原子炉実験所第17回学術講演会講演要旨集, 31 (1983).
- 5) T.O. Brun, et al. : Phys. Lett. 75A, 223 (1980).
- 6) R. Golub, J.M. Pendlebury : Phys. Lett. 62A, 33 (1977).
- 7) R. Golub, et al. : Z. Phys. B, 51, 187 (1983).
- 8) H. Yoshiki : KEK Report 84-2 (1984).

Table 1 Effective potential of various material (in unit of 10^{-7} eV).

Ni (spin up)	2.7	(2.5) ^{\$}
Ni (spin down)	2.1	(2.5)
BeO	2.6	(0.3)
Be	2.5	(0.1(300K), 0.02(100K))
Fe	2.1	(1.7)
C	1.8	(0.12)
Cu	1.7	(3.1)
Al ₂ O ₃	1.5	
SiO ₂	1.1	
Mg	0.61	(0.2)
Al	0.56	(0.5)
(CH) _n	0.33	
He	0.17	
V	-0.08	
(CH ₂) _n (paraffin)	-0.11	

^{\$} The numbers in parentheses are the ratios of the absolute value of the loss potential (iW) to the effective potential (V) multiplied by 10^4 . The loss here is meant by that due to absorption and up-scattering.

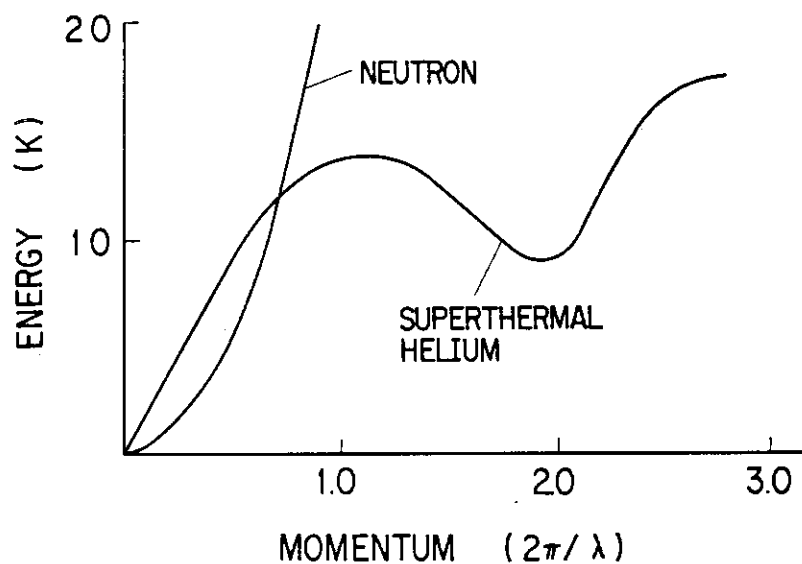


Fig. 1 Momentum-energy relationship for superthermal helium and neutron.

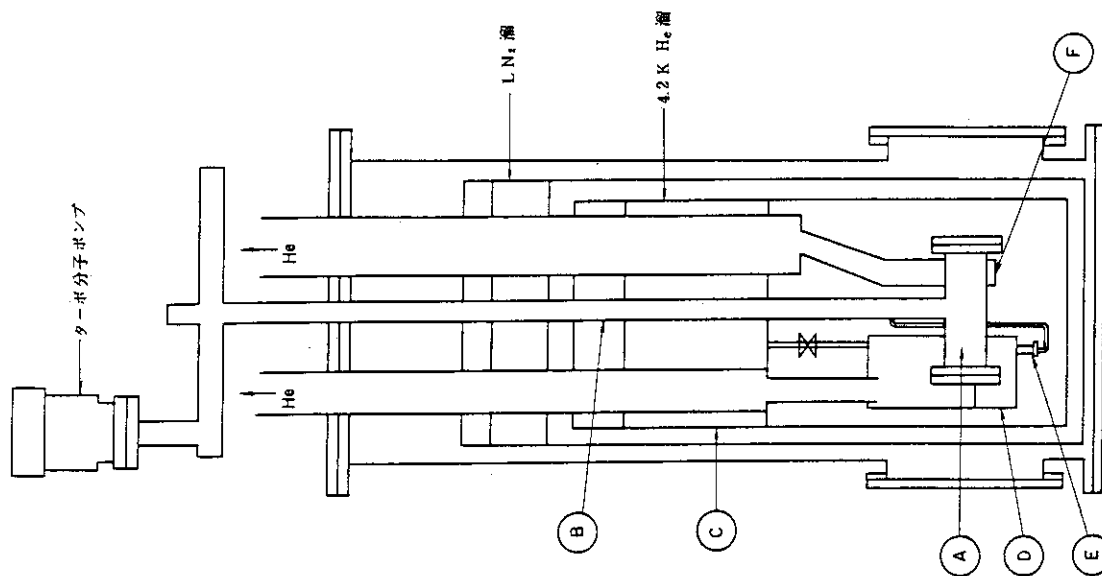


Fig. 2 Conceptual diagram the cryostat for UCN generation being assembled at KEK.

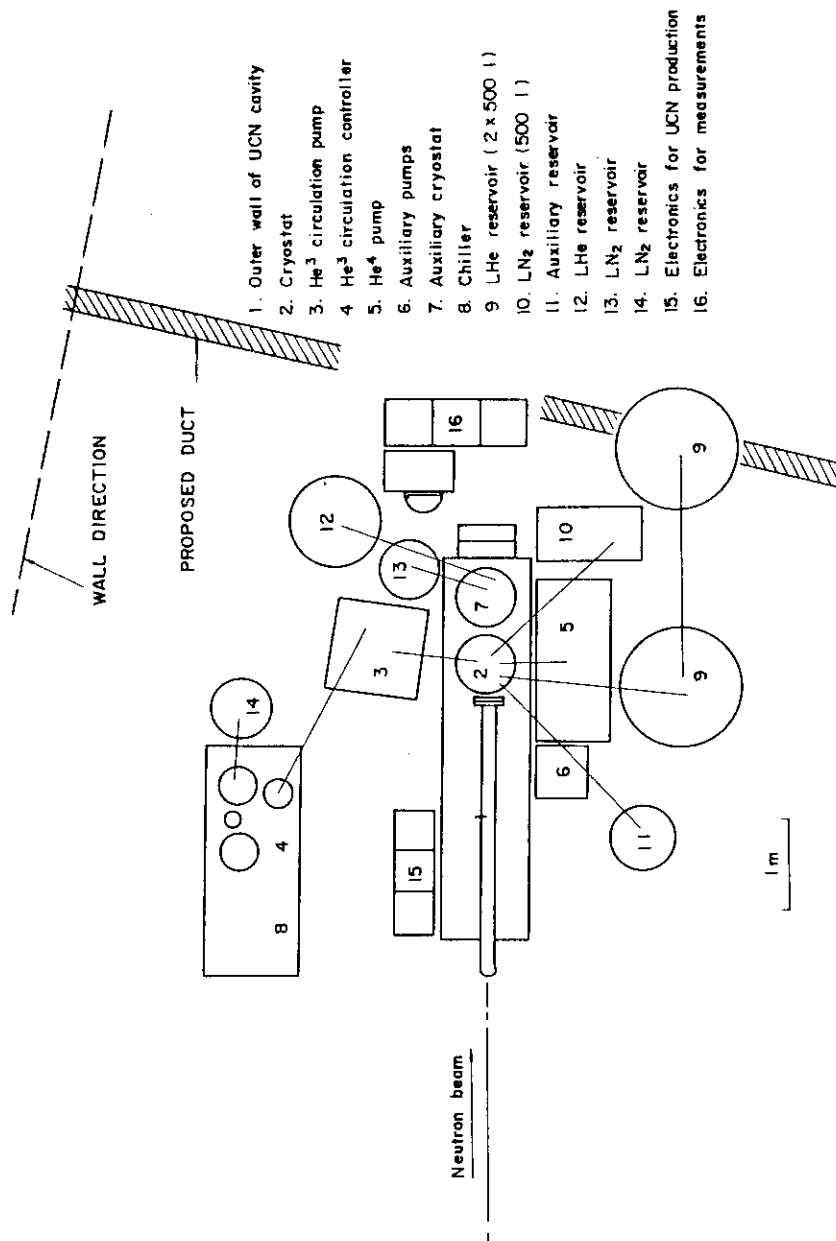


Fig. 3 Proposed plan of UCN experiments at the upgraded JRR-3.

3.3.21 中性子干渉計・中性子光学用回折装置 (NDIO)

東大工学部 菊田惺志

(1) はじめに

本装置は熱中性子ガイド管からのビームを用いて、中性子干渉計による干渉実験を行うためのものである。それとともに完全結晶からなる中性子光学系による回折、散乱の実験にも利用できるように多目的に設計されている。熱中性子の完全結晶における回折の角度幅は数秒以下であって、中性子光学の実験では結晶板を複数個配置して逐次反射を行わせる光学系をよく用いるので、複数個の精密な回転機構をもつゴニオメータが必要である。しかもその周囲からの機械的な振動を除去し、室温を一定に保たなければならない。この環境条件は中性子干渉計の場合が最も厳しい。

以下では、まず装置の概要を説明し、つきにおもに利用する光学系として中性子干渉計と平行配置の2結晶回折計についてその機能に触れる。

(2) 装置の概要

装置全体の概念図を Fig.1 に示す。熱中性子ガイド管の光軸上に分光用ゴニオメータが置かれ、そこにマウントされた分光結晶により単色化したビームを取り出す。ビームの出口の周囲は可動式の遮蔽体でシールドする。遮蔽体の外に2台の精密ゴニオメータが配置される。これらのゴニオメータを用いて (+, -) 配置や (+, -, +) 配置などのように実験に応じてかなり自由に結晶の配置を選べ、多目的の使用が可能である。精密ゴニオメータは全周の回転精度が $0.1''$ の回転機構をもち、 $1''$ よみのエンコーダによって角度を検出する。狭い角度範囲 ($\pm 3^\circ$) の回転に対しては、回転精度が $0.01''$ のもうひとつの回転機構を用いる。2種の回転モードは電磁クラッチによって切替える。精密ゴニオメータは大きさが $300\text{ mm}\phi \times 400\text{ mm}$ 、耐荷重 50 kg で、2方向の平行移動とチルト付きのゴニオメータヘッドが載る。それにクライオスタットなどを搭載できる。 $\lambda - \phi$ サークルも付属する。精密ゴニオメータは2本のアームをもち、2台の検出器架台と連結する。エアベアリングにより定盤上を移動する。

2台のスリット系がビームの光軸の方向と断面の形を決める。2台の BF_3 検出器は、回折線用と透過線のもので、両方同時に測られる。入射中性子線の波長をモニターし、その変動を抑えるのにX線を利用する。ガイド管のそばに置かれたX線発生装置からのX線を中性子光学系の結晶によって逐次的に反射させ、反射強度が一定になるように結晶の回転角を調整する。偏極中性子による実験を行うため、中性子を偏極させたり、偏極度を測定する装置を備える。中性子干渉計での測定の際、位相物体の回転・平行移動装置を用いる。装置全体の制御と計測は、マイクロ・コンピュータを用いて自動化する。

分光用ゴニオメータと精密ゴニオメータはすべて機械的な安定性を保つためにひとつの定盤上に置かれる。定盤の脚には空気バネ式の防振機構が組込まれる。床はよい平面度で仕上げ、定盤が分光用ゴニオメータの中心軸のまわりに空気浮上により回転できるようにする。床に直接置かれた検出器架台も空気浮上により移動させる。装置全体は分光用ゴニオメータの部分も含めて、温度変化が $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 以内で一定に保たれた恒温室内に設置される。制御系は恒温室の外に置かれる。

(3) 中性子干渉計

中性子干渉計によって空間的に十分に離れたコヒーレントな中性子ビームの間の干渉実験が行われる。光学の Mach-Zehnder 干渉計に似た配置をしており、ミラーによる反射の代りに結晶板による回折が利用される。Fig. 2 のように、3 枚の結晶板が等間隔に並んでいる。この場合、対称ラウエケースの回折を用いる。1 枚目の結晶板で入射線は回折方向と透過方向へ進む 2 つの可干渉なビームに分離される。それらは 2 枚目の結晶板で 4 つのビームに分かれ、そのうち内側の 2 つが 3 枚目の結晶板上で重なり合い、干渉する。光路のひとつに位相物体を入れることにより位相のずれ β が生じたとすれば、干渉計から回折方向と透過方向へ出射するビームの強度はそれぞれ

$$\left. \begin{aligned} I_H &= r - \alpha \cos \beta \\ I_O &= \alpha (1 + \cos \beta) \end{aligned} \right\}$$

となる。ここで α と r は干渉計に固有な定数である。

干渉計は無転位、高純度の格子欠陥を含まないシリコン単結晶のロッドからダイヤモンドカッターを用いてモノリシックに切り出される。3 枚の結晶板は溝でつながっており、結晶板相互の位置関係は $\text{\AA}$ のオーダーで安定に保たれている。2 つの光路の中性子ビームの間の可干渉性を失わせないために結晶板の間隔は数 μm の精度で等しくされる。作製する干渉計は大きさが長さ 60 mm, 横幅 45 mm, 高さ 45 mm で、220 反射が使われる。

(4) 平行配置の 2 結晶回折計

(+, -) 平行配置の 2 結晶法では、第 1 結晶が分光およびコリメーションの役目をもち、第 2 結晶が角度についてのアナライザーになる。第 1 結晶と第 2 結晶は同種の結晶で、面間隔の同じ格子面が回折に用いられ、Fig. 3 のように、それらの格子面は互いに平行になる。この配置では波長分散がなく、第 2 結晶を回転すると、半価幅が数秒ぐらいのイントリニンシックに近い回折強度曲線（ロッキングカーブ）が得られる。したがって動力学的回折現象を研究するのに適した配置である。また第 1 結晶と第 2 結晶の間に試料を置けば、試料による屈折あるいは散乱で生ずるビームの僅かな角度変化を高精度 ($\sim 0.1''$) で測定できる。ブラッグケースの非対称反射やラウエケースの wave fan の角度拡大作用を利用するとさらに高感度の検出 ($\sim 0.001''$) が可能である。

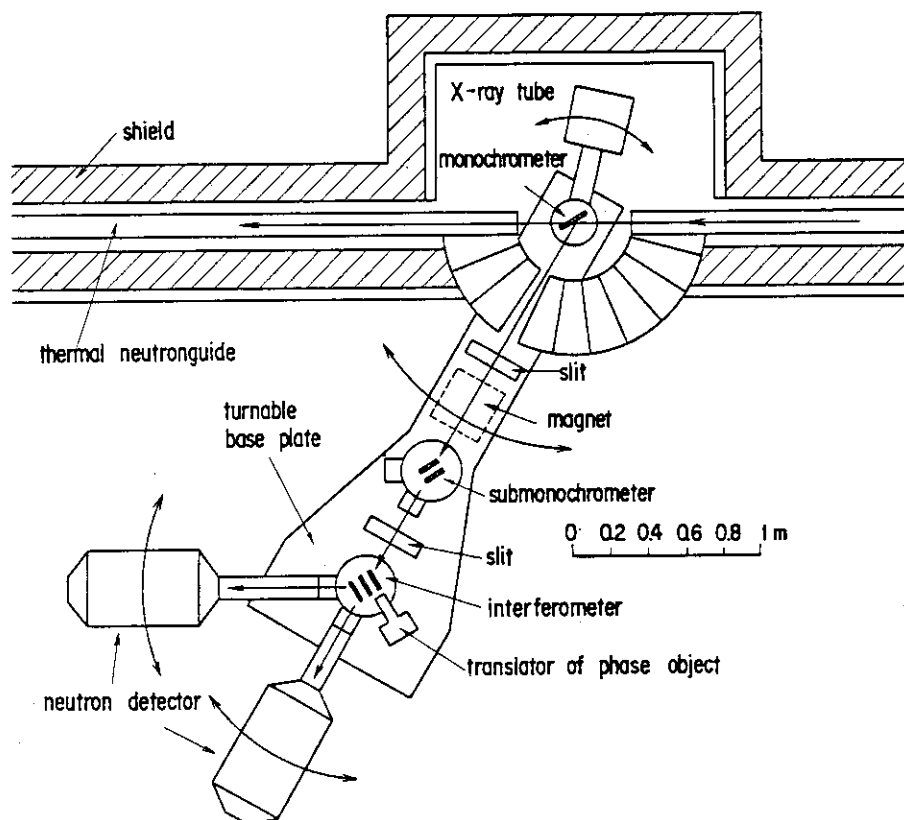


Fig. 1 Schematic view of the neutron diffractometer for the study of neutron interferometry and neutron optics.

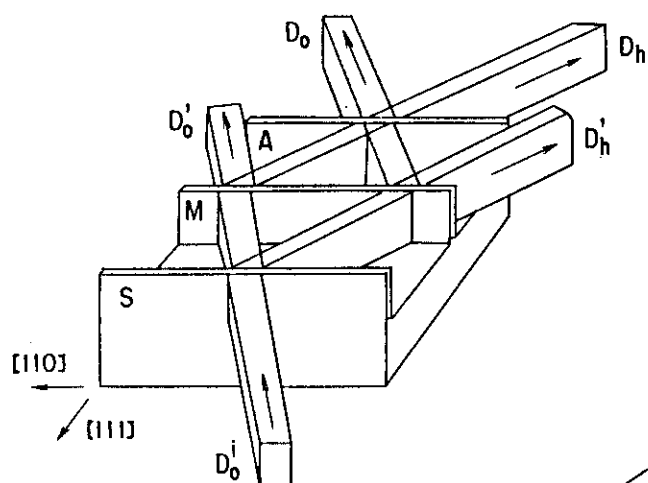


Fig. 2 Neutron interferometer.

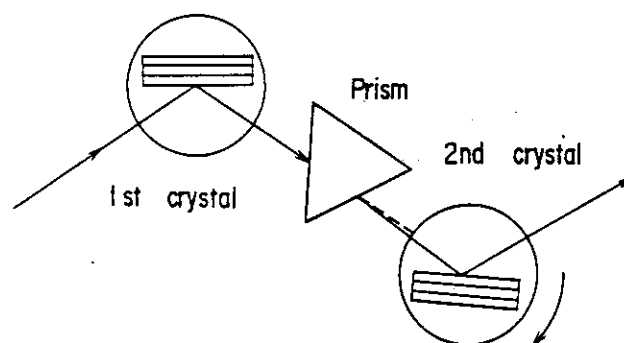


Fig. 3 Double-crystal diffractometer of parallel setting.

3.3.22 中性子回折カメラ (NDC)

九大理学部 日高昌則

(1) 研究分野

最近、新物質材料の開発研究が盛んである。これらの凝縮系のもつ新しい有用な物性は構成原子又は分子の長周期構造のミクロ構造ゆらぎに深い関連をもつ。この構造ゆらぎとしては長周期秩序の異方的変調、短距離秩序領域（例えばクラスター、Gアゾーン）、構成原子又は、不純物原子の異方的拡散分布などである。これらの構造特性は核散乱又は磁気モーメント散乱による衛星反射、超格子反射、異方的変調散漫散乱などの特異的回折パターンに反映されてくる。従来の中性子回折カウンター法ではあらかじめX線回折又は類似構造の推定によるある程度の逆格子空間における回折パターンの認知が必要である。本中性子回折カメラは上述の構造特性を容易に一度で2次元逆格子平面内の回折パターンを測定できる。カメラ系のシンチレーターの性能向上により各種の試料雰囲気（低温、高温、磁場、電場、高圧等）中での構造解析に加えて、3次元回折パターンの採集により原子核又は局在磁気モーメントの長周期構造の決定ができる。

(2) 装置概要

本中性子回折カメラはその用途から①ワイセンベルグカメラと②平板&円筒カメラとに分ける。ガイド管からの幅20mmビームをFig. 1のように2つの非対称湾曲モノクロメータ (GM1 & GM2) で2分割して焦束させて位置分解能および中性子数の増加を行う。

1) ワイセンベルグカメラ

Fig. 2にこのカメラの実験ポートの概要を示す。結晶学的、磁氣的構造決定を行うに十分な3次元データを採集するために波長領域として1.5~1.8 Åを使用する。このためにカメラステージ (SG1) はガイド管からのビーム入射方向より25~30度の角度範囲を移動することができる。カメラ本体は回転軸に垂直な各層線回折パターンが採集でき、低温クライオスタット、高温炉が容易に準備できる構造をもつ。各種試料セル中の試料の軸立てはゴニオヘッド (GH) を用いて精度良く行い試料ホルダー、試料セルに用いられるアルミニウムからのバックグラウンドは特殊なブラインドで除くことができる。試料雰囲気の選択の自由度をもたせるために試料の回転とフィルムカセット (F)、スクリーン、ブラインドの駆動は独立に制御を行う。

2) 平板&円筒カメラ

Fig. 3に、このカメラの実験ポートを示す。構造変化の研究のために通常の試料雰囲気の外に特殊雰囲気（極低温、強磁場、超高圧等）の試料セルが設置できるゴニオステージ (SG2) を用いる。広領域の凝縮系の構造特性の研究のために波長領域として1.5~3 Åを使用する。このためにゴニオステージはガイド管からのビーム入射方向より25~50度の角度範囲を移動する。Fig. 3は電磁石 (M) と平板フィルムカセット (FP) が装備してある。実験目的に応じて平板又は円筒フィルムカセットが使用できる。ただし、試料への入射ビームはGM2で焦束モノクロ化されているので試料のφ回転（毎分 10^{-2} ~1度程度）を行う。

本カメラ系においては試料雰囲気の制御および各種のカメラ駆動部の制御をマイコンにより行う。

(3) 附属装置

本カメラでは試料雰囲気をつくるために種々のアタッチメントが考えられるが、Fig. 4には低

温用ワイセンベルグカメラの概要が示されている。液体ヘリウム用クライオスタットが装備され 4.2 ~ 300 K の温度領域での制御が容易に行える。高温実験ではこのクライオスタットを電気炉に交換すればよい。通常の試料雰囲気条件として以下のような領域をカバーするアタッチメントが必要である。特殊な雰囲気（極低温、超高圧、強磁場）については、これらのアタッチメントが容易にゴニオステージに設置できる構造であれば十分である。

試料雰囲気 低温 (4.2 ~ RT)
 高温 (RT ~ 700 K)
 磁場 (5 KG 以下)
 電場 (1 KV/cm 以下)

なお、本中性子回折カメラでは通常の X 線用フィルムを感光板として使用するので、回折ピークプロファイル又は強度を測定するためにマイクロフォトデンシトメータ（マイコン連結）を用いる。

(4) 設置予定実験孔

貴重な中性子ビームの有効な利用を考えると、ガイドホールの末端が適切と思う。改 3 号炉では $T_1 - 4$ ポートを想定して本カメラ系の設計を行っている。Fig. 5 はその概略図である。 $T_2 - 4$ での実験エリアを考慮して実験ポート A にワイセンベルグカメラ、B に平板 & 円筒カメラを設置する。図中の 2θ はゴニオステージの移動角度範囲を表わす。2 つの実験ポートが独立に測定できるように各カメラの電氣的制御は別々のターミナル (A・C と B・C) を使用する。

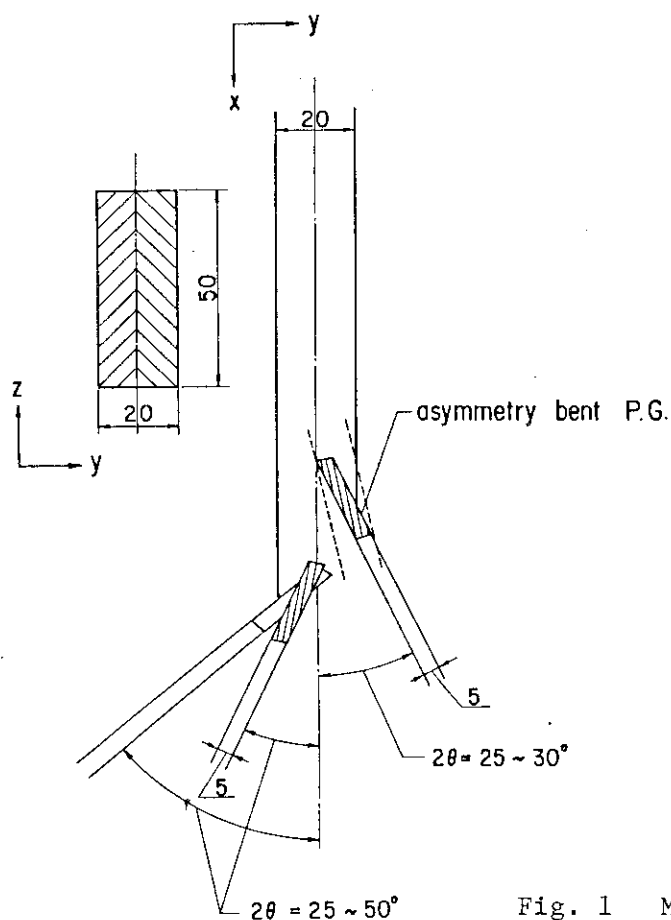


Fig. 1 Monochromator system.

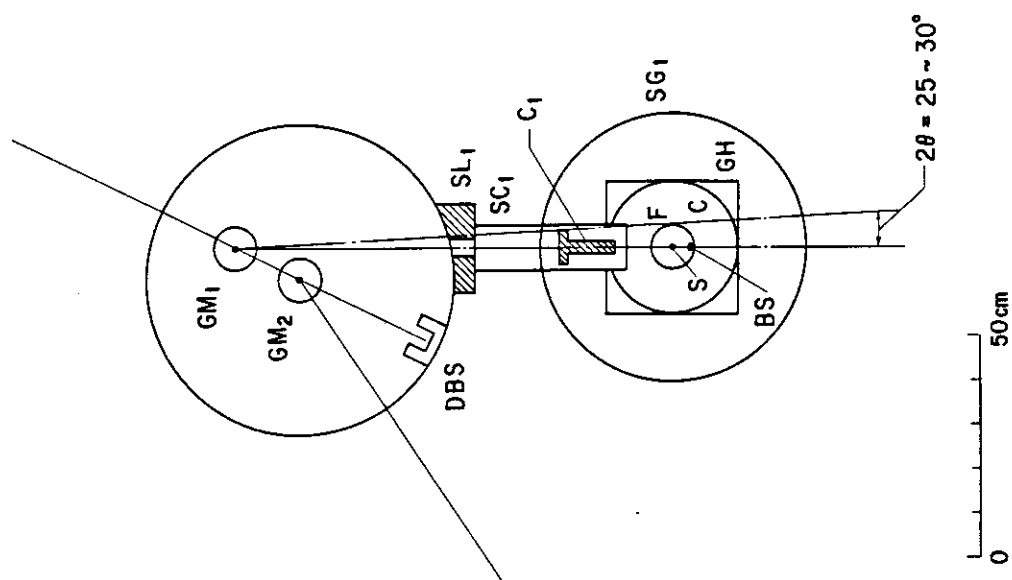


Fig. 2 Weissenberg's camera.

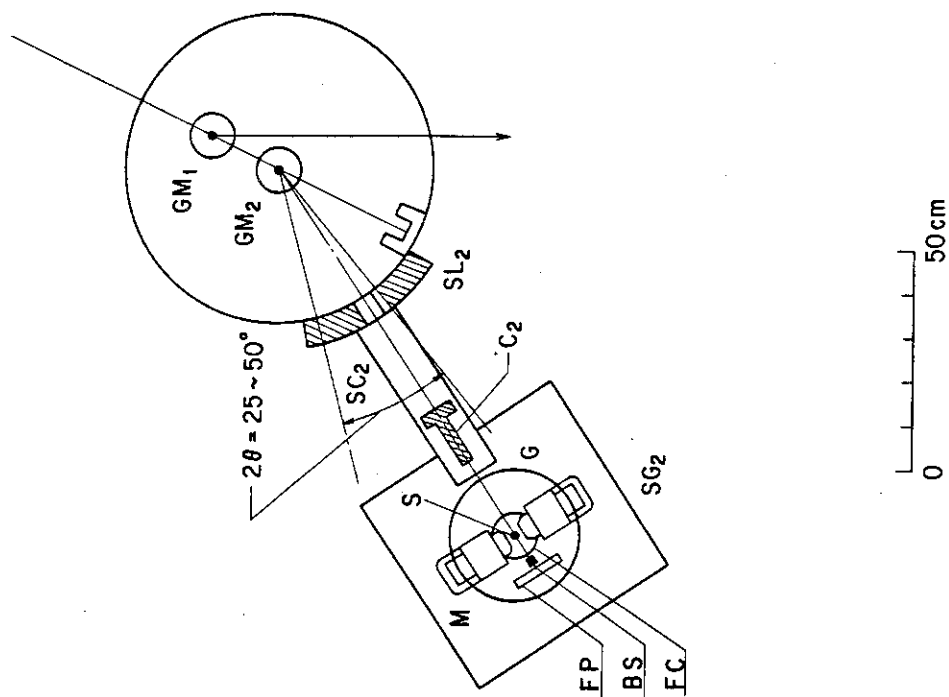


Fig. 3 Plate & cylindrical camera.

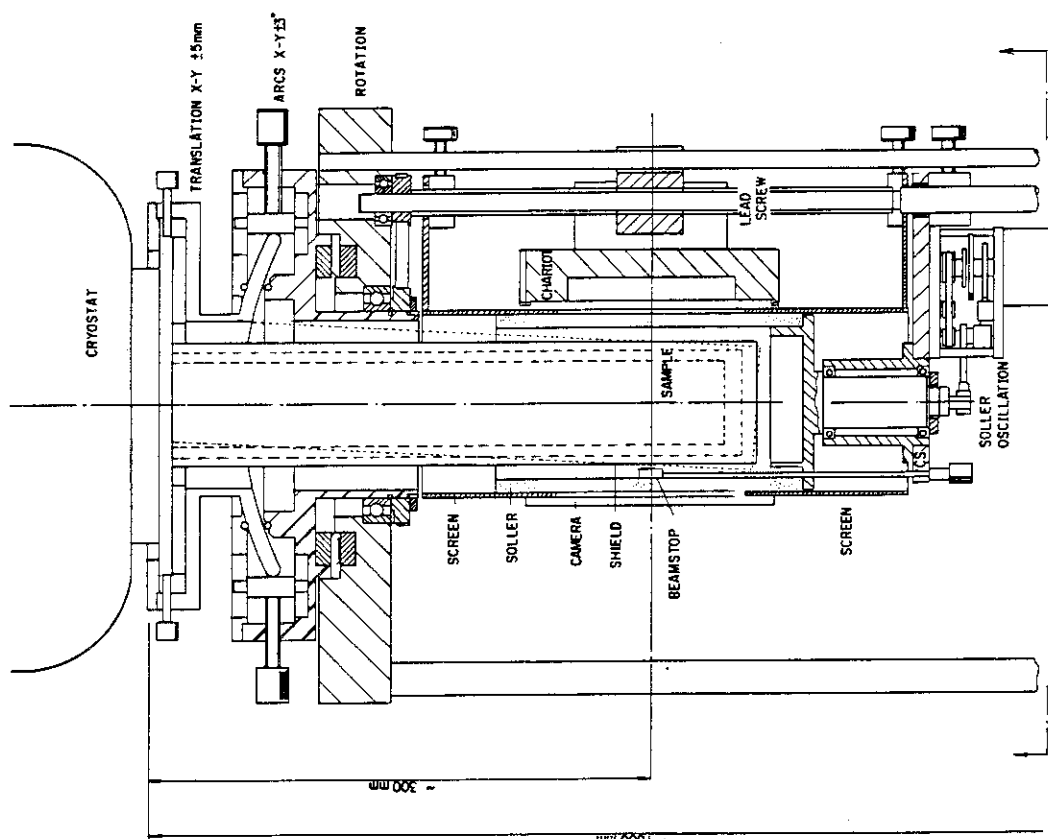


Fig. 4 Low temperature Weissenberg's camera.

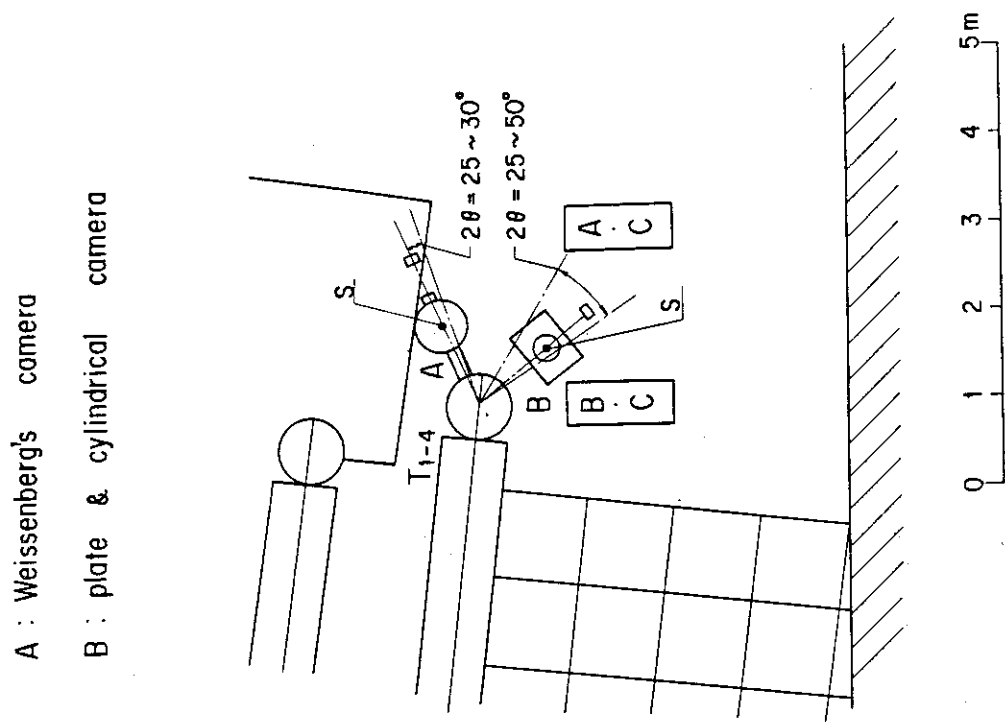


Fig. 5 Arrangement of neutron diffraction camera at T1-4.

3.3.23 低エネルギー 3 軸分光器 (LTAS)

原研物理部 船橋 達

この装置は冷中性子導管 $C_2(C_2-1)$ に設置する三軸中性子分光器で、入射中性子エネルギー 5 meV またはそれ以下の冷中性子を使用する高分解能分光器である。

第 2 期の計画に組み入れているもので、第 1 期計画の装置群が完成したのちに建設する予定である。

冷中性子を使用するので、 Q の小さい領域での高分解能非弾性散乱の測定に適した装置である。特に、磁気散乱の場合は、 Q の小さいところで形状因子が大きいことを利した実験を行うことができる。たとえば、000 のサテライトや反強磁性体の低 Q の超格子点の近傍のスピン波の測定、エネルギーギャップの測定などに期待がよせられる。

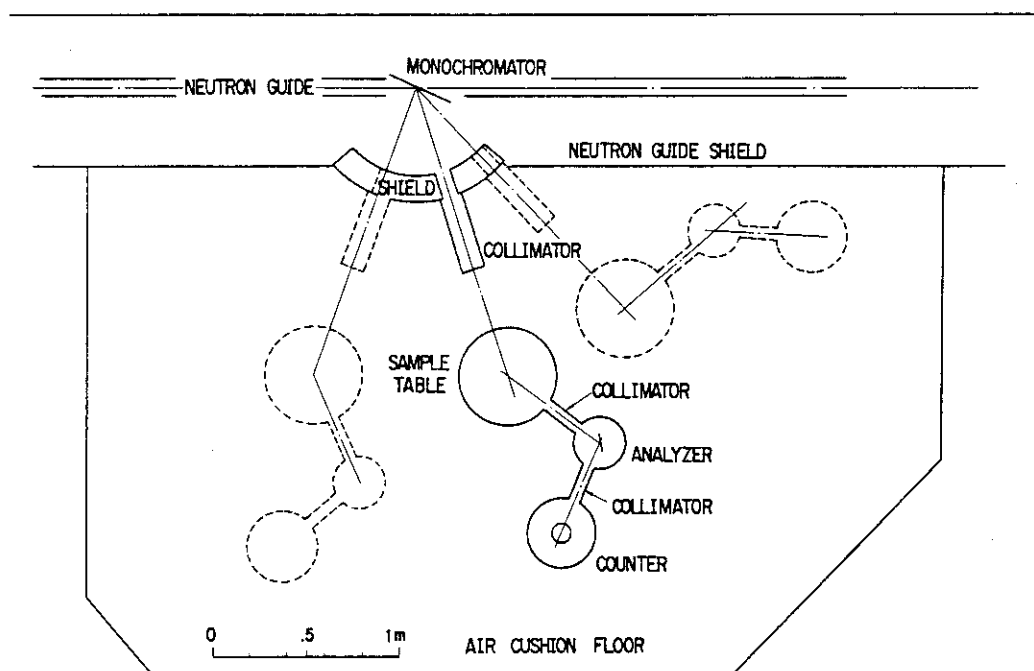


Fig. 1 Conceptual layout of the low-energy triple-axis spectrometer at C_2-1 .

3.3.24 中性子散乱技術開発装置 (DINT)

原研物理部 船橋 達

この装置は熱中性子導管 T_1 の終端($T_1 - 4$)の白色中性子ビームを利用し、中性子散乱の新技术を開発することを目指すものである。第2期の計画に組み入れているので、第1期計画の装置群が完成した後に建設する。白色中性子の種々の利用が予想されるが、現在予定しているものはビデオ式ラウエカメラである。

現在では、小型の2次元中性子検出器がないが、1次元検出器には十分よいものが実用化されているので、Fig. 1のように1次元検出器で回折中性子を走査し、記憶装置に記録すると同時に2次元の画像として映像化する。単結晶の方位決定などにも利用できる。写真法よりも分解能は低い小さい試料の中性子透過像も容易にえられる。

この他、モノクロメーター・偏極器・速度選別器・チョッパー等の開発や試作に利用される。

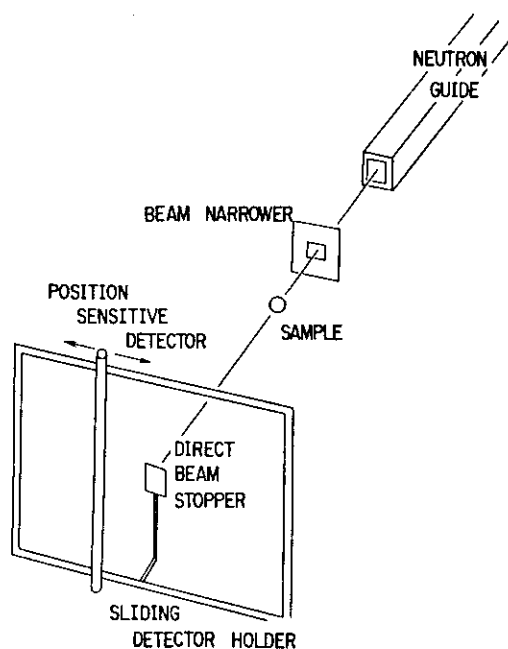


Fig. 1 Conceptual layout of development instrument for neutron technology (DINT).

3.3.25 中性子回折映像化装置 (DIVE)

原研物理部 船橋 達

この装置は熱中性子導管 T_2 の T_2-3 の位置に設置する一種の単結晶試料用中性子回折装置であるが、通常の検出器を使用するかわりに、回折中性子線を中性子用シンチレーターで光に変換してブラウン管上の映像として観察する装置である。

普通の2軸型回折装置のように、回折線強度を回折角の関数として定量的に測定するのではなく、実空間での回折線の2次元的強度分布を直視するので、単結晶試料の巨視的状況を観察するのに有力な実用的手段である。おもな用途をあげると、

- (1) 溶液からの単結晶試料の成長過程のその場観察など結晶成長の研究。
- (2) 育成された単結晶試料中の双晶構造など、不完全性の研究。
- (3) 多結晶試料中に生成される単結晶粒塊の検出。
- (4) 単結晶試料の方位決定。軸立て。

などである。

カメラの配置は、水平面内での試料まわりでの回転ばかりでなく、4サークル回折装置のカウンターのように傾けた配置をもとって、3次元的観察を行えるようにする。視野の広さを変えられるようにカメラと試料の間の距離を可変にする。

試料テーブルには、標準的ゴニメーターのほかに、4サークルゴニオメーターを備える。カウンタ計測系も補助手段として備えつける。これを利用して標準型の4サークル回折装置として使用することもできる。

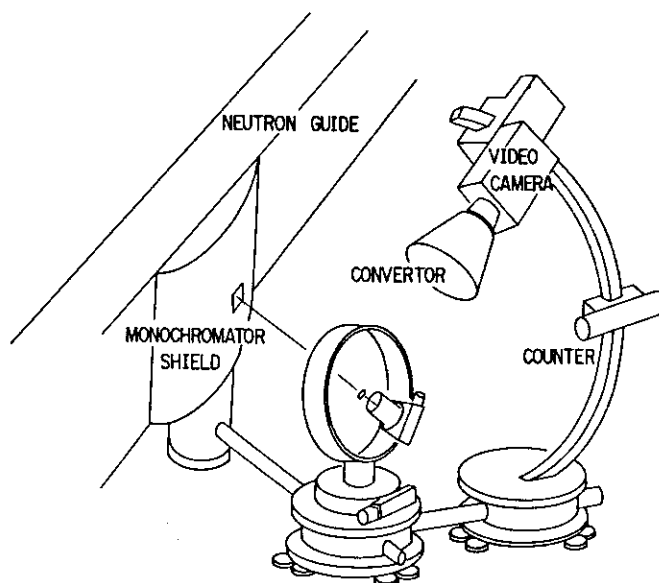


Fig. 1 Schematic view of diffraction image visualization equipment (DIVE)

3.4 中性子散乱の最近の研究動向（総論）

3.4.1 熱中性子および冷中性子による新しい材料研究の発展

原研物理部 飯泉 仁

(1) 新素材の機能を構造から理解することが重要である

先端技術開発の成否が、おおげさに言えば、国家の命運をわける時代である。マイクロエレクトロニクス、バイオテクノロジー、核融合など多方面にわたり、盛んな研究開発が行われている。それらの先端技術は材料で限界づけられている。その意味で材料研究は先端技術開発の鍵を握っている。

金属合金、エンジニアリングプラスチック、ファインセラミックス、複合材料などの分野で、いわゆる『新素材革命』が進んでいる。

新素材開発は1) 既存材料を改質して、機能の限界を越えること、2) 新しい機能を持つ材料を開発すること、の二方向で具体的なニーズとからみあいながら、地道に、漸進的に進められている。

これらの先端材料開発は多くの場合、経験的に、あるいは『じゅうたん爆撃的』になされてきた。しかし『材料の設計』と言う意欲的な試みも提唱される現在においては、新素材開発をもっと論理的な基盤に乗せる必要がある。そのためには材料の機能を基礎的なところ、すなわち材料の原子レベルの構造、から理解することが重要である。

機械的強度、耐熱性、電気伝導性、水素吸蔵性能など新素材のどの機能を取っても、それは材料の原子レベルでの構造、すなわち結晶構造あるいはミクロ構造、に由来している。

既存の材料での機能と構造の関係が原子レベルで解明されると、必要な機能を持つ材料の開発の手掛かりが得られよう。新しい機能を持つ素材がたまたま開発された時には、その機能が材料のいかなる構造に由来するかが、いち早く解明されねばならない。それは新しい機能の理解を深め、よりよい機能を持つ別の素材の発見に見通しを与えよう。

(2) 『構造』のいろいろなレベル

いま原子レベルでの構造を知ることが重要と言ったが、原子レベルでの構造には幾つかの段階があることに注意しよう。ある材料で問題にしている機能が、主としてどの段階での構造に由来しているかは、その機能によって違う。

先ず結晶構造。これは材料の構造を理想化し、周期構造としてとらえたとき、原子がどのように配列しているかということである。先ずこれを知ることが材料の機能発現を理解する基礎となる。

実在の材料ではこのような理想化された構造が乱されている。その乱れ方が材料の機能発現の支配要素である場合がある。この乱れた構造＝高次構造をここではミクロ構造(Microstructure)と呼ぶ。結晶の不完全性、析出、結晶粒界、集合組織、ポリマーの集合状態などいろいろのレベルのミクロ構造がある。

動的構造が問題になる場合がある。これは原子その他の構成要素の熱運動の仕方である。超伝導は原子振動と電子の相関が機能発現の基礎となっている。イオン伝導体では原子の動的構造が重要である。

材料の構造は、程度の差こそあれ、制御可能なものであり、そこに材料技術の『うで』の見せ所がある。特にマイクロ構造は材料製造過程での熱処理などにより、大きく影響を受けるので制御できる余地が大である。問題にしている機能が材料構造のどのレベルでの構造に由来するかを知り、その制御を試みるのが材料開発の重要なステップとなる。

(3) 構造を調べる手段

上に述べたような材料の構造を調べる観測手段はいろいろある。それらの手段には、それぞれ得意な対象、不得意な対象があり、互いに相補的である。

結晶構造を調べるのに最も一般的に用いられるのはX線回折である。電子線回折も見通しの良い手掛かりを与える。マイクロ構造については電子顕微鏡が最も直接的な情報を与える。定量的な情報を与える点で、X線小角散乱が不可欠な場合がある。ESR、NMRなどの磁気共鳴やメスbauer効果などは局所的な構造情報を与え、マイクロ構造の研究に有用である。動的な構造に関しては赤外吸収や光散乱が情報を与える。

中性子散乱はこれらの分析手段に比べ、ユニークな特徴を持ち、他の手段では得られない情報を与える。

(4) 三種類の中性子散乱

中性子散乱は原子炉から引き出された中性子ビームを試料に当てて、その散乱の様子を調べる実験手段であるが、散乱の仕方で大まかに言って3種に分類される。

1) 中性子回折

2) 中性子小角散乱

3) 中性子非弾性散乱

である。1)は広い角度に亘っての中性子散乱の強弱から、結晶構造やそれからの乱れを決める。X線回折と等価の実験手段である。2)は入射した中性子ビームが前方方向で僅かに示す広がり測定し、密度変化を伴うマイクロ構造を決定する方法である。3)は散乱後の中性子のエネルギーを解析することから、動的構造を決定するものである。1)、2)は方法としてはX線を使う場合と同様であるが、後で述べる中性子の特長を生かして、独自の分野に適用される。3)は中性子ならではのユニークな方法である。

(5) 熱中性子による中性子回折

中性子回折とは何か、その方法を少し詳しく説明しよう(Fig. 1参照)。原子炉の炉心近傍では連鎖反応により中性子が発生している(Fig. 1の1)。研究用原子炉では実験孔と称する穴が開いていて、中性子を炉の外に引き出すことが出来る(2)。細い穴を通過してビーム状になっている中性子は試料に当り散乱される(4)。中性子は波の性質を持っているため(3)。試料中の原子核で散乱された中性子は互いに干渉を起こす。その様子は試料のなかの原子の並びかたを反映し(5)、特定の方向に強く、散乱される(6)。その中性子回折パターンはカウンターにより検出され(7, 8)、データ処理装置で記録される(9)。集積された中性子回折パターン(10)から試料の中の原子配列を決めることが出来る。

波としての中性子の干渉現象から原子配列を決めるのであるから、中性子の波長が原子の間の距離と同じくらいである場合が、実験上最も都合が良い。中性子はそのエネルギーにより異なる波長を持つが、熱中性子と呼ばれる0.025 eV程度のエネルギーの中性子が波長として好適である。

これはうまくことに研究用原子炉の反射体から実験孔を通して引き出される中性子が平均的に持つエネルギーである。

(6) X線回折と比べて中性子回折の有利な点

原子の配列の仕方、すなわち結晶構造、を決定するということは、どの種類の原子がどの位置にあるかを定量的に決めることである。回折パターンから精度良く結晶構造解析を行うためには (i) どの種類の原子も中性子を良く散乱する、(ii) 異種の原子の間には散乱の強さにコントラストがある、の二条件が満たされている必要がある。この点で中性子回折は具合が良い。

X線回折の場合、散乱の強さは電子の数で決まるので軽い原子では散乱が弱い。このため、特に材料や生体の研究で重要な水素の結晶構造中の位置決定にX線は無力である。中性子回折ではそういうことはない。水素を同位元素の重水素に置き換えることにより、水素位置の決定を十分な精度で行うことが出来る。またX線回折の場合、原子番号の近接した異種原子間に散乱のコントラストが無い。中性子ではそういうことはない。これは合金の結晶構造を決める場合に重要である。

このほか中性子の特長としては、原子の磁気モーメントで散乱されるため、磁性体の研究に不可欠の実験手段であること、動的構造の研究において、他の分光法では出来ないユニークな観測が出来ること、透過力が優れているため、厚い試料を非破壊的に調べることが出来ること、などがある。

(7) 中性子回折の応用例

中性子回折の例は枚挙にいとまがない位多い。ここでは水素吸蔵材の構造解析に用いられた例を挙げる。 FeTi や LaNi_5 など、室温で水素圧を調節するだけで、水素を多量に吸蔵したり、はき出したりする材料は水素の貯蔵系として水素エネルギーの応用に重要である。水素は金属原子の作る結晶構造の隙間に入る。水素吸蔵特性はどの隙間に水素が入るか、その結果結晶格子がどう歪むかなどに密接に関係している。沢山の水素が圧力を余り大きく変えなくとも、素早く出入り入ったりするような、都合の良い水素吸蔵材の開発には、中性子回折による結晶構造の研究が不可欠とあって、盛んに測定が行われている。この研究には水素の位置を決めることが必須であるが、それが出来るのは中性子回折だけである。

中性子回折実験を行うには一般に単結晶試料のほうが都合が良い。しかし水素吸蔵材はそもそも単結晶の試料を得ることが難しいうえ、水素の吸蔵・はき出しで単結晶は壊れてしまうので、粉末試料で測定を行わざるを得ない。従来は粉末試料での構造解析は簡単な構造のものに限られていた。ところが、最近 Rietveld 法と呼ばれる粉末回折の解析法が開発され、粉末でもかなり良い解析が行えるようになり、複雑な結晶構造の解析が飛躍的に進歩した。この水素吸蔵材もその例である。

LaNi_5 に重水素を吸蔵させた LaNi_5D_x は x の値次第で構造を変える。 $x=6$ の構造は中性子回折の結果、Fig. 2 の D1 の位置を全て、D2 の位置をランダムに約半分水素が占めた構造であることが分かった。 LaNi_5 と LaNi_5D_6 の中性子回折のパターンを Fig. 3 に示す。このデータが上述の Rietveld 法によるフィッティングに用いられた。この結果がこの種の水素吸蔵材の開発に良い見通しを与え、同種のさらに良い吸蔵特性を持つ材料の開発が進んでいる。

(8) 中性子小角散乱とは

細く絞った中性子のビームを試料に当て、入射方向からほんの僅かの角度（0 - 5度）だけ散乱された中性子の分布を測定するのが中性子小角散乱（Small Angle Neutron Scattering, SANS と略す）である（Fig. 4）。

先に述べた通常の中性子回折ではエネルギーが0.02 - 0.1 eVの熱中性子を用い、10 - 150度と比較的大きな角度への散乱分布を測定し、材料中の原子配列を決める。これに対し、中性子小角散乱ではエネルギーが0.005 eVかそれ以下の、いわゆる冷中性子を用い、小さい角度への散乱を測定する。

もし試料が完全性の高い結晶構造を持つと、中性子小角散乱は観測されない。結晶構造に乱れがあると、その乱れの及ぶ範囲の大きさに応じた中性子小角散乱分布が観測される。乱れの大きさが大きいと分布は鋭くなり、乱れの大きさが小さいと分布の幅は大きくなる。

この結晶構造中の乱れとは、例えば放射線損傷により生じたボイドや、析出型合金のなかに生じた析出粒子のようなものである。Table 1に中性子小角散乱により測定されるものの例を示した。

中性子小角散乱法はこれらのマイクロ構造を顕微鏡で見えるように観測するのではない。中性子に対する有効なレンズが無いため、中性子顕微鏡は実現されていない。中性子小角散乱では散乱中性子の分布を測定し、適当なモデルの助けを借りて、実際の構造の形と大きさを推定する方法を用いる。上に述べたように、実物の寸法と散乱分布の広がりとの間には、寸法が大きい程、分布の広がりが小さい、という関係がある。

(9) 冷中性子による中性子小角散乱

X線回折に比べて、中性子散乱の利点の一つは、測定対象に応じて、観測に用いる中性子のエネルギーをかなり広範囲に変えることができる点である。中性子小角散乱の場合、同じ寸法のものを見るとすれば、中性子のエネルギーが低い程、角度の広がりが大きく、測定し易い。例えば200 オングストロームの析出粒子を測定する場合、1.5 オングストロームの熱中性子を用いると中性子小角散乱の広がりはわずかに0.5度程度であるから、入射ビームと分離して、精度良く測定することはかなり難しいが、6 オングストロームの冷中性子を用いると2度くらいになって、測定が可能になる。中性子小角散乱の測定に冷中性子を用いるのが有利なのはこのためである。

ただ通常の研究炉の反射体領域から実験孔を用いて引き出される中性子のエネルギー分布には、冷中性子は余り多く含まれていない。そこで強い冷中性子ビームを得るためには、反射体領域の中性子スペクトル（エネルギー分布）を、冷中性子を多く含むように変えるための冷中性子源が必要となる。

熱中性子を用いた中性子回折で結晶構造を研究する場合と、冷中性子を用いた中性子小角散乱でマイクロ構造を調べる場合との比較をTable 2に示す。

(10) 他のマイクロ構造観測手段との比較

材料のマイクロ構造を測定する有力な手段としては、電子顕微鏡がある。また、小角散乱としては、X線の小角散乱がかなり以前から実用化されている。それにもかかわらず、なぜ中性子小角散乱を行う必要があるのか、それは中性子小角散乱が、これらの測定手段と比べて、以下のような特長があるからである。

1) 電子顕微鏡より微細なものを、定量的に測定できる。

電子顕微鏡の分解能は最近向上し、いわゆる格子像を観察できるとは言うものの、それは特別の場合で、合金中の析出物や放射線損傷によるボイドを観測する場合、一般に3オングストロームが、検出限界であるという。さらに中性子小角散乱による定量的な測定結果と比較してみると、電子顕微鏡では400オングストロームの粒子すらかなり数え落としている。電子顕微鏡は一つ一つの粒子の形状を見るには都合が良いが、試料全体についての平均的な情報を求めるには中性子小角散乱が不可欠である。

2) X線の小角散乱より、析出粒子が観測し易い。

合金の場合、原子番号の近い金属同志を組み合わせることが多い(例えば鉄とニッケル)。このような合金中の析出粒子をX線で調べることは出来ない。X線小角散乱のコントラストは原子番号の差でつくからである。中性子にはこの種の困難がないので、合金の析出の研究において、X線よりも優れている。

3) 非破壊的測定法である。

ある材料を調べるためには、電子顕微鏡の場合、厚さ1ミクロン以下の薄片にする必要がある。X線小角散乱の場合は0.1mm以下にする必要がある。これに対し、中性子は透過度が良いので、1cm程度の厚さの試料を用いることが出来る。このため、たとえば実用試料に実用条件下での処理を繰り返しながら、その変化を調べるというような測定が可能となる。また放射化した試料の場合非破壊的な測定は好都合である。

4) その場観察が出来る。

中性子の透過度が良いことを利用すると、材料の温度、応力、圧力、雰囲気などの条件を変えながら、試料の状態変化を、その場で観察することが出来る。X線や電子線でも出来ないことではないが、はるかに困難で、特別な工夫を必要とする。

(1) 中性子小角散乱の応用例

中性子小角散乱を用いてジェットエンジンのタービンの羽根の寿命の診断を非破壊的に行った例を示す。タービン羽根は高温で長時間、十分な強度を維持する必要がある。その材料としては、INCONEL X-750 と呼ばれるニッケル合金が用いられる。これは析出物で強化した合金であるが、使用時間にともない、高温と応力のために、徐々に析出粒子の寸法が大きくなり、機械強度が減少する。実際のタービン羽根を使用しながら、非破壊的に中性子小角散乱で調べたところ Fig. 5, 6 に示すように、5万時間の使用で急に析出粒子の大きさが増加し、これに反比例して析出粒子の数が急激に減少することがわかった。これはタービン羽根の機械強度が無くなり、破断に至る時間に対応している。そこでタービン羽根を時々外してきて、中性子小角散乱で調べると、それがあとどれだけ寿命があるかを、非破壊的に、的確に予言できるわけである。

もう一つの応用例として、速中性子の重照射を受けた金属材料中に出来るボイドの形とサイズ分布を決めた測定を示す。アルミニウムの単結晶を速中性子で約 1×10^{21} n まで照射し、中性子小角散乱を測定したところ Fig. 7 の散乱パターンが得られた。このパターンを解析して、ボイドは Fig. 8 のような先端をカットされた8面体の形をしていることが分かった。またその大きさは Fig. 9 に示すような分布をしている。同じ図に電子顕微鏡による結果が示されているが、400オングストローム以下の大きさのボイドを相当数かぞえ落としており、この種の測定における中性

子小角散乱の有用性を示している。

(12) 中性子非弾性散乱で動的構造を調べる。

熱中性子のエネルギーはおよそ 0.02 eV であるが、これは材料中の原子の熱運動のエネルギーと同じ大きさである。このため中性子は散乱実験の試料とエネルギーのやりとりをして散乱される（非弾性散乱）。散乱後の中性子のエネルギーを測定すると、熱運動のエネルギーを知ることが出来る。材料の中で原子はばらばらに運動しているのではなく、互いに結合して集団運動をしている。干渉性の非弾性散乱を用いると、この集団運動の波長とエネルギーの関係、すなわち先に動的構造と述べたものを測定することが出来る。

非弾性散乱による動的構造の測定は、中性子散乱でのみ可能なユニークな実験手段で、これが実現されることにより、物性物理の基礎的研究は大きく進んだ。最近では更に広く材料科学の諸分野で、非弾性散乱による動的構造の測定が種々の問題の解明に真価を発揮している。

一例を挙げよう。形状記憶合金と呼ばれる機能材料が注目されている。材料に折り曲げなどの変形を加えても、元の形を覚えている不思議な材料である。これはマルテンサイトと呼ばれる相転移を起こした材料で、それを変形させると、通常の塑性変形（これは元に戻らない）ではなく双晶間の移動が起こって変形を吸収する。この変形はマルテンサイト相転移の温度よりも高い温度に材料を加熱してやると元に戻るのである。マルテンサイト相転移や双晶間の移動は、いずれも結晶中の原子が揃って僅かに横すべりすることから起こる。この横すべりが何故容易に起きるのかが、最近中性子非弾性散乱を用いて解明された。それによると、横すべりに相当する原子の集団運動のエネルギーだけが、他の熱運動のエネルギーに比べ、異常に低いことが見出された。これはこの集団運動に対する原子間力が異常に弱いことの現われで、同じ事情が横すべり移動を容易にしていることが分かった。すなわち形状記憶特性が原子間に働く力の特性に由来していることが分かったのである。

(13) 冷中性子の非弾性散乱

上に述べたように中性子非弾性散乱を用いると材料の中の原子の熱運動の様子を知ることが出来る。その際、調べようとする熱運動のエネルギーと同程度のエネルギーを持つ中性子を用いると、良い測定が出来る。従って固体中性子の普通の熱運動（1～100 meV, 1 meV とは 0.001 eV のこと）を調べるには、普通の熱中性子が適している。しかしもっとエネルギーの低い運動を調べることが重要な場合がある。固体中に侵入した水素の拡散運動、相転移近傍での原子の集団的なゆらぎの運動、生体高分子の運動などがその例である。これらの場合、1 meV はおろか 1 μ eV（1 μ eV とは 0.000001 eV のこと）程度のエネルギーを測定する必要がある。そうすると普通の熱中性子を用いての測定は、エネルギー分解能の点で不可能で、もっとエネルギーの低い冷中性子を用いなければならない（Table 1）。冷中性子非弾性散乱は最近大きく進歩した分野で、そのための特殊な装置が開発されている。スピン・エコー装置や背面散乱スペクトロメーターなどがそれである。

Table 1 Examples of application of the small-angle neutron scattering.

中性子小角散乱で測定できるものの例

放射線損傷により生じたボイドの形状, 寸法, 数。
 合金材料中の析出現象。
 析出物の形状, 寸法, 数。
 スピノーダル理論の検証。
 析出過程の移り変り (核形成, 融合過程, 凝縮過程)。
 超伝導体中の磁束線格子。
 微粉末の形状と寸法。
 高分子の形状, 寸法。高分子溶液中の分子の集合状態。
 生体組織 (生体膜など)。

Table 2 Comparison of thermal and cold neutrons in the measurements of micro- or crystal-structure.

熱中性子と冷中性子との比較
 (中性子散乱による構造決定の場合)

	熱中性子	冷中性子
中性子エネルギー	0.025 eV	0.005 eV
測定法	中性子回折	中性子小角散乱
構造決定できる対象の大きさ	0.5 - 10 Å	10 - 1000 Å
対象の種類	原子, 分子の配列 結晶構造, 液体構造 非晶質構造	構造の不均一性, 結晶中の 欠陥析出物, ボイド (第3表参照)

Table 3 Comparison of thermal and cold neutrons in the measurements of thermal motions within materials.

熱中性子と冷中性子との比較
 (中性子散乱による熱運動測定の場合)

	熱中性子	冷中性子
中性子エネルギー	0.025 eV	0.005 eV
測定法	中性子非弾性散乱	
測定できるエネルギー	0.001 - 0.1 eV	0.001 - 0.000001 eV
測定対象	固体中の原子の熱振動 (格子振動) 分子の振動, 回転	固体中に侵入した水素の拡散運動 相転移近傍での集団的ゆらぎ

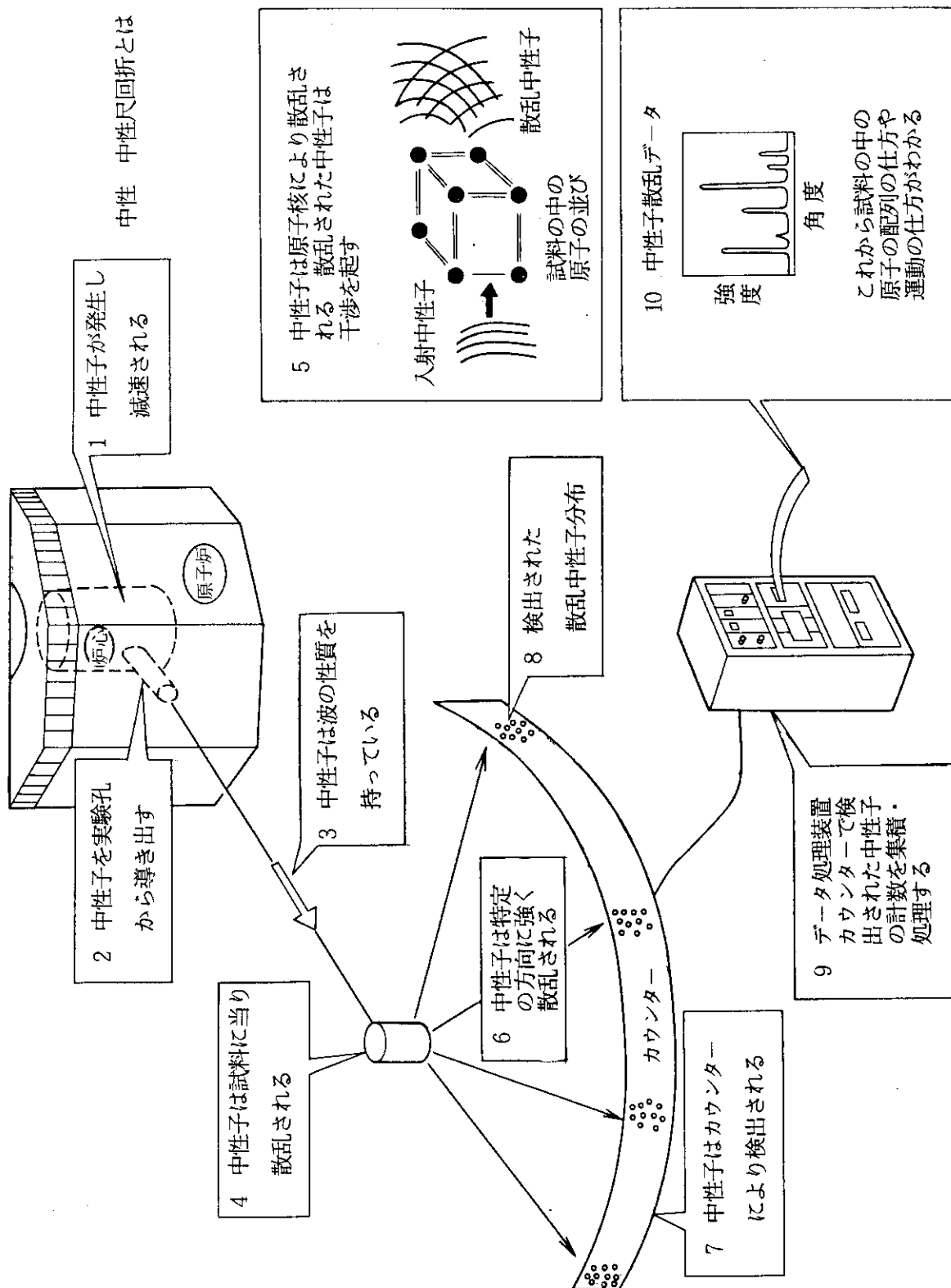


Fig. 1 Schematic illustration of the neutron diffraction method.

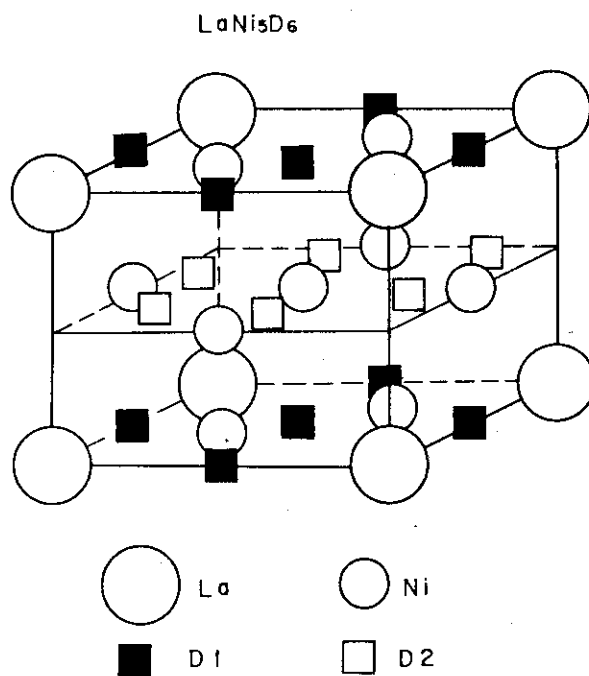


Fig. 2 Crystal structure of a hydrogen-storage material, LaNi_5D_6 .

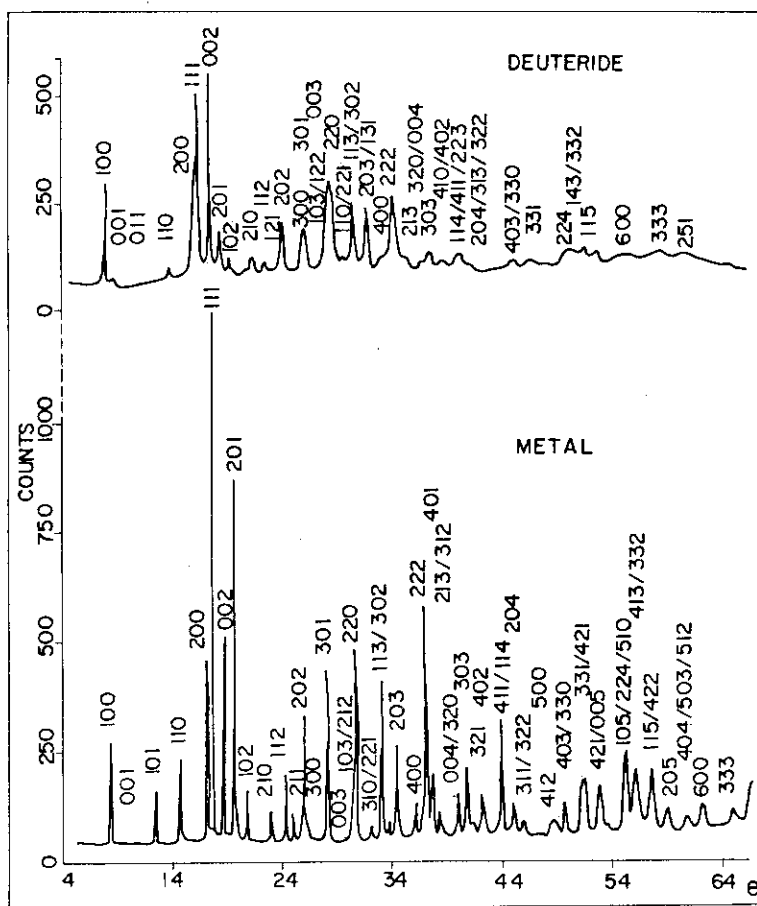


Fig. 3 Neutron diffraction patterns of the hydrogen-storage material LaNi_5 and its deuteride.

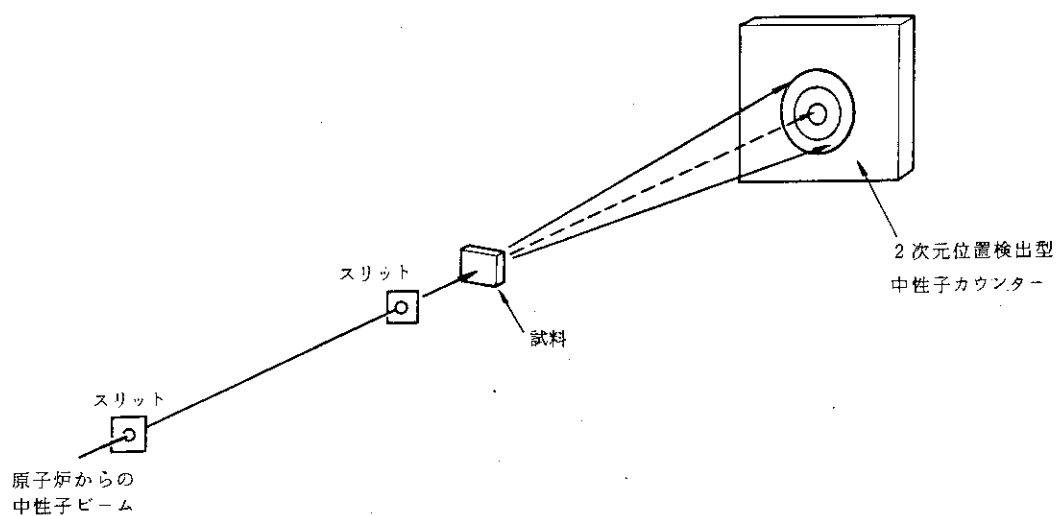


Fig. 4 Schematic view of the small-angle neutron scattering facility.

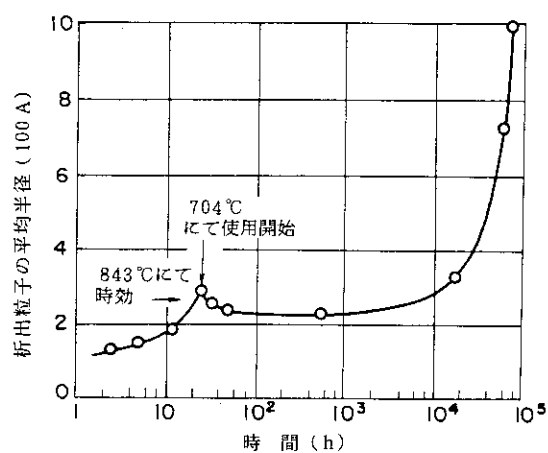


Fig. 5 Time-change of average size of precipitate particles in a turbine blade.

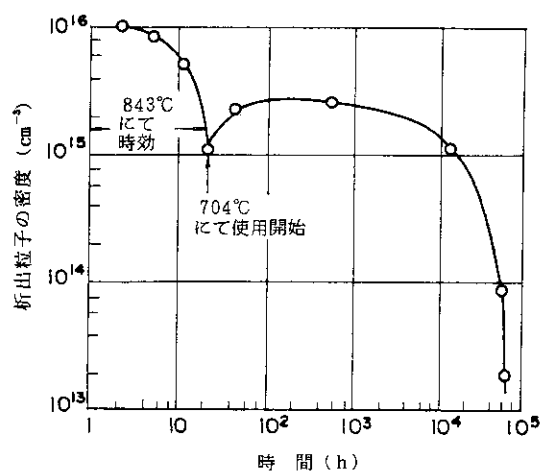


Fig. 6 Time-change of the number density of precipitate particles in a turbine blade.

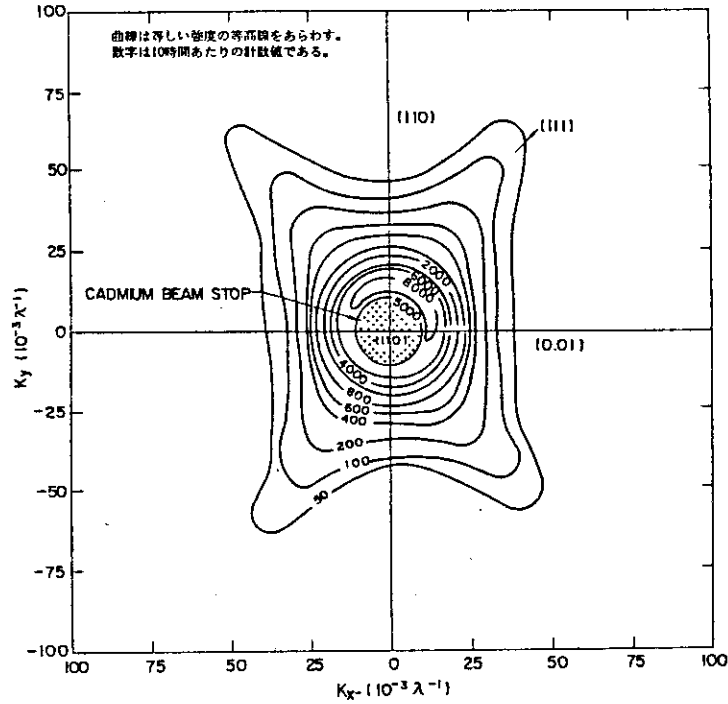


Fig. 7 Two-dimensional pattern of small-angle neutron scattering from neutron-irradiated aluminum single crystal.

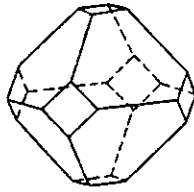


Fig. 8 Shape of voids in the neutron-irradiated aluminum single crystal as determined from the SANS distribution.

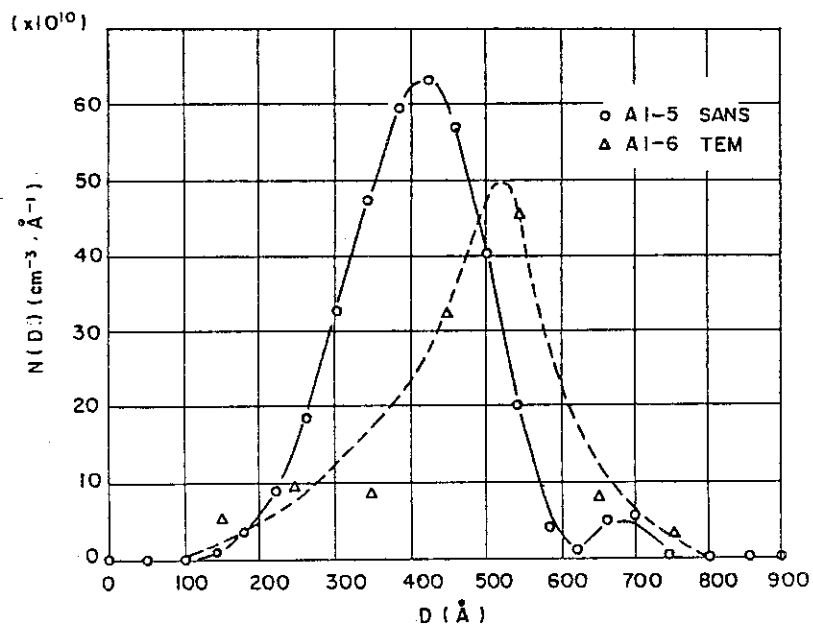


Fig. 9 Size distribution of the voids in the neutron-irradiated aluminum single crystal as determined from the SANS (○) compared with those determined from electron microscope observation (△).

3.4.2 中性子散乱による物性基礎研究と新素材開発

東北大理学部 遠藤康夫

(1) 序 何故熱中性子が物性研究に必要なか。

Chadwick 卿が中性子を発見して50年を祝う国際会議が開かれたのがつい3年程前であるが、それと前後して我国でも久し振りに中性子国際集会が持たれたのはまだ記憶に新しい。このところ毎年世界の何処かで中性子散乱研究の国際会議が開かれるし、その他固体物理シンポジウムでも中性子散乱の報告は重要なセッションに位置している。従って中性子散乱研究が物性研究の中心となっていることは万人が認めるところであろう。

さて「何故中性子が物性研究にとって大切なのか」という設問には、多くの教科書、解説書、又毎年出版される報告書などにあきる程書かれているので、あらためて繰り返す必要はない。ただ云いつくされた事ではあるが一言で云うと中性子はその粒子の持つ特質、エネルギー、運動量の関係、電氣的に中性であること、中性子の磁気モーメント等どれ一つをとっても物性研究にはほぼ理想的な探査子(probe)と云える。とは云え唯一、しかし決定的な弱点はこの理想的な探査子をそう簡単に手にすることが出来ないことである。又現在の技術ではその強度に限りがあるし、取扱いも厄介である。このような理由から中性子散乱実験は一般受けしないし、特に我が国では極く一部の研究者にのみ開放されて来たという余り有難くない歴史を有している。このようなハンディキャップを背負ってはいるものの、電子及びその磁気モーメント、原子や分子が演ずるドラマを中性子を通して観るのが物性研究では最も素晴らしいと信じている。

(2) 物性研究に中性子をどう使うか

この重宝な中性子も使い方が下手ではどうにもならない。ただ強い中性子ビームがあれば可いというのでもないし、どのような種類の実験も一通りこなす装置を備えつければ済むものでもない。以下に述べる文は筆者の私見であり、これに対して異論があることを承知の上で敢えて披瀝すると、中性子というprobeは例えて云うと切れ味の鋭いメスであって、決して強力な大鉋ではないと思う。勿論、広い(Q , ω)空間(Q :モーメント又は位相, ω :エネルギー又は振動数)を眺望する大まかな実験もあろうが、このような実験はむしろ稀である。理由は前に述べたように、今の中性子の強度ではこのような実験に費やす時間と労力は大変な量である為である。又一部で考えている程中性子散乱というのは万能でない。従って実験に際して、中性子線によってのみ可能な観測や、中性子線を使えば廻りくどい説明が不要になる実験が中心となり、又「ツボ」に当てられた鋭い針のように、全局的を得た実験が出来た時の喜びは、将にプロフェッショナルのそれである。このような使い方をする為には、合目的というか中性子のもつ特性と物性の適合をよく考えた上で最高の条件づくりをした上で実験するという姿勢が問われることになる。以上の部分はやや抽象的であり筆者の謂わば哲学である。

さてこの哲学を基に中性子の使い方を考えてみると、先ず中性子源として最近新たにパルス中性子源が本格的に使えるようになり、特にパルスの威力と特徴を生かし従来の原子炉のみをその源とした中性子散乱研究に革命的な発展をもたらしつつある。ここで敢えて「つつある。」という言葉を使ったのは、パルス中性子を使う技術が定常法のその15ないし20年前の姿であり今後の発展に負う所が大きいからである。いづれにしてもパルス中性子が使えるようになったお蔭でもはやeV(エレクトロンボルト $\approx 10^4$ Kに対応するエネルギー)級のエネルギーの遷移も測れる

し、反対に改造3号炉にも取り付けられる冷中性子源を使って $\sim 10^{-7}$ eV の低いエネルギーも測れる。つまり物性に関係する重要な相互作用がこの中に全て含まれてしまうことになる。又中性子の磁気モーメントを揃えることによって得られる偏極中性子を使うと、中性子偏極方向が散乱ベクトルと相対的に変えることによって散乱強度が変わる部分が測れる。このような方法によって磁気散乱を他の散乱から振り分けられ、最も情報量の多い散乱研究が可能となり現に実現している。

次に中性子を使う道具立てについて前の章の多くの装置の説明にもあるように、各々中性子の特性のある部分を生かした装置、もしくは物性のある部分を取り立て、観る為のものなど特徴をもった装置が一つの場所に集約される姿が理想とされるようになった。このような様子が極めて常識化したのはフランス・グルノーブルに建てられたLLSに負う所が大きい。又高エネルギー物理学研究所（以下KEKと略す）のパルス中性子散乱施設には目下一台も同じ目的の装置はなく各々特徴のある装置はさながらショーウィンドーの陳列品のようでもある。かなり汎用的な装置はともかくとして、非常に特徴のある実験が出来、その上世界のトップクラスの研究を目指した装置が新しい原子炉に並んだらと思うと胸が躍る。研究は生き物であるから装置も時代と共に変わることを忘れてはなるまい。

最後にどう使うかのためのソフトウェアについて触れておきたい。中性子散乱研究のように大型施設を利用する研究体制には極めて思い切った利用システムが必要で大型の投資と共にそれに見合った効率的な運用が供なわなければならないと考える。筆者は永年現在の大学の原研施設共同利用に対して異論を唱えているが、改造後の利用システムについては漸新な形をとる必要性に迫られていることは利用者の多数意見と考えても分かると思われる。この点KEKの共同利用システム、ILLやアルゴンヌのIPNSのユーザーオリент利用それに伝統的なブルックヘブンの研究等お手本が多いし、各々の長所短所を見極めた上、日本独特の体制が実現できることを望んでいる。

(3) どのような研究が望まれるか

物性基礎研究の中で中性子散乱が最も威力を発揮するのはなんと云っても磁性研究であろう。特に我が国の磁性研究の歴史は古く又多くの秀れた研究者が輩出している分野でもある。しかし乍ら中性子散乱に依る磁性研究となると理論の仕事は別にしてずっと世界の後塵を拝して来た。しかし最近では金属磁性、特に大きな関心を集めている高温（キュリー温度でスケールする）に於ける中性子散乱研究が理論、実験共に日本人の手で解決の緒口が与えられたのは喜ばしい限りである。今後は最も典型物質である、鉄、ニッケルのパラマグネティック散乱の問題がどのようにして攻略されるかである。又最近稀土類、アクチナイド金属化合物が示す磁性のなかで近藤効果を示す異常に多くの関心が寄せられている。固体電子の多体効果としては非常に顕著な形で、一個の磁性不純物が示す赤外発散（近藤効果）と同一の異常性をこれらの化合物で見ることが出来るし、その上低温での電子比熱があたかも普通の金属のその1000倍近くにもなる現象、磁性を背負っていると思われる電子が超伝導にかかわっているかも知れない新しい状態の有無といった数々の新しい研究が展開しており、我々中性子散乱研究者もじっとしておれない。一方統計力学の問題として次元性と相転移の問題、量子効果や非線型、非平衡効果などが研究の流れを形成している。このような問題のモデルとしては局在スピンをもつ磁性絶縁体が適しているし現に最

も完全な形でとらえられる場合が多い。中性子散乱はしかももっとも直接的な解答を与える実験手段であり、我が国で多くの研究がなされている。これらの磁性研究の本流に竿をさす為には、前述のように偏極中性子を使った実験をして質の高い結果を出すことであろう。幸いにして我が国の磁性研究の水準は高く、又試料や議論や中性子散乱以外の実験データ等の情報交換が以前にも増して円滑になったことは心強い限りである。又最近では国際協力研究さえ極めて容易に行える。我々としてはこのような恵まれた環境を生かして、しかも日本の風土に合った研究を進めて行くべきだと考えている。筆者の意とする日本の風土に合う研究というのは、謂ゆる根本原理から奇技な idea に基づく研究ではなくて、一見平凡ではあっても実は非凡でかつ神経の行き届いた研究であり、周辺機器の充実と共に実験技術の器量と原理の開発改良を実用化する永続性を持ち合わせればまだまだ重要な研究テーマが残されている。筆者はこの場が具体的な問題を例示するのに相応しくないのでこの辺で止めておく。

磁性研究に比べると他の分野の最近の中性子利用は以前と様変わりをして多岐多様に亘っていると思われる。むしろオーソドックスな格子振動の研究は影が薄いし、最近の中性子構造解析もシンクロトロン放射による強力X線を使ったそれと競争をよぎなくされる立場にあり、互いに相補的關係を認め乍ら研究を推進することになるだろう。これに代って水素や軽原子を多く含んだ高分子、生物の物性とそれらの機能や動作とを関連づける物理及び化学反応との関係といった方向にむしろ中性子の威力が強まることがうかがえる。KEKでは生物や高分子を専門に研究する中性子小角散乱カメラが建設される位である。又ヨーロッパではユーザーの半数は化学者であると聞いており現にX線回折と中性子線回折とを組合わせその構造因子の違いから電子雲と原子核との位置の微妙なずれを調べて化学結合を議論したり、偏極中性子回折に依ってラジカルのスピン密度分布などを描いてみせる等増々伝統に磨きをかけているのはさすがである。我が国の化学や高分子が世界的にその最高水準にあると聞いているのに中性子散乱分野と余りに疎遠なのは何故だろうか — 七不思議の一つである。

(4) 新しい研究の流れ—世界の中の日本—

中性子散乱研究が物性研究の主流の仲間入りをすると共に、物性研究も曲り角に来てるとよく云われる。研究施設は年を追って大型化し、又研究の対象も境界領域とか極限領域とかが陽の目を見るようであるが本当に研究方向は曲り切っているであろうか？ 又曲ったとすれば上手に曲ったのであろうか！？

中性子散乱研究、特に日本の研究の現状を見る限り今から曲り角に入るように思う。しかもこの曲り角は非常に大切であり、上手に曲れば本通りに入れる可能性が大きいと少々楽観的ではあるがそう思う。世界の中の日本の力もこの辺りに来て一流の仲間入りが出来て来たのではなかろうか？ とは云うものの今や100 MW級の中性子散乱用の原子炉や 10^{16} 級のパルス中性子源が実現しようとしている時、我々の与えられた環境は厳しいものがある。我々は「日本的」な特徴を生かした研究の流れを造り出さねばならない。ここで云う「日本的」というのは物性研究の総合力の強さを生かす方向を指す。我々は中性子強度、研究創造性、等々々世界一というわけではないし今後もそれは望み薄であろう。しかし我々はそれに代るやり方、即ち前述の総合力を生かす方法で世界の超一流に互して肩を並べる事が出来るものと信ずる。

これから益々国際交流も盛んになるし、海外に出かけるばかりでなく多くの外国人を曳きつけ

る研究環境を築く必要があるのではなからうか！

(5) 新素材開発と中性子散乱

世は誠に新素材、高度技術の開発ブームである。中性子散乱がどれだけ役に立つか、風が吹けば桶屋が儲かる式の論理を立てればともかくとして筆者にはよく分からない。しかし中性子散乱に限らず物質の構造研究というのは非常に役に立つことは事実である。後の各論で多くの実例で見られる通り中性子散乱の利用も既に始まっている。例えば大きな磁気エネルギー積を持つ硬磁石材料の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ という化合物の構造決定、磁気特性には中性子散乱研究の寄与が重要な部分を占めているし、高い転移温度を持つ新超伝導材料開発の為に構造、格子振動の研究には中性子散乱が欠かせない。非晶体の原子配列の研究にも今や中性子が最も大きな寄与をしている。筆者等は最近、金属原子を厚さを制御しながら二種以上の金属を積層させて造る人工結晶を作製しその物性をしらべている。研究の狙いは新素材を目標としたものでなくむしろ境界が比較的短かい周期で実現した時に全体の物性がどう変化するかと云う極めて素朴な発想から出たものである。現在では普通自然には混じり合う事ない二種金属の積層を造り出すことも出来るし、それらの金属間の構造のコヒーレンスさえ測れる。又積層間の長さや、又コヒーレンスと金属磁性、超伝導、電気伝導等もしらべられ、構造と物性の関係もかなりよくわかるようになって来た。例えば人工格子の変調の周期長、構造のコヒーレンスの長さと超伝導のコヒーレンス長、強磁性を支える為の相互作用の長さとの関連等が今迄の一連の研究から明らかにされつつある。この研究結果がどのような形で新素材になるか不明であるが、新しい研究の方向であることは間違いなからう。

(6) おわりに

この小文は編集者が求めておられるものと随分違うのではないかと案じている。しかし研究の動向を調査した報告書はこの世にたくさん出廻っているし今更繰り返すこともなからう。中性子散乱が秀れた物性基礎研究の道具であることは後章の各論に多くその実例で示されている。それよりも改造3号炉は、我々中性子散乱研究者が永年望んでいた原子炉となるのであるから、決意を新たにして筆者の感想を述べる場とした。舌足らずの文章になってしまったのは、筆者の実力不足でありお詫びをする次第であるが、要はこの原子炉を生かす中心的中性子散乱研究の場所と世界的に見ても存在価値が認められる場所にすることである。実現の為に原研、物性研、大学共同体という従来の枠内に全くとらわれない新しい研究体制が要るのではないだろうか？。

3.4.3 冷中性子散乱の生物学への応用と生命現象

東大物性研 伊藤雄而

(1) はじめに

無機物質の世界をミクロな立場から理解しようとする際、我々は対象物の構成要素として原子や分子を考え、ついでそれらの空間的配列に伴う対称性を考慮した上で、量子論と統計力学を適応し、色々な物質現象を説明する。このような自然認識のスキームの一助に、中性子散乱が重要且つ不可欠な役割を果たしてきた所以は、原子炉から出て来るいわゆる熱中性子の波長と運動エネルギーが、物質の構成要素としての原子や分子の持つ空間的、時間的スケールと同程度である為、いわば、それらのミクロな時空間での配列や動きを見ることができたからに他ならない。加えて中性子にはスピン自由度に伴う磁気能率があるために、X線や電子線では見られない磁性電子の振舞いも知ることができたことは、物性研究の舞台上、中性子散乱の方法を一段と有効且つ必要不可欠な手段としたのである。

所で、眼を生物界が営む生命現象の世界に転じてみると、話は一変する。先ず生物の場合、ミクロな立場からの理解という事自体それ程分り切った事ではない。生物の持つ生命現象の様々な発現としての機能を考える時、その機能によって、ミクロな単位が色々と変り得る。例えば、成長、発生等という比較的大きな時間スケールを考えた場合、当然その基本的構成要素には個体の細胞が素要素となろう。話を細胞内の分化、生合成、情報伝達等に絞ると、今後は、基本的要素は、細胞内の様々なオルガネラ例えば、核、ミトコンドリア、リボソム等々となる。さらに機能を細分化して、遺伝情報の発現、視覚情報の伝達、筋肉の収縮、あるいは呼吸に伴う電子伝達機構等に焦点を合わせていくと、DNAとDNA結合蛋白、ロドプシンを始めとする各種視物質やその中間体、アクチン-ミオシン複合体、そしてチトクロームCを含む電子伝達酵素蛋白群等の生体高分子複合体、いわゆる超分子が舞台の主演となる。さらにこれら諸機能の素過程ということで、超分子をバラバラにして、個々の生体高分子レベルでの酵素機能発見のプロセスに的を絞ることもできる。しかも、これらの各レベルでのプロセスは、全体として絡み合いながら生命を維持している訳で、その意味で、無機物質の世界での自然認識のスキームは、そのままでは用をなさない。

このことは、次のように言い変えることもできる。すなわち、従来の物性物理の方法論では、基本的構成要素なる物（原子、分子）があり、その要素に特有な時空間の尺度（約 10^{-8} cmで 10^{-13} 秒）を用いて、大部分の物質現象はスケールされる。その際、最小のスケールにマッチした観測手段が熱中性子散乱の方法であった。これに比べて、生物の示す生命現象への方法論では、大部分の生物機能にたとえ基本的構成要素（例えば、蛋白質、核酸等の生体高分子）があるとしてもその要素に特有な時空間のスケールで生命現象をスケールすることはできない、ということになる。

それでは、物性的観測手段、特に中性子散乱の手法は、生物の理解には役に立たないかということ、決してそうではなく、むしろその逆であろう。なぜなら、生命が様々なレベルでの理解を絡み合わせて始めて理解できるものとすれば、当然その最下レベルである生体高分子レベルの理解は、生命の理解につながるはずのものであるからである。

このような観点、すなわち、最終的には生命現象の理解へつなげる一助としたい、という立場

から、中性子散乱の方法で生体高分子を調べようとする時、先ず次の2つの問題が起きる。その1つは、生体高分子に特有な時空間のスケールが、中性子のそれにマッチするであろうか、という事であり、もう1つは、生物機能に関連する生体高分子の物性を、どういった概念で把握すべきか、という認識の問題である。

ここでは、主としてこの2つの問題について、冷中性子を用いる新しい中性子散乱の手法に何が期待できるか、を考えて見たい。

(2) 小角散乱で空間情報を得る。

はじめにも述べた通り、生命の複雑さは、1つには、それに関与するプロセスが実に様々な時空のスケールに渡ることによる。最下レベルとしての生体高分子に限って見ても、その大きさは約 10^{-7} cm程度からミクロンのオーダー迄様々であり、基本的な時間スケールもまたピコ秒からミリ秒程度迄、いろいろな機能との関連で、そのスケールは広がっている。しかし、これらのプロセスが、より素過程に近ければ近い程、時空のスケールは、原子、分子のそれに還元されてくるだろう。冷中性子散乱に利用される中性子の波長は、主に $4\sim 10\text{\AA}$ 程度であるから、生体基本構造の数 $10\sim$ 数 $100\text{\AA}$ に及ぶ空間領域をプローブする為には、散乱角が数度以下の小角散乱を用いることになる。従って、対象物の原子・分子レベルでの細かい構築を見るということよりも、もっと粗い視野で物を見ることになり、例えば、蛋白質の全体的形状が問題とされる。

勿論、蛋白や核酸を結晶化することができれば、その空間構造は、原子・分子のレベルからX線回折でくわしく調べられるし、また、それらの複合体や集合体については、電子顕微鏡による構造決定が、生物のミクロな空間構造に関する知見を得る為の主流であることに変わりはない。にもかかわらず、近年ますます冷中性子の小角散乱が、生体物質の研究に重要さを増して来ている理由は、X線回折や、電顕法が、結晶化、あるいはフリーズ・フラクチャーといった特別な固形状態での構造情報収集に限られるのに比べて、より細胞内の状態に近い溶液中での構造を知り得ることに最大の特徴があるからである。

その際、溶媒の水、 H_2O を D_2O にアイソトープ置換をする場合を考えて見よう。重水置換により、水の溶媒としての化学的性質はさ程変らない(例えば、pHや溶解度等)のに、中性子の散乱能力は大幅に変化する。ここで、中性子の散乱能力は、単位体積($\text{\AA}^3$)当りの散乱能密度で表わし、溶液中での構造のような粗い視野で物を見る立場から、個々の原子の散乱能というよりは、個々の生体物質や溶媒に固有な散乱能を考える。すなわち $x\%$ の D_2O を含む水の散乱能は $-0.00562 + 0.0697x (\times 10^{-12} \text{cm} \cdot \text{\AA}^{-3})$ となるが、重要な点は、蛋白質、核酸、脂質といった生体高分子の中性子に対する散乱能は、その大部分が100% H_2O と100% D_2O の場合の散乱能の中間に位置する、ということである。(Fig.1 参照)¹⁾

例えば、今、蛋白質、核酸から成る複合高分子を水溶液に溶かし、溶液中の D_2O の成分比を変えていったとする。100% D_2O 溶液中では、蛋白質、核酸、 D_2O それぞれ異なる散乱能を示すから蛋白-核酸(DNA)複合体の全体像が浮かんで見える(Fig.2 a)。丁度溶液中の D_2O 比が39%になった時、溶媒($\text{H}_2\text{O}-39\% \text{D}_2\text{O}$)の散乱能と蛋白質のそれとが一致した為に、蛋白質は溶媒と区別がつかなくなり、DNAだけが溶液中に浮かんで見える(Fig.2 b)。次に、 D_2O 比を65%にすると、今度は溶媒とDNAとの散乱能が等しくなり、蛋白質のみが溶液中に見えて来る(Fig.2 c)。

この様に、溶液の $\text{H}_2\text{O}-\text{D}_2\text{O}$ 比を変えて、超分子やヴィールス等の構成成分を別々に浮き彫りにして観測する、いわゆるコントラスト変化法は、中性子小角散乱の独壇場であり、個々の例についての詳しい解説は、3.5.5の生体物質の構造で取り上げられよう。

上の例では、溶媒の水の D_2O 比を変えて蛋白や核酸の分布状態を見たのであるが、同様な事は逆に蛋白や核酸の一部を選択的に重水置換するやり方でもできる。この場合は、例えば、多数の蛋白質を含む超分子について、その蛋白質間の空間情報を得たい場合等に有効であろう。大腸菌 (*E. Coli*) の30S リボソム・サブユニット中の19ケの蛋白質の空間配置の決定は最も有名な例である。

冷中性子小角散乱装置は、こういった意味でますます生体物質構造の研究にその重要性を増して来ており、新しい改造3号炉の冷中性子ガイドにも、当然設置される(原研・大学グループでそれぞれ1台ずつ) 予定である。

(3) 生体高分子のダイナミックスに挑戦する。

生体高分子の時間的構造、すなわち動的挙動について、冷中性子を用いて、どのように調べることができるであろうか？ これは、これから中性子散乱研究の最大のチャレンジの1つであろう。

従来、生体高分子のダイナミックスに関する情報は、X線回折データの解析に伴う熱振動パラメータより、またNMR やスピン・ラベル ESR の線巾の解析、蛍光緩和に代表されるフォトン・ラベル法、そして低周波ラマン散乱等、様々な方法により調べられて来ているが、ラマン散乱の場合を除くと、これらの方法によって得られる情報は、すべて特定の原子や、フリー・ラジカルの動きに代表される局所的な自己相関と言える情報である。勿論、このような特定原子の動きを知ることは、それなりに重要であり、場合によっては、その様な動きこそが、直接生体物質の生理活性と結びつく情報を与えることもあろう。しかし、ここで我々が特に興味を持っている動的挙動は、むしろこれら生体高分子の全体としての協力的動き、すなわち、集団励起(collective excitation)である。それは、このような集団励起こそが、はじめにあげた2つの問い—特徴的な時空のスケールと新しい概念—に直接係わる現象だからである。そして、冷中性子散乱の方法は、まさしくその様な情報を提供し得る可能性を持っている。

始めにも述べた通り、従来の熱中性子散乱の最大の特徴は、物質の構成要素のミクロな時間的发展を、空間的構造と同時に調べることができることにあった。同様にして、冷中性子散乱の方法を用いて、生体高分子自身の協力的な動的挙動を、それに関与する空間情報と同時に調べることができるはずである。言い換えれば、生体高分子、あるいはその複合体を観察する際、その観察の空間スケールを任意に定めた場合、その空間スケールに特徴的なダイナミックスを冷中性子散乱を用いて、調べることができるはずだと言うことになる。その際、冷中性子の見る時空のスケールは、 $0.1 \sim 0.001 \text{ \AA}^{-1}$ の運動量変化に対応した数 $10 \sim$ 数 $100 \text{ \AA}$ の空間領域で、且つ $1 \sim 10^{-4} \text{ meV}$ のエネルギー変化に対応した $10^{-12} \sim 10^{-8}$ 秒の時間的変動ということになる。

果して、生体高分子の励起状態中(平衡系かオープン系かを問わず)このような時空の世界に生命現象にかかわる重要な素過程が存在するかどうか？ すなわち、第1の問い—生体高分子に特有な時空間のスケールが、冷中性子の見る世界にマッチするか否か—への答え、は新しい冷中性子散乱の今後の研究に待たねばならない。

現在迄に、このような時空を観察できる冷中性子散乱法としては、高時間分解能飛行時間分析法と中性子スピネコー法とが考えられる。前者では、時間分解能を高める必要から、極端に単色化した冷中性子が必要となり、超高中性子束炉を除く原子炉のフラックスでは、強度的にむずかしい。後者によると、波長の単色化は必要がなく強度的に有利となるが、逆に多くの情報を犠牲にするため、詳しい時間変動の様子が見えなくなる。冷中性子による生体高分子のダイナミックスの研究が、なかなか進展し得なかった所以である。

新しい改造3号炉ガイドビームには、上記の中性子スピン・エコー装置に加えて、これら2つの方法の利点を組合せた新しい冷中性子法としての中性子スペクトル変調を用いる装置を導入する予定である。新しいこれらの装置の詳細については、3.3 中性子ビーム実験装置の項で解説されているが、新しい方法による生体高分子のダイナミックスへの挑戦が待たれる。

(4) おわりに

最後に、始めにあげた第2の問いについて考えてみたい。この問いは、当然第1の問いと深く係わっている。すなわち、生体高分子に特有な時空間のスケールを持つ特徴的現象をどう理解していくかという認識の問題がそれである。生物の時空間パターンの構成を理解するためのいくつかの概念は、既に物性物理の土壌に存在し、様々な検討が試みられている。ここでは、紙面の都合上、それらの中の代表的ないくつかの名前を列挙するに止めるが、詳細については引用文献を参照していただきたい。

自己構築 (Self-organization) する物質系に関する Haken の Synergetics²⁾、特に進化する生体高分子系に対する Eigen のアプローチ³⁾、散逸構造 (dissipative structure) として捕える Prigogine 派のそれ⁴⁾、分子機械の集合としてのセル・オートマトン⁵⁾、そしてその分子機械の理解のために、フレーリッヒ状態⁶⁾、ダヴィドフ・ソリトン⁷⁾、あるいはフラクタル⁸⁾といった概念が登場する。

X線回折によって、DNAのdouble helixが発見され、ある意味で新しい生物の時代が幕明けたように、新しい冷中性子散乱の方法で、生体高分子の動的特徴が開明され、そこに第2の問いにあるような新しい概念が生み出されるとしたら、生命の理解へまた一歩進むことができるであろう。このような期待が、冷中性子を用いて、生体高分子や超分子を研究することへの夢をはぐくむのである。

参 考 文 献

- 1) B. Jacrot : Neutron Scattering from Biological Structures, Repr. Progr. Physics, 39, 911 (1976).
- 2) H. Haken : Synergetics — An Introduction, Nonequilibrium Phase Transitions and Self-Organization in Physics, Chemistry and Biology, 2nd Ed., Springer-Verlag (1978).
- 3) M. Eigen : Selforganization of Matter and the Evolution of Biological Macromolecules, Naturwissenschaften, 58, 465 (1971).
- 4) G. Nicolis and I. Prigogine : Self-Organization in Nonequilibrium Systems — From Dissipative Structures to Order through Fluctuations, John Wiley & Sons (1977).
- 5) 岩波講座—現代物理学の基礎 8, 生命の物理 第Ⅳ部 (多数の原論文が巻末に引用されている)。
- 6) H. Fröhlich : Long-Range Coherence and Energy Storage in Biological Systems, Int. J. Quan. Chem., Vol.Ⅱ, 641 (1968).
- 7) A.S. Davydov : Biology and Quantum Mechanics, Pergamon Press (1982).
- 8) B.B. Mandelbrot : The Fractal Geometry of Nature, W.H. Freeman and Company (1983).

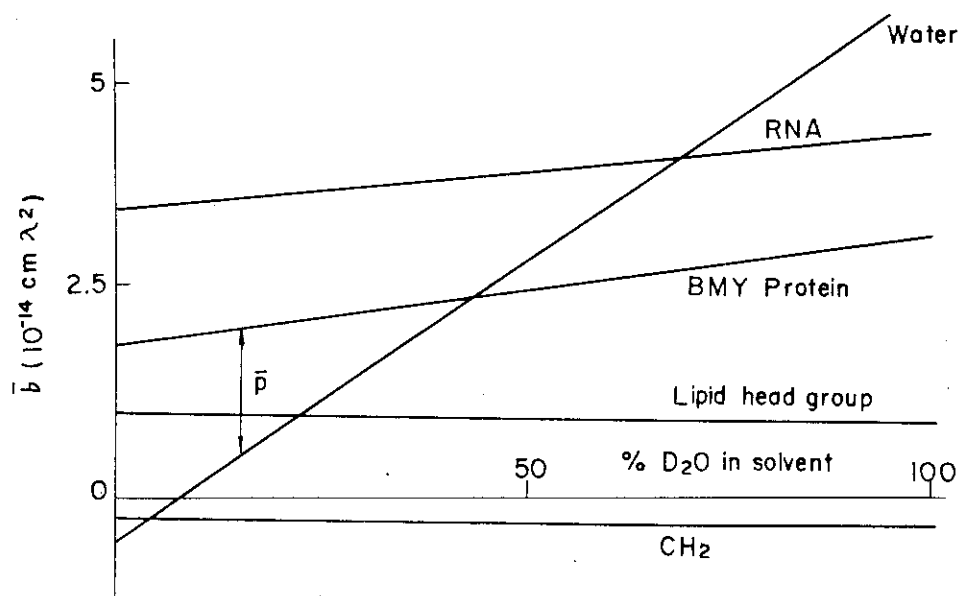


Fig. 1 Figure shows that the scattering densities of most biological macromolecules lie inbetween that of 100% H₂O and of the 100% D₂O (to the right). H₂O-D₂O mixture gives a straight line, whose intercept with the line of the macromolecule is called a matching point. The contrast $\bar{p}$ at the matching point becomes zero.

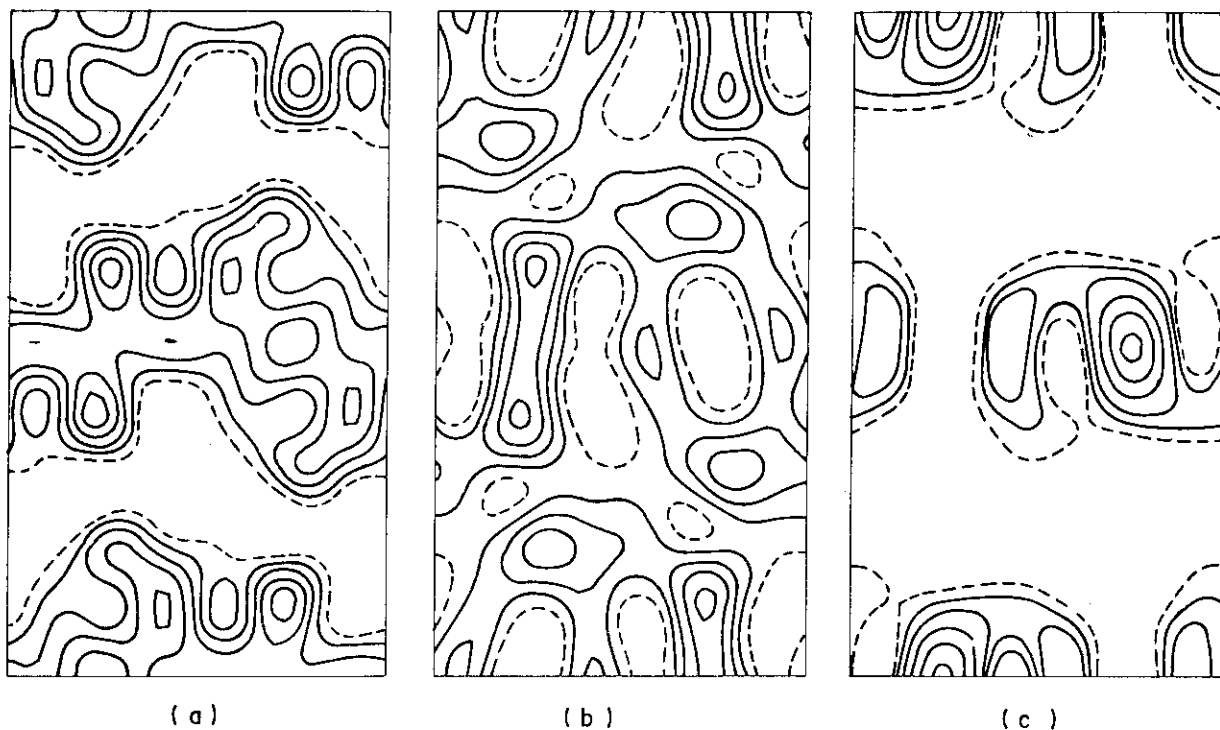


Fig. 2 Contrast map of a nucleosome (a protein-DNA complex) in solution.
 (a) Both protein and DNA are visible in 100% D₂O solution.
 (b) Only DNA distribution is visible in 39% D₂O, where the scattering densities of both solvent and protein are equal.
 (c) At 65% D₂O solution, the scattering densities of solvent and DNA are now equal, and only protein distribution is visible.

3.5 中性子散乱の最近の研究動向（各論）

3.5.1 機能材料の相転移と結晶構造

広大総合科学 藤井博信

(1) 水素吸蔵物質

水素吸蔵物質の研究はエネルギー変換材料や水素貯蔵材の開発といった新機能物質としての魅力から進められてきたことは言うまでもないが、基礎科学の立場からも未知で新鮮であることから数多くの研究が行われてきている。中でも、中性子散乱の実験は金属中の水素の存在状態、拡散過程、水素濃度のゆらぎなどについての直接的な情報を得る目的で行われてきた。

水素は限られた金属中に常圧下で多量溶解することが知られている。すなわち、Ⅲ_a、Ⅳ_a および Ⅴ_a 族の遷移金属、Ⅷ_a 族の Pd、希土類金属およびアクチノイド金属は 1 金属当り 1～3 コの水素原子を吸蔵する。このうちで、Ⅲ_a (Sc, Y, Lu)、Ⅳ_a (Ti, Zr, Hf)、希土類およびアクチノイド金属の水素化物は金属的伝導性を保っているが、水素原子と金属原子とは化学的に強く結びついて熱的に安定性が高く、水素の拡散は小さい。一方、Ⅴ_a (V, Nb, Ta) および Ⅷ_a の Pd の水素化物は水素原子と金属原子との結合が比較的弱く金属結合を反映して広い非化学量論組成範囲で単一相を保持している。高温ではこれら V, Nb, Ta および Pd 中の水素は侵入型不純物として金属格子の作る四面体格子間位置 (T-位置) あるいは八面体格子間位置 (O-位置) を占めその間を半ば自由に運動している (格子気体)。温度降下に伴って金属中の水素は水素原子間に働く相互作用によって自由度の小さい不完全秩序状態 (格子液体) に転移し、最終的には完全秩序相 (格子固体) が出現する。このような気相-液相-固相への変態に伴って現われる種々の秩序相は中性子弾性散乱によって研究され、興味深い結果が報告されている。例えば、V, Nb 中に出現する重水素 (D) のかなり長周期のインコメンシュレートな静的濃度波の発見が揚げられる

(V₄D_{3-x}, Ta₄H₃, Pd₅H₄)。このような構造が低温で安定化される原因は水素-水素原子間に働く協力的相互作用が長距離であることによるにちがいない。すなわち金属中に水素が入るとその周りの格子が歪み、その歪みが弾性的な波とならずと遠くまでつながっていくと解釈されている。また β -V₂D の D 原子の密度マップが中性子回折強度のフーリエ変換によって描かれている。特徴的なことは、低温でさえ、D 原子の密度分布が V 中の O-位置で最大の存在確率を与えてはいるが、その周囲の T-位置に向って広がっていることである。最近、種々の金属中の水素の局在モードが中性子非弾性散乱の実験 (KEK) により、高いエネルギー領域 ($E \leq 800$ meV) までかなりの精度で決定されている。その結果によると、水素の存在状態は離散的エネルギー固有値をもち、調和振動子 (小さな非調和成分をもった) として記述されることを示している。以上の結果を要約すると、水素原子は金属中では古典的な粒子ではなく、その存在確率は波動関数をもってすべきこと (量子論的性質) を示していると言えよう。

金属中の水素の拡散はこれまで主に、中性子後方散乱装置 (分解能 $\Delta E \sim 10$ μ eV) を用いた擬弾性散乱 (QES) の実験によって研究されてきた。高温では V, Nb, Ta および Pd 中の水素は T-位置あるいは O-位置の間を半ば自由に運動し、古典的拡散モデル (Chudly and Elliott) で定性的に理解できる。これは高温領域で断熱遷移 (水素原子と金属原子の間で断熱近似が成り立つ) が優先していることを示唆する。中間温度では、アレニウス・プロット ($\ln D$ vs T^{-1})

プロット： D ＝拡散係数）に曲がりが見われ、拡散が非断熱的トンネル過程によって支配されるようになると考えられている。さらに低温では水素はセルフ・トラップされた状態にあるが、この状態が金属格子の並進対称性をもっているので、そのエネルギーはバンドを形成するはずである。従ってバンドの幅がせまくても十分低温では散乱が小さくなりバンド伝播機構が効くものと思われる。低温（ $kT \ll \hbar\omega_D$ ）での拡散は理論的に大変興味をもたれているが、低温での拡散の実験研究は未だ見当たらない。

さて話を応用面に転じよう。水素吸蔵物質は Fig. 1 に示してあるように多種多様の機能をもっている。中でも水素吸蔵・放出の際の発熱・吸熱現象を利用したヒートポンプへの応用、蓄熱への利用が現在プラント段階に入っており実現性が最も高い。実用上解決しなくてはならない問題の 1 つに、水素吸蔵・放出に伴うヒステリシスがある。吸蔵材のエネルギー変換効率はヒステリシスの大きさに左右され、その幅（水素吸蔵圧と放出圧の差）が大きいと著しく下がってくる。従って、ヒステリシスについての微視的な知見をうることは実用的側面から強く要請されている。また実用面から離れても、水素吸蔵放出過程の微視的かつ動的な研究は格子気体－液体転移とみなすことができ、非平衡系の統計力学の立場からも興味深い。ここでは、我々が行っている Pd 中の水素吸蔵放出過程の中性子小角散乱（KUR）の実験結果を紹介する。Pd 中の水素は fccPd 金属格子の作る O 位置を占め、 PdH_x において、 $x \geq 0.60$ では母体より格子定数が約 4% 大きい β 相の単相となる。中間組成では α 相（水素レス相）と β 相（水素リッチ相）が共存し、強い小角散乱が期待される。実験結果を要約すると次のようになる。水素吸蔵過程において、(1) 高温（ $\sim 100^\circ\text{C}$ ）・高圧（ $\sim 50\text{ bar}$ ）下で短時間の水素吸蔵を行うと、比較的小さな β 相が多数形成され、すみやかに生長する。しかし、(2) 室温常圧下で長時間の吸蔵を行うと、 β 相の核形成が押えられ少数の β 相クラスターが除々に生長して比較的大きなクラスターが点在していく。一方、放出過程では、(3) 高温（ $\sim 200^\circ\text{C}$ ）で早い放出を行うと Fig. 2 のような結果をえた。これは $x \sim 0.40$ で $r \sim 5000 \text{ \AA}$ のグニエ半径をもった α 相クラスター濃度が最大となり、 $x = 0.10$ では逆に同程度の β 相クラスター濃度が最大になっていることを示している。しかし、(4) 低温（ $\sim 50^\circ\text{C}$ ）で遅い放出を行うと、 $x = 0.40$ でさえ α 相のクラスターは認められない（X線回折によっても確認）。これは一度格子が一様に拡がると、水素濃度が減少しても水素クラスターは形成されず結晶内を無秩序に動き回っていると考えられる。以上の結果より、ヒステリシスの大きさ（低温で大きく、高温では小さい）は、母体金属の弾性的性質（低温でハード、高温でソフト）に強く依存していると推察される。

最後に、金属水素化物の分野で、今後中性子散乱によって期待される研究の方向についてコメントする。(1) 水素の局在モードが母体金属のフォノンと結合するとどのようなスペクトルがえられるか興味深い。もしフォノンが局在水素原子の近くに振巾をもつ励起が存在すると、このような結合がエンハンスされ、実験にかかる可能性がある。(2) 水素濃度の低い水素化物（数% H）中でも、十分低温では H-H 間の長距離相互作用によって、新しい秩序相（long range）が出現する可能性がある。(3) バンド伝播機構による十分低温（ $kT \ll \hbar\omega_D$ ）での拡散の研究が考えられる。このためには十分完全な試料を用いることと同時に、十分低温で α 相が安定に存在することが必要であり、実験的にかなり強く制約される。(4) α 相と β 相との臨界点近傍での水素濃度のゆらぎについての研究など今後の発展を期待したい。尚、執筆に当たり、期待される研究の方向について御教示下さった東北大金研の平林真先生に深く感謝致します。

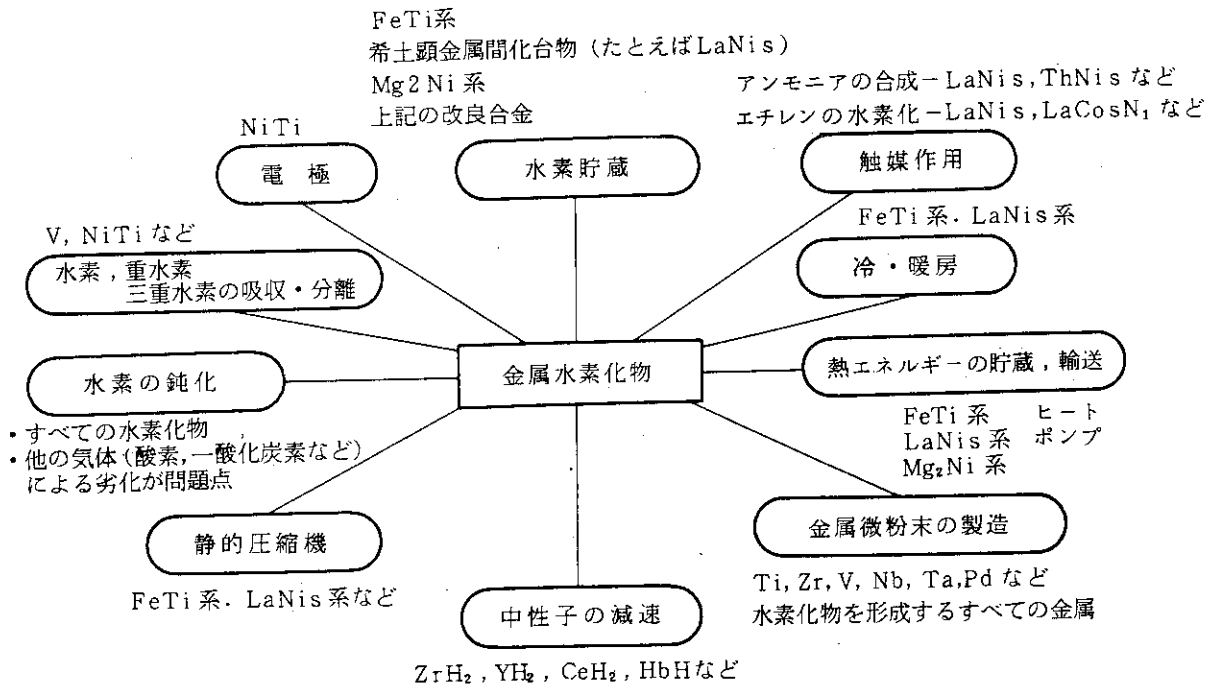
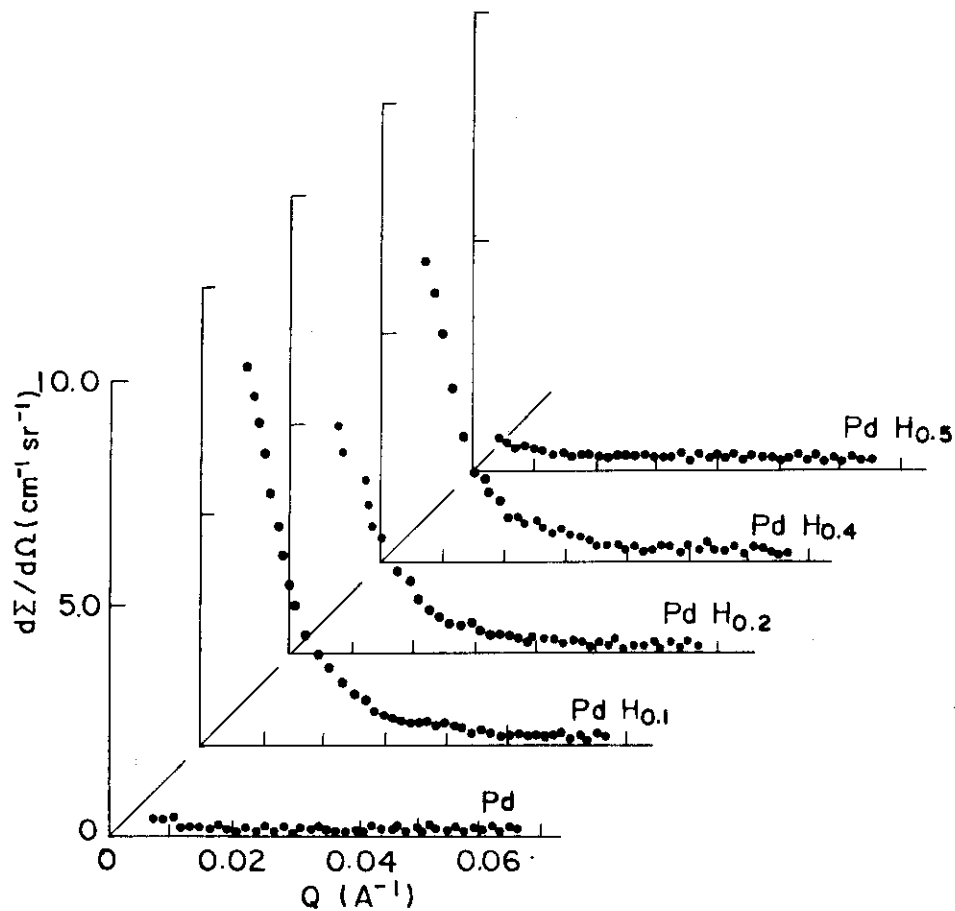


Fig. 1 Multi-functional properties of hydrogen absorbed materials.

Fig. 2 Small angle scattering intensities for hydrogen evolution processes at 200°C on palladium hydrides. (Measurements were at room temperature after quenching with $\lambda=6\text{\AA}$)

3.5.1(2) 超イオン導電体・一次元電気伝導体

東大物性研 藤下豪司

(1) 超イオン導電体

融解温度よりずっと低い温度で高いイオン伝導性を示す固体は現在一般に超イオン導電体 (SIC) と呼ばれている。今世紀に入って AgI などの超イオン導電性が発見され、系統的に研究された。これらは現在でも代表的 SIC として盛んに研究がなされている。⁽¹⁾ 70 年代に入りエネルギー問題が社会的関心を呼ぶようになると、応用面への社会的要請から SIC の研究が脚光を浴びるようになった。実際、動力源としての固体電池や太陽エネルギー利用のための燃料電池の研究などが行われている。一方基礎研究の分野では、SIC 中での拡散イオンの動的挙動や相転移現象などに興味を持たれている。その主な目的は、SIC 中をイオンが大きな移動度で拡散する理由を知ることにあると言えよう。

イオン結晶におけるイオン拡散の機構としてホッピングモデルが古くからある。しかし SIC では単純なホッピングモデルでは説明できず、イオン間の集団運動としてイオン拡散が起こるとするキャタピラー機構が提案された。⁽²⁾ その後、拡散イオンと格子振動の相互作用を考えるモデル³⁾ や、拡散イオンを副格子融解を起こした流体として取り扱うモデル⁴⁾ なども提出されている。

このような状況において、SIC 中のイオン拡散は定まった (準) 安定位置間の跳躍によるのか、流体的な連続拡散をしているのかということが問題になる。AgI や Ag₂S について中性子回折により、SIC 相における Ag イオンの分布が得られている。^{5,6)} AgI では 12 個の位置に分布の中心が見られる。一方 Ag 濃度の大きい Ag₂S では SIC 転移温度 (179 °C) 近傍では同様であるが、200 °C 以上では連続的な分布になると報告されている。

このような平均構造の中でのイオンの運動を知るために種々の測定がされているが、中性子散乱は重要な手段となっている。AgI の中性子準弾性散乱の測定は Funke らによりなされ、その結果が 12 位置間の Ag の跳躍拡散で説明できることが示された。⁷⁾

中性子非弾性散乱によるフォノンの分散関係の測定も数多い。但し SIC 相ではフォノンの減衰が著しく、分散関係のほとんどは低温で測定されている。これらの強く減衰したフォノンとは独立に、分散を示さない低振動数の励起が見出されており SIC の特徴の一つである。Na- β -アルミナの例⁸⁾ を Fig. 1 に示す。

この他にも多くの実験結果に基づいて SIC 中の拡散イオンの挙動について、先に述べたモデルを含む多くの理論的検討がなされているが、原子系の運動という多体問題であるので、現象のよりよい理解のためにはなお今後の発展が期待されよう。

(2) 一次元電気伝導体

一次元電気伝導体とは電気伝導度の異方性が大きく、かつ一次元軸方向には電子の伝導帯のモデルが成り立つような物質のことである。一次元伝導体研究の目的は一次元電子系に特徴的な現象を解明することである。さらに一次元伝導体は高温超伝導を実現する上での有力な候補であるといわれており、このことは一次元導体の研究を支えている柱のひとつである。

一次元電子系の特徴は、フェルミ波数の 2 倍の波数 $2k_F$ の摂動ポテンシャルに対して不安定なことである。この不安定性はしばしば電子格子相互作用を介して、 $2k_F$ でのフォノン振動数の異常な低下を引き起こす。これは巨大コーン異常と言われている。温度が下がるにつれこのフ

フォノン振動数はさらに低くなりついに凍結し、絶縁体への構造相転移（パイエルズ転移）が起こる。低温相では波数 $2k_F$ の電荷密度の波（CDW）が生ずる。CDW は非線形伝導・周波数に依存した伝導度・ノイズ異常等々興味深い現象を引き起こすので勢力的に研究が行われている。⁹⁾

巨大コーン異常の様子は中性子非弾性散乱によって観測できるが、一次元伝導体は大きな単結晶ができにくいいためその実験は容易ではない。しかし最近大きな単結晶が得られる無機一次元導体であるブルーブロンズ $K_{0.3}MoO_3$ が見出された。 $K_{0.3}MoO_3$ では構造上の一次元性よりはむしろ微妙な波動関数の重なり差により一次元性が現われるために大きな単結晶が得られ、中性子非弾性散乱を含む種々の測定が可能となった。Fig. 2 に巨大コーン異常の様子を示す。¹⁰⁾ 180 K での相転移に向って、図中の矢印で示される巨大コーン異常を示すフォノンが落ちこんで来るとともに、動的構造因子 $S(q, \omega)$ にセントラルピーク ($\omega=0$) が出ることが観測されている。 $K_{0.3}MoO_3$ では X 線により低温相の構造が解析され、 MoO_6 の鎖の束が波数 $q_b \simeq 0.75 b^*$ で横ゆれしている構造に近いこと、および相転移が単純なバンド描像で理解できることが明らかになった。¹¹⁾ また CDW の並進運動に伴う CDW の構造変化が直接捉えられている。¹²⁾

Chakraverty は電子格子相互作用 λ の大きさと超伝導転移温度 T_c との関係を議論している。¹³⁾ それによると、 λ が大きくなるにつれ T_c は上昇するが、ある所で電子が実空間で電子対（パイポーラロン）を作り絶縁体になるので、超伝導体から絶縁体に移り変わるあたりで T_c が最も高くなる。この意味でブロンズ系を $M_xWO_3 - M_xMoO_3 - M_xV_2O_5$ と並べると、 $K_{0.3}MoO_3$ は超伝導クーパー電子対から実空間電子対に移り変わる中間の、金属-絶縁体相転移を示す物質であるので、より高い T_c をもつ超伝導体を考えるうえでの糧とする立場からも興味深い。

参 考 文 献

- 1) 星埜禎男：日本結晶学会誌 21, 239 (1979), 固体物理 16, 298 (1981).
- 2) I. Yokota : J. Phys. Soc. Jpn 21, 420 (1966).
- 3) M. Nagao and T. Kaneda : Phys. Rev. B11, 2711 (1975).
- 4) N. Mizoguchi et al. : Solid State Ionics 3/4, 97 (1981).
- 5) R.J. Cave et al. : Solid State Commun. 16, 155 (1977).
- 6) R.J. Cave et al. : Fast Ion Transport in Solids (North-Holland, 1979) p.217.
- 7) Funke et al. : Solid State Ionics 3/4, 45 (1981).
- 8) S.M. Shapiro and M.B. Salamon : Fast Ion Transport in Solids (North-Holland, 1979) p.237.
- 9) 伊土政幸：日本物理学会誌 40, 275 (1985).
- 10) M. Sato et al. : J. Phys. C 16, L877 (1983).
- 11) M. Sato et al. : J. Phys. C 印刷中
- 12) T. Tamegai et al. : 投稿中
- 13) B.K. Chakraverty : J. de Phys. 40, L199 (1979).

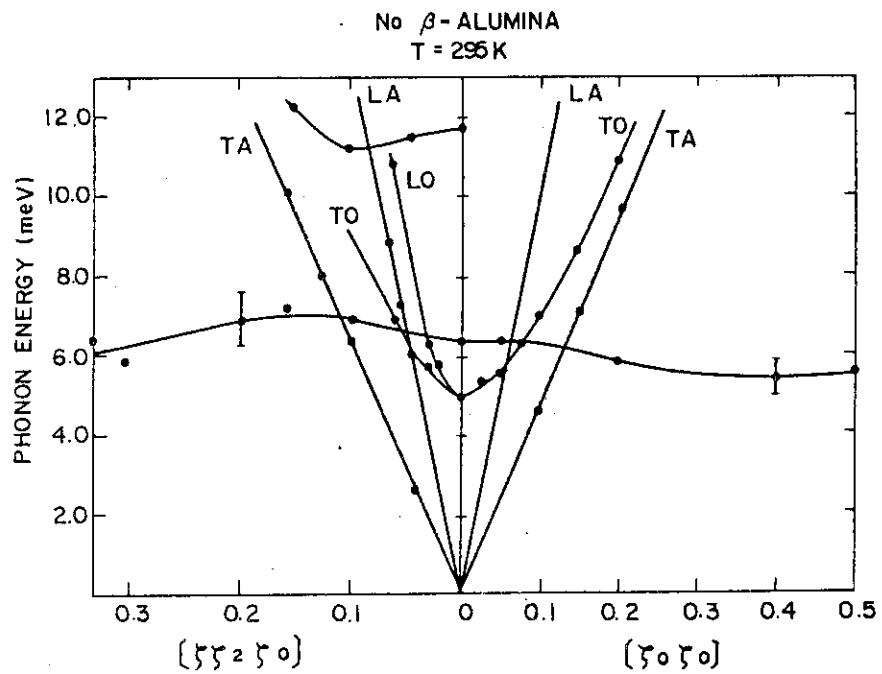


Fig. 1 Dispersion curves of Na β -alumina.⁸⁾

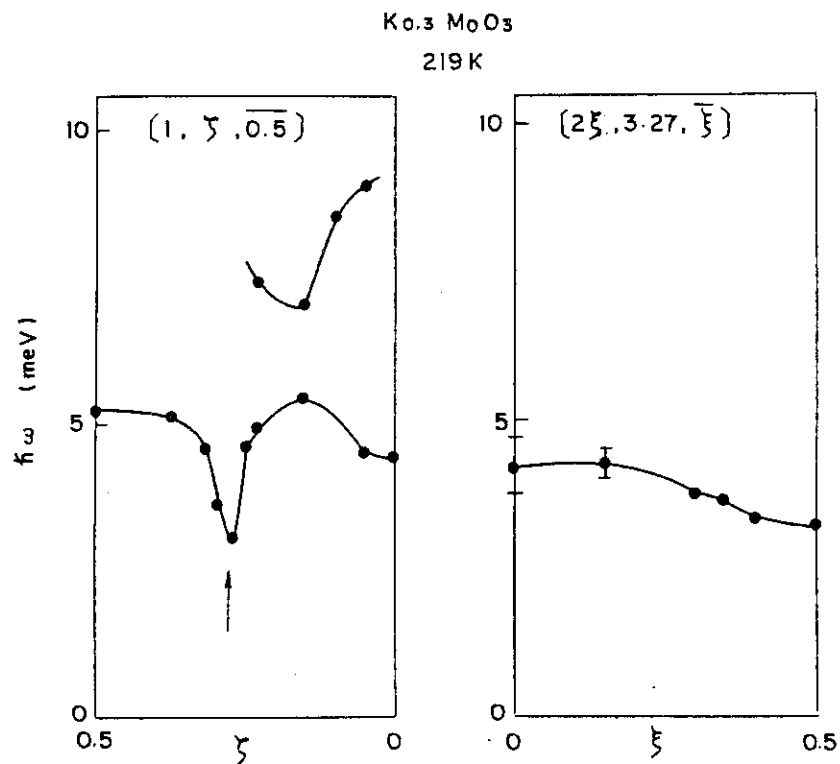


Fig. 2 Giant kohn anomaly of $K_{0.3}MoO_3$. (Arrow)

3.5.1(3) 黒鉛層間化合物

お茶の水大理学部 池田宏信

層状構造をもつ結晶の特徴は、層内の原子間結合が共有結合など非常に強いものであるのに対し、層間のそれは van der Waals 力などによって弱く結合していることにある。そのため、母結晶の層内構造を破壊することなく層間に多様な異種の原子あるいは分子（インターカラント）が挿入でき、新しい物質を合成することができる。これによってできた物質を層間化合物といい、その最も典型的な物質群が黒鉛層間化合物であると言える。

この近年、米国、フランス、日本等において多くの研究者によって黒鉛層間化合物の物性が調べられているが、その主たる興味は、①積層構造（ステージ構造）の安定性と構造相転移の機構、②インターカラントの層内構造および相転移、③電子構造、④格子振動、⑤超伝導、⑥磁性に向けられている。

Table 1 に黒鉛に挿入されるインターカラントを示している。¹⁾これに見られるように、アルカリ金属 K, Rb 等ドナー型化合物、また遷移金属塩化物 CoCl_2 , MoCl_5 等アクセプター型化合物を含むかなり多種多様な化合物が合成されていることが分る。しかもこの層間化合物における最も大きな特徴の一つとしてステージ構造という超格子構造をあげることができる。つまり、黒鉛 N 層毎にインターカラント層が規則的に挿入し、長周期構造が出現することが確かめられている（N ステージという）。とくに、アルカリ金属黒鉛層間化合物ではステージ数 13 程度の化合物も合成されており、このような長周期構造の安定性の機構についても多くの論議がかわされている。このような高ステージ化合物の合成が、2 次元伝導、2 次元超伝導、2 次元磁性の研究に格好のモデル物質を提供する可能性があり、その方面の研究も少なくない。

また一方、インターカラント層内の面内構造はインターカラントの種類によって様々であるばかりでなく、温度や圧力などの外的条件によっても変化する。例えばアルカリ金属を例にとると、第 1 ステージ化合物は母体の黒鉛格子の規則配置に整合した 2×2 あるいは 3×3 の三角格子を組むことが知られている。他方、第 2 ステージ化合物（例えば C_{24}K ）では多くの場合非整合構造となる。このような層内構造の安定性また他の構造への相転移の研究も X 線あるいは中性子散乱を用いて数多くなされている。さらに高温では液体状の無秩序状態へ転移するが、この状態でのアルカリ金属原子の拡散運動も中性子準弾性散乱実験によって論じられるようになってきた。2 次元固体の融解の問題とも関連して将来の進展が望まれる。

中性子非弾性散乱によって黒鉛層間化合物の格子振動を測定する試みも多い。層間化合物の示す種々の相において、また種々のステージ数化合物において、格子振動の観測によって原子間相互作用という微視的情報を得ることができれば、ステージング機構の解明のみならず層内相転移に対する黒鉛の果す役割も明らかにできると考えられる。

アクセプター型磁性化合物（ CoCl_2 , NiCl_2 等）を挿入した高ステージ層間化合物は、2 次元磁性のモデル物質を与える。実際、第 2 ステージ CoCl_2 黒鉛層間化合物においては中性子散乱によって 2 次元スピンの相関が確認されている。理想的な 2 次元磁性体はもっと完全な形で他に化合物において数多く見出されているので、これまでに発見されていない、例えば 2 次元 XY 系等が黒鉛層間化合物を用いた研究の対象になるだろう。 CoCl_2 等層状化合物は CoCl_2 層の構造を保ったままの姿で黒鉛層間に挿入でき、層間の磁氣的超交換相互作用は黒鉛層によ

て非常に弱められる結果 2 次元磁性を示す。ところが、多くのアクセプター型層間化合物が示すように、インターカラントの層内での原子配置のコヒーレンシーは無限にいたらず、サイズ約数 100 Å の島状の孤を原子集団の集合となる。このことが相転移現象の精密な解析を妨げていることはいなめないが、より完全な結晶の合成への努力もはらわれている。

また磁性黒鉛層間化合物の面白い実験例の一つに第1ステージEu層間化合物で発見されたメタ磁性がある。この現象は高次のスピン間相互作用を考慮することによってはじめて理論的に説明できることが指摘されたが、その他にこの物質が低次元伝導電子スピン系であること、Euが大きな磁気モーメントをもつこと、Eu原子が層内において3角格子を組むことが重要な役割を演じている。

以上きわめて大雑把な話に終始せざるを得なかったが、新しい物性を担った新しい物質の開発がこれからの物性物理を発展させる一つの道であることは疑い得ない。その意味で、これら黒鉛層間化合物がその役割を果たせるかどうか、今後の研究の進展に興味深いものがあると思われる。また中性子散乱実験者の立場からみて、今後より大きな単結晶黒鉛を用いた化合物、また結晶性のより完全な化合物（層内原子配置のコヒーレンシーの大きい、またモザイクの小さい）の合成に力を入れねばと感じている。

- 1) 寿栄松宏仁；固体物理別冊「エキゾテック・メタルズ」 1983年. p.175.

Table 1 Inter colants of the graphite intercalation compounds.

[illegible]

3.5.1(4) 非晶質金属

東北大選鉱精錬研 早稲田嘉夫

東 北 大 金 研 福 永 俊 晴

金属や半導体は一般に原子が規則正しく並んだ結晶構造をもつが、近年この長範囲の周期性を失った非晶質 (Amorphous) 状態が急冷によって作り出され、結晶には見られない種々の注目すべき特性が確認された。新材料として広い応用範囲が、物性科学として新しい分野が期待できることから、とくに非晶質金属の研究は急増の一途をたどっている。このような状況のなかで、注目に値する特性の発現メカニズムは原子レベルでの特異な構造に起因することから、中性子回折は非晶質金属の structural characterization の手段としてX線回折などとともに幾つかの重要な役割を果たしてきた。

よく知られているように非晶質系の構造を原子レベルで記述するためには一般に動径分布関数が用いられ、この動径分布関数はX線や中性子回折実験により得られる構造因子 (干渉関数と呼ばれることも多い) の Fourier 変換として実験的に決定できる情報である。通常研究の対象となる非晶質金属は多成分系であるため、たとえば A-B 2 元系であれば部分構造と呼ばれる AA, BB および AB のペア相関成分を実験的に分離導出することが重要な研究課題である。非晶質金属の原子分布を逆空間で記述する構造因子は定義の違いにより Faber - Ziman 型, Ashcroft - Langreth 型および Bhatia - Thornton 型の 3 種類に分別される¹⁾。たとえば Faber - Ziman 型全構造因子 $a^{FZ}(Q)$ は実験的に観測される干渉性散乱強度 $I^{coh}(Q)$ ならびに 3 種類の部分構造因子 $a_{AA}(Q)$, $a_{BB}(Q)$ および $a_{AB}(Q)$ と次式の関係で表わされる。

$$I^{coh}(Q) = N \langle b \rangle^2 a^{FZ}(Q) + N (\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2) \quad (1)$$

$$a^{FZ}(Q) = \frac{1}{\langle b \rangle^2} \{ c_A^2 b_A^2 a_{AA}(Q) + c_B^2 b_B^2 a_{BB}(Q) + 2c_A c_B b_A b_B a_{AB}(Q) \} \quad (2)$$

$$a_{ij}(Q) = 1 + 4\pi\rho_0 \int_0^\infty r^2 \{ g_{ij}(r) - 1 \} \frac{\sin(Q \cdot r)}{Q \cdot r} dr \quad (3)$$

ここで ρ_0 は平均原子数密度, b_A (b_B) そして c_A (c_B) は A (B) 原子の干渉性散乱振幅ならびに濃度であり, N は散乱にあずかる原子数そして $\langle b \rangle = c_A b_A + c_B b_B$ である。

一方 Bhatia - Thornton 型構造因子 $S^{BT}(Q)$ はランダム系の原子構造と熱力学的性質との関連を議論するために導入されたもので、密度ゆらぎ $S_{NN}(Q)$ と濃度ゆらぎ $S_{CC}(Q)$ そしてその交さ項である密度-濃度相関 $S_{NC}(Q)$ の重みつき和で表わされる。干渉性散乱強度 $I^{coh}(Q)$ と Bhatia - Thornton 型構造因子 $S^{BT}(Q)$ そして部分構造因子との関係は、

$$I^{coh}(Q) = N \langle b^2 \rangle S^{BT}(Q) \quad (4)$$

$$S^{BT}(Q) = \frac{1}{\langle b^2 \rangle} \{ \langle b \rangle^2 S_{NN}(Q) + \Delta b^2 S_{CC}(Q) + 2\langle b \rangle \Delta b S_{NC}(Q) \} \quad (5)$$

と表わされる。ここで $\langle b^2 \rangle = c_A b_A^2 + c_B b_B^2$ そして $\Delta b = |b_A - b_B|$ である。

(2) および (5) 式から明らかなように個々の部分構造を導出するためには異なる b_A もしくは b_B の値を持つ化学的に同一組成の合金の全構造因子を 3 種類測定し、その 3 元連立方程式を解くとい

う過程を踏む。このような目的に対して数多くある研究のなかでも偏極中性子回折法あるいは同位体置換法による部分構造の分離・導出は特記すべき試みであり今後の発展も期待されている。

Bletry および Sadoc²⁾ は非晶質 Co-16.6 at % P 合金が強磁性を示すことを利用して偏極中性子回折を応用し、散乱ベクトルに対し垂直および平行に偏極させた場合と偏極させない場合の3種類の測定から Co-Co, P-P および Co-P のペア相関を世界に先がけて分離導出した。その結果 Fig. 1 に示すように詳細は異なるが、全く独立に X 線異常（共鳴）散乱法により導出された部分構造因子など^{1,3)}と一致し、この非晶質合金中で P-P 相関が hard contact しないこと示唆した。この点は同位体置換法による Lamparter⁴⁾ の研究によりさらに明確に立証された。すなわち Lamparter らは Ni-19 at % B 非晶質合金において、⁶⁰Ni と ⁶²Ni 同位体の中性子核散乱振幅が正負の関係すなわち $b_{Ni}^{60} = 0.28 \times 10^{-12}$ cm として $b_{Ni}^{62} = -0.87 \times 10^{-12}$ cm であることに着目し、Ni 原子の核散乱振幅 $b_{Ni} (= c_{60Ni} \cdot b_{Ni}^{60} + c_{62Ni} \cdot b_{Ni}^{62})$ が零となるような合金を作製した。(2)式に示した Faber-Ziman 型構造因子 $a^{fz}(Q)$ において Ni 原子の核散乱振幅が零 ($b_{Ni} = 0$) の非晶質合金では B-B 相関を表わす部分構造因子 $a_{BB}(Q)$ の直接観測が可能となる。この方法で精度よい3種類の部分構造因子を導出し、B-B 相関が hard contact しないことを明らかにした。

いくつかの同位体が負の散乱振幅をもつことを利用した同位体置換法は、Bhatia-Thornton 型構造因子を用いた濃度-濃度相関構造因子 $S_{CC}(Q)$ の直接観察にも応用され有用な結果が得られている。たとえば Fukunaga ら⁵⁾ は Ti 原子、⁶⁰Ni 原子そして ⁶⁰Ni 同位体の組成比を $\langle b \rangle = c_{Ti} b_{Ti} + c_{Ni} b_{Ni} = 0$ となるように混合した中性子零散乱 Ni-Ti 非晶合金を作製し、Bhatia-Thornton 型構造因子 $S^{BT}(Q)$ を測定すると(5)式から明らかなように化学的短範囲秩序を表わしている濃度-濃度相関部分構造因子 $S_{CC}(Q)$ のみを直接観測することができる点に着目した研究を実施した。Fig. 2 に Ni-60 at % Ti 中性子零散乱非晶質合金の直接観測によって得られた $S_{CC}(Q)$ 、ならびにその $S_{CC}(Q)$ を用いて導出した他の部分構造因子 $S_{NN}(Q)$ と $S_{NC}(Q)$ をともに示す。もし合金が完全無秩序混合に近い原子分布を有する場合、 $S_{CC}(Q)$ は $c_{1-x} c_x$ の値を示すはずである。実測の $S_{CC}(Q)$ の値より、非晶質 Ni₄₀Ti₆₀ 合金は濃度のゆらぎがかなり大きく化学的短範囲秩序の存在が指摘された。類似の研究は同位体を用いなくても、中性子に対してほとんど干渉性散乱をおこさない V 原子の特徴に着目して、非晶質 Ni-V 合金中の Ni-Ni ペア相関の直接観察なども試みられている。⁶⁾

以上中性子回折を用いた非晶質金属の構造研究の流れを簡単に述べたが、その特徴は成分原子種の中性子核散乱振幅の違いまた同位体の中性子散乱振幅の違いを有効に利用し、部分構造が精度よく得られることがある。今後も中性子回折のこの特徴を利用した研究の展開が大いに期待される。なお同位体置換法の場合「同位体置換によっても構造が変わらない」と自動的に仮定して異なるサンプルのデータを解析する点は、急冷による準安定構造を研究対象とする非晶質金属では留意しておく必要がある。このような観点から同一試料について実験を行う偏極中性子回折法あるいは中性子異常散乱法⁷⁾による研究の発展も切望されかつ期待されている。また最近 X 線および中性子回折の散乱機構が原理的に異なる点に着目し、イオン-電子相関の情報を実験から直接導出する試みが報告されており、⁸⁾この種の実験は精度のよい中性子回折実験によって始めて展開が可能である。今後の研究用中性子回折設備の拡充と相俟って、新たな展開が大いに期待される。

参 考 文 献

- 1) for example, Y. Waseda : The Structure of Non-Crystalline Materials, McGraw-Hill, New York (1980).
- 2) J. Bletry and J.F. Sadoc : J. Phys. F. 5, L110 (1975).
- 3) J.F. Sadoc and J. Dixmier : Mater. Sci. Eng. 23, 187 (1976).
- 4) P. Lamparter, W. Sperl, G. Rainer-Harbach and S. Steeb : Z. Naturforsch. 36a, 419 (1981).
- 5) T. Fukunaga, N. Watanabe and K. Suzuki : J. Non-Cryst. Solids, 61/62, 343 (1984).
- 6) T. Fukunaga, S. Urai, N. Hayashi, N. Watanabe and K. Suzuki : KEK Report V, 18 (1984).
- 7) S.W. Peterson and H.G. Smith : Phys. Rev. Lett. 6, 7 (1961).
- 8) S. Takeda, S. Tamaki and Y. Waseda : J. Phys. Soc. Japan, 54 (1985), in press.

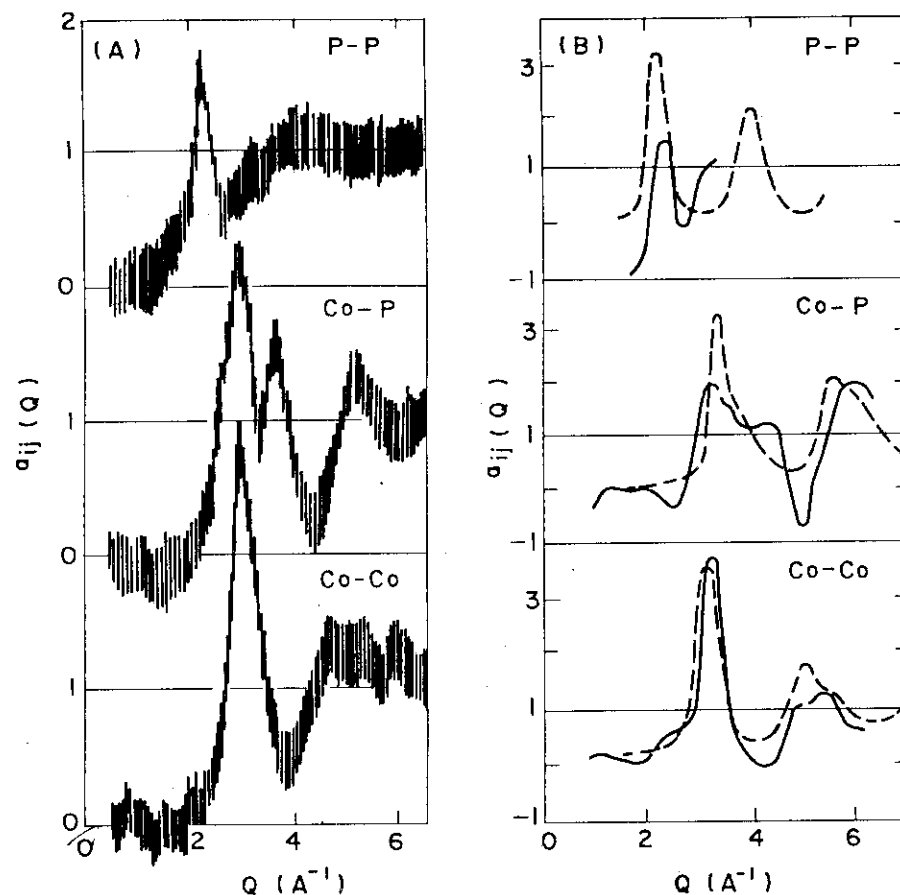


Fig. 1 Partial structure factors of the $\text{Co}_{80}\text{P}_{20}$ glass. (A) Anomalous x-ray scattering¹⁾, (B) Solid line: polarized neutron scattering²⁾; dashed line: x-ray and polarized neutron scattering³⁾.

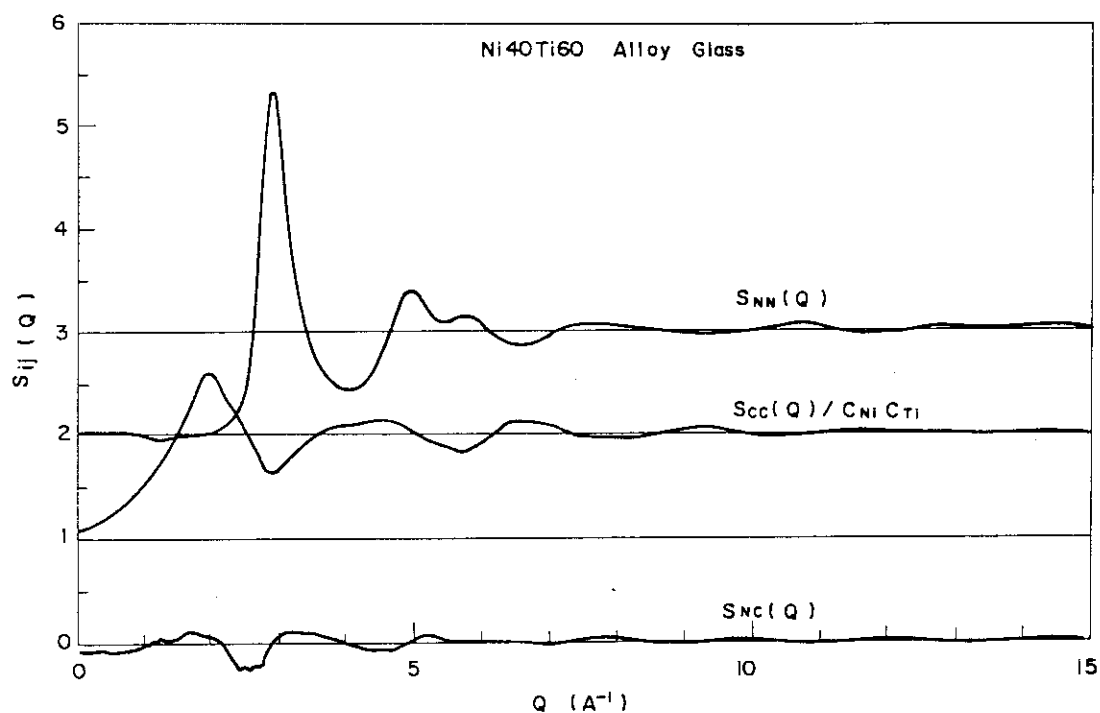


Fig. 2 Partial structure factors of the Bhatia-Thornton type for the $\text{Ni}_{40}\text{Ti}_{60}$ glass⁵⁾. $S_{NN}(Q)$ and $S_{NC}(Q)$ were calculated from $S_{CC}(Q)$ determined on the zero alloy.

3.5.1 (5) 金属間化合物

東北大金研 山口泰男

最近の技術の進歩は、種々の新素材の開発によるところが大きいですが、これを更に推し進めるには、多様な機能材料が必要とされている。金属間化合物は、結晶構造の複雑さを反映して、バンド構造も複雑であり、単なる金属合金では出せない特殊な性質を有するものも多く、今迄に、多くの有用な物質が創り出されてきたし、新素材開発の宝庫として、今後の進展にも期待の寄せられている分野である。一般的に言えば、金属間化合物は、機械的には、硬く、脆い性質を持ち、加工が困難とされてきたが、最近の金属材料研究の進歩によって、金属間化合物の個性的な特性を損なうことなく、加工ができる条件が、各物質について見出されてきており、ますます応用に拍車がかかりつつある状態である。ここでは、そのうち、二、三の代表的な例について、金属間化合物の物性の、中性子散乱による研究について述べることにする。

(1) A15型構造を持つ超電導体における相転移

現在知られている超電導体のうち、臨界温度の最も高いものは、 Nb_3Ge の $T_c=23\text{ K}$ であるが、これのみならず、 T_c が 18 K を越すものは、全てNbを含んだA15型化合物であり、そのうち、かなりの物質について、 T_c の少し上の温度で、マルテンサイト変態が見られ、立方晶から正方晶に転移することが知られている。

Nb_3Sn では、 $T_M=45\text{ K}$ で正方晶に転移し、 $T_c=18\text{ K}$ で超電導体となる。中性子散乱を用いた研究によればこの格子歪の前駆現象は、 T_M の5倍近い高温から始まることがわかった。また、逆格子点に近いところでの格子波のソフト化が、この転移の特徴である。¹⁾(Fig. 1, 2)

この実験結果の解釈については、マルテンサイト歪が高い T_c をつくる原因となっているとする説、狭いバンドにあるフェルミ面附近の電子が、高い T_c を作り、同時に、マルテンサイト歪をも作っているとする説²⁾等、未だ、いずれも定説となるに到っていない。しかし、何れにしても、このマルテンサイト転移と、高い T_c との間には密接な関係があることは、確かであり、中性子散乱による格子波の研究は、A15型結晶の物性の解明に、重要な役割を演じるものと思われる。

(2) Nd-Fe-B系永久磁石

永久磁石材料として、従来、最も強力とされてきたのは、Fe-Co-Niを中心とした磁石であり、永久磁石としてのエネルギー積 $(BH)_{\max}=8\text{ MGOe}$ であった。これに対し、15年前に見出された $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ を中心とした磁石では $(BH)_{\max}=20\text{ MGOe}$ が実現し、稀土類元素を用いた強力な永久磁石のページが開かれた。この磁石は、強力ではあるが、SmおよびCoの自然界における存在比が、小さいため、高価であり、その用途は、限られていた。

1984年に、我国で開発され製品化されたNd-Fe-B系磁石では $(BH)_{\max}=30\sim40\text{ MGOe}$ が達成されたばかりでなく、Feを主原料とし、また稀土類の中では安価なNdを用いるため、高性能で、しかも安価である点で、画期的な永久磁石として注目を集めている。現在、この分野での世界の眼は、この磁石の主成分である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ および、その関連物質の研究に向けられており、その中であって、中性子回折も、その威力を発揮している。(Fig. 3)まず、粉末試料を用いた回折パターンに、プロファイル解析の手法を用いて、結晶構造の解明を行った。³⁾また、各原子サイトでの、磁気モーメントの大きさは、単結晶についての、偏極中性子回折により求めら

れた⁴⁾ (Table 1) 更に, FeをCoで置換してやると, 強磁性キュリー温度が上昇し, 温度特性が改善されるが, このとき, Coは6種あるFeの, どの位置に置換するかは, 興味あるところであるが, 中性子回折により, 各原子位置に, ほぼ等しい割合で入ることがわかった。⁵⁾ また, 磁場に対する磁気モーメントの傾きの様子から, 磁気異方性の起源が推測できる。これら全ての点において, 中性子回折は他の手段では得られない重要なデータを提供した。

参 考 文 献

- 1) J.D. Axe and G. Shirane : Phys. Rev., B8, 1965 (1973).
- 2) M. Kataoka : Phys. Rev., B28, 2800 (1983).
- 3) J.F. Herbst, J.J. Croat, and F.E. Pinkerton : Phys. Rev., B29, 4176 (1984).
- 4) D. Givord, H.S. Li, Tasset : J. Appl. Phys., 57 (1985) No.8 (in Press).
- 5) Y. Yamaguchi, K. Ishimoto, H. Yamamoto, S. Hirose, and M. Sagawa : Sol. Stat. Commun.; (to appear)

Table 1. Value of the magnetic moments in $Y_2Fe_{14}B$ and $Nd_2Fe_{14}B$ obtained by polarized neutron diffraction, Mössbauer effect and band calculation.⁴⁾

	Atom	magnetic moment (μ_B)							
		R_1	R_2	Fe_1	Fe_2	Fe_3	Fe_4	Fe_5	Fe_6
	Symmetry	4f	4g	4e	4c	8j	8j	16k	16k
Polarized neutrons	$Y_2Fe_{14}B$ $T = 4.2$ K	-	-	2.15	1.95	2.40	2.80	2.25	2.25
	$Y_2Fe_{14}B$ $T = 250$ K	-	-	2.00	1.90	2.15	2.65	2.15	2.15
	$Nd_2Fe_{14}B$ $T = 4.2$ K	2.30	2.25	2.10	2.75	2.30	2.85	2.60	2.60
Fe Mössbauer	$Nd_2Fe_{14}B$ 80 K			2.41	2.52	2.07	2.37	2.20	2.37
	$Nd_2Fe_{14}B$ 300 K			2.14	2.51	1.90	2.33	1.96	2.10
band calc.	$Nd_2Fe_{14}B$			2.42	2.49	2.33	2.61	2.40	2.40

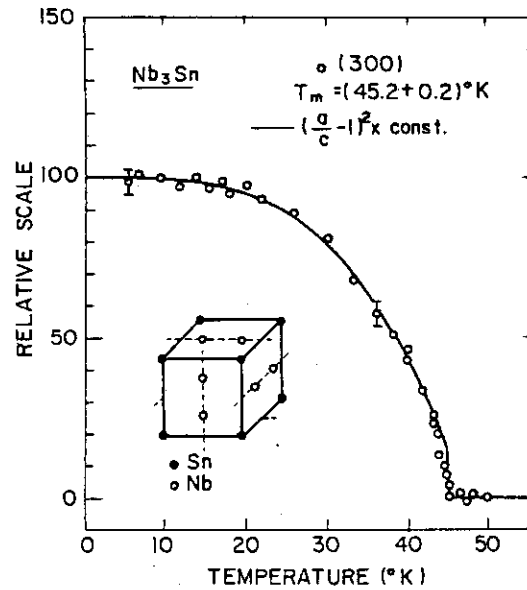


Fig. 1 Temperature dependence of the tetragonal distortion and the atomic displacement from cubic symmetry in Nb_3Sn .¹⁾

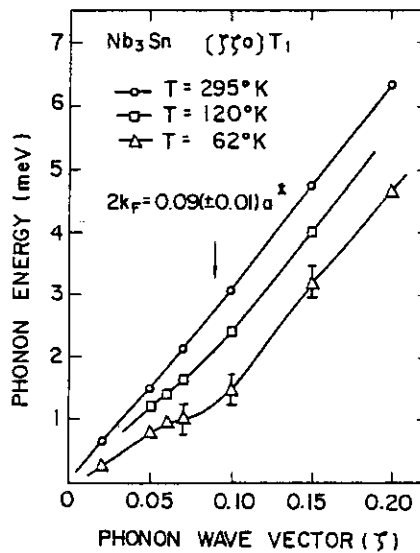


Fig. 2 Temperature dependence of the phonon dispersion relation in Nb_3Sn .¹⁾

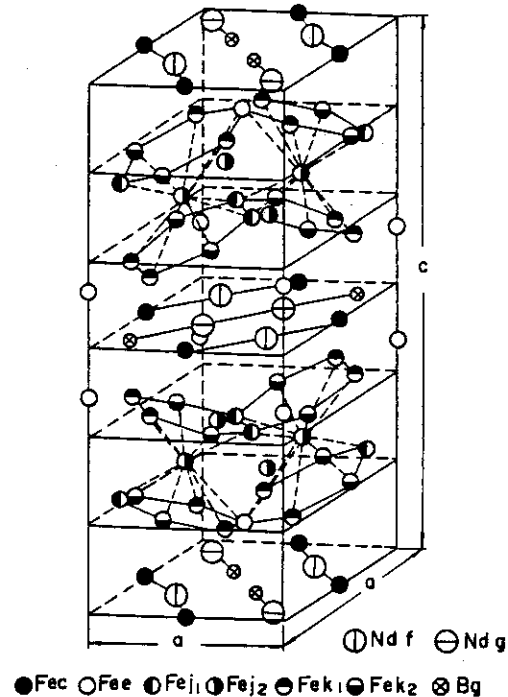


Fig. 3 Crystal structure of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. Lattice parameters are $a=8.80\text{\AA}$ and $c=12.19\text{\AA}$. This figure is elongated along c -axis to emphasize the puckering of the hexagonal iron nets. This structure was obtained from the powder neutron diffraction pattern by use of profile analysis method.³⁾

3.5.1(6) ファイン・セラミックス

原研燃料工学部 大野英雄

セラミックス材料は金属材料に優るとも劣らない重要な材料となり得るが、核燃料物質あるいは黒鉛などわずかな物質を除いて、原子力分野における研究と利用は日が浅く多くの研究課題が残されている。このなかで酸化ジルコニウム (ZrO_2) に関与するいくつかの話題についてのべてみたい。

(1) ZrO_2 における正方晶/単斜晶変態

純粋な ZrO_2 は融点 (約 $2700^\circ C$) 近傍ではホタル石型立方晶構造をとるが、冷却中におよそ $2370^\circ C$ で正方晶に変態し、さらに $900^\circ C$ 近傍で単斜晶へと変態する。この正方晶/単斜晶変態 ($t \rightarrow m$ 変態) がマルテンサイト的であることが Wolten¹⁾ により示され、その後多くの研究成果が報告されている。なかでも Whitney²⁾ によりなされた研究は純粋な ZrO_2 の $t \rightarrow m$ 変態の kinetics と mechanism を解明するのに興味ある結果を含むものである。高温で安定な正方晶は条件によっては常温でも準安定状態で存在し、時間および温度により単斜晶へと変化する。X線回折によりなされた結果を Fig. 1 に示す。準安定正方晶 ZrO_2 の単斜晶への変態は Avrami あるいは Order-disorder rate モデルのいずれを用いても十分説明できるものである。

(2) 部分安定化ジルコニア

1975年 Garvie³⁾ らによって $CaO-ZrO_2$ 系における部分安定化ジルコニア (Partially Stabilized Zirconia: PSZ) の機械的性質が検討され、この系の正方晶/単斜晶のマルテンサイト変態が破壊エネルギーの吸収に利用されて以来、PSZ の Stress-Induced-Phase-Transformation (応力変態: SIPT) による高じん性特性が注目され始めた。同様な効果は、 MgO -あるいは Y_2O_3 -PSZ でも確認されている。

CaO -PSZ が立方晶マトリックス中に微細正方晶を分散析出させるのに対し、 Y_2O_3 -PSZ は微細結晶粒度の正方晶をマトリックスとするものである。 Y_2O_3 -PSZ において焼結温度を $1400^\circ C$ 以上にすると単斜晶が急増し、単斜晶が 70 ~ 90 % に増加すると急激に強度が低下する。この系は正方晶の結晶粒度が $0.3 \mu m$ を越すと単斜晶が急激に増加する。高温安定相の正方晶が準安定の状態でも常温で存在する理由については、隣接する他の結晶から受ける圧力や、 Y_2O_3 の添加による変態点の低下などが考えられている。

一般的に SIPT-PSZ についてはその特性が鋼のマルテンサイトに比較されるが、その研究は鋼のそれにくらべて浅い。言いかえれば、SIPT-PSZ の研究は極めて初期段階でその材料特性はいまだ不明の部分が多い。

たとえば、最近の井村ら⁴⁾の研究によると正方晶/単斜晶変態はマルテンサイト変態機構のみでは説明できず、空気中の酸素あるいは窒素の試料内部への拡散が Y_2O_3 -PSZ の正方晶/単斜晶変態に大きな影響を与えている結果を得ている。すなわち、 10^{-4} Torr 程度の真空中では変態量が極めて小さくなることが示されている。

この正方晶/単斜晶変態の機構に関しては、(1)でのべた純粋な ZrO_2 および $MgO-ZrO_2$ 、 $CaO-ZrO_2$ あるいは $Y_2O_3-ZrO_2$ 系などに関し、不純物濃度、雰囲気、外部圧力あるいは電場などをパラメータとした中性子線回折の研究を進めれば、より詳細で動的挙動にも関する知見が得られるであろう。

(3) 安定化ジルコニア

安定化ジルコニアは酸素イオン導電体として、高温水蒸気電解用電解質としての応用が考えられているが、酸素イオンの拡散に関し、安藤⁵⁾により興味ある結果が報告されている。Fig. 2 に結果を示す。1300℃以上の高温領域は、ホタル石型立方晶1相領域内であるにもかかわらず、拡散係数の温度依存性には1400℃付近に屈曲点が認められ、これは低温で存在している規則格子の消失と関連づけられている。しかしCaO-ZrO₂系を含む各種安定化ジルコニアにおける高温でのorder-disorder転移の中性子線回折による直接的証明はなされていない。

安定化ジルコニアに関するもう一つの興味ある研究が堀内らにより、イットリア安定化ジルコニア(YSZ)に直流電圧を印加し行われた。Fig. 3に765℃で7.8ボルトの直流電圧を負加し、9~10 mAのO²⁻イオンを流している状態で得られた回折像ならびに酸素原子の球状分布からのずれを示す。これらの結果から、直流電場を与えた状態ではO²⁻は酸素欠陥を介して<100>方向に移動すると推測されている。

以上簡単に酸化ジルコニウム(ZrO₂)に関する興味ある内容についてのべたが、中性子線回折と他の動的挙動解析手法、たとえば核磁気共鳴、を併用すればより明確な考察が行えるものと考えられる。

参 考 文 献

- 1) G.M. Wolten : J. Am. Cer. Soc., 46, 418 (1963).
- 2) E.D. Whitney : Trans. Faraday Soc., 62, 1991 (1966).
- 3) R.C. Garvie, R.R. Hugan and R.T. Pascoe : Nature, 258 (1975) 703.
- 4) 黒田光太郎, 坂 公恭, 井村 徹, 飯尾 聡, 渡辺正一 : 日本金属学会春期大会一般講演概要, p. 220 (1985. 4).
- 5) 安藤 健, 大石行理 : セラミックス, 17, 412 (1982).
- 6) 堀内弘之, 川田 功 : セラミックス, 19, 658 (1984).

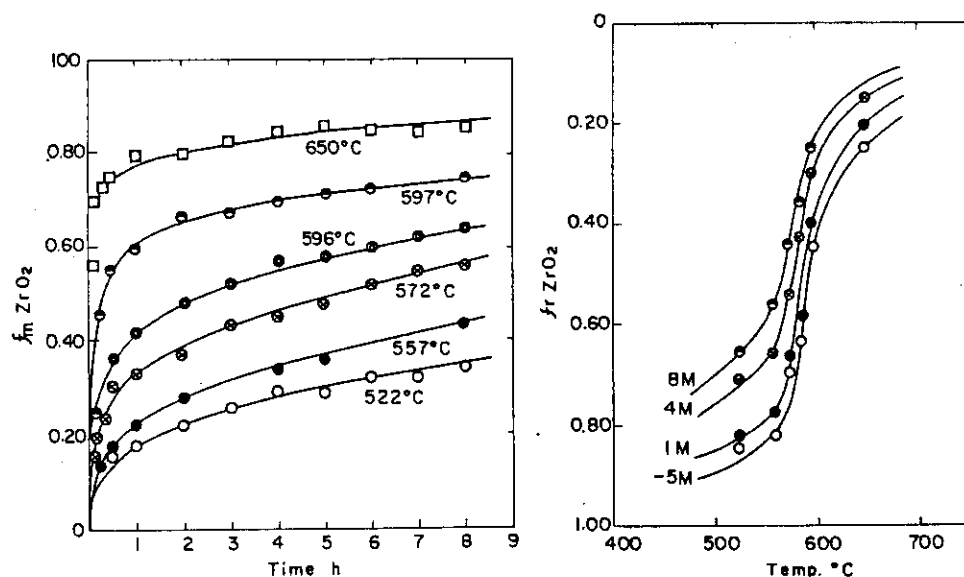


Fig. 1 Phase transition of ZrO₂ from tetragonal to monoclinic phase.

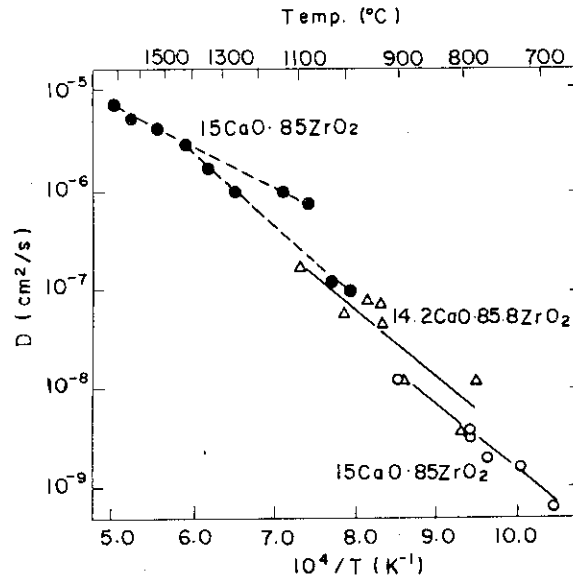


Fig. 2 Self-diffusion coefficients of oxygen ion in CaO-stabilized zirconia.

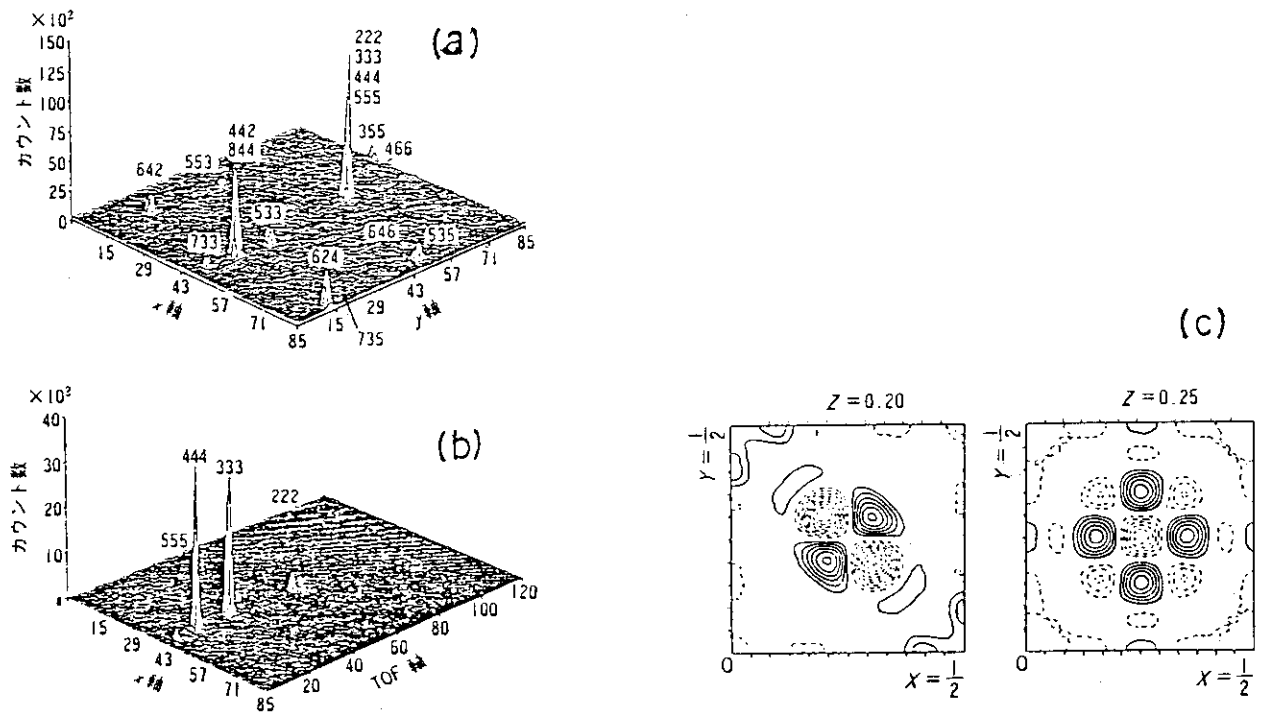


Fig. 3 Neutron diffraction of YSZ single crystal.
 (a) Bragg reflection for the wave length from 0.7 Å to 3.6 Å.
 (b) Splitting of hhh reflection.
 (c) Displacement of oxygen from symmetrical distribution in YSZ at 765°C under D.C. 7.8-Volt.

3.5.1(7) セメント

原研物理部 井上健治

セメントは現在用いられている固體材料の中で、かなり特異な位置を占めている。それはカルシウム、アルミニウムの珪酸塩、硫酸塩、鉄の酸化物等により或る複雑な多相系であるが、これはそのまゝでは強度を発現することはできない。これに水を加えて加水反応を起させ、種々の含水珪酸塩、水酸化物、酸化物、硫酸塩等の結晶相と、複雑な成分、構造を持つ非晶質相より成る、多相系を作ることによって、はじめて固體材料としての機能をそなえるに至る。さらに、この固體材料の特性は加水反応が終結した時点から数10年にわたってゆっくりと変化して行く。こゝでは、他の材料には見当らない材齢という概念が使われる。これは他の材料における経年変化という概念よりもっと積極的なものである。

このようなセメント材料の特性をまとめるものは、この複雑な多相系の各成分の構造（結晶構造と非晶質構造）と、各成分固體の空間的なからまり合い（組織）である¹⁾。この構造と組織が、加水反応の開始とともにどのように変化して行くかを、実時間をもって追跡して行くことは、セメント材料への基礎研究として第一に考えられることである。加水反応によって硬化したセメント中に見出される結晶相のあるものは、天然の岩石中に見出されるがそうでないものもある。これらの結晶構造はすでに1930年代においてJ. D. Bernalの唱道にもとづいて、彼の共同研究者たちによってその解析がなされているが、¹⁾まだ構造のわかっていないものもある。とくに非晶質相については何もわかっていないと言っている。また、これら結晶相のあるものは固溶体系列を形造るが、これら固溶体結晶の構造についてはGuinierをはじめとして何人かの研究者による散発的な研究があるのみである。

加水反応による結晶相の構造変化を回折結晶学の手法を使って跡づけることが、最近になって試みられるようになったのは注目される。水分子が強く関与する現象であるので、通常の水を重水でおきかえて中性子回折を用いる方が、よく使われるX線回折よりもはるかに明瞭な情報を与える。最近なされたこの種の実験を次に紹介する。

ポルトランド・セメントはTable 1に示すような固體相の混合物である。これらの各々を合成し、それらの加水反応に伴う構造変化を追跡することが試みられた。純正試薬CaO, Al_2O_3 , SiO_2 , Fe_2O_3 等を化学当量比に混合し、500 MPaの圧力下で帯熔融、焼結を行った。生成したものについて通常のX線回折実験が行われ、それぞれTable 1中の所定の固體相が生成していることがたしかめられた。これらと D_2O とを一定の重量比でV-容器中で混合し、その中性子回折強度を5～10分きざみで、ほぼ定常状態に到達する10時間程度にわたって測定した。

Laue-Langevin研究所のD1B回折装置が用いられた。観測されるBragg反射は出発固體相よりのものと、加水反応による生成相のものよりとがあるが、これらをJCPDS index fileにより指数づけし、これら両相それぞれよりのBragg反射積分強度の総和が、それぞれの相の存在比をあらわすものとして、反応時間、反応温度の関数としてこれらをプロットした。一例としてC₃Aの加水反応についてのものをFig. 1に示す。白抜き及び十字が反応生成物、黒が出発物質の量をあらわす。他の反応系では曲線の傾斜が著しく異なることが観測されている。

固化したセメントの物性を支配するもうひとつの要素は、上述したように共存する固相の作る組織(texture)である。組織の中で重要なものに固化セメント内での粒子とその間に作られる

空隙の存在がある。空隙や粒子の分布状態についての情報は中性子小角散乱 (SANS) によって得られる。Laue-Langevin の D 11-SANS を用いて最近行われた実験のひとつを次に紹介する。

ポルトランド・セメントに加水した後、一定時間経過後の SANS 強度の変化を第 2 図に示す。縦軸は散乱強度より導かれた散乱断面積に Q^4 ($Q = 4\pi \sin \theta / \lambda$) を掛けたものを対数尺度でプロットしたものである。加水前の強度分布 (Powder) が Q^{-4} に比例することは、ここで測定された SANS 強度がセメント・クリンカーと空隙の間の界面の総面積に比例するものであり (Porrod の法則)、クリンカー粒子の寸法は大きすぎて、クリンカーの形や大きさに関する情報はここで測定される Q の範囲よりはるか内側での強度分布からでなくてはよみとれない。加水反応が十分進んだ段階 (28 Day) では SANS 強度分布が Q^{-4} 則からずれることは、個々の粒子の寸法が小さくなり、個々の粒子の形や大きさに関する情報がここで測定された SANS 強度分布に反映していることを示す。とくに強度分布が Q^{-D} ($D \approx 3$) であらわされているということは、固化したセメントの中での粒子の分布がいわゆるフラクタル系を形造っていることを示唆していると見做される⁴⁾。これら 2 つの極端の間で SANS 曲線は複雑な振舞いを示すが、ここにはセメント固化とそれに伴う強度発現の機構に関する重要な情報がふくまれている筈である。この領域の系統的な測定が強くのぞまれている所以である。

Fig. 2 の SANS においては寸法が $100 \sim 600 \text{ \AA}$ 程度の粒子の振舞いが読みとれる。それよりもっと大きい粒子の分布に関する情報は Q のもっと小さい領域、いわゆる極小角中性子散乱 (VSANS)⁵⁾ の領域にあらわれる。VSANS 領域はすでに光学顕微鏡、電子顕微鏡の領域と重なるが、後者がひとつひとつの粒子の形や寸法を直接に観察するのに対し、前者は粒子全体の作る集合の統計的特性 (例えば寸法の分布関係) を与えるので、この両者の与える情報はたがいに相補的である。中性子を用いて個々の粒子の形を直接観察する手段としては、中性子トポグラフィがある。

参 考 文 献

- (1) 土井：清水建設㈱技術研究所，所内講演会記録 (1984)。
- (2) A. Nørlund Christensen：HMI-B-411 (Hahn Meitner Institut, 1984), p.58.
- (3) A.J. Allen & D. Pearson：Proc. Risø Symposium, p.175 (1984)。
- (4) T. Takahashi, H. Tomimitsu, Y. Ushigami, S. Kikuta, K. Doi & S. Hoshino：Physica 120 B, 362 (1983)。

Table 12²⁾ Compounds investigated, formula and short notation

$\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$: C ₃ A	CaAl_4O_7 : CA ₂	Ca_3SiO_5 : C ₃ S
$\text{Ca}_5\text{Al}_6\text{O}_{14}$: C ₅ A ₃	$\text{Ca}_2\text{AlFeO}_5$: C ₄ AF	$\beta\text{-Ca}_2\text{SiO}_4$: $\beta\text{-C}_2\text{S}$
CaAlO_4 : CA	(Brownmillerite)	

* 最近、弾性変形をおこしやすくしてバネを作ることができるというので話題となったセメントが発表されたが、³⁾これは固化したときの空隙を制御することによって実現したものである。

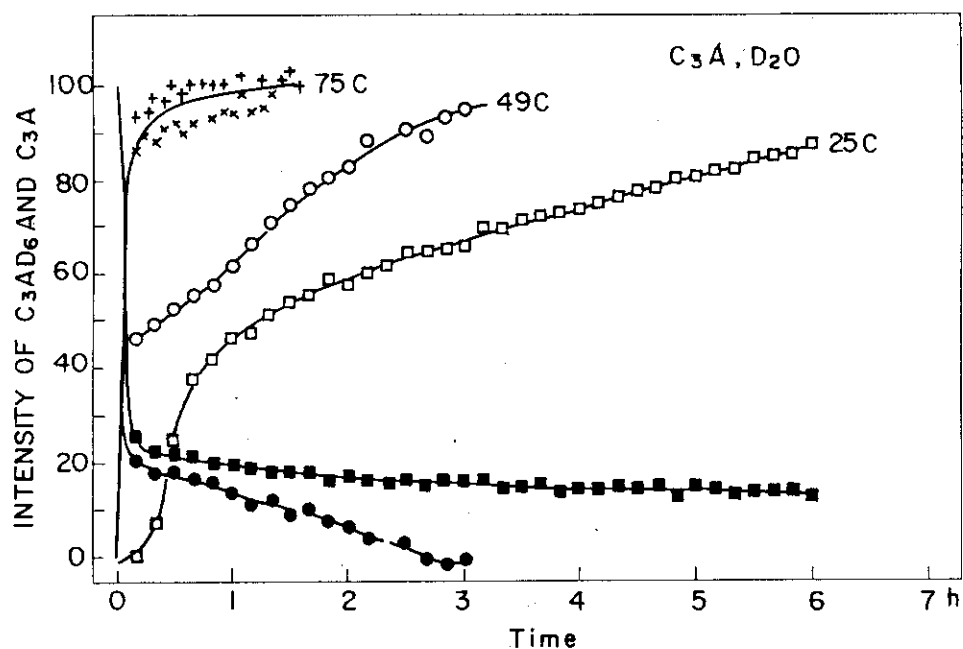


Fig. 1 Intensity of $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{OD})_{12}$ ($\times$, $+$, $\circ$, $\square$) and $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$, ($\bullet$, $\blacksquare$) vs. time for the reaction of $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ with D_2O at 75, 49, and 25 °C.²⁾

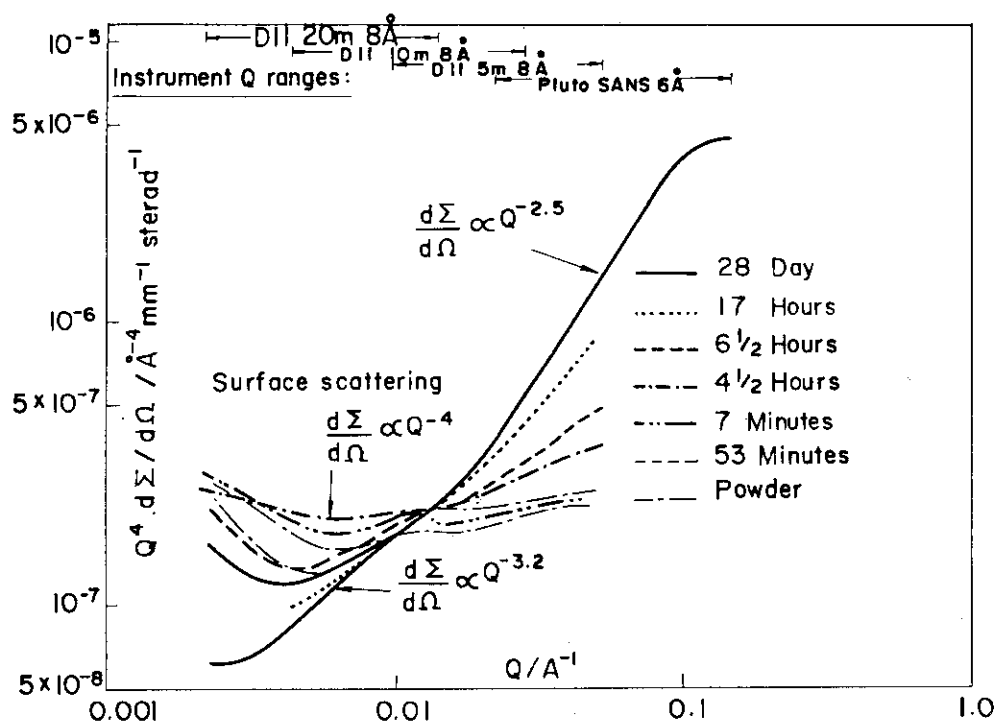


Fig. 2 $\text{Log} [(d\Sigma/d\Omega)Q^{-4}]$ vs $\text{log}Q$ for SANS data from anhydrous cement powder, 7 mins, 53 mins, 4½ hours, 6½ hours, 17 hours and 28 day old 0.4 w/c cement. Note the change from Porod Q^{-4} scattering which occurs after a dormant period of 2 hours.³⁾

3.5.1(8) 形状記憶合金に関する最近の研究動向

東北大金研 梶谷 剛

形状記憶合金は1963年米海軍研究所のBuehlerらによって発見された。最初に発見された合金はTiNi合金だったが、以降、銅基合金、すなわち黄銅系、青銅系、Al青銅系および銅金合金や金ないし銀基合金にも形状記憶現象が見出されている。最近京大のグループによって実用性の高い鉄マンガン系合金の形状記憶材料も開発された。政府は通産省を通じて形状記憶材料の企業における研究に資金援助している。Table 1は各種形状記憶材料の熱的性質を示すものである。

TiNi合金は加工性、耐食性あるいは人体への適合性が他の形状記憶合金より優れていることから、高い加圧状態で用いる管の継手、電気回路結線用端子、歯科矯正用金属線、骨矯正用金属棒として実用化が始まり、最近ではバイメタルに代わる温度感受性素子として建築資材に使用されたり軽量の産業用ロボットの筋肉としても用いられている。

形状記憶現象は試料を M_s 温度以下で塑性変形すると、変形量に応じた量のマルテンサイト相が析出するというマルテンサイト変態の特徴を生かしたものである。従って形状記憶合金に関する研究は従来のマルテンサイト変態の研究の一分野であると認識され、研究の主な流れはマルテンサイト晶と母相との結晶方位関係、マルテンサイト晶の構造決定、あるいは温度、熱処理条件、または添加元素量をパラメーターとする試料の機械的性質、とりわけ引張挙動の変化に向けられてきた。形状記憶材料の実用化が進むにつれて頭の痛い問題となっている繰返し変形による疲労破壊や製品として製造する場合の加工性についても開始されている。形状記憶合金を管の継手として用いると短時間で信頼性の高い接合ができるので原子力発電所や航空機にも形状記憶合金継手が用いられているが、そのような苛酷な使用条件では放射線による機械的性質の劣化や水素による脆化が大問題となる。

形状記憶合金に関する工学的研究が強力に進んでいる反面、形状記憶性を与える原因となっている熱弾性マルテンサイト変態に関する基礎的研究は余り活発ではない。マルテンサイト変態やオメガ変態のような無拡散型構造変態には超電導現象の発現と同様に何らかの形で電子-音子(ないし格子変形)相互作用が関与していることは多くの研究者の指摘する所である。高い超電導転移点をもつ Nb_3Sn や V_3Si ではマルテンサイト変態と超電導転移とがほぼ同じ温度領域で起こる。しかし、これらの相変態は種類の異なる相互作用で起こるらしく、化学組成の多少異なる試料ではマルテンサイト変態が抑圧されるが超電導転移はほぼ同一の温度で起こることがある。

また、超電導状態の試料はマルテンサイト変態しないがマルテンサイト相の試料は超電導転移することも知られている。Fe-Pt合金はマルテンサイト変態と磁気変態の双方を起こす。この場合もマルテンサイト変態と磁気変態は相互作用しないように見える。Fe-Pt合金では磁気変態が起きても起きなくてもマルテンサイト変態が起きる。熱弾性マルテンサイト変態は二次相変態に近い上に母相の弾性的性質が異常である場合が多い。例えば、熱弾性マルテンサイト変態を起こすことの知られているCuZnAl及びCuAlNi合金の弾性異方性、 $2C_{44}/(C_{11}-C_{12})$ はそれぞれ14.8と11.9にも達しており、純金属の数倍の値を示している。しかし、形状記憶合金として良く知られているTiNi合金の弾性異方性が2.1という純金属並の値を示す場合もある。母相の弾性的性質は構造相変態によって生成する相の結晶対称性と深い関連をもつと考えられ、中性子回折実験によって母相の弾性的性質を詳細に求め、母相中の電子-音子(ないし格子変形)

相互作用に関する新しい知見を与える努力をする必要がある。具体的には、phonon 分散の温度依存性の測定、各構成原子の非等方性 Debye - Waller 温度因子の温度依存性や弾性変形量依存性の測定等をたねんに行う時期にきている。形状記憶合金は In-Tl や Fe-Mn 系を除くと長範囲規則性をもっている。この事からマルテンサイト変態、特に熱弾性マルテンサイト変態と Charge - Density - Wave の関係を議論する研究グループもある。確かに形状記憶合金の透磁率はマルテンサイト変態開始温度付近で多少異常性を示し、TiNi 合金では化学組成によって incommensurate 相が現れ、これがマルテンサイト変態を起こす。熱弾性マルテンサイト変態によって生成する相は母相が単純な規則構造でも、多くの場合、長周期積層構造をもち、マルテンサイト変態によって母相が均一なせん断変形を受けると同時に特定の結晶面が周期的な変位も受ける。Fig. 1 はその一例を示す。母相は DO_3 ないし CsCl 構造であり、生成相は orthorhombic 相である。この現象に CDW が関与していることを調べることも興味のあることである。

形状記憶合金の中性子回折による工学的研究としては、試料の繰返し使用による母相中の残留マルテンサイト量の変化、試料の塑性変化に伴う集合組織の発達過程、母相中の微細な析出粒子の粒径測定や粒子近傍の歪場の測定をあげることができる。中性子回折に用いる試料は X 線回折に用いる試料に比較して大きく、実用状態の試料をそのまま手を加えずに使えるという大きな利点がある。測定温度に依存した性質を見る場合や弾塑性変形を加えながら回折実験を行う場合にも試料周辺の装置の設計製作が容易であることは中性子回折の著しい利点である。中性子小角散乱実験は炭素・窒素及び水素のように軽元素で、しかも金属の機械的性質にとって決定的な影響を与える元素の析出現象等を明瞭にとらえることができるため形状記憶材料中の析出物の研究にも有用である。

Table 1 Transition temperature and atomic compositions of shape memory alloys.*

合金系	組成 (原子%)	Ms(°C)	As(°C)
TiNi	Ti-50Ni	60	78
	Ti-51Ni	-30	-12
	Ti-20Ni-30Cu	80	85
	Ti-47Ni-3Fe	-90	-72
Cu-Zn	Cu-39.1Zn	-120	—
	Cu-11.9Zn-17.1Al	146	—
Cu-Al	Cu-28.5Al-4.0Ni	-140	-109
	Cu-27.8Al-3.8Ni	2.5	20
Cu-Au-Zn	Au-21Cu-49Zn	-153	—
	Au-29Cu-45Zn	57	—
Cu-Sn	Cu-15.3Sn	-41	—
Ni-Al	Ni-36.6Al	60	—
Ag-Cd	Ag-45Cd	-74	-80
Au-Cd	Au-47.5Cd	58	74
In-Tl	In-21Tl	60	65
In-Cd	In-4.4Cd	40	50
Fe-Mn	Fe-28.7Mn-11.2Si	80	125

* 本間敏夫：日本金属学会報，24，20（1985）。

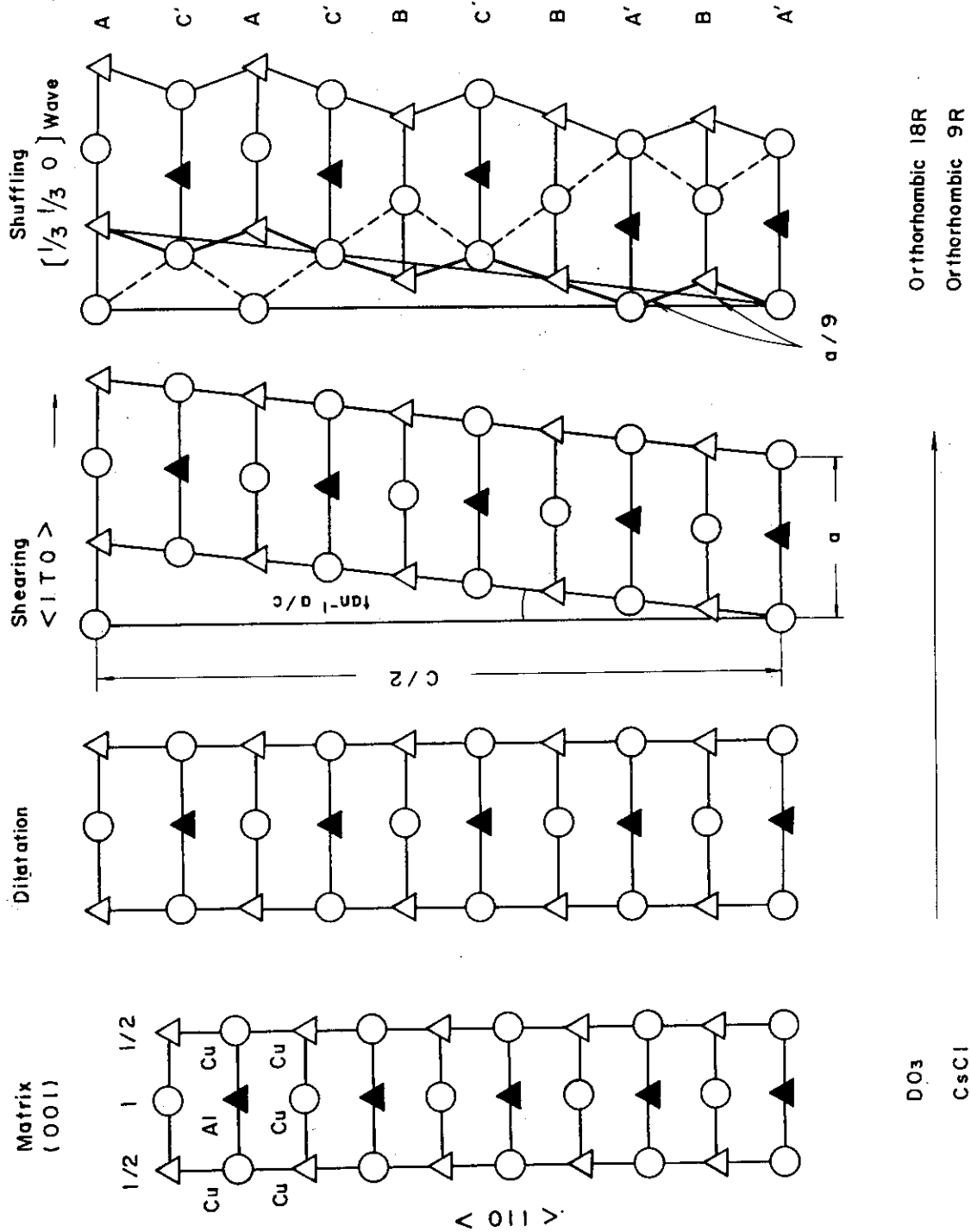


Fig. 1 Lattice deformation models of martensitic transformation from DO₃ and CsCl type structures.

3.5.1 (9) ゼオライト

豊橋技術科学大学 高石哲男

ゼオライトの組成は $(M_I, \frac{1}{2} M_{II})_m (AlO_2)_m (SiO_2)_n \cdot xH_2O$ と書け、骨格の概形を変えることなく H_2O を可逆的に脱吸着できる。骨格構造の研究には中性子回折、ゼオライト水と吸着ガスの研究には回折と非弾性散乱の測定が有用である。2つに分けて説明する。

(1) 骨格構造

Si と Al を X 線で識別するのは困難であるから、中性子回折を利用することは誰でも考えるが、中性子回折が威力を発揮したのは 1981 である。A 型ゼオライトは、ゼオライト中最も単純な構造で cubic とされていた。Cambridge グループは Laue-Langevin 研の D1A スペクトロメーターを用い、 $Na_{12}-A$ (脱水) が低温でロンボヘドラルに転移することを発見した。¹⁾ 「X 線回折であれだけ徹底的に研究されたのに、相転移は見つからなかった。相転移は本当か？」と考える人が追試をした。^{2), 3)} Harwell の炉心では、相転移は観測できなかった。²⁾ Brookhaven のスペクトロメーターでは相転移点を 335 K と決定できた。³⁾ 相転移では、元の軸間角 90° が 0.4° ズレるだけであり、その検出は容易ではない。それは (800) ピークの分裂となって現れるが、L-L 研以外のスペクトロメーターでは分裂は不明確である。 $Na_{12}-A$ より $Na_{10}Ca-A$ ゼオライトの方が相転移が判っきりするとの観点から、筆者と飯泉は東海原研で予備測定を行い、(800) ピークが僅かにショルダーを持つことから、ロンボヘドラル相の存在を認めた。 $Na_{10}Ca-A$ は温度 330 K と 490 K とに 2 つの転移点がある (比熱測定より)。 $R3C \leftrightarrow R3C \leftrightarrow Fm3C$ と変化するものと考えられるが、⁴⁾ 東海原研のスペクトロメーターではどこまで詳しく解析できるか心もとない。Laue-Langevin 研のスペクトロメーターに匹敵するものが必要である。

$Na_{12}-A$ をイオン交換して作った $Tl_{12}-A$ 、 $Ag_{12}-A$ ゼオライトでは、ロンボヘドラル相が出ない。⁵⁾ また、A 型ゼオライトでは $[Si]/[Al]$ 比は 1 であるが、同じ構造でこの比の大きいものを ZK-4 と呼んでいる。A 型では、Al と Si は交互に配列しており、完全な order を作っているが、 $[Si]/[Al] > 1.70$ の ZK-4 では長距離 order は無くなる。⁵⁾ $Na-A$ ゼオライトについては、パラメータも多くなり A 型ほど断定的な結論は得にくい。

最近、板橋らは $[Si]/[Al]$ 比が 8~20 のモルデナイトの合成に成功した。⁶⁾ これらの結晶中の Al、Si 配置のローカル・オーダーは ^{29}Si -magic angle spinning NMR から分った。X 線回折線強度パターンは $[Si]/[Al]$ 比に強く依存するが、Al の配置を直接決定することが出来ない。中性子回折研究が望まれる。

(2) 吸着分子とゼオライト水

Cohen de Lara らは $Na_{12}-A$ 、 $(Ca, Na)-$ ゼオライトに吸着した CH_4 (CD_4) の中性子散乱と回折の測定を行っている。⁷⁾ 弾性インコヒーレント構造因子 $A(Q)$ の逆フーリエ変換から、メタン分子の運動空間を求めると、300 K では、 $R = 3.5 \text{ \AA}$ の球となる。Fig. 1 から分る通り、メタンはゼオライト空間の全域を動き回っていることになる。240 K 以下になると、分子は漸次ローカライズされ、80 K では完全にサイトにトラップされる。トラッピング・エネルギーは $2.4 \text{ kcal} \cdot \text{mole}^{-1}$ となり、赤外分光から求めた値と一致する。

一方、中性子回折では、300 K においてはメタンの位置は決められない。ダイナミック・データーを参考にして、 $3.5 \text{ \AA}$ の球内に一様に分布しているとすれば、回折データーと完全に一致す

る。40 Kでもメタン分子が回転しているとして、メタンの位置を求めるとNaⅡとNaⅢの間にトラップされている。

ゼオライト水は骨格に強く結合しており、その性質の解明はイオン交換、化学吸着、触媒能等の理解に役立つ。ゼオライト水の熱力学的データは蓄積されつつあるが、その構造研究は緒に附いたばかりである。

シカゴ大学のJ. V. Smithらは天然水和ゼオライト即ち edingtonite⁸⁾, scolecite⁹⁾, natrolite¹⁰⁾, thomsonite¹¹⁾の構造を決めた。試料は大きな単結晶であるから、4軸回転スペクトロメーターを用い、Missouri大学の原子炉やBrookhavenの高フラックス・ビーム炉を利用している。化学で重要な合成ゼオライトの大きさは、最大100 μ mであるから、単結晶法は適用できない。Rietveldプロファイル解析法を利用せざるを得ない。一般と角度分解能の優れたスペクトロメーターが必要となる。欧米ではゼオライトの中性子回折の研究が急激に増加しているが、日本では皆無に近い。ゼオライトの工業的重要性を考えると、遅れを取り戻す必要を痛感する。

参 考 文 献

- 1) L.A. Bursil, E.A. Lodge, J.M. Thomas and A.K. Cheetam : J. Phys. Chem., 85, 2409 (1981).
- 2) J.M. Adams, D.A. Haselden and A.W. Hewat : J. Solid Chem., 44, 245 (1982).
- 3) J.M. Bennett, C.S. Blackwell and D.E. Cox : J. Phys. Chem., 87, 3783 (1983).
- 4) T. Takaishi, T. Ohgushi and K. Nonaka : Proc. Intern. Symp. Zeolites, (Portorose, Yugoslavia, 1984) Elsevier, in press.
- 5) A.K. Cheetam and M.M. Eddy : "Intrazeolite Chemistry", ACS Symp. Series 218, p.131 (1983).
- 6) K. Itabashi, et al. : Zeolite, in press.
- 7) E. Cohen de Lara and R. Kahn : Proc. 6th Intern. Zeolite Conf. (Reno, U.S.A., 1983) p.172.
- 8) Å. Kvich and J.V. Smith : J. Chem. Phys., 79, 2356 (1983).
- 9) J.V. Smith, J.J. Pluth, G. Artioli and F.K. Ross : Proc. 6th Intern. Zeolite Conf. (Reno, U.S.A., 1983) Butterworth, p.842.
- 10) G. Artioli, J.V. Smith and Å. Kvich : Acta Crystallogr., C40, 1662 (1984).
- 11) J.J. Pluth, J.V. Smith and Å. Kvich : Zeolite, 5, 74 (1985).

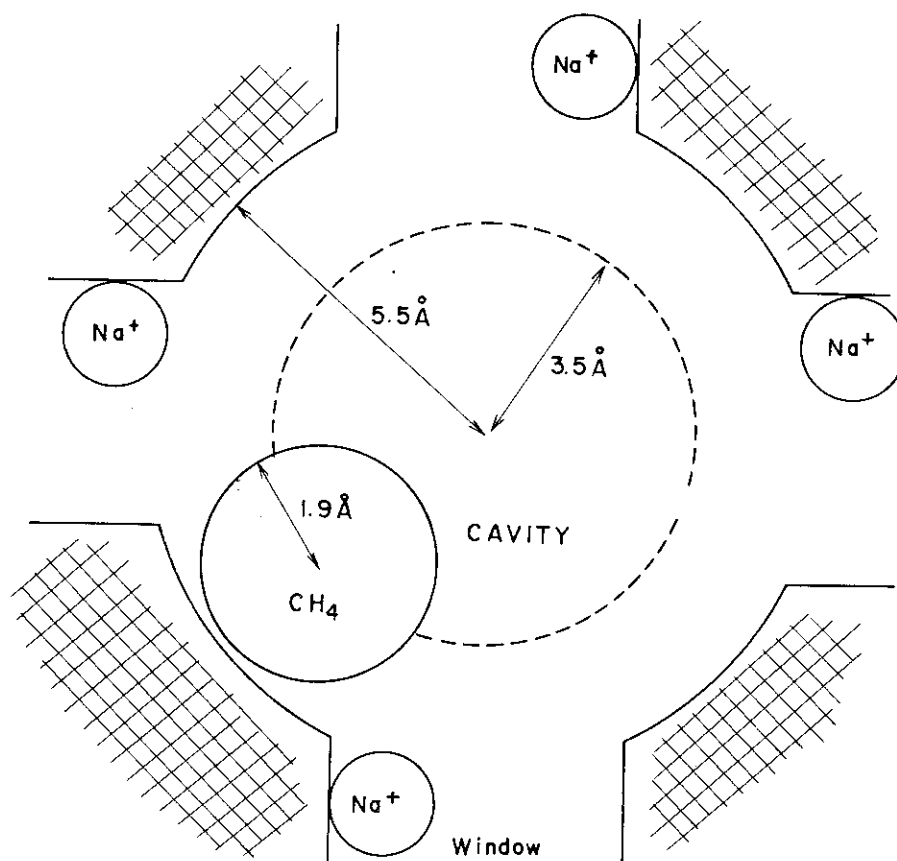


Fig. 1 Geometry of a cavity of Na₁₂-A zeolite and CH₄ sorbed in it. Sphere with a radius of 3.5 Å, located at the center of the cavity, shows a region in which the center of mass of CH₄ is uniformly distributed at 300K.

3.5.2 非平衡相転移とゆらぎ

3.5.2(1) 1次相転移の過程とスケーリング則

阪大基礎工 山田安定

(1) 1次相転移のパターン形成過程

固体の相転移現象は、わずかな外部条件の変化で目覚ましい巨視的状态の変化がおこるから、常に物性物理学の中心的課題のひとつであった。2次の相転移では熱平衡を保ったまま、いくらでも臨界点に近づけるから、平衡状態と、せいぜいその周辺の線型ゆらぎの統計的性質を問題にすればよく、その立場から相転移が議論されてきた。これに対して1次の相転移は準安定状態から基底(安定)状態への転移である。すなわち非平衡状態から平衡状態への時間的変化の過程の問題であり、しかも非線型性が本質的な役割を演ずるという困難がある。このため、2次相転移にくらべて理解がおくれていたが、最近ようやく活発な研究の対象となってきた¹⁾。

1次相転移にあらわれる新たな局面のひとつは、系を homogeneous と考えてよい2次相転移とは異なり、(始状態、終状態は homogeneous であっても)相転移の過程で秩序パラメータの heterogeneous な分布にもとづく空間的パターンが現われることである。1次相転移とは、このような空間的パターンの形成・発展過程とみることができる。

空間的パターンの形成に対する熱力学的根拠は、もともと1次相転移点近傍では局所的自由エネルギーの形が第1図(a)に示したような double minimum の形をもつことに求められる。この時、始状態として空間的に一様に準安定状態 η_1 にあった系が、最終的に一様な安定状態 η_2 に達するための最もエネルギー障壁の低い径路は、Fig. 1(b)に示したように空間の大部分で η_1 又は η_2 であり、ごく限られた領域で kink 部をもつような状態であり、秩序化の過程は kink 部つまりドメイン境界が $r=0$ から $r \rightarrow \infty$ に移動するものとしてとらえられる。このような kink 解は半径 r の球状ドメインが分布した状態に外ならないからその意味では上に述べたことは古典的な核生成-成長の描像と一致する。

(2) パターンの時間発展と散乱効果

空間的パターンの形成過程を特徴づける量としては、次の諸量が与えられる。

$X(t)$: 時刻 t における秩序相の比体積

$\bar{R}(t)$: 時刻 t における秩序相の平均ドメインサイズ

$n(R, t)$: 時刻 t における秩序相のドメインサイズ分布関数

これらの量 $X(t)$, $\bar{R}(t)$, $n(R, t)$ は特に実験的立場から重要であることに注意する。パターンを認識する最も直接的な実験手段は種々の散乱実験である。この実験手段における観測量は、上の諸量と直接結びつくことは明らか、この関係を Table 1 にまとめた。

(3) パターン形成に関する universal scaling 仮説

核生成-成長過程自体は、古くから種々の観点から論じられて来たが、「パターン形成の物理学」という立場から見た時、最近特に重要な概念として取上げられているのが、「スケーリング則」である。これは端的に云えば、一般に時間とともに変化する空間的なパターンは、適当な時間、空間のスケール変換によってただひとつのパターンに還元できる。つまりパターンに自己同一性が現れることを仮説として主張するものである。このことは、2次相転移の場合と同様、

1次相転移にも種々の universal scaling 関数が現れることを要請している。これらのスケール関数の例を Table 2 にまとめた。

表にみられるように1変数の場合は外部変数 Δ (準安定度パラメーター, Fig. 1(a) 参照) に応じて特性時間 $\hat{t}(\Delta)$, 特性長さ $\hat{r}(\Delta)$ がきまり, スケールされた時空間, $\tau = t / \hat{t}(\Delta)$, $\xi = r / \hat{r}(\Delta)$ に対して, $X(\tau)$, $R(\xi)$ は universal な形をもつ。一方, 2変数の場合は $S(k, t)$ が實際上1変数 kt^ν のみに依存し, 従って特性空間尺度 $\hat{r}(t) \propto r^\nu$ を導入すれば $r / \hat{r}(t)$ に対して universal な形をもつことになる。

(4) 散乱実験

前節で述べたスケール関数の存在は, パターンの形成過程の統一的理解のために重要な意味をもつから, 最近 (計算機実験を含めて) 多くの実験によって検証が試みられている。ここでは例として

(i) $X(t)$ について: RbI の圧力誘起構造相転移過程

(ii) $S(k, t)$ について: FeCr, AlZn 合金の相分離過程

の結果について簡単にふれる。

(i) $X(t)$

イオン結晶 RbI は臨界圧力 $P_c \sim 3.5$ kbar で NaCl 構造から CsCl 構造へ1次の相転移をする。Yamaba ら⁸⁾と Hamaya ら⁹⁾は, この構造の再構成過程での $X(t)$ のスケール関数をしらべるため, P_c をはさむ圧力ジャンプの後の NaCl 構造, CsCl 構造のブラッグ反射強度の時間発展を詳しくしらべた。直接の実験結果としての積分強度 $I(t)$ は当然非平衡度 $\Delta = P - P_c$ に依存し, Δ が小さい程過程が slow down する。しかし各 Δ について特性時間 $\hat{t}(\Delta)$ を導入して, $\tau = t / \hat{t}(\Delta)$ に対して $I(\tau)$ をプロットすると, 只ひとつの universal curve に還元させられる。Fig. 2 はこのようにして得られた実験結果を Table 2 中に与えられたスケール関数 $\tilde{X}(x)$ と比較したもので Δ が最小の場合をのぞいてよい一致が見られる。

(ii) $S(k, t)$ について

析出型合金 FeCr, AlZn は T_c 以下で2相に分離する。これらの相分離過程, 特にそのスペクトル分布のスケール関数については, Furusaka ら¹⁰⁾, Komura ら¹¹⁾によって中性子散乱による研究が行われた。Furusaka らは FeCr について析出の初期過程においては, Langer によって提出されたスケール関数 (Table 2 参照) でよく記述されることを示した。一方 Komura らは, AlZn について特に Furukawa によって提案されたスケール関数: $x^2 / (1 + x^6)$ との比較を試みた。Fig. 3 に示したように実験結果は後期過程についてこの比較的簡単なスケール関数でよく表わされることがわかる。

参 考 文 献

- 1) 1次相転移の最近の review として J. D. Gunton, M. S. Miguel & P. S. Sahni: Phase Transitions and Critical Phenomena Vol.8, ed. C. Domb and J. L. Lebowitz (Academic Press, 1983)
- 2) M. Avrami: J. Chem. Phys. 7, 1103 (1939), *ibid* 8, 212 (1940).
- 3) A. N. Kolmogorov: Bull. Acad. Sci. USSR 3, 355 (1937).
- 4) J. D. Axe and Y. Yamada: to be published.
- 5) J. S. Langer, M. Baron and H. D. Miller: Phys. Rev. A11, 1417 (1975).
- 6) H. Furukawa: Prog. Theor. Phys. 59, 1072 (1978), Phys. Rev. Lett. 43, 136 (1979), Phys. Rev. A23, 1535 (1981).
- 7) Y. Noda, S. Nishihara and Y. Yamada: J. Phys. Soc. Japan 53, 4241 (1984).
- 8) Y. Yamada, N. Hamaya, J. D. Axe and S. M. Shapiro: Phys. Rev. Lett. 53, 1665 (1984).
- 9) N. Hamaya, Y. Yamada, J. D. Axe, D. P. Blunger & S. M. Shapiro: to be published in Phys. Rev.
- 10) M. Furusaka, Y. Ishikawa, S. Yamaguchi and Y. Fujino: Physica 120B 383 (1983).
- 11) S. Komura, K. Osamura, H. Fujii and T. Takeda: Phys. Rev. B30, 2944 (1984).

Table 1

物 理 量	観測量 (散乱実験)
$X(t)$	積分強度 $I(t)$
$\bar{R}(t)$	スペクトル巾 $\Gamma(t)$
$n(R, t)$	散乱スペクトル $S(k, t)$

Table 2

スケールされる物理量	スケール関数
$X(t; A) = \tilde{X}(t/\hat{t}(A))$	$\tilde{X}(x) = 1 - q(x)^{2), 3)}$
$\bar{R}(t; A) = \hat{\varepsilon}(A) \tilde{R}(t/\hat{t}(A))$	$\tilde{R}(x) = 1 - q(x) / \int_0^x q(x') dx'^{4)}$
$S(R, t) = t^\nu \tilde{S}(kt^\alpha) = t^\nu S(k/k(t))$	$\tilde{S}(x) = \frac{A_1}{1+x^2} (1 - e^{-A_2 x^2})$ (保存系初期) ⁵⁾ $\tilde{S}(x) = \frac{x^2}{1+x^6}$ (保存系後期) ⁶⁾ $S(x) = \frac{1}{(1+x^2)^2}$ (非保存系) ⁷⁾

$$q(x) = 1 - \exp\left(-\frac{\pi}{3} x^4\right)$$

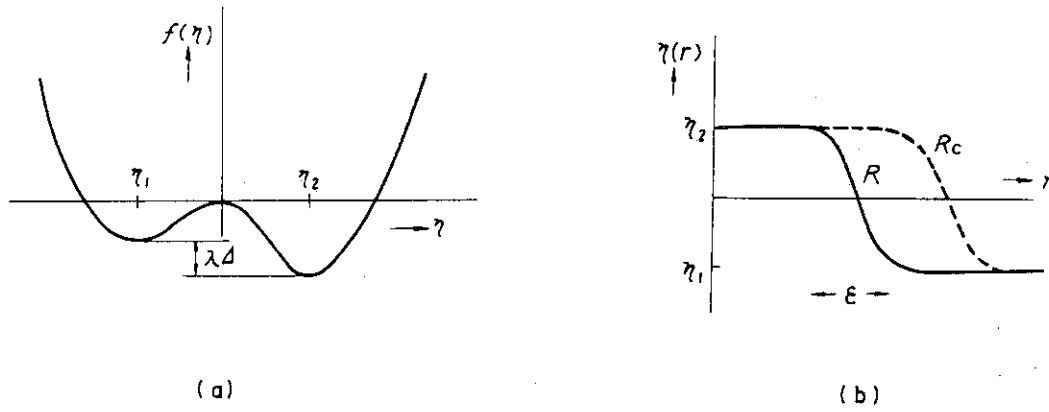


Fig. 1

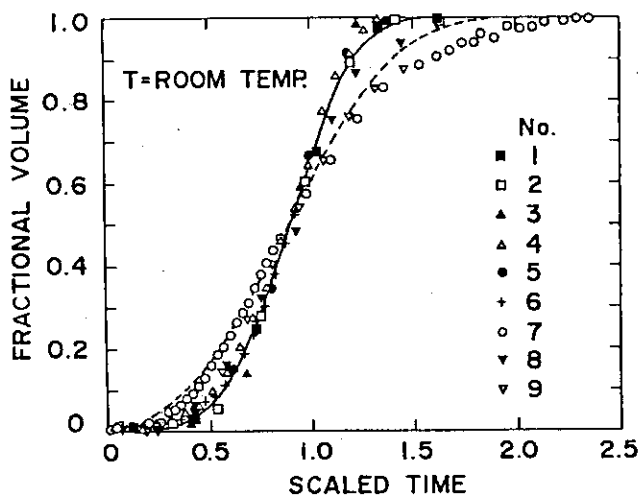


Fig. 2

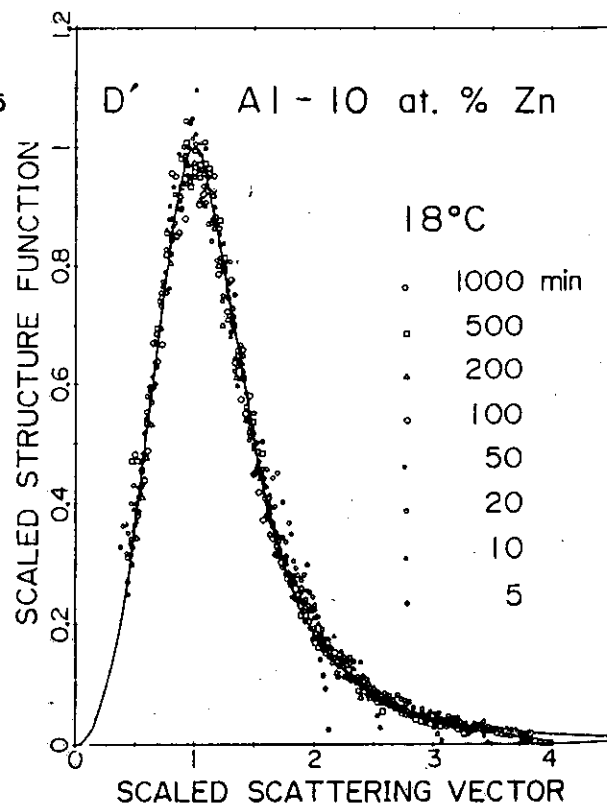


Fig. 3

3.5.2 (2) 合金の相分離

原研物理部 片野 進

合金において、その成分原子がはじめは無秩序に分布した均一な状態から、しだいに同一原子同志が寄り集まって不均一な分離状態が形成されてくるのが、相分離の現象である。この現象の研究は、非平衡系の統計物理学の格好な題材として近年著しく進展した。Fig. 1 に二元合金における典型的な平衡状態図を示す。具体的には、系を高温 (T_i) での均一状態から急激に二相共存曲線の内部 (T_f) に移して、その温度に保ったとき、その最初の非平衡状態がどのような時間変化をともなつて最終の平衡状態に落ちつくかを、いろいろな実験手段によって調べる。

このような相分離の現象は、合金の実用的見地からいっても金属物理学の重要な問題の一つであるため、古くから研究され、着実に進展してきた。既に 19 世紀末、Gibbs は過飽和溶液の相分離を議論し、溶質濃度が二相共存曲線に近い場合には、平衡相に近い大きな濃度ゆらぎが小さな領域に形成されそれが成長するという“核形成-成長”と、濃度が状態図の中央付近の場合には、小さな濃度ゆらぎが系全体にわたって広く形成され、これがしだいに発達するという“スピノーダル分解”とに分類できることを示した。その後、20 世紀初めのジュラルミンの発見は分離過程の速度論を発展させた。以後の X 線技術の進歩による溶質の原子が母相に整合して偏析するという GP ゾーン (Gunier - Preston ゾーン) の発見は時に核形成-成長の理論を、また電子顕微鏡の進歩がもたらした合金濃度が場所とともに周期的に変動するという変調構造の発見はスピノーダル分解の理論を急激に発展させた。相分離がこのような二種の過程に分類されるということは今日でも正しいとされているが、これら両者はいわゆる“スピノーダル線”によって明確に区別されるのではなく、ある幅をもって分けられると考えられるようになっている。

このような長い歴史をもつ相分離の研究に、また最近大きな進展がみられた。その第一歩となったのは、近年発展のめざましい計算機実験が、散乱の構造関数の時間変化 $S(q, t)$ を与えたことであつた。またこのような計算機実験は実空間における原子の移動及び集合のありさまをも如実に示した。この結果はただちに理論家の注目を集め、新しい考え方、計算の手法をもたらし、理論面での大きな進展をみた。

このような中で、中性子散乱の実験も重要な貢献をしてきた。それは中性子小角散乱が広く行われるようになったことによる。この特徴は、(1)長波長の中性子を用いることにより散乱角が大きくなり、小角領域に現われる重要な情報が X 線に比べより精度よく得られること。(2)中性子の散乱振幅が X 線のように原子番号順に変わるのでないため、周期律表中で互いに近接する元素から成る合金の研究ができること。このような合金では、成分元素の格子定数の違いによる格子歪みの影響が小さく、理論や計算機実験の結果と比較する上で都合がよい。(3)理論的研究の多くが、散乱の構造関数の時間発展を求めており、これらと直接比較できることなどである。

Fig. 2 に、中性子散乱による Fe-Cr 合金の実験結果を示した。摂氏 500 度で 500 時間迄、熱処理したときの構造関数 $S(q, t)$ の時間変化が示されている。幅広いピークが相分離領域の平均の大きさに対応している。このピークが時間とともに鋭くかつ大きくなっており、分離領域の大きさがしだいに成長してくることがはっきりわかる。このような実験から、分離した領域の成長が時間の指数則に従って進むということや、時間とともに変化する構造関数が時間と空間のスケールを適当に変換してやることによって、同一の構造関数に還元されるというスケールリング則

が成立しているということが、実際に確かめられた。

このように進展著しい分野であるが、今後、理論や実験の精密化にともない、より質の高い実験が要求されることと思う。今回の改造炉は冷中性子源を備え、これから得られる冷中性子はガイド管によって実験棟に導かれる。こうして高い長波長中性子線束が、低いバックグラウンドの状態で見られるという点で、大きな期待を持っている。

効率のよいデータ収集ができる位置敏感検出器を有した高性能な中性子小角散乱装置の設置は、相分離のような時間依存性のある現象の時分割測定を可能にする。これにはさらに温度の急変ができるような周辺機器の整備が必要で、それによって今迄よりはるかに初期の段階で起こっている現象を調べることができ、新しい知見が得られるであろう。またすぐれた温度制御装置により、臨界点近傍のふるまいや、相分離の温度依存性の詳細を研究することができる。一方、温度の急激な変化とは別は、転移温度をはさんで温度の周期的な変化を行わせることにより、相分離の成長と消滅とがからみ合った新しい現象が見いだされる。

二次元検出器の設置は弾性異方性をもつ合金の性質の解明に大いに役立つ。このような弾性異方性の強い物質に応力をかければ面白い実験ができると思う。又、相分離を利用して磁気異方性をもたせた磁性合金に、磁場を印加して実験するのも面白い。これは主にFe-CrやAl-Znなど単純な系について実験がなされてきた。上記のようなより複雑な系での研究は新しい現象の発見を導くに違いない。

以上のようにJRR-3改造炉に、新型の実験装置を設置することで、今迄よりはるかに質の高い実験ができるようになる。これによって相分離の研究が大いに進展していくことを期待するものである。

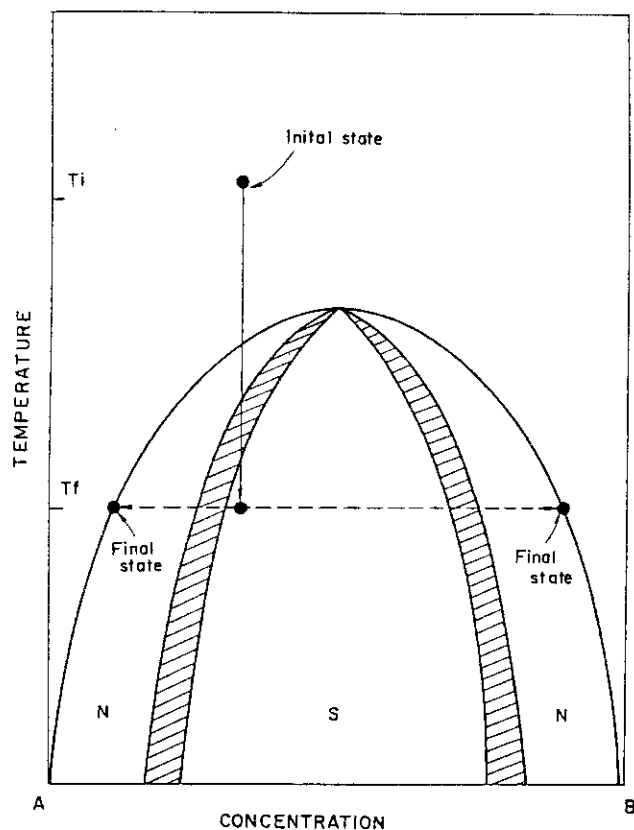


Fig. 1 Phase diagram of a binary alloy at the equilibrium state. Solid line shows the coexistence curve. N and S indicates nucleation-growth region and spinodal one, respectively.

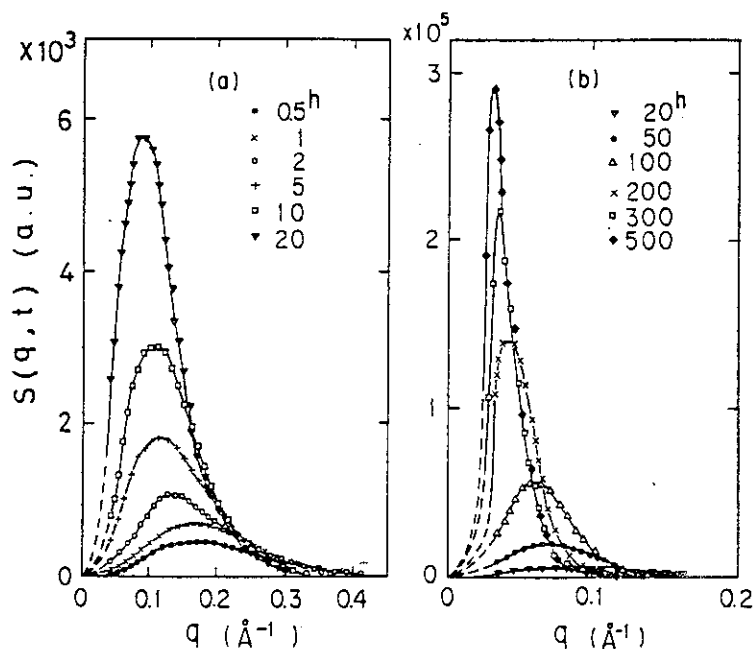


Fig. 2 Time evolution of the structure factor $S(q,t)$ of Fe-Cr alloy aged at 500°C for times up to 500 hours. (After phys. Rev. Lett. 52, 835 (1984)).

3.5.2(3) 1次相転移の動力学

広島大総合科学部 好村滋洋

(1) 1次相転移とは

この小論では中性子小角散乱法およびこれにスピン・エコー法を結合した非弾性散乱法によって、1次相転移のどのような研究が可能かを考察する。ここに言う1次相転移とは Table 1 に示すような、臨界点を持たない固体-液体転移を除く大多数の1次相転移、および臨界点をもつ2次相転移を含んでいる。1次相転移では転移の潜熱が有限の値をもつものに対し、2次相転移で潜熱はゼロであるが、比熱に不連続を示す特徴がある。¹⁾

これらの相転移に共通することは臨界点より上の温度で秩序パラメーターがゼロであったのが、臨界点の下で有限の値をもつことである。この場合系の種類によって秩序パラメーターが系全体として保存される系と保存されない系とがある。例えば、二成分系相分離において平均濃度からのずれを秩序パラメーターとすれば、この原理によって系全体の秩序パラメーターが保存される。これに対し、強磁性体の磁化を秩序パラメーターとすれば、これは保存されない。

二成分系を例にとって、一次相転移の相図を Fig. 1 に示す。ここでは臨界点近傍における系の振舞と、臨界点から離れた二相分離領域内での振舞とが問題となる。前者を臨界領域、後者を不安定領域と呼ぼう。臨界領域では系は平衡状態にあるが、圧縮率や磁化率等の応答係数が発散し、密度や磁化のゆらぎが増大する。これに対し不安定領域では非平衡状態にあり、熱力学的に安定な状態をめざしての系の運動が起こる。このため系の再配列のために一時的に密度や磁気のゆらぎが増大する。臨界領域でのゆらぎは時間・空間的に変動する連続的なものであるのに対し、不安定領域のゆらぎは、時間的に一過性の空間的ゆらぎである。

(2) 不安定領域

不安定領域にある二成分系相分離に関して、その構造関数にスケーリング則が成り立つという重要な結果が、最近合金、液体、ガラス、高分子等の系について示された。構造関数 $S(\vec{\kappa}, t)$ とは、局所的な秩序パラメーター $\eta(\vec{r}, t)$ の空間的フーリエ変換 $\eta(\vec{\kappa}, t)$ の絶対値の二乗

$$S(\vec{\kappa}, t) = \frac{1}{V} |\eta(\vec{\kappa}, t)|^2 \quad (1)$$

として定義され、光、X線、中性子の散乱実験によって直接測定されるものである。ここでいうスケーリング則とは、指数則に従って時間 t とともに増大する大きさの変数

$$R(t) \sim t^a \quad (2)$$

を用いて、 $S(\kappa, t)$ が時間によらないユニバーサルな関数 $\tilde{S}(x)$ により

$$S(\kappa, t) \sim R^3(t) \tilde{S}(\kappa R(t)) \quad (3)$$

と書けるということである。

Fig. 2 に Al-Zn 合金について、測定された $S(\kappa, t)$ およびスケールされた $\tilde{S}(x)$ が一致する様子を示す。²⁾ 同様な現象が、液体、ガラス、高分子の系にも見出された。

この現象は不安定領域にある非平衡状態の比較的後期過程のものであり、それ以外の時間領域

についてはどのような法則が支配しているかも明らかでない。スケーリング則の成立根拠や $S(x)$ の形についても今後の研究課題である。

(3) 臨界領域

臨界領域における系の振舞は相転移の研究の重要な部分を占めており、膨大な理論的および実験的な研究の蓄積がある。この中で種々の物理量が臨界点 T_c 附近で

$$\epsilon = \left| 1 - \frac{T}{T_c} \right| \quad (4)$$

のべき乗則 ϵ^ϕ に従うこと、およびこれらの臨界指数 ϕ は互いにある関係で結ばれていることが判明している。この結果は種々の物理量の振舞がその温度における相関距離

$$\xi(\epsilon) \sim \epsilon^{-\nu} \quad (5)$$

によってスケールされるという意味で、やはりスケーリング則と呼ばれている。¹⁾

臨界点に近づくにつれて相関距離は大きくなり、系の秩序パラメータの長波長で長時間周期をもつゆらぎが生じる。単原子古典流体の場合には散乱関数

$$R(\kappa, \omega) = \frac{k_B T}{\pi \rho_0 r_l^2 (\kappa^2 + \xi^{-2})} \frac{\kappa^2 D_T}{\omega^2 + (\kappa^2 D_T)^2} \quad (6)$$

が中性子非弾性小角散乱によって観測されることが期待される。³⁾ ここで ρ_0 は原子の密度、 r_l は相関の強さをあらわすパラメータ、 D_T は温度 T での拡散係数である。

(6)に示すようなゆらぎは2次相転移である反強磁性体 MnF_2 および $RbMnF_3$ について観測されているが、1次相転移に関しては、実験の困難さもあって極めて少い。最近 G. Franz らは単原子液体金属 Rb の臨界点近傍で、Fig. 3 に示すように臨界点 $T_c = 2090$ K、 $\rho_c = 0.33$ gcm⁻³ に近づくに従って散乱ベクトル $Q (= \kappa)$ の小角部分の散乱が増大するという興味ある結果を得た。⁴⁾

1次相転移の臨界領域の振舞にこのように中性子小角散乱法によって観測されることが期待されるが、中性子小角散乱法の確立された1970年以後、まだ極めて例が少い。これにスピン・エコー法を結合した非弾性散乱法を用いた(6)式の測定は今後の大きな課題である。(6)式自体はある単純化されたモデルによる理論式であり、多くの相転移ではこれと異なるかもしれない。1次相転移に関してはスケーリング則との関連も含めて未開拓の分野である。

参 考 文 献

- 1) 例えば、L. E. ライシエル著、鈴木増雄監訳、現代統計物理、上下巻、丸善、1983年
- 2) 好村滋洋、固体物理、19, 711-720 (1984); 日本物理学会誌、40, 42-46 (1985); S. Komura et al, Phys. Rev. B, 30, 2944-2947 (1984); 31, 1278-1301 (1985)
- 3) 例えば、S.W. Lovesey: Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter, Clarendon Press, Oxford, 1984.
- 4) G. Franz, et al.: J. de Physique, 41, C8, 194-198 (1980).

Table 1 Phase transitions

	転移の種類	物 質 例
一 次 相 転 移	液 相 - 気 相	古典流体 Ne, Ar, Kr, Xe, N ₂ , O ₂ , CO ₂ , CH ₄ , H ₂ O
	二成分系相分離	金 属 Na, K, Rb, Hg
		合 金 Al-Zn, Cr-Fe
		金属水素化物 PdH _x , ZrH _x
		液 体 イソブチル酸-水, 2,6-ルチジン-水
		ガ ラ ス B ₂ O ₃ -PbO-Al ₂ O ₃
		高分子-溶媒
		高分子-高分子 ポリスチレン-ポリビニルメチルエー テル
	同 素 体 転 移	高分子共重合体 ポリスチレン-ポリイソプリーン
		金 属 灰色錫-白色錫
二 次 相 転 移	液 晶 転 移 (スメクチックC- スメクチックA)	化 合 物 氷
		ネマティック-等方相 MBBA
	液 晶 転 移	スメクチックA-ネマチック 80CB
	秩序-無秩序	Cu ₃ Au, β -真ちゅう
	液 晶 転 移	40.7
	強 磁 性	Fe, Co, Ni
	反 強 磁 性	MnF ₂ , RbMnF ₃ , KMnF ₃
	強 誘 電 性	NaNO ₂ , BaTiO ₃
	超 伝 導	水 銀
二 次 相 転 移	超 流 動	³ He, ⁴ He
	λ 転 移	アンモニウム塩, 結晶石英, 固体水素

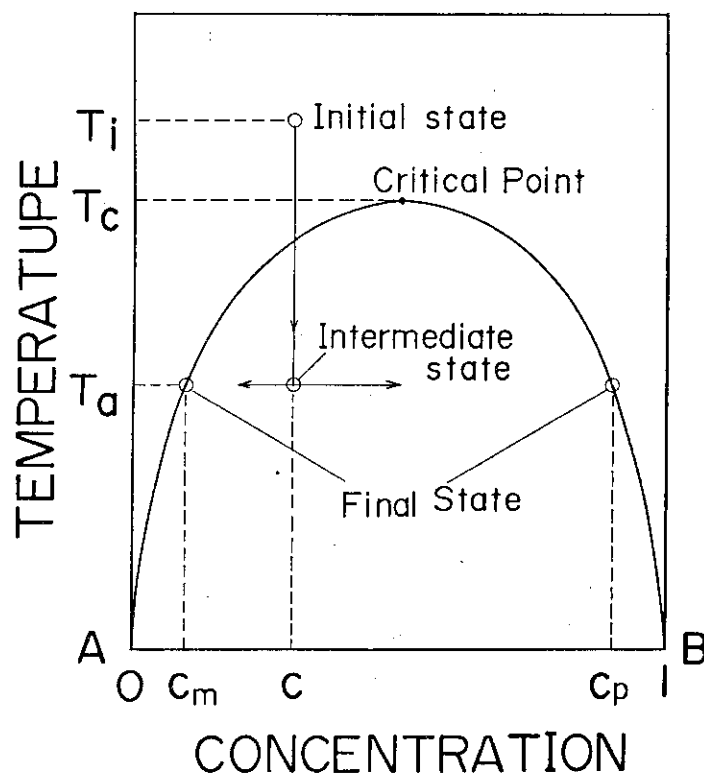


Fig. 1 Phase diagram of first order transition.

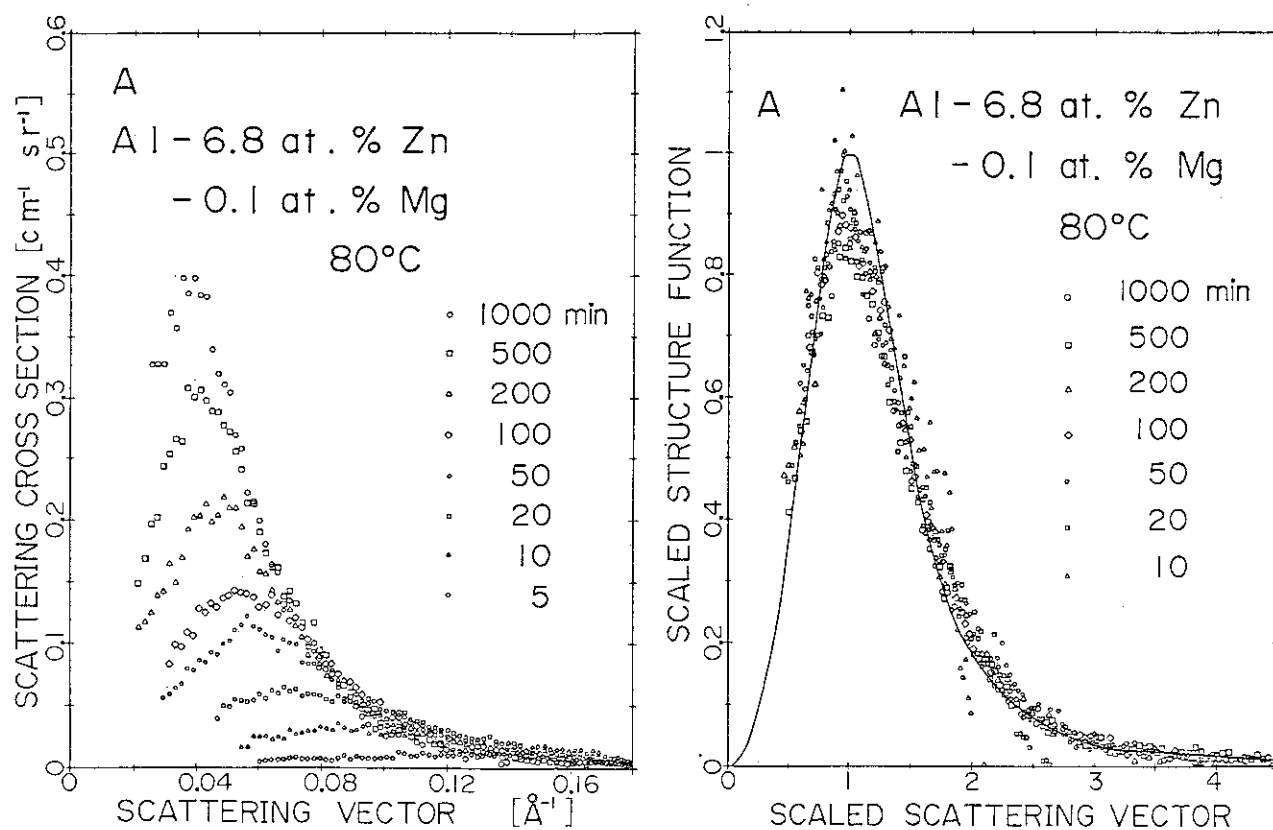


Fig. 2 Neutron scattering cross section and its scaling law of Al-Zn-Mg.²⁾

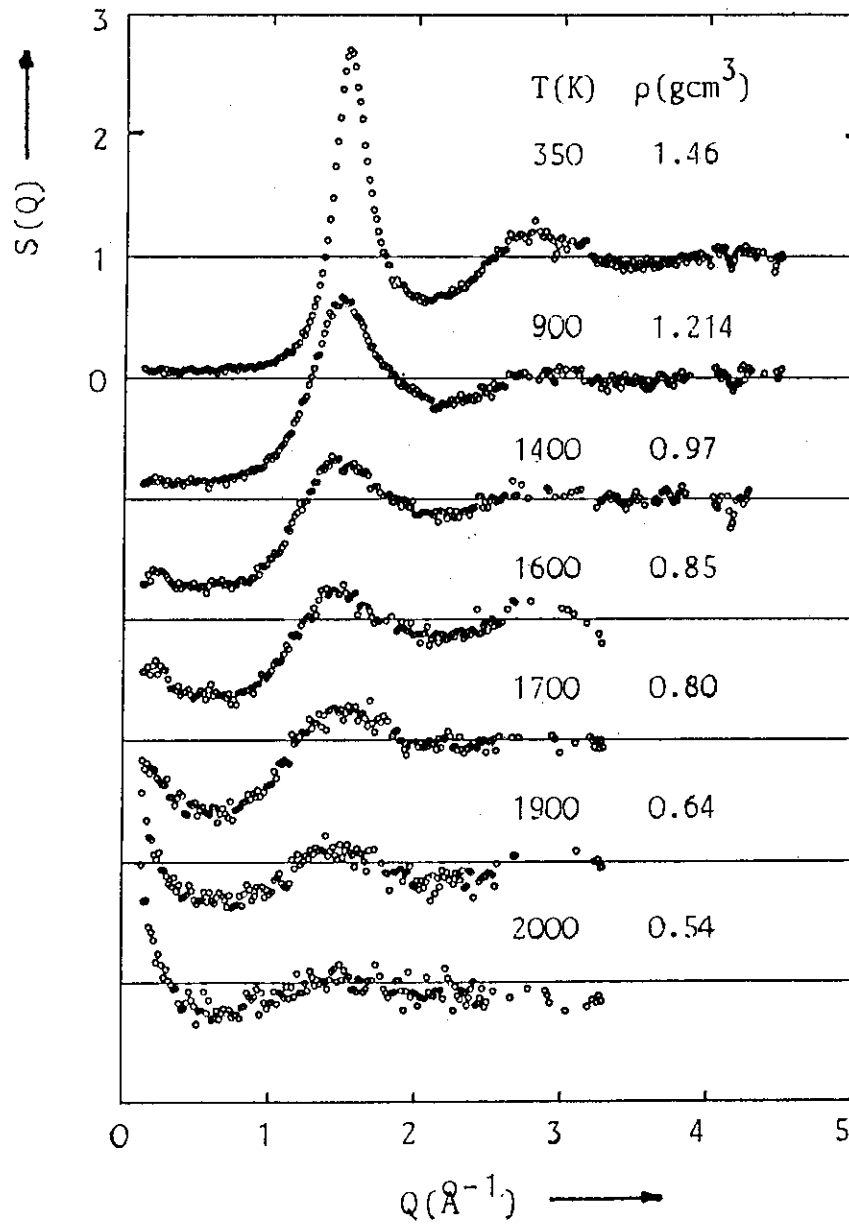


Fig. 3 Structure factors of liquid R6 near critical temperature.⁴⁾

3.5.2(4) 外部から駆動された系

原研物理部 飯泉 仁

熱平衡から遠く隔たった非線形非平衡系で見られる特有の現象は、物理学における原理的な問題として、最近実験および理論の両面から活発な研究が行われている。^{1,2,3)}

熱平衡から遠く隔たった非平衡系には大きく分けて二つの種類がある。一つは何らかの人工的手段で非平衡状態に「クエンチ」された系が、平衡状態へ戻っていく過程、もう一つは外部から定常的に供給されたエネルギーにより、熱平衡から遠く隔たった状態が定常的に保たれている系である。前者は相転移における秩序相の形成、あるいは相分離のカイネティックスの問題として盛んに研究が行われているが、別の章で論じられるので、ここでは後者だけを問題とする。

外部から駆動されて定常状態が保たれている系は開放定常系、あるいは系の内部でエネルギーが消費されているので散逸力学系などと呼ばれる。生物が生きているという状態はその典型的な例であり、⁴⁾ その意味でも、開放定常系の研究は今後の自然科学の重要な問題の一つである。

開放定常系の特徴は、非線形性特有の時間的パターンや空間的パターンが現れることである。例えばヤリイカの神経軸索の自励発振⁴⁾ が非線形系の時間的秩序構造の例であり、流体の対流現象におけるベナール対流¹⁾ が空間的秩序構造（散逸構造）の例である。

平衡状態からの遠ざかりかたを変えると一つの定常状態から別の定常状態へ移り変る。すなわち非平衡状態間の相転移が起こる。非平衡状態が熱平衡からどのくらい離れているかを表わすパラメータを分岐パラメータと呼ぶ。これを R で表わす。たとえば温度の違う上下二枚の平行板間に置かれた流体の熱対流の場合、平行板間の温度差に比例するレーリー数が分岐パラメータとなる。このパラメータがある値 R_c 以下の場合、平衡状態に近い定常状態にあるが、 R_c に近づくにつれ、ゆらぎが増大してゆき、 R_c で発散する。パラメータが R_c より大きい状態では定常的な空間パターンが生じる。熱対流の場合平行板間の温度差が或る値を超えると対流が起こり始め、Fig. 1 に示すようなベナール対流とよばれる空間的な秩序構造が現れる。その温度差に対応するレーリー数が R_c である。さらに系が平衡から遠ざかっていくと、ある値 R_c で時間的パターンが発生する。すなわち系は振動的となり、特有の時間的リズムを持つ状態が出現する。熱対流の場合、Fig. 1 に示した対流ロールが、その軸の方向にFig. 2 のようにうねり始める。さらに平衡から遠ざかると、時間的パターンを特徴づける振動数分布に次々と低調波の成分が加わった状態を経て、遂にある値 R_t でカオスが出現する。熱対流の場合、 R_t 以上で乱流となる（Fig. 3）。

以上述べたような空間・時間構造の違う非平衡状態間の逐次転移は、どのような非線形系にも共通して普遍的に見られる。これらの転移はゆらぎに関して一種の臨界現象がみられること、系のミクロな性質がマクロな性質を決定していることなど熱平衡系での相転移と多くの類似点を持つ。しかしながら、現在の統計力学の枠組の中で解明できる熱平衡系での相転移と違って、非平衡系での転移は、熱平衡から遠くはなれた非平衡現象を記述する一般的な理論が完成していないこともあって、その解明はまだこれからである。

非平衡系の実験的研究において問題となるのは非平衡状態間の転移に伴う構造とゆらぎの変化であるから、中性子散乱が大いに役立つ対象と思われる。しかし今のところ流体力学的なマクロな測定や光散乱が主な実験手段となっており、中性子散乱の利用はこれからである。

中性子散乱による非線形非平衡系の逐次転移のほとんど唯一の例として Riste らによる液晶の

対流の観測⁵⁾がある。重水素化した PAA 液晶を上下に温度差をつけた容器に入れ、液晶の軸のそろったネマティック相に温度を保つ。中性子回折でネマティック相の分子配列に相当するピーク強度を観測する。温度差の上昇に従い、分子配列のゆらぎが増大し、ピーク強度は減少する。ある温度差で対流が起こり、それを超えるとゆらぎはむしろ減少する。Fig. 4 はピーク強度を大小を逆にして温度差の関数として図示したもので、レーリー・ベナール不安定点でのゆらぎの発散の測定例となっている。さらに温度差を上げるとピーク強度は時間的に振動的になり、ピーク強度が実時間で変化を示す。その観測例を Fig. 5 に示す。(a) は時間に伴う強度変化であり、その自己相関を取ったのが b), そして強度スペクトルが(c)に示されている。

先に述べたようにこの研究は今のところ中性子で開放定常系を研究した唯一の例であるが、中性子の特徴を生かした非平衡系の研究が今後数多く出てくることが期待される。この研究のような実時間でのゆらぎの観測にとどまらず、中性子散乱ならではの (Q, ω) 領域での観測が、非平衡系でのゆらぎの特質に直接関係してくるような研究が興味深い。

参 考 文 献

- 1) 森 肇：「統計力学の進歩」(裳華房, 1981) p.91
- 2) T. Riste (ed.) : Nonlinear Phenomena at Phase Transitions and Instabilities, Plenum, 1982.
- 3) P. Cvitanovic (ed.) : Universality in Chaos, Adam. Higler, Bristol, 1984.
- 4) 松本 元：「生命現象のダイナミズム」(中山書店, 1981) p. 87
- 5) T. Riste and K. Otnes : 上記文献²⁾ p. 255.

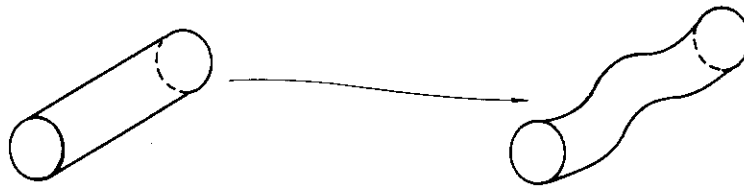


Fig. 1 Schematic view of the Benard convection rolls.

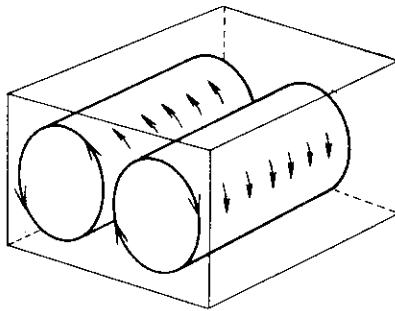


Fig. 2 Transition of the convection roll to the oscillatory roll.

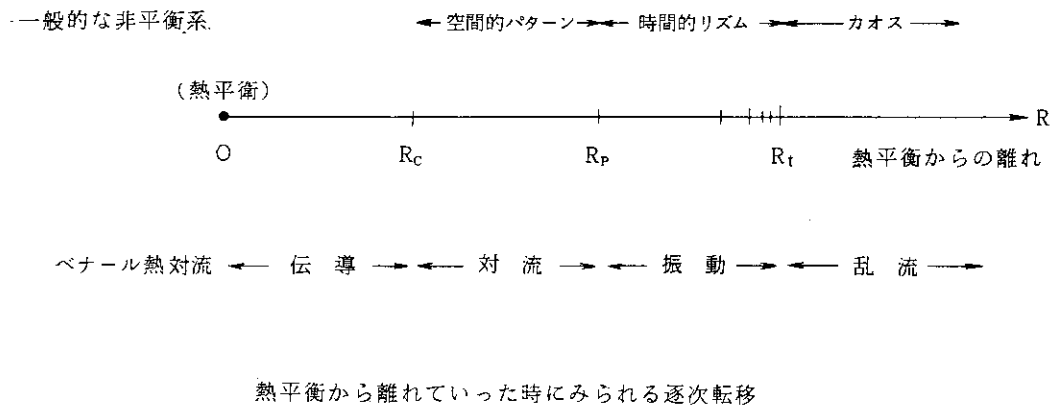


Fig. 3 Successive transitions occurring in non-equilibrium states as the system departs farther from equilibrium.

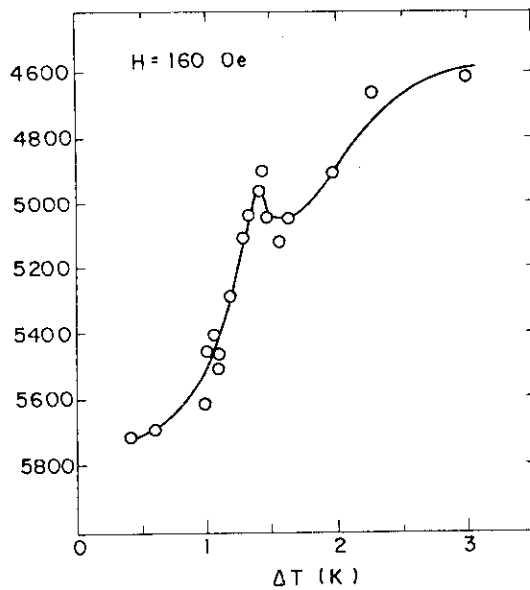
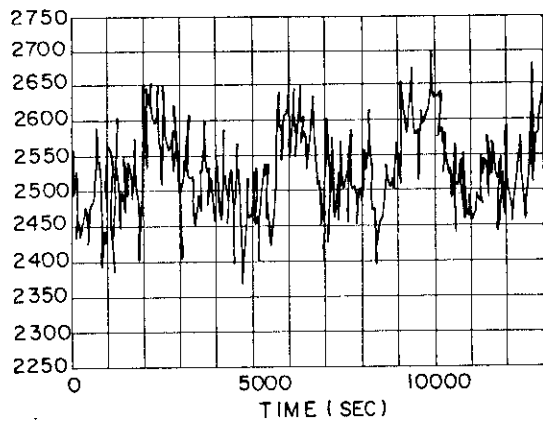
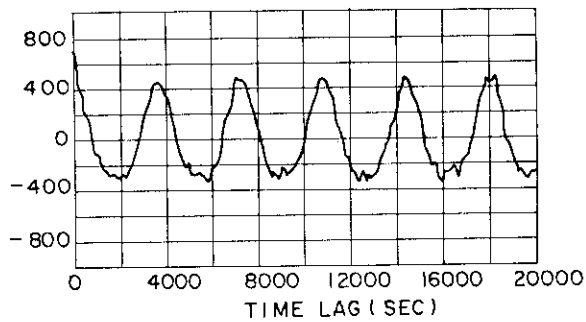


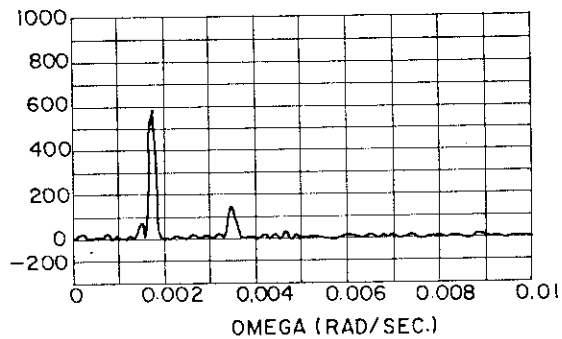
Fig. 4 Neutron intensity versus vertical temperature difference across the sample of nematic liquid crystal.



(a)



(b)



(c)

Fig. 5 Oscillatory behavior of the nematic liquid crystal. (a) The time change of neutron intensity. (b) The autocorrelation function and (c) the power spectrum of the neutron intensity.

3.5.3 原子分子の集合状態

3.5.3 (1) 液体金属

新潟大理学部 田巻 繁

" 医療短大 武田信一

中性子回折による液体金属の構造解析についての初期の頃の有名な論文といえば、1961年のGingrichとHeaton¹⁾によるアルカリ金属に関するものであろう。

1960年代の液体金属の中性子回折はX線回折と相補的關係にあり、X線回折で吸収係数の大きいもの例えば、BiやPb等について中性子回折が行われた。

やがて1970年代に入ると、液体金属の構造に関する理論が急速に進展し、これと相まって部分構造因子を実験的に求めることが要請されるようになった。即ち、A-B二元系液体合金にはA-A、A-B、B-Bの三つの部分構造因子を求めることが必要であり、そのために三つの独立な回折実験が必要となる。これに対する解決法としては、中性子回折、X線回折および電子回折を行うことが考えられるが精度からいって同等であるわけでない。そのためIsotope-enrich法を用いていくつかの中性子回折を行うことがEnderby²⁾により提案された。この方法は試料の値段のこともさへ気にしなければ現在もっとも精度の高い方法と思われ、今後の発展がおいに期待される。

この部分構造因子の結果から、液体合金内で原子がどのように集合しているか—密度のゆらぎや濃度のゆらぎ—が明らかにされる。

液体金属の単体としての構造もこゝ20年間中性子回折によってしらべられてきている。しかし、時代の流れと共にいろいろ興味ある事実、例えば液体テルルにおける非金属—金属遷移等が判明し、これに伴う中性子回折の測定も期待されている。液体テルルが原子尺度で局所的に2配位と3配位の双方をもつことがしらべられている³⁾。また、液体金属内の有効イオン間相互作用ポテンシャルの斥力部分における異常性があるような系⁴⁾もあり、この種の微細構造の詳細をしらべるために中性子回折は有力である。

最近、液体Bi、Snの中性子回折⁴⁾を行ったところ、その結果が、X線回折のそれと異なることが判明した。勿論中性子の散乱は原子核によるのに対し、X線の散乱は原子核をとりまく電子であるから違って当然であるが、これまでは第1近似として同一として取扱われてきた。実は、この散乱の相違からイオン—電子相関、電子—電子相関の部分構造因子について議論できる可能性は約10年前にEgelstaff等⁵⁾により提唱され、これを実現しようとする努力がなされてきた。この問題解決には我々の経験から一点あたり10万カウント位が必要であり沢山のマシンタイムが必要となる。しかし、今後液体金属の中性子回折はこのような微細構造の知見をうるために積極的な利用が期待される。以下これに関する最近のわれわれの結果⁶⁾をのべる。

今、イオンと電子とを粒子とみなす。これらの系の部分構造因子 $S_{ij}(Q)$ とX線の干渉性散乱強度 I_{coh} との間には次の関係がある。

$$I_{coh}(Q) = N \{ f_i^2(Q) S_{ii}(Q) + Z S_{ee}(Q) + 2Z^{\frac{1}{2}} f_i(Q) S_{ie}(Q) \} \quad (1)$$

こゝで $f_i(Q)$ はイオンの形状因子、 Z は価電子数である。

一方、 I_{coh} は自由原子の形状因子 $f_a(Q)$ を用いて近似的に次のようにかける。

$$I_{\text{coh}}(Q) = N f_a^2(Q) S_x(Q) \quad (2)$$

S_x はいわゆる X 線回折によりえられた構造因子である。

$S_{ii}(Q)$ はイオン間の構造因子であるが近似的に中性子回折によってえられる構造因子 $S_N(Q)$ で与えられる。

これらのことを用いると、結局イオン-電子間の部分構造因子は次のようになる。

$$S_{ie}(Q) = \frac{1}{2Z^{\frac{1}{2}} f_i(Q)} [f_a^2(Q) S_x(Q) - f_i^2(Q) S_N(Q) - Z S_{ee}(Q)] \quad (3)$$

電子間相関 $S_{ee}(Q)$ は理論的によく知られているのでそれを用いることにすると、結局 S_x と S_N とから $S_{ie}(Q)$ がえられる。したがってイオンのまわりの電子の分布関数 $g_{ie}(r)$ は、

$$g_{ie}(r) = 1 + \frac{1}{2\pi^2 \rho_0 r} \int_0^\infty Z^{-\frac{1}{2}} S_{ie}(Q) Q \sin Qr dQ \quad (4)$$

で与えられる。ここで $\rho_0 = N/V$ である。

最近われわれは液体 Zn の中性子回折⁷⁾を行ったが、 $S_N(Q)$ の first peak が極めて対称性のよい、いわば剛体球モデルがぴったりの結果をえた。これまでの X 線回折では $S_x(Q)$ の first peak の左側の立上りがふくらんでいることはよく知られており、その相違は顕著である。

このように電子分布の寄与は決して無視できないものである。液体 B_i の $(S_x - S_N)$ と $g_{ie}(r)$ の結果を Fig. 1 および Fig. 2 に示す。

このように電子分布の知見をうるための重要な手段として中性子回折は X 線回折と共に精密な測定を行う必要がある。

このほか、液体 Na-Li 合金のように二相-一相の臨界現象を示す系の臨界温度近くにおける coherent length をしらべるためには微少角散乱の温度依存性をくわしくしらべる必要がある。

微少角散乱の測定はこのような臨界現象の研究だけでなく、熱力学的性質と関連深い点も指摘しておかねばならない。例えば二元系液体合金の混合の熱力的諸量が、構造因子 $S_N(Q)$ の微少角における測定から外挿値 $S(Q)$ を求め、これと圧縮率、体積依存性（組成に対する）とから、 ΔG 、 ΔH 、 ΔS を算出することもできる。この実例は筆者等⁸⁾によりなされている。

参 考 文 献

- 1) N.S. Gingrich and L. Heaton : J. Chem. Phys. 34, 873 (1961).
- 2) J.E. Enderby : The Properties of Liquid Metals, Taylor & Francis, 3 (1973).
- 3) S. Takeda, S. Tamaki and Y. Waseda : J. Phys. Soc. Japan, 53, 3830 (1984).

- 4) S. Takeda, S. Tamaki and Y. Waseda : J. Phys. Soc. Japan, 53, 3447 (1984).
- 5) P.A. Egelstaff, N.H. March and N.C. McGill : Canad. J. Phys. 52, 1651 (1974).
- 6) S. Takeda, S. Tamaki and Y. Waseda : J. Phys. Soc. Japan, 54, No.7 (1985).
- 7) unpublished.
- 8) S. Tamaki, et al. : J. Phys. F : Metal Phys., 10, L109 (1980).

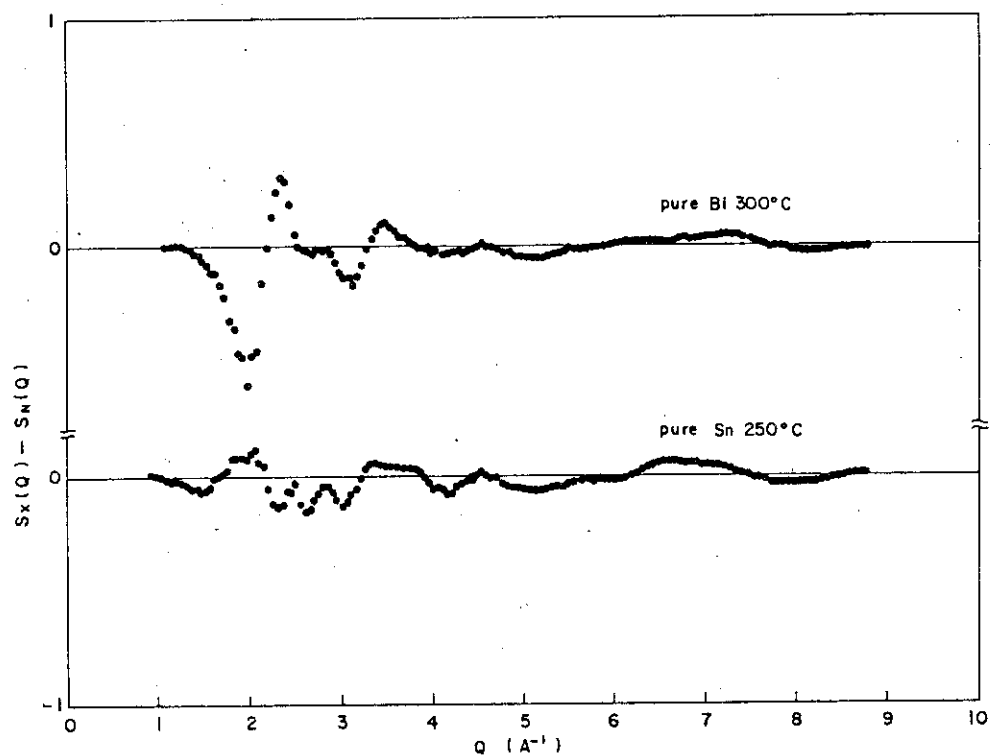


Fig. 1 The structural profile of $[S_X(Q) - S_N(Q)]$ for liquid Bi at 300°C and Sn at 250°C.

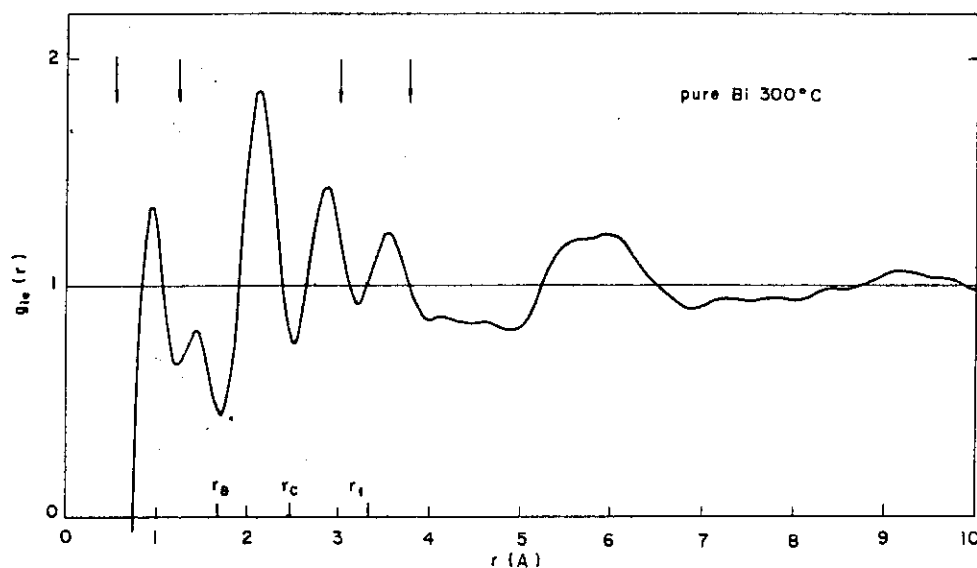


Fig. 2 Estimated $g_{ie}(r)$ of liquid Bi at 300°C. The curve of $g_{ie}(r)$ sharply drops to about -1 at the distance $r=0.75$ Å.
 r_B : Midpoint between the nearest neighbour atoms.
 r_C : Minimum value of $g_{ie}(r)$.
 r_1 : Distance of the nearest neighbour atoms. Arrows indicate the expected positions of some possible spurious ripples.

3.5.3(2) 高分子溶液

北大理学部 和泉義信

凝縮状態としての高分子物質の時空構造を従来の方法で調べた時、孤立鎖に関する知見は希薄溶液においてしか得られない。1972年以降、中性子散乱法が高分子物質の物性研究に適用されるや否やこの間の事情は一変した。後者の方法を用いると希薄溶液はもちろん、高分子稠密系の孤立鎖（部分鎖）の時空構造を分子レベルで解明することができる。これは次の理由による。多くの高分子物質は、水素原子を含むが、それらの重水素化物の合成がそれ程難しくないこと、重水素化によって高分子物質の化学的性質はほとんど変わらないが中性子に対する散乱能は著しく異なること、更に中性子の波長は $1 \sim 10 \text{ \AA}$ の範囲にあり、そのエネルギーの時定数は、 $10^{-7} \sim 10^{-12}$ 秒の範囲にあるので、凝縮状態としての高分子物質の全鎖及び部分鎖の空間的及び時間的情報が得られやすいことなどによる。このため、中性子散乱法は、高分子物質の時空構造の分子レベルでの解明に今やなくてはならない手法となってきた。特に最近では欧州を中心に冷中性子源を供えた高束中性子源の出現と中性子スピノエコー法分光器に代表される高分解能分光器の開発があいつぎ、中性子散乱の高分子科学の応用において目をみはるものがある。以下に高分子溶液における最近の研究動向を次の三つのモデルとの関連において概括する（以下で、 n は秩序変数の次元、 s は、Pottsモデルの離散的状態数を表わす）。^{1), 2)}

a) $n = 0$ ベクトルモデルとしての高分子系^{2), 3), 6)}

高分子良溶媒系の希薄及び（準）濃厚溶液の研究が挙げられる。その本質は排除体積効果である。この方面の中性子散乱研究の最初のトピックは、無定形高分子固体中の孤立鎖の静的構造がはじめて決定され、 θ 点における孤立鎖の形態と等価であることが確認されたことであろう。次いで、 θ 点と三重臨界点との類似から、高分子溶液の温度-濃度ダイアグラムが提出された。各領域中の高分子鎖が拡がり、相関長、浸透圧等の物理量は、温度、濃度、分子量の単純なべき則で表わされる。この実験的検証が中性子散乱法を用いて精力的になされた。全セグメント間相関を反映する物理量に関しては、従来の方法によるクロスチェックがなされ、両者の間の比較、理論との比較研究がなされた。他方、溶液中での高分子鎖のダイナミックスの研究も盛んに行われてきた。^{4), 5)} 希薄溶液では結果は、Rouse-Zimmモデル、準濃厚溶液の結果は、動的スケーリング則、濃厚溶液でのそれは、管模型と比較されてきた。更に、全セグメント間相関の局所構造に関する研究も中性子散乱法により試みられてきた。

b) $n = 1$ ベクトルモデルとしての高分子系²⁾

高分子溶液及びポリマーアロイの臨界現象、スピノダル分解の研究が挙げられる。これらの現象の本質は、剛体球斥力と近距離範囲の引力とにある。系を臨界点（又は、スピノダル曲線）に近づけると、秩序パラメータの揺らぎの時空構造が劇的に変化する。揺らぎの全体の時空構造に関して、中性子散乱による研究に先だって、従来の方法で徹底的に研究されてきた。臨界指数、スケーリング則、普遍性などの観点から、高分子二成分溶液は、イジングモデルにより、ポリマーアロイは、分子場理論で良く説明される。中性子散乱による高分子系のこの方面の研究は比較的少なく、最近になって、ポリマーアロイの臨界現象やスピノダル分解の研究があいついでなされてきた。⁶⁾ 又、臨界点近傍での孤立鎖の形態に関する知見が最近、共存曲線の普遍性の解析から得られてきたが、⁷⁾ このような揺らぎの局所時空構造の研究は、中性子散乱法のもっとも

得意とするところであるが、これらについては今後の研究を待たねばならない。

c) $s=1$ モデルとしての高分子系²⁾

研究対象として、閾値近傍のゾルーゲル転移、会合及び重合過程等が挙げられる。この現象の本質は、ボンド（又はサイト）間の連結性にある。先づ素性のわかったゲルを用いて、変形及び膨潤時の中性子散乱測定がなされた。架橋点のみと架橋点間の鎖のみとを重水素化した二種類の試料を用いることにより、変形時のゲルの分子レベルでの構造変化を詳細に調べることができた。その結果、ゴム弾性が架橋点間のアフィン変形に由来するとして従来のモデルの欠陥が指摘されてきた。ゾルーゲル転移に伴うさまざまな興味ある問題にも中性子散乱法の適用が試みられている。

最後に、a)～c)の現象の間のクロスオーバーの研究にも中性子散乱法が適用されてきた。一例を挙げると、高分子良溶媒系を低温にするとゲル化する。ある種の系では、臨界点とゲル化点とが一致した多重臨界点が存在する。最近、多重臨界点近傍での中性子散乱測定が試みられてきた。⁸⁾このような相転移に伴う動的な非平衡状態の研究ばかりでなく、高分子電解質溶液や高分子共重体の溶液物性研究にも中性子散乱法が適用されている。¹⁾更に、ポリマーアロイの相溶性の問題、成形加工時の高分子鎖の緩和および架橋の動力学といった工学的にも重要な問題の分子レベルでの解明に際しても、今後ますます中性子散乱法が適用されていくことであろう。

参 考 文 献

- 1) J.S. Higgins & R.S. Stein : J. Appl. Cryst. 11, 346 (1978).
- 2) P.G. de Gennes : Scaling Concepts in Polymer Physics, Cornell U.P., Ithaca, N.Y. (1979).
- 3) B. Farnoux & G. Jannink : Scattering Techniques Applied to Supramolecular and Nonequilibrium Systems, p.265, ed. S.H. Chen, et al., 1981, Plenum Press.
- 4) Ref. 3, p.49.
- 5) J.S. Higgins : Developments in Polymer Characterization 4, p.131.
- 6) R.S. Stein and C.C. Han : Phys. Today, Jan. 1985, p.74.
- 7) Y. Izumi & Y. Miyake : J. Chem. Phys. 81, 1501 (1984).
- 8) Y. Izumi, et al. : KENS Report-V, 1984, p.135 ; Rep. Prog. Polym. Phys. Jpn. 27, 9 (1984) and to be published.

3.5.3 (3) 溶液、熔融塩及び超イオン導電体中の原子のダイナミックス

茨城大理学部 佐久間 隆

中性子散乱による研究として電解質水溶液、熔融塩、超イオン導電体など非常に大きな原子拡散をもつ物質のダイナミックスを主としてここではとりあげる。これらの物質のダイナミックスを研究する場合、構成原子が2種類以上であること、また干渉性散乱及び非干渉性散乱の両方が散乱に寄与すること等による問題が通常生じるため、特定の原子ないしは原子間の動的挙動のみに着目しこれを取り扱うことは非常に難しい場合が多い。また、これ以外に、固体における相転移と異なり温度や濃度などのパラメータの変化や原子種の置換等の影響によって液体の場合は内部構造や物性値の急激な変化がほとんど生じないことも液体研究の難しい点としてあげられる。このため液体研究の進展のためには、データ処理などの新しい手法の開発や実験装置の改良等が特に必要とされる。ただし、これらは高価なアイソトープを利用して最近行われている部分相関関数の導出や液体系を研究する専用スペクトロメータの開発などを必ずしも意味するわけではない。現在進行中のものも含めたこれらの具体的な最近の研究例を以下に示す。

初めに水溶液中のイオンの水和数の導出法である中性子準弾性散乱スペクトルの方法を述べる。電解質水溶液は構成原子がH, O, 2種の電解質原子の計4種からなる多成分系である。しかしながらHの非干渉性散乱断面積が大きい点また溶媒分子数が溶質分子数に較べて多いことなどより、水溶液からの中性子散乱スペクトルはHによる非干渉性散乱として取り扱うことができる。このため従来から中性子準弾性散乱の測定は数多く行われてきた。ただしスペクトルの半値幅のみしか考慮されず水分子の平均的な動きに関する知見をとり出すのみにとどまっていた。これに対し、新たに中性子準弾性散乱スペクトルの全プロフィールにわたる解析の重要性の指摘がなされ、実際これよりイオンの水和数の導出が行われた。今日、この方法は水和現象の研究手段の1つになったと言える。

溶液系からの干渉性非弾性散乱 $S_{coh}(Q, \omega)$ の解析は難しいため、この取り扱いを避けるため Vineyard 近似などが用いられる。この近似により $S_{coh}(Q, \omega)$ は非干渉性非弾性散乱 $S_{inc}(Q, \omega)$ に変換され原子のダイナミックスが議論されることが多い。この様なままでの方法からすれば全く逆の立場での取り扱い方、すなわち散乱強度に含まれている $S_{coh}(Q, \omega)$ および $S_{inc}(Q, \omega)$ のうち $S_{coh}(Q, \omega)$ のみを分離導出し、これから分子間の緩和過程を研究する試みが液体ベンゼンについて始められている。ベンゼン分子については光散乱 ($S_{coh}(Q, \omega)$, $Q \simeq 0$) 実験からすでにベンゼン分子緩和過程に関するモデルが提出されており、このモデルとの比較においても $S_{coh}(Q, \omega)$ のみの分離導出は意味があると考えられる。この様な光散乱などの中性子散乱以外の実験手段との併用により、これまで取り扱われることの少なかった溶液系の干渉性非弾性散乱の議論が可能となるかもしれない。

超イオン導電体はイオン伝導率の大きなことで知られる固相のみならず液相（熔融塩）においても、中性子散乱による研究発展が期待できる分野と思われる。この静的な構造研究は中性子回折よりはむしろSORを利用したX線異常散乱法がアイソトープ等の制約がほとんどなくこれからの手法としては最も適当と思われる。ただし動的な研究はX線回折では不可能であり、中性子散乱による方向依存性も考慮した原子のダイナミックスの研究は不可欠である。これまで超イオン導電体の研究は主としてbcc基本構造をもつ物質について行われてきたが、イオンの動的挙

動を取り扱い易い fcc 基本構造をもつ Ag_2Te , Cu_2Se 等の構造解析が進んでおり、これらの物質が原子のダイナミクス研究の糸口となるかもしれない。一方、測定法の応用面では超イオン導電体の散漫散乱の解析に、従来あまり着目されていない弾性散乱 $S(Q, 0)$ のみの測定が熱散漫散乱と無秩序性による散漫散乱との分離に利用されている。この他非調和熱振動と散漫散乱との関係、分散のない数 meV の励起エネルギー、フォノンのダンピング散乱スペクトルへの影響など中性子散乱のエネルギー解析に関係した多くの興味深い問題がある。

上記の物質研究を行う場合の定常炉とパルス炉との関係についてここで述べておく。ただし、定常炉とパルス炉との一般的な特徴等については多くの解説があり、これらを参照していただきここでは省略する。実際に H_2O 等の準弾性散乱スペクトルの測定を行うと例えば高エネルギー研のパルス中性子用準弾性散乱分光器 LAM の測定時間は原研 2 号炉 HT-8 スペクトロメータの測定時間の $1/5 \sim 1/10$ である。(ただし、測定強度から散乱関数の導出は定常炉の場合比較的簡単である。) このことから、定常炉での溶液研究はもはや必要性がないと考えられるかもしれない。しかしながらパルス炉では実現できない溶液研究における定常炉の利点は、高温炉やクライオスタットを使用した時でも試料を（アナライザーを除いて）全く同一の実験条件下で 2 軸及び 3 軸測定が可能となることである。特に干涉性散乱が無視できない溶液系などでの 3 軸データの解析は 2 軸データの導出及び解析なくしては全く進展しない。超イオン導電体中の方向依存性のある原子拡散の研究にも当然この条件が必要となる。

上記の物質研究を行う際、散乱ベクトル Q は $1 \sim 10 \text{ \AA}^{-1}$ 程度の領域での情報が最も必要となる。液体のハローパターンでは、これは第 1, 第 2, 第 3 ピーク等が先ずる領域に対応する。入射エネルギーとしては $1 \text{ \AA}$ 程度に換算される。改 3 号炉では入射波長が $\sim 2.4 \text{ \AA}$ と比較的長い波長を用いた分光器が多いが、溶液、超イオン導電体等のこれからの研究では $\sim 1 \text{ \AA}$ の入射波長の分光器の設置が望ましいと思われる。

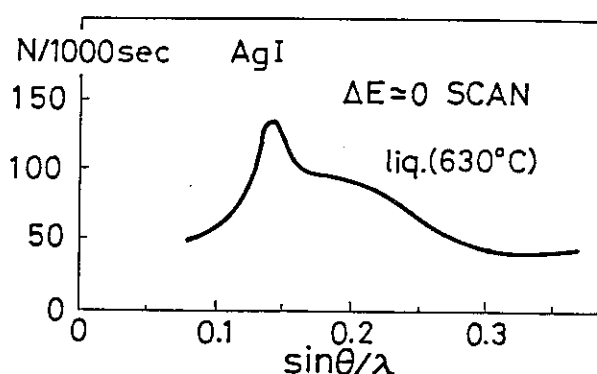


Fig. 1 Neutron scattering curve of liquid AgI measured by the $\Delta E=0$ scan method.

3.5.3(4) 高 分 子

京大化学研究所 梶 慶輔

中性子散乱の高分子への応用を Table 1 にまとめて示す。このうち現在最も精力的に行われているのは小角散乱 (SANS) であるが、これは主として H と D の散乱長の差 ($b_H = -3.74 \text{ fm}$, $b_D = 6.67 \text{ fm}$) が大きいことを利用して高分子鎖をラベルし、濃厚溶液またはバルク中の分子鎖形態を調べるものである。高分子は種々の緩和時間をもつ複雑なランダム運動をしているため、その解明を目的とする準弾性散乱研究も多く行われている。非弾性散乱は、高分子側鎖の運動、格子振動または分子スペクトル研究に用いられている。以下にこれら 3 つの方法について高分子科学との関連において紹介するが、興味ある読者は後に示す文献をも参照されたい。^{1), 2), 6-9)}

高分子物理の背景

1970 年代初期の高分子物理は、若干行詰りの状態にあった。すなわち、高分子溶液構造では濃度が十分薄く分子鎖が互いに十分離れ分子間相互作用を示さない希薄溶液についての理論はなく、分子が接触する臨界濃度より濃い準希薄溶液および濃厚溶液の構造に関しては殆んど分っていないかった。高分子固体構造も非晶状態での分子鎖形態が確定できずにいたし、半結晶状態における分子形態や分子論的な結晶化の機構にいたっては殆んど無知に等しかった。このような行詰りを打破したのは理論的には de Gennes のスケーリング理論^{3), 4)}であり、実験的には中性子散乱であった。

中性子小角散乱 (SANS)

スケーリング理論はバルク状態を含む全濃度領域の高分子溶液を取扱ったもので、高分子溶液の温度-濃度に関する相図および各相の分子構造と分子運動に関する描像を与えた。この理論の検証は主として SANS によって行われ、本質的に正しいことが明らかになった。また、高分子固体 (バルク) に関する研究ではガラス状態や熔融状態を含めた非晶状態では、高分子鎖は完全に無秩序なランダムコイル (ガラス鎖) になることが確かめられた。すなわち、D 化ラベル分子の SANS 測定からその回転半径 R_g は分子量の 0.5 乗に比例し、散乱関数 $S(q)$ ($q = \text{運動量変化}$) も正確に Debye 関数になることが証明された。この結果は Flory の熱力学的な予言および de Gennes らの相図と一致しており、非晶状態が互いにかからみあったランダムコイル状の分子鎖からなることをはじめて確定した。同様の手法を用いて熔融状態から結晶化した試料中の分子鎖形態も調べられたが、驚いたことに分子鎖の全体の広がり $R_g \sim M^{0.5}$ となりガラス鎖と殆んど変わらないことがわかった。ただし、部分的には結晶しているので $S(q)$ はもちろん Debye 関数とはならない。この結果は次のように説明された。融体中では高分子鎖は互いにかからみあっており、1 本の分子はからみあいの網目の中に閉じ込められている。したがって、分子軸に対し直角方向には他分子を横切れないので拡散できず軸方向にのみ移動できる。換言すれば、分子は分子軸に沿った曲管中に閉じ込められているようなものである (管模型)。分子がこの管から抜け出す時間 τ_d は分子長の 3 乗に比例する ($\tau_d \sim M^3$)。 $M \sim 10^5$ のポリエチレンでは $\tau_d \sim 0.2 \text{ s}$ であり、通常の条件下ではこれより 1 桁短い時間内に分子の広がり全領域が結晶化してしまう。そのため結晶化中に分子全体の形態を変えないわけである。また、融体中に存在したからみあい点は結晶外に排除され非晶相を形成する。高分子が通常 100% 結晶化できないのは主としてこの“からみあい”のためである。 τ_d の値は SANS の実時間測定 (real time measurements)

法により直接求めることができる。これはHとDの薄いフィルムを交互に密着させた多層フィルムを融点以上に一定時間保ち、分子を拡散（D分子がHフィルム中へ、H分子がDフィルム中へ）させた後、室温に戻しSANSの強度変化を測るもので、これから分子の拡散速度が求まる。SANSは高分子溶液の相分離に伴う曇点（cloud points）の検出に使われる。光散乱では粒径が大きくないと検出できないが、SANSでは小さい粒径のものが検出できるので相分離の開始点が調べられH-DコントラストによりX線より明瞭である。共重合体やブレンド物の溶液相分離研究では R_g 測定や曇点測定が行われる。その他、未架橋および架橋高分子（ゴム）の力学的な変形機構の分子論的研究に広く用いられている。

中性子準弾性散乱（QENS）

高分子中にはFig. 1に示すような種々の揺動運動が存在する。これまでに研究されているのは、溶液中およびバルク中のセグメント運動および局所運動などである。前者は、溶液中では流体力学的相互作用のためセグメントの運動エネルギーは q^3 に比例し、バルク中では q^4 に比例することが明らかにされた。後者では緩和時間が $10^{-13} \sim 10^{-12}$ sの非常に速いジャンプ回転運動が検出されている。しかし、これらの研究はまだ開始されたばかりで詳細な運動機構の解明は今後の研究に待たなければならない。本研究には背面散乱スペクトロメータ（IN 10）、スピネコースペクトロメータ（IN 11）、LAMスペクトロメータ¹⁰⁾などが用いられている。

中性子非弾性散乱（INS）

高分子ガラスの力学的性質では側鎖の運動が重要な役割を果たす。側鎖運動の研究ではINSやQENSが有用な手段となる。例えばメチル側鎖のねじれ振動はIRやラマン散乱では検出し難くINSでは強く出現する。また、振動の対称性に基づく選択則がないことから格子振動の分散関係（干渉性散乱）やフォノンの状態密度（非干渉性散乱）の測定に用いられている。最近ではエポキシ樹脂のフラクトンが論じられている¹¹⁾。逆に中性子散乱の選択則（Hの動きを伴わない振動は見えない）もあり、これから水素結合に関する情報が得られる。また、D化により特定のモードを消去できバンドの帰属に利用することができる。

参 考 文 献

- 1) 梶 慶輔, 秋吉恒和, 福田 猛: 「中性子散乱」, 高分子実験学16巻(高分子の固体構造I), 第4章, 共立出版, 1984.
- 2) 梶 慶輔, 栗田公夫: 「中性子散乱による高分子の研究」, 月刊フィジクス, 5, 103 (1984)
- 3) 「高分子の物理学」, 月刊フィジクス, 4, No. 28, (1983).
- 4) P.G. de Gennes: "Scaling Concepts in Polymer Physics", Cornell Univ. Press, Ithaca, 1979.
- 5) Faraday Discussions of Royal Society of Chemistry, No.68, (1979).
- 6) A. Maconnachie, R.W. Richards: Polymer, 19, 739 (1978).
- 7) J.S. Higgins, R.S. Stein: J. Appl. Cryst., 11, 346 (1978).
- 8) J.S. Higgins: "Polymer Conformation and Dynamics", in "Treatise on Materials Science and Technology", Vol.15, (Neutron Scattering),

- ed. by G. Kostoyz, Academic Press, New York, (1979).
- 9) R.A. Pethrick, R.W. Richards : "Static and Dynamic Properties of Polymeric Solid States", D. Reidel, Dordrecht, (1982).
- 10) K. Inoue, et al. : Nucl. Instr. Meth., 178, 459 (1980) ; Physica, 120B, 422 (1983) ; Nucl. Instr. Meth., in press.
- 11) H.M. Rosenberg : Phys. Rev. Lett., 54, 704 (1985).

Table 1 The applications of neutron scattering to studying polymer

中性子散乱の特徴と高分子研究への応用			
	対応する 他の測定手段	中性子散乱の特徴	高分子への応用
<u>弾性散乱</u>			
干渉性			
広角	広角X線散乱	原子核による散乱(核散乱) HとDの散乱長が異符号	結晶構造(水素原子の位置), X-N合成(電子雲の形)
小角	小角X線散乱 光散乱	HとDの散乱長の差大	直接法による結晶構造解析 高分子のバルク中または濃厚溶液中の分子鎖形態, 生体物質の内部構造(コントラスト変化法)
非干渉性	————		温度因子
<u>準弾性散乱</u>			
干渉性	動的散乱	時間空間相互相関関数 (運動体の大きさとエネルギーが同時に求まる)	高分子中の種々の分子運動(局所運動, セグメント運動, 重心の拡散など)を分離測定
非干渉性	核磁気共鳴	時間空間自己相関関数 D化によりその部分の運動の寄与を消せる。	単純拡散, 並進ジャンプおよび回転ジャンプ運動
<u>非弾性散乱</u>			
干渉性	————	分子スペクトルにおける選択則なく, フォノンの運動量が求まる。	分子スペクトロスコピー(振動数分散曲線の測定), 結晶弾性率
非干渉性	赤外吸収 ラマン散乱	選択則なし, D化ラベルにより振動ピーク消去できる。	フォノンの状態密度, 振動モードの帰属

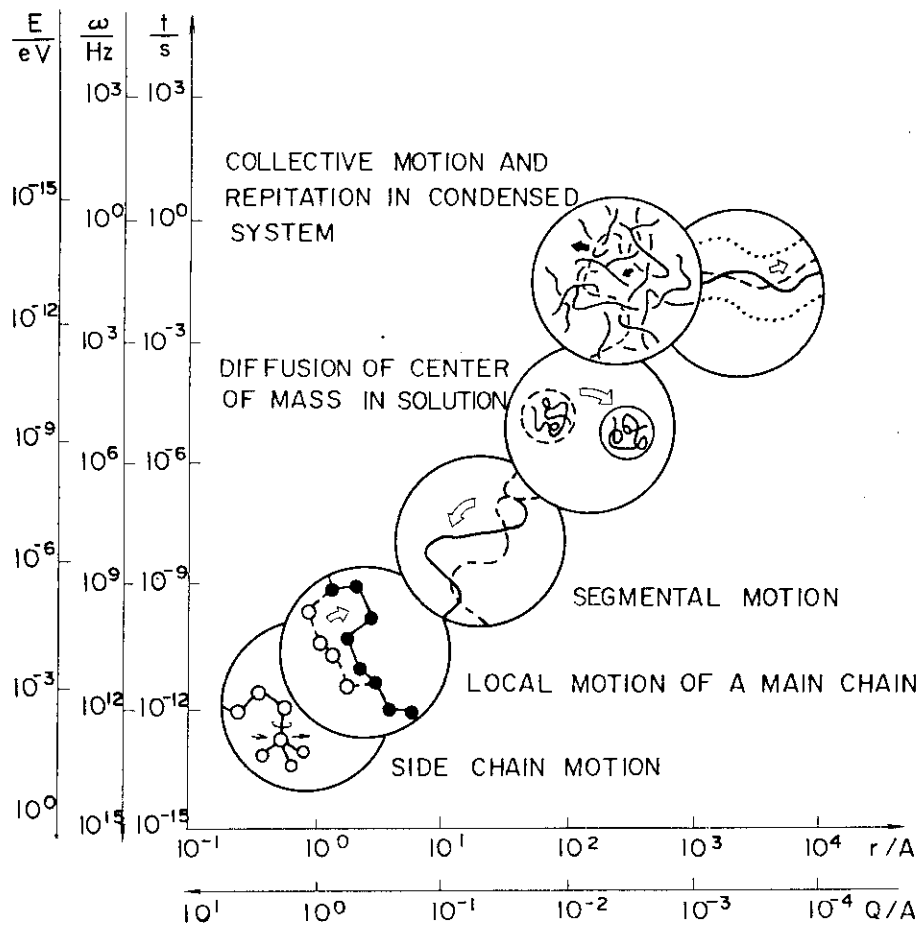


Fig. 1 The correlation between relaxation time and mean distance of motions in polymer chains.

3.5.4 磁性研究の最近の動向

3.5.4(1) 金属磁性

原研物理部 船橋 達

磁性体は金属と絶縁体とに分けて考えられる。絶縁体の磁性は、基本的にd電子またはf電子の不完全殻をもった孤立イオンを出発点として考えられる。

これに対して、遷移金属の場合、3d電子が原子に局在しているものかあるいは磁性原子をめぐり動いている遍歴電子であるのかという疑問が永年の間磁性物理学者の頭を悩ませてきた。たとえば、局在電子に対してあてはまるべき常磁性磁化率のキュリーワイス則が成り立つ一方、それから導かれる常磁性磁気モーメントが秩序相の磁気モーメントと一致しないという多くの金属で見られる事実は、大きな疑問の一つであった。クロムの磁気構造が中性子回折によって解明されたのは1/4世紀むかしのことであるが、磁気モーメントの大きさが原子の配列周期とは無関係な長い周期で変動しているいわゆるスピン密度波(SDW)であるという事実は遍歴電子によって初めて理解されるものであった。現在では、磁性金属中の3d電子は各原子のd軌道をつぎつぎに遍歴するという考え方が確立され、スピンのゆらぎを取り入れた統一理論はキュリーワイス則の問題にも解決を与えた。そうして、クロムのように遍歴性の強いものから、ホイスラー合金のように局在性の強いものまで多様な広がりがあることも明らかになった。

中性子非弾性散乱は磁性体の動的構造を知る直接的な方法であるが、遍歴電子系でも絶縁体でもエネルギーEの低い領域では波動ベクトルqの二乗に比例したスピン波が存在し区別がつかない。遍歴電子特有の現象として、逆スピンバンドへの遷移に対応するストーナー励起がEの高いところに期待されるが、確認されているのは石川等による代表的な弱い強磁性体MnSiの例だけである。

磁気転移温度より高温では磁気モーメントの方向が無秩序になるが、鉄やニッケルではキュリー温度よりはるかに高温でも、スピン波が非常にぼやけた形で、しかしキュリー温度直下と全く同じ位置に残っていることが中性子非弾性散乱によって観察されてきた。これは強い短距離秩序が高温まで遍歴電子強磁性体に残っているという無理な仮定をして説明されてきた。しかし最近白根等は、q-E空間で広い範囲の測定を注意深く行って、Fig. 1のような散乱強度分布を見いだした。この図の横軸に平行な直線に沿った散乱強度を測定するのは定E法といわれ、急峻な分散関係を測定するのにしばしば採用される三軸分光器の測定法であるが、この種の測定では図中の×印の付近にピークが見られ、あたかも破線のような分散関係があるかのようにみえる。しかし、縦軸に平行な線に沿った定Q法によって求められる散乱関数はエネルギー0のところで最大となるローレンツ型曲線になっている。以前に定E法で測定されていた鉄やニッケルの常磁性相のスピン波のような励起は、測定法に依存した見かけ上のものにすぎないことが明らかにされた。さらに最近では、局在性が非常に強いホイスラー合金のPd₂MnSnでも同様のローレンツ型の散乱関数が観測されていて、しかもエネルギーをスピン拡散定数でスケールすると、キュリー温度付近で鉄、ニッケルと同じになってしまうことも見いだされた。強磁性金属の本質に迫ろうとするこれらの実験が、今なおこのような状況にあるのは、常磁性散乱がQ-E空間に大きく広がって強度が小さいためである。磁気散乱だけを選び出すために偏極解析が必要で、高い中性子束が

要求される実験である。

クロムは反強磁性を基本としたSDWであるが、秩序相での励起はサテライトから発するスピン波の速度が大きく、普通の形の分散関係は測定されない。また、磁気散乱のない001上でも、定Q法で磁気励起が見られるなど複雑な様相を呈する。 Mn_3Si もやはりSDWと考えられる金属間化合物であるが、クロムに相似の磁気励起が観測されている。クロムより励起エネルギーが低く、全体像がつかみやすそうにおもわれる。クロムの常磁性相では、非弾性散乱は001のごく近傍でしか見られないが、かなり高温までローレンツ型の散乱が存在する。

遷移金属の磁性に関する他の一つの重要な課題は、大きな磁気体積効果の関与しているインバー合金である。この種の合金では、磁化がスピン波分散関係から計算されるのに比べてはるかに大きな温度変化を示す。このことから通常のスピン波以外に未知の励起が存在すると予想される。石川等はこれを説明するいくつかの可能性のうち、ゾーン境界のストーナー励起およびゾーン中心の緩やかな励起などが存在しないことを明らかにし、スピン波のまわりにその磁気励起が重畳しているとしている。

これら非弾性散乱の実験に劣らず重要なのが弾性散乱による磁気構造の決定である。例えばマンガンの場合、 γ 相は500 K以下で単純な反強磁性体になるが、 α 相は単位胞が29原子で構成され95 K以下で複雑な磁気構造を有する。 β 相は単位胞に20原子を含むが、低温まで磁気秩序が発生しない。この相にd電子を増すかまたは原子間距離を広げる不純物を入れると低温で磁気秩序が発生するが、中性子散乱ではFig. 2のような短距離秩序を示唆する散漫散乱が観測されている。

NiS_2 は約30 Kより低温で反強磁性から寄生強磁性に転移する。この強磁性相の磁気構造は宮台によって解明されたが、それを出現させているのは以前から理論的に考えられ固体 ^3He の核スピン配列を説明するのに有効であった4スピン相互作用である。

また、最近日本で開発された $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ は極めてエネルギー積が高い永久磁石材料であるが、その磁気構造は残念なことにフランスで解明された。これらの例から見られるように今後ますます複雑な磁性体の構造解析が必要となってくるであろう。

ここでは、f電子系についてはほとんどふれる余裕がなくなってしまったが、セリウムなどの希土類や5fのウランの金属化合物の価数揺動状態、種々の磁気構造の展開、高密度近藤状態の出現、重いフェルミ粒子の超伝導など多くの課題が控えている。

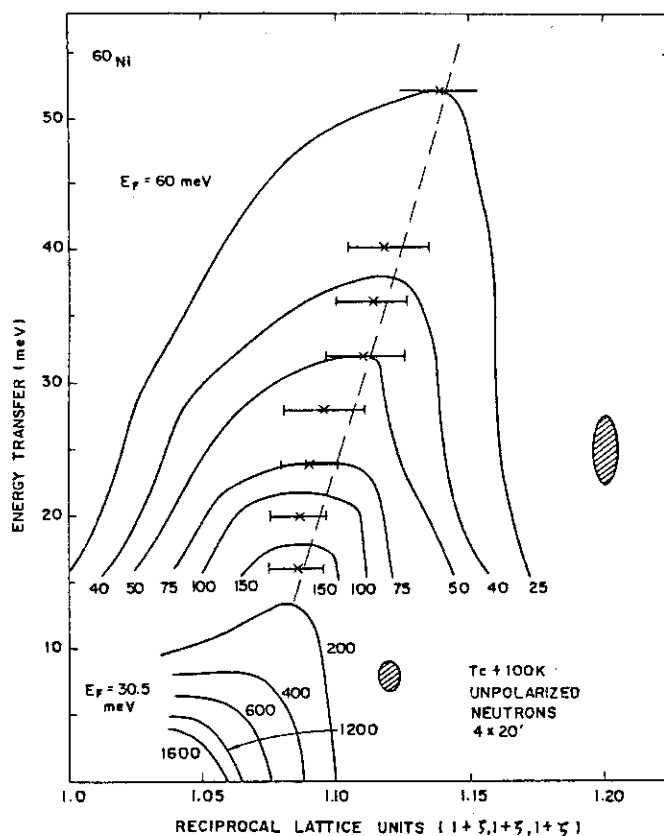


Fig. 1 Constant intensity contours in (q, ω) space constructed from scans at $E_F = 30.5$ and 60 meV. The crosses indicate the positions of the intensity maxima in constant E scans. The broken line is the dispersion curve for the so called persistent spin wave. The resolution ellipses have also been drawn. After G. Shirane et al.; J. Appl. Phys., 55, 2048 (1984).

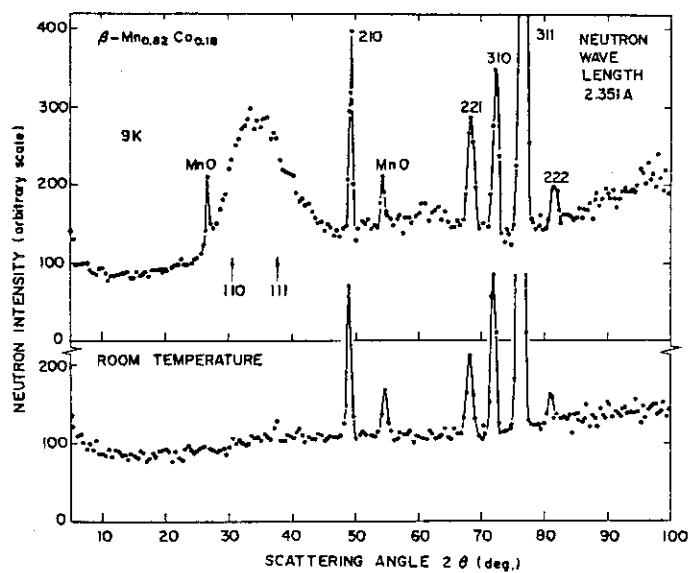


Fig. 2 Neutron diffraction profiles of $\text{Mn}_{0.82}\text{Co}_{0.18}$ at room temperature and 9K . After S. Funahashi, T. Kohara; J. Appl. Phys., 55, 2048 (1984).

3.5.4(2) 乱れたスピン系

北大応電研 勝又紘一

中性子散乱を用いて行われたランダム磁性体に関する最近の研究について簡単にレビューする。ここで問題にするランダム磁性体は、二種類（あるいはそれ以上）の磁氣的性質の異なる原子が結晶格子点以上にランダムに配列されたもので、その結果交換相互作用や異方性エネルギーがランダムな系である。この種のランダム磁性体として次の三種類のものが精力的に研究されている。

(i) 希釈反強磁性体, (ii) 異方性の競合するランダム磁性体, (iii) 交換相互作用の競合するランダム磁性体。

(i) の磁性体は「ランダム磁場効果」の研究に用いられている。ランダムでない磁性体でもそうであるが、相転移の様子はスピンが交換相互作用によって空間的に結合する仕方（1, 2, 3次元）及びスピンがとりうる自由度（イジング型, XY型, ハイゼンベルグ型）に大きく依在する。強磁性体の各スピンにランダムな磁場を仮想的にかけたとき、イジングスピン系では2次元以下で相転移は起こらず、またXY及びハイゼンベルグスピン系では4次元以下で相転移が生じないことが理論的に予想されていた。このような「ランダム磁場」は実現不可能なので実験は出来なかったが Fishman と Aharony¹⁾ は希釈された一軸異方性をもつ反強磁性体の磁化容易軸方向に外部磁場をかけた系がランダム磁場中の強磁性体と等価であるということを見出し、ランダム磁場効果の実験が可能になった。中性子散乱を用いたランダム磁場効果の実験²⁾はブルックヘブン国立研究所で始められた。2次元希釈イジング反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{F}_4$ に外部磁場をかけていくと相関距離がどんどん短くなることが観測され、予想されたようにランダム磁場中の2次元イジングスピン系は相転移を示さないことが証明された。しかし3次元イジング系でも同様な現象が見られ、また試料をゼロ磁場中で相転移温度以下に冷やした後に磁場をかけると長距離秩序が長時間安定に存在するという事実もあり、ランダム磁場効果の話題は完全に解決した訳ではない。

次に(ii)のランダム磁性体について行われた中性子散乱実験について述べる。結晶構造、スピン構造が同じで磁化容易軸が互に直交している二つの磁性体をランダムに混ぜた系は興味ある相転移を示す。この系の代表的な物質は $\text{Fe}_{(1-x)}\text{Co}_x\text{Cl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ であり、³⁾ Fig. 1 にその濃度対転移温度の相図を示した。相図には、各々 $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 及び $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ と同じ構造（容易軸方向も含めて）をもつ二つの反強磁性相と、このランダム系に特有な新しい型の相（OAF相あるいは Mixed Ordering 相という）が存在する。Mixed Ordering 相では競合するスピンの成分が同時に秩序している。相図には4本の二次相転移線が存在し、それらは四重臨界点で会する。くい込み群論の結果によると、この四重臨界点近傍では一つのスピン成分の秩序が他の成分の秩序とは独立に生じる。この予想を確かめる最初の実験が中性子散乱を用いて行われた。⁴⁾ Fig. 1 にその結果を示している。四重臨界濃度に近い試料について (0, 1, 0) 散乱強度の温度依存性を測定すると高温相ではスピンはb軸を向いているので散乱は殆んどないが、低温相ではスピンのb軸に垂直な成分が出るので強い散乱が見られる。高温相ではスピン成分間の結合が 10^{-3} 以下と小さく、一つのスピン成分の秩序が他の成分の秩序とは独立に生じていることを明瞭に示している。異方性の競合するランダム磁性体の物質としてはここに挙げたものの他にもいくつかあるが、それらの物質では低温側の相転移 (Fig. 1 の L_3, L_4) が高温側のそれ (L_1, L_2) と比べてかなり

ばやけている。 $\text{Fe}_{(1-x)}\text{Co}_x\text{Cl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の場合はそのようなことがなく、Fig. 2 の中性子臨界散乱の実験から明らかなように低温側の相転移は高温側のそれと同程度にシャープである。

最後に(iii)のランダム磁性体について行われた中性子散乱実験について述べる。強磁性と反強磁性の交換相互作用がランダムに存在する系ではそれらが競合しフラストレーションを生じる。このいわゆるスピングラスにおいて、低温でスピンの空間的にランダムな方向に凍結する現象が新しい型の相転移であるとする理論が出されて以来十年程になるが、理論、実験ともに未解決の問題が多い。常磁性相からスピングラス状態への転移を示す物質の研究にとって中性子散乱は規則系の場合ほど有効な手段ではない。一つの実験として、エネルギー分解能を変化させることにより測定の見測時間を変え、中性子弾性散乱とそれ以外の散乱を区別する試みがなされている。⁵⁾ スピングラスにおいては弾性散乱が増加し始める温度(凍結温度)がエネルギー分解能によって変化し、分解能をよくすると(遅い観測時間に対応)凍結温度が低くなる。このことは、スピングラスの凍結が相転移ではなく、低温の状態は緩和時間が広い分布をもってゆらいているものであることを示しているようにみえる。しかし中性子散乱以外の手段で観測するとシャープな相転移の様相を示す場合もあり、結論を出せる段階ではない。スピングラスにおいて強磁性相互作用が強くなると、温度を下げるにつれて常磁性→強磁性→スピングラスの、いわゆるリエントラントスピングラス転移が起こる。このような系の研究には中性子散乱が再び有効な手段となる。例えば $\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x}$ における非弾性散乱の実験⁶⁾によると、強磁性相ではスピン波が観測されるが、スピン波 stiffness 定数は温度を下げると小さくなり、スピングラス状態ではスピン波は観測されない。リエントラントスピングラス転移については未解決の問題が多く、今後とも中性子散乱や偏極中性子の偏極度測定^{7,8)}などが重要な情報を与えるものと期待される。

参 考 文 献

- 1) S. Fishman and A. Aharony : J. Phys. C12, L729 (1979).
- 2) 総合報告としては , R.J. Birgeneau, R.A. Cowley, G. Shirane and H. Yoshizawa : J. Stat. Phys. 34, 817 (1984).
- 3) K. Katsumata, M. Kobayashi, T. Sato and Y. Miyako : Phys. Rev. B19, 2700 (1979).
- 4) K. Katsumata, H. Yoshizawa, G. Shirane and R.J. Birgeneau : Phys. Rev. B31, 316 (1985).
- 5) A.P. Murani and A. Heidemann : Phys. Rev. Lett. 41, 1402 (1978).
- 6) C.R. Fincher, Jr., S.M. Shapiro, A.H. Palumbo and R.D. Parks : Phys. Rev. Lett. 45, 474 (1980).
- 7) Y. Endoh, Y. Sasaki, H. Ono, S. Mitsuda and S. Ikeda : Physica 120B, 45 (1983).
- 8) K. Katsumata, M. Tanimoto, S. Mitsuda and Y. Endoh : J. Phys. Soc. Jpn. 53, 3315 (1984).

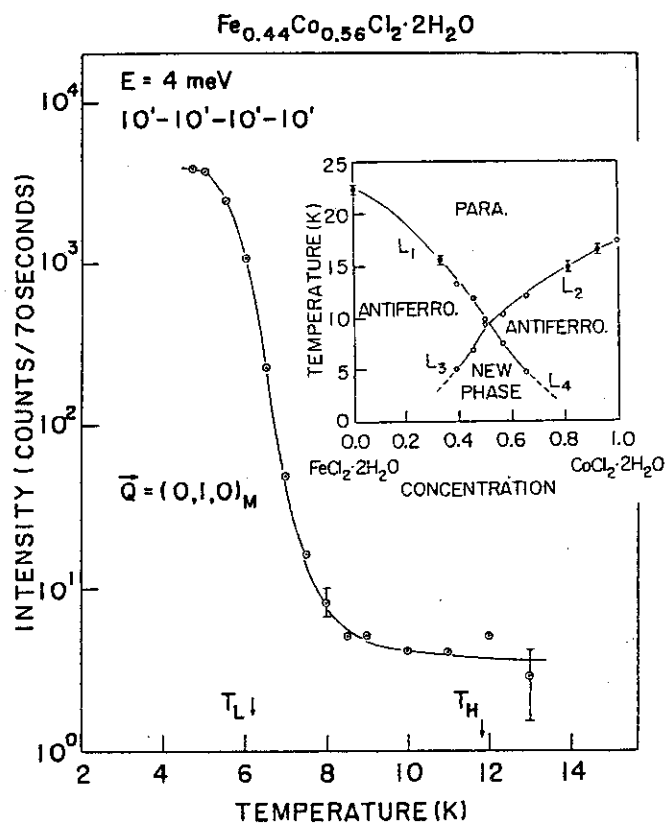


Fig. 1 Temperature dependence of the scattered intensity of $(0,1,0)$ peak in $\text{Fe}_{0.44}\text{Co}_{0.56}\text{Cl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. Inserted figure is the phase diagram of $\text{Fe}_{(1-x)}\text{Co}_x\text{Cl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$.

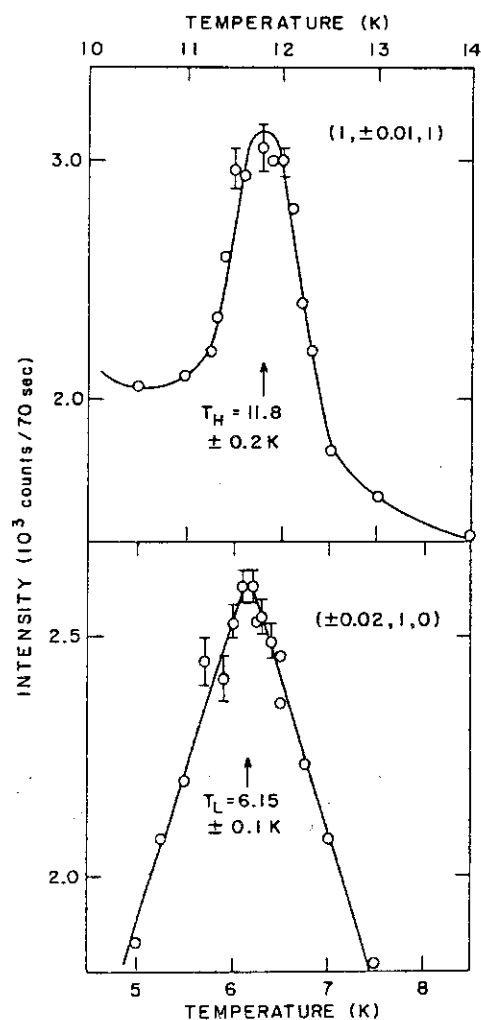


Fig. 2 Temperature dependence of the critical scattering at $(1, \pm 0.01, 1)$ and $(\pm 0.02, 1, 0)$ in $\text{Fe}_{0.44}\text{Co}_{0.56}\text{Cl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$.

3.5.4(3) 希土類非晶質合金の局所磁気異方性

学習院大学理学部 八田真一郎

この稿では、最近我々の研究室で研究されている希土類元素を含む非晶質合金の磁性の話題を紹介しよう。TbやDyは結晶状態では、FeやNiに比べ非常に大きな磁気異方性を持っている。これは希土類原子の持つ4f電子の軌道角運動量が、周囲の格子の作る静電場と相互作用することにより生じると考えられている。今、TbやDyを主成分として非晶質薄帯を作成し、その磁性を調べると、非晶質薄膜と異なり、この非晶質薄帯合金ではマクロな磁気異方性は消失していることがわかる。しかし、この合金中では希土類原子はなおミクロな磁気異方性を保有していると考えられ、その原子配置がランダムであることから磁気異方性は各原子位置で、その大きさと方向を変えていると思われる。これは非晶質構造に特徴的なことで、すべての原子の環境が皆同じである単体結晶とは大きく違う点である。このランダムな局所磁気異方性エネルギーがかなり大きく、スピン系のふるまいに対する効果が無視できない時、この磁性はどのようなになるであろうか。

このような非晶質合金の物性を測定することによって局所的磁気異方性定数の平均の大きさを算出しようというのが我々の目的である。我々のモデルでは、この合金中での希土類原子に、一軸性の異方性エネルギーを仮定して、それを $-D(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{S}_R^i)^2$ とおく。¹⁾ここにDは異方性定数、 $\mathbf{S}_R^i$ はi番目の希土類原子の全角運動量、 $\mathbf{m}_i$ は局所磁気異方性軸の方向を表わす単位ベクトルである。問題を簡単にするために、我々は、Dは一定とし、 $\mathbf{m}$ は全立体角中に完全にランダムに分布していると仮定する。さて非晶質Tb-FeやDy-Fe合金に、局所異方性を持ったフェリ磁性体のモデルを適用してみよう。ここでは、希土類原子と遷移金属原子はそれぞれ副格子を持ち、両者の間の交換相互作用定数(J_{RT})は負である。この系のハミルトニアンを書き下すと

$$H_R^i = -(\mathbf{H}_R^m - \mathbf{H}_{TR}^m + g_R \mu_B \mathbf{H}) \cdot \mathbf{S}_R^i - D(\mathbf{n}_i \cdot \mathbf{S}_R^i)^2 \quad (1)$$

$$H_T^j = -(\mathbf{H}_T^m - \mathbf{H}_{RT}^m + g_T \mu_B \mathbf{H}) \cdot \mathbf{S}_T^j \quad (2)$$

となる。(1)式は、希土類副格子のハミルトニアンであり、(2)式は遷移金属副格子のそれである。ここで、 $\mathbf{H}_R^m = 2J_{RR}Z_R \langle \mathbf{S}_R \rangle$ 、 $\mathbf{H}_{TR}^m = 2J_{RT}Z_T \langle \mathbf{S}_T \rangle$ 、 $\mathbf{H}_T^m = 2J_{TT}Z_T \langle \mathbf{S}_T \rangle$ および $\mathbf{H}_{RT}^m = 2J_{RT}Z_R \langle \mathbf{S}_R \rangle$ は、それぞれの副格子にはたらく、4種類の分子場である。 J_{RR} は希土類原子間の交換相互作用定数、 J_{TT} は遷移金属原子間のそれである。合金での遷移金属の濃度を x とすると、各原子の最隣接原子のうち希土類原子は Z_R 個($12(1-x)$)、遷移金属原子は Z_R 個($12x$)となる。 $\langle \mathbf{S} \rangle$ は全角運動量の熱平均、 $\mathbf{H}$ は外部磁場である。今、マクロな磁化 $\mathbf{M}$ の方向をZ軸ととり、 $\mathbf{n}_i$ とZ軸の成す角を ϕ_i とし、 $\mathbf{S}_R^i$ がZ軸とx軸と成す角をそれぞれ θ_i 、 φ_i とする。この定義では、異方性エネルギー項は

$$-D|\mathbf{S}_R|(\cos \phi_i \cos \theta_i + \sin \phi_i \sin \theta_i \cos \varphi_i)^2 \quad (3)$$

となる。上述のハミルトニアン(1)(2)を用いて、有限の角運動量 $\langle \mathbf{S}_R \rangle$ と $\langle \mathbf{S}_T \rangle$ を計算するには次のような逐次近似を行う。まず最初に初期値 $\langle \mathbf{S}_R \rangle^0$ と $\langle \mathbf{S}_T \rangle^0$ を設定する。傾き角 ϕ_i を成す異方軸を持つ希土類原子のオーダーパラメータは、

$$m_i = \frac{\langle S_R \rangle}{S_R} = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \cos \theta_i \exp(-H_R^i(\phi_i)/kT) \sin \theta_i d\theta_i d\phi_i}{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \exp(-H_R^i(\phi_i)/kT) \sin \theta_i d\theta_i d\phi_i} \quad (4)$$

により得られる。この値を ϕ_i について平均すれば

$$\langle S_R \rangle' = S_R \langle \cos \theta_i \rangle = S_R \int_0^{\pi/2} m_i \sin \phi_i d\phi_i \quad (5)$$

が計算される。次に $\langle S_R \rangle^1$ と $\langle S_T \rangle^0$ より $\langle S_T \rangle^1$ が求められる。この値を再び(4)に代入し、次々に新しい値が計算される。この代入値と、計算値が一致するまで、この計算は続けられる。このようにして得られた計算結果を Fig. 1 と Fig. 2 に示す。Fig. 1 では局所異方性が強くなっていく時の飽和磁化の温度変化を示す。図中の α は規格化された異方性エネルギー定数である。強い局所的異方性は、有限の磁化を減少させるが、キュリー点 (θ_f) は変化しない。これは初めに仮定した異方性の項が、キュリー点付近では2次の微少量となっているからであると思われる。同様の理由から磁化率 χ も、この異方性項によって影響を受けない。ところがキュリー点以上で、強磁場により有限の磁化が誘起される時、局所異方性の効果が現れてくる。キュリー点付近では磁化曲線は

$$M^2 = b(H/M) + a(T - \theta_f) \quad (6)$$

という式に従う。Fig. 2 に、このモデルにおける、キュリー点での $M^2 - H/M$ プロットを示す。局所的な異方性エネルギーが強まってくると、Fig. 2 の直線の傾き b が、減少してゆく。これは、ランダムな方向を向いている局所磁気異方性により有限な磁化の誘起が妨げられている効果を良く表わしている。強力なパルス磁場を用いて、非晶質 $Tb_{1-x}Fe_x$ 合金のキュリー点付近の磁化を測定し、これから得られる b の実験値に合うように D を決めると、 $x = 0.36, 0.28$ に対して、 D の値はそれぞれ 0.4×10^{-15} (erg/atom), 9.6×10^{-15} (erg/atom) となった。ちなみに、この値は Table 1 に示すように、Tb 単結晶における磁気異方性定数 18.0×10^{-15} (erg/atom) に比べれば、最隣接の Tb 原子数を考慮しても、かなり小さい。これは、単結晶などに比べ、アモルファス合金では局所的な球対称性が高まっており、結晶の磁気異方性に比べて、弱い局所異方性を示したと考えられる。²⁾

改造3号炉に設置される新しい中性子回折装置による実験で、非晶質合金の磁性についての問題の解明が期待される。

Table 1

	b (実験値) / b ($D=0$ での理論値)	D ($\times 10^{-15}$ erg)
$a - Tb_{72}Fe_{28}$	33 %	9.6
$a - Tb_{64}Fe_{36}$	63 %	4.0
crystalline Tb		18.0

参 考 文 献

- 1) R. Ferrer, R. Harris, D. Zobin and M.J. Zukermann : Solid State Commu. 26, 451 (1978).
- 2) S. Hatta, T. Mizoguchi and N. Watanabe : Proc. RQ5 (Würzburg), 589 (1984).

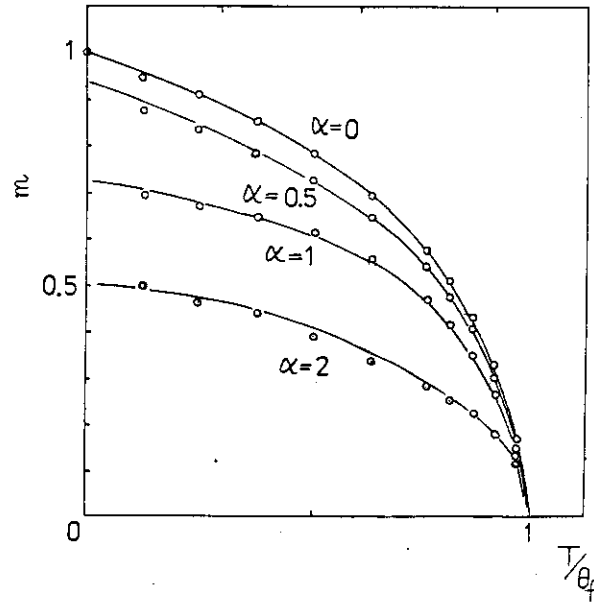


Fig. 1 The normalized spontaneous magnetization vs. the normalized temperature in our calculation. α is the reduced local anisotropy constant. ($\alpha \equiv D/2J_{RR}Z_R$).

M^2

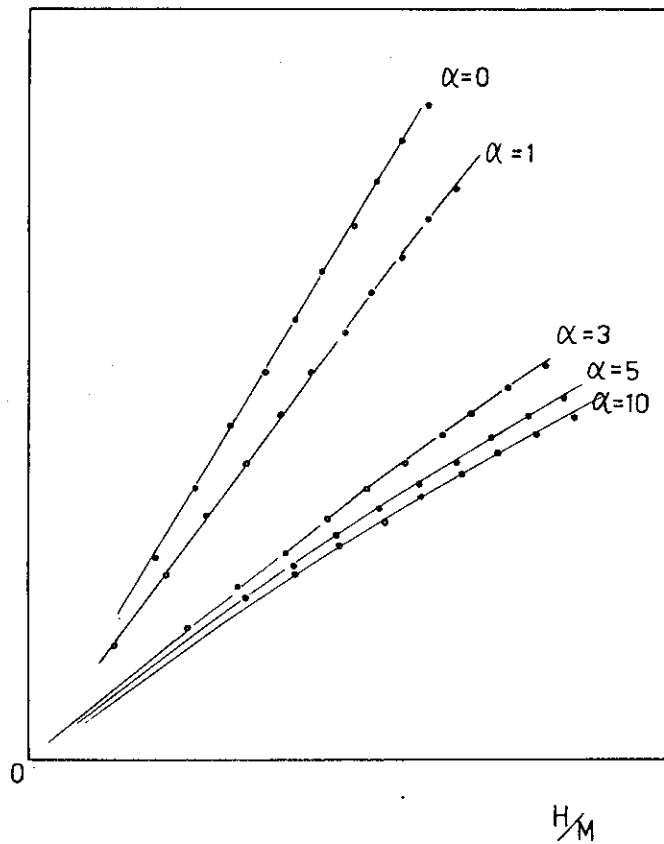


Fig. 2 M^2 vs. H/M plot at θ_f in our calculation. α is the reduced local anisotropy constant. ($\alpha \equiv D/2J_{RR}Z_R$).

3.5.4 (4) 磁性超伝導体

東大物性研 石川征靖

固体内電子が示す典型的な量子現象である超伝導と磁性との共存問題は、ガドリニウムの様な強磁性金属が同時に超伝導体であり得ないだろうかというギンツブルグのシンプルな疑問から始まった。そして、この研究課題はBCS理論が発表された1950年代後半以来、多くの低温物理屋の関心と呼んだ。¹⁾それは言うまでもなく、スキッド(SQUID)等への技術的応用例からもわかる様に、超伝導体の基本的性質である磁場に対する特異性に関する重要な問題だったからである。ここで言う超伝導との共存は、試料中に超伝導と強磁性の結晶粒が混在している様なものではなく、少なくとも超伝導コヒーレンス長程度($\sim$ 数百Å)にわたる範囲での共存でなくてはならない。従って、少量の磁気イオンが格子点上にランダムに分布している様な超伝導体を使った従来の研究では、試料のミクロなスケールでの不均一性が不可避な障害となった。そのために、共存に対する確定的な解答は、二十数年にも及ぶ莫大な努力にもかかわらず、1977年頃まで得られなかったのである。この不均一性の問題は、希土類イオンが規則的に配列し副格子を構成している。シェブレル化合物²⁾ $(\text{RE})\text{Mo}_6\text{X}_8$ ($\text{X} = \text{S or Se}$) やロジウム・テトラボライド³⁾ $(\text{RE})\text{Rh}_4\text{B}_4$ の様な三元化合物超伝導体の発見により一挙に解決した。そしていろんな磁気秩序と超伝導の共存・競合の詳細が実験的に始めて明らかになったのである。磁性超伝導体と呼ばれるこれらの三元化合物超伝導体では、その超伝導状態中で希土類イオンが長距離秩序を起し、強磁性と反強磁性とでは全く異なった効果を超伝導に及ぼすことがわかった；強磁性の場合、キュリー点近傍で超伝導は一次の相転移を起して壊れ常伝導強磁性状態になる。Table 1に示す様にこの現象は HoMo_6S_8 や ErRh_4B_4 及びその擬三元系に限られている。一方、反強磁性の場合は、ネール点近傍で超伝導状態は磁気モーメントのゆらぎ等の影響を強く受けるものの一般には常伝導状態に戻ることなく、従って反強磁性と超伝導は共存するのである。この様な超伝導との共存問題においても、磁気秩序の長距離性及び磁気構造の解明には、中性子散乱の実験技術が大きな役割を果たしたことは言うまでもない。磁性超伝導体に関する中性子回折実験の結果は文献4に詳しく報告されているが、Table 1にその主要な結果を挙げて置く。三元化合物磁性超伝導体における共存問題の興味ある未解決の課題のうちで、中性子回折実験が特に、indispensableな実験手段として期待されているものをひとつ紹介しておこう。磁気モーメントが超伝導状態中で強磁性的に整列する過程で、超伝導は遮へい効果によってこれを“阻止”する様に働く。その結果、磁気モーメントは変調を受け、長周期の別の磁気構造がキュリー点の極近傍で出現する。この新しい磁気構造は、超伝導と磁性の秩序パラメータ (Fig. 1中、それぞれ $|\phi|$, M で示す) との間に働く微妙な相互作用の直接的な結果であると考えられる。Fig. 1に示す様な磁気構造が理論計算から予測されているが、⁵⁾ HoMo_6S_8 , HoMo_6Se_8 や ErRh_4B_4 では、中性子回折の小角散乱実験から、 $100 \sim 200$ Åの周期を持った(2)の様な横波正弦波状の秩序が出現しているらしいことがわっている。しかし、良質な単結晶が未だ得られないため、正確なモーメントの配列とか、その温度や磁場依存性など、理論計算と比較するのに十分なデータは未だないのが現状である。Fig. 1の(1)や(2)の構造では、単に長周期の反強磁性と超伝導の共存に過ぎないと考えられるかも知れない。しかし、強磁性と超伝導の共存というギンツブルグの夢は、磁化の強磁性成分を持つ(3)や(4)の様な形態で実現される可能性が残されており、中性子散乱によってそれを確認することはチャ

レンジングな課題である。

上記の磁性超伝導体における共存・競合は、希土類イオン上の局在磁気モーメントと超伝導 d-電子との相互作用の結果であった。ところが、Ce とか U のある種の化合物でこれらの磁気イオンが低温で“非磁性化”した後、超伝導状態になるものが最近発見され話題になっている。この超伝導には、有効質量が自由電子の数百倍にも達する重い f-電子が直接関与しており、そのため重いフェルミ系とか重い電子系超伝導体と呼ばれている。^{1, 6)} 高濃度近藤効果⁷⁾と密接な関係があるものと信じられているが、猶数多くの難題が残されており、理論実験の両面から活発な研究がなされている。この新しいタイプの磁性超伝導体の研究においても、例えば spin fluctuations と超伝導との相関の解明などに中性子散乱の実験結果が大いに期待されている。

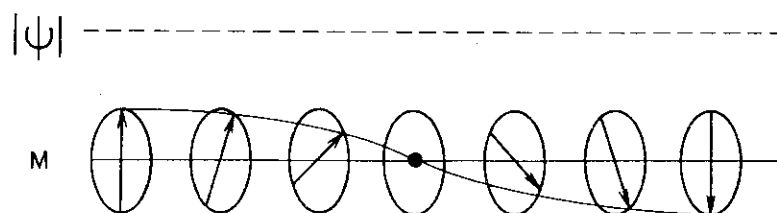
参 考 文 献

- 1) たとえば、石川征靖：超低温の物性物理，阿部龍蔵，斯波弘行編，培風館（1985），第2章を参照せよ。
- 2) M. Ishikawa, ϕ . Fischer and J. Muller : Superconductivity in Ternary Compounds, Vol. II, M.B. Maple and ϕ . Fischer (editors), Springer-Verlag (1982), Chapter 5.
- 3) M.B. Maple, H.C. Hamaker and L.D. Woolf, *ibid.* Chapter 4.
- 4) W. Thomlinson, G. Shirane, J.W. Lynn and D.E. Moncton, *ibid.* Chapter 8.
- 5) 立木 昌：磁性理論の進歩，守谷 亨，金森順次郎編，裳華房（1982），第4章，及び町田一成，月刊フィジクス，4 749（1983）。
- 6) G.R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* 56, 755 (1984)。
- 7) 槽谷忠雄：磁性理論の進歩，（上記）第3章，及び芳田奎，月刊フィジクス，4，763（1983）。

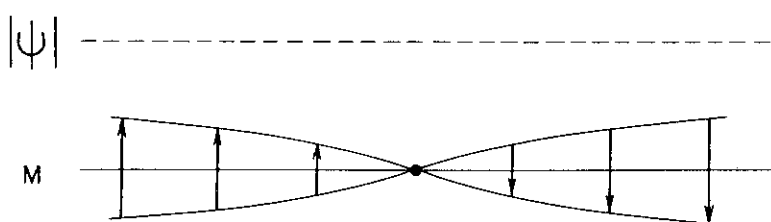
Table 1 Magnetic ordering in superconducting ternary compounds.
 T_C is the superconducting transition temperature, T_C'
 is the re-entrant transition temperature for ferro-
 magnetic superconductors and T_N is the Neel temperature.
 μ_Z is the Z-component of the magnetic moment as determined
 by the neutron scattering experiments at BNL.

Compound	T_C (K)	T_C' (K)	T_N (K)	$\mu_Z(\mu_B)$	Magnetic structure
GdMo ₆ S ₈	1.4		0.95	6.5±0.3	AF (Al type)
TbMo ₆ S ₈	1.8		1.05	8.3±0.2	"
DyMo ₆ S ₈	2.15		0.45	8.8±0.2	"
HoMo ₆ S ₈	2.15	0.64		9.1±0.3	F
ErMo ₆ S ₈	2.2		0.2	3.5±0.3	AF (Al type)
GdMo ₆ Se ₈	5.6		0.75		AF
TbMo ₆ Se ₈	5.7		1.03		?
ErMo ₆ Se ₈	6.0		1.1		AF (complex)
NdRh ₄ B ₄	5.3		1.2, 1.55		"
SmRh ₄ B ₄	2.7		0.87		"
TmRh ₄ B ₄	9.9		0.6		"
ErRh ₄ B ₄	8.5	0.9		5.6±0.2	F
(Er _{0.4} Ho _{0.6})Rh ₄ B ₄	7.2	3.6		5.0±0.5	"
ErRh _{1.1} Sn _{3.6}	1.24	0.34			"

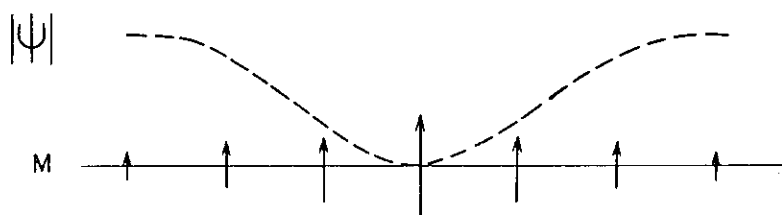
1) Spiral state



2) Sinusoidal state



3) Vortex state



4) Laminar state

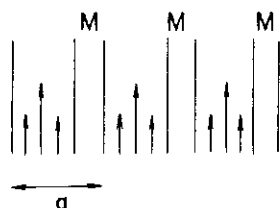


Fig. 1 Possible states of coexistence in ferromagnetic super-conductors. $|\psi|$ and M are superconducting and magnetic order parameters, respectively.

3.5.4(5) 核磁性と中性子散乱

阪大理学部 河原崎修三

近年の低温技術の進歩は、実験室段階では、すでにサブ・マイクロケルビンの温度を実現しており、これに伴って、核スピンの関係する磁性も、あとで述べるようにいくつかの分野で、研究が蓄積されつつある。

中性子散乱の方法は、電子磁性の研究の場合と同様に、核磁性の研究にも、極めて強力な実験手段である。よく知られているように、中性子は、核スピンの依存した散乱振幅 $P_N = (b^+ - b^-) / (2I + 1) \cdot (\vec{I} \cdot \vec{\sigma})$ をもっており、これは核種によっては、 $1 \mu_B$ のオーダーの電子磁気モーメントによる散乱振幅に相当する大きさになる。従って、スペクトロメータの上で、核スピン系の秩序化を実現することが出来れば、その観測は比較的容易で、電子系の場合と同じく、多くの情報を得ることが出来る。最近では中性子散乱の分野でも、ミリケルビン域の低温の利用が可能になり、核磁性の研究がその守備範囲に入ってきた。

核スピンが関係する磁性は、例えば、核間に働く相互作用の種類を用いて次の三つの分野に分けることができる。

狭い意味で核磁性といえば、それは核磁気モーメント間に働く双極子相互作用による磁性を意味する。この相互作用の大きさは、サブ・マイクロケルビンの温度に相当するので、通常の方法では中性子実験はもちろん、低温専門の実験室でも、つい最近まで、このタイプの核秩序は観測されていなかった。Saclay の Abragam のグループでは 1970 年代に、回転系核断熱消磁の方法で、 CaF_2 、 LiF 、 LiH などで、核スピンの反強磁性転移を中性子回折で観測しているが、¹⁾これは強い静磁場中での話である。最近 Helsinki の Lounasmaa のグループでは、二段核断熱消磁法によって、静止系で、銅の核スピン秩序を観測し、磁場-エントロピー相図を求めている。転移温度は 60 nK である。中性子実験家には気の遠くなるような低温であるが、Helsinki のグループは、中性子実験にも意欲を示しているそうである。

^3He 原子は、奇数個の Fermi 粒子からなる。核スピン $1/2$ の Fermion であるから、固体中で、原子の置換に対して、交換相互作用が働く。bcc ^3He では、特に四体の循環的置換による四体スピン交換相互作用が重要である。実際に、 $\sim 1 \text{ mK}$ に反強磁性転移があり、Osheroff は、反強磁性共鳴実験の結果から、いわゆる uudd スピン構造を結論している。この構造は四体相互作用と矛盾しないが、決定的な証明は、中性子実験に待たれている。高磁場相、hcp 相の磁性も未解決である。 ^3He の P_N は $-0.12 \times 10^{-12} \text{ cm}$ で、充分大きい。しかし 3000 barn に及ぶ大きな吸収断面積をもつため、試料の形に特別の工夫が必要である。つまり、原子数十 μm 、数十 cm^2 の面積をもつ単結晶を 1 mK 以下に下げなければならない。中性子吸収-核反応による発熱も問題である。これまで、Grenoble、Argonne で実験が試みられたが成功していない。 ^3He の吸収断面積は、核と中性子の合成角運動量に依存し、吸収は殆んど 100 % 近く反平行スピン結合によっている。このことを利用すると、静磁場中で、偏極中性子の透過を観ることにより、固体 ^3He の帯磁率（磁化）を測ることができる。Grenoble では、²⁾この方法で相転移の存在を確認している。このことは、もし所定の単結晶を作ることができれば、Bragg 散乱の観測も可能であることを意味している。

Ho, Pr, Tb 等の三価イオンでは、多くの場合に、電子系の基底一重項状態が実現しており、

誘起モーメント型磁性を示す。この時、原子核スピン間には、超微細相互作用—電子間磁気相互作用を通して間接的な相互作用が働く。この相互作用の強さは、100 mK のオーダーに達する。この様な機構で原子核系と、電子系が結合している時、体系全体の磁性は、電子系内磁気相互作用の大きさに依存して、種々の様相を示す。つまり、全系を、有効相互作用によって結合した核スピンの単独系とみなせる場合から、電子系の単独相転移に核スピン系の秩序化が従属する場合、及びその中間として、二つの系の協力によって相転移が成立しているとみなせる場合などである。このいわゆる enhanced 核磁性の問題は、その温度域が、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷却法で直接カバーできることから、最近ようやく、中性子実験でもとり上げることができるようになった。³⁾ Ris ϕ , Grenoble, Oak Ridge, Argonne で研究が進行中である。図は、 Pr Cu_2 で、58 mK 以下で観測された磁気散乱強度の温度変化である。この物質では、核スピンも含めて、sinusoidal screw 構造が実現しており、核と電子の分極は同時に進行する。

以上述べた種々の核磁性に関する研究は、中性子実験に関する限り、全て外国の原子炉での実験である。しかし、この種の研究は、中性子線源の強さで勝負するものではないから、いわゆる High Flux は必ずしも必要ではない。スペクトロメータ周辺の環境（スペース、液体He供給、ノイズ、マシンタイム、使い勝手等）がしっかりしていれば、むしろ medium size reactor にとって格好の研究分野であると思える。例えば、固体 ^3He の研究など、日本の優秀な低温物理の人達の協力が得られれば、外国での場合より成功の確率は高いように筆者には思える。幸い現在東北大学で中性子散乱用 ^3He 希釈冷却クライオスタットの設置計画が進行中であり、来年からは、日本でもこの分野の研究を手掛けることが可能になる。このことと相まって、改造三号炉に期待する所大である。

参 考 文 献

- 1) A. Abragam, V. Bouffard, M. Goldman and Y. Roinel : J. Physique C6, 1436 (1978).
- 2) A. Benoit, J. Bossy, J. Flouquet, D. Rufin and J. Schweizer : AIP Conf. Proc. No.103, 57 (1983).
- 3) 河原崎修三：日本物理学会誌，巻 40，195（1985）

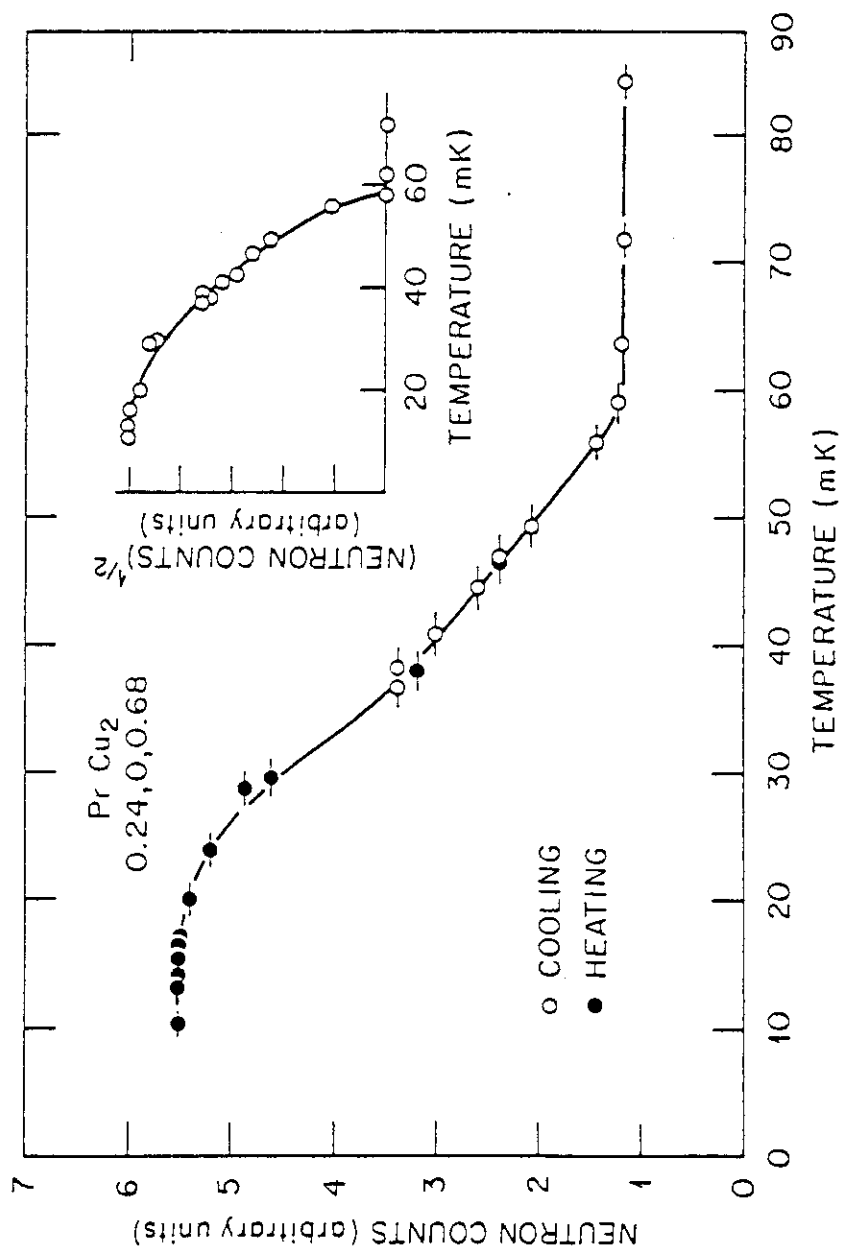


Fig. 1 Temperature dependence of the peak intensity of the (0.24 0 0.68) diffraction peak in PrCu_2 .

3.5.5 生体物理の構造

3.5.5(1) ヌクレオソーム・コアの構造と機能

東北大核理研 新村信雄

生命体の基本単位である細胞は、細菌やウイルスのように細胞核（核膜）を有さない原核細胞と、高等植物や動物のように、遺伝子を荷う染色体を細胞質から隔離している細胞核を有する真核細胞に分類できる。真核細胞の染色体はクロマチンと呼ぶ物質から成立っている。クロマチンは2種類の化学物質、すなわちタンパク質とDNAから構成される。ヒトのDNAは約2m長にもおよぶものであるが、この長さのものが、直径5~10 μ mの核の中にどのように納められているかは全くの謎であったが、種々の生化学的実験やX線回折等の結果から、次のようなモデルが提唱され、それが広く受け入れられるようになってきている。つまり、ヒストン、蛋白質8量体にDNAが巻きついた構造を基本単位とし、これが数珠のようにつながり、更に複雑な高次構造をとることによってDNAをコンパクトに納めている。この基本単位をヌクレオソームと呼んでいる。

ヌクレオソームは、約200の塩基対のDNAとH1ヒストンおよび4種のコアヒストン(H2A, H2B, H3, H4)各2分子よりなるヒストン8量体によって形成される。クロマチンにマイクロコッカス・ヌクレアーゼを作用させると、リンカーDNA部分が優先的に切れ、ヌクレオソームが遊離してくる。さらに分解を進めると、146塩基対DNAとヒストン8量体よりなるヌクレオソーム・コアが得られる。

ヌクレオソーム・コア粒子の構造は、KlugらのグループによりX線結晶構造解析及び電子顕微鏡画像解析の結果を組み合わせで決められた。^{1,2)} (1977, 1980) コア粒子は球形というよりは、直径110 $\text{\AA}$ 、高さ57 $\text{\AA}$ の短い円筒形に近く、146塩基対のDNAはヒストン8量体にピッチ27 $\text{\AA}$ で1.75回転左巻きに巻きついている。このモデルは、コントラスト変調法による中性子結晶解析の結果及び水溶液におけるX線、中性子小角散乱の結果と矛盾しないものである。最近、中性子³⁾及びX線⁴⁾結晶構造解析で、それぞれ16 $\text{\AA}$ 、7 $\text{\AA}$ という高分解能の結果が報告され、8ケのヒストン蛋白質の相互配置、ヒストンとDNAの相互配置等が詳細に判明した。(H3, H4)₂ 4量体はDNA superhelixの中央を占め、2つの(H2A, H2B)₂ 2量体はDNA superhelixの端に位置しsuperhelixを固定している。DNA superhelixはヒストン8量体の周囲を滑らかに取巻くおらず、数ヶ所で鋭く折れ曲がっている。一つの(H2A, H2B)₂ 2量体はヌクレオソームの外側に出ている。

ヌクレオソームの構造の詳細が判明するにつれ、その生理機能と構造の関連は興味あるテーマである。DNA複製時やRNA合成時にヌクレオソームはどのような構造変化をするのか、非ヒストン蛋白とヌクレオソームの相互作用はどんなものか。等々。

最近、我々がイオン強度を変化させたときのヌクレオソーム・コアの構造変化を中性子小角散乱で調べた結果をここで紹介する。イオン強度をパラメーターにした理由は、DNAにはリン酸基の負電荷、及び、ヒストン8量体には多量の塩基性アミノ酸残基からの正電荷があるので、ヒストンとDNAの結合には静電的相互作用がまず考えられるからである。すでに、イオン強度を変化させたときの、ヌクレオソーム・コアの構造変化の研究は、沈降係数、蛍光、ラマン分光、

生化学的手法等で行われており、イオン強度 1 mM 近傍に転移点の存在が報告されている。この構造変化の詳細を解明するために中性子小角散乱実験も各地で行われたが、結果がまちまちで、最終的な結論には至らなかった。

我々は、ニワトリ赤血球の核クロマチンを球菌ヌクレアーゼで酵素分解して取採したヌクレオソーム・コアを試料とし、イオン強度は NaCl 添加量を調節することにより変化させた。中性子小角散乱実験は KENS-SAN を用いて行った。Fig. 1 に低イオン強度 (NaCl 無添加) と高イオン強度 (NaCl 10 mM 添加) での散乱図形を示す。低イオン強度では低い Q 側にピークが生ずる。このピークはヌクレオソーム・コアの濃度を減ずると、更に低い Q 側に移行する。これは粒子間の干渉効果によるピークで、ピーク位置から最近接粒子間の平均距離が推定可能である。粒子の濃度を減ずると溶液中で粒子間距離は拡がりピーク位置が移動する。0.05 wt % という低濃度 (尚、この濃度では中性子散乱強度不足で測定困難のため高エ研、放射光による X 線散乱実験を行った。) でも、ピークは観測され、粒子間相互作用は 600 Å 以上に及ぶことが判明した。

ギニエ半径のイオン強度変化及び Stuhrmann プロットを Fig. 2 に示す。(尚 X 線小角散乱より得られた R_G 値も含めてある。) イオン強度が 1 mM 近傍で R_G 値にとびがあるのが判明した。1 mM 近傍で如何なる構造変化が起っているのか大変興味がある。Stuhrmann プロットをすると低イオン強度と高イオン強度で勾配に差があることが認められる。一般に勾配は散乱密度の平均からの変位の 2 次のモーメントで、内側に比べ外側の散乱密度が高い粒子では、勾配は正になる。ヌクレオソーム・コア粒子では DNA とヒストン蛋白質の散乱密度がそのような関係になっているため勾配が正になっている。低イオン強度では傾斜が緩くなっている。この解釈は種々考えられるが、円偏光二色性の測定で 1 mM 近傍でヒストンの α ヘリックスには若干の変化があるが、DNA 二重ラセンにはほとんど変化がないことから、ヒストン 8 量体が 3 次ないし 4 次構造を変化させ、円筒形の高さ方向に若干伸び、それに伴い直径方向が縮んだ構造が低イオン強度で実現したと考えられる。低イオン強度でのこの構造と、先に述べた粒子間相互作用との出現の相関は未だ不明である。また、この粒子間相互作用とクロマチンの高次構造との相関も推測の域を出ない。

ヌクレオソーム・コア粒子の構造は、その詳細がわかってきているが、生理機能との関連での議論は始まったばかりである。今後の研究の発展が期待される。

参 考 文 献

- 1) J.T. Finch, L.C. Lutter, D. Rhodes, R.S. Brown, M. Levitt, B. Rushton, A. Klug : Nature 269, 29 (1977).
- 2) A. Klug, D. Rhodes, J. Smith, J.T. Finch, J.O. Thomas : Nature 287, 509 (1980).
- 3) G.A. Bentley, A. Lewit-Bentley, J.T. Finch, A.D. Podjarny, M. Roth : J. Mol. Biol. 176, 55 (1984).
- 4) T.J. Richmond, J.T. Finch, B. Rushton, D. Rhodes, A. Klug : Nature, 311, 532 (1984).

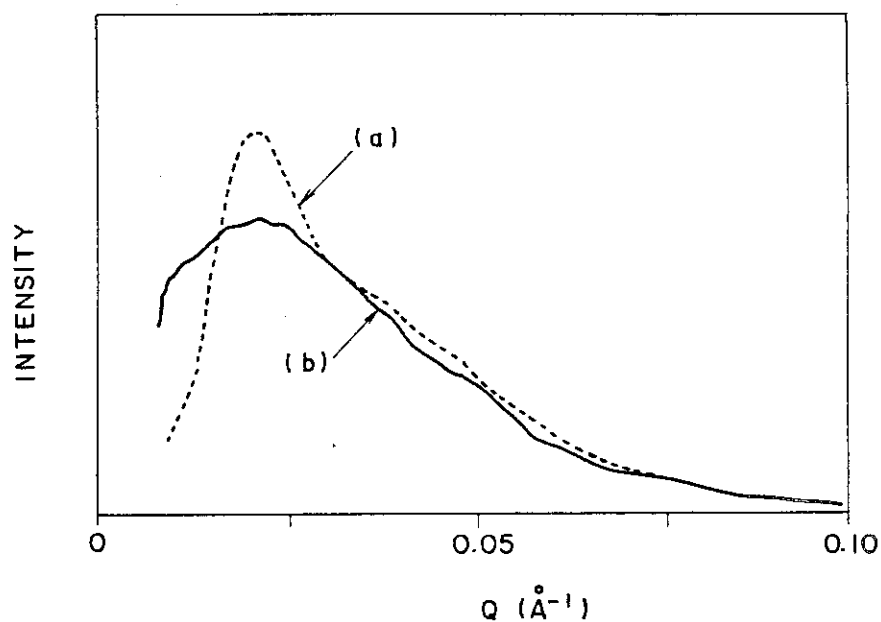


Fig. 1 Neutron scattering profile of nucleosome core particle in D_2O (94%) solvent.
 (a) low ionic strength (0.02 mM EDTA)
 (b) high ionic strength (0.02 mM EDTA + 10 mM NaCl)

Stuhrmann plot

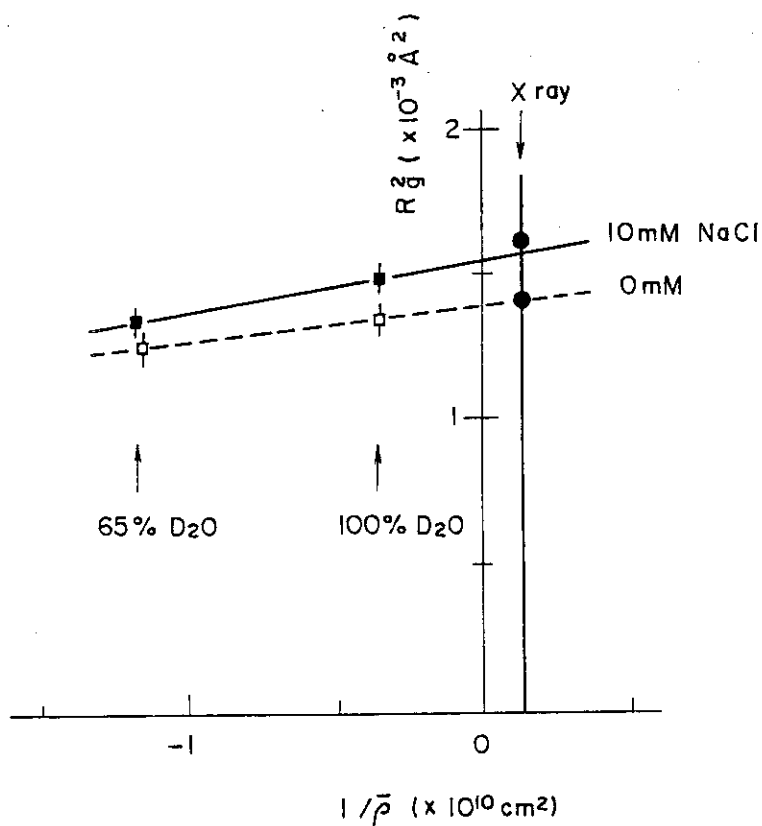


Fig. 2 Stuhrmann plot of Guinier radius obtained by neutron and X-ray small angle scattering.

3.5.5 (2) 生体高分子集合体の内部構造

群馬大教養学部 矢吹貞人

中性子散乱法の生体構造研究への応用の中で今後最も期待されるものの一つは、生体高分子集合体の内部構造の研究であろう。その理由は、この研究が中性子散乱固有の特色である同位体効果（主として、HとDの散乱振幅の符号が異なること）を利用して初めて可能なもので、X線散乱法を含めこれに代る方法がないからである。

(1) 内部構造と同位体効果の利用

細胞中では、タンパク質や核酸などの生体高分子は、しばしば数個～数十個も集まって巨大な分子集合体を形成し、高度な機能を果している。その際、成分分子は全く同一であることも、同種異分子のことも、異種異分子のこともある。したがって、集合体全体の形状だけでなく、各成分分子がどのような形をとって、どのように集まって高度な機能を果せる構造を造り上げているか（内部構造）を知ることが非常に重要となる。そのためには成分分子一つ一つが互いに他と区別できなければならない。

中性子の散乱能（平均値）は幸いにも異種分子間、例えば、タンパク質と核酸とでは異なるから、中性子散乱で両者は区別できる。これに対し、同種異分子、例えば、異なるタンパク分子同志では自然のままでは全く区別がつけられない。しかし、特殊な培養条件（溶媒にD₂Oを加えたり、D化したアミノ酸を加えたり）を選べば、平均の散乱能の異なる分子を作ることができる。もし、その分子集合体が再構成できるものであれば、特定の分子だけ異なる散乱振幅密度を持つ集合体可以实现できる。

注目する分子だけが“ラベル”された状態の集合体を作れば、溶媒のD₂O/H₂O比を加減して、その散乱振幅密度とラベルされていない部分の密度とを一致させることにより（コントラスト・マッチング）、注目する分子の散乱だけを観測できることになる。

中性子散乱法で同位体効果を巧妙に利用した時得られる、分子集合体の内部構造についての知見は

- 1) 構成成分の中の異種のものの全体としての空間分布（例えば、タンパク・核酸2成分集合体ならタンパク、核酸各々の全体としての分布）
- 2) 成分分子の相互の位置関係
- 3) 成分分子が集合体中でとっている（in situ）形状

などである。この中、1)については別項（3.5.5(1)）で紹介されているので、ここでは触れず以下では2)と3)についてのみ簡単に述べる。

(2) 成分分子の相互配置

集合体中の特定の2つの成分分子だけ選択的にD化した（あるいは2つだけD化されていない）ものの溶液について中性子散乱を測定すれば、2つの分子の質量中心間の距離が決定できること、さらには、色々な成分分子の組についてそれを行えば、三角測量の原理によって成分分子相互の空間的位置関係も決定できることが米国のグループ（Moore, Engelmanら）の十年以上に亘る仕事によって実証された¹⁾。選ばれた対象は大腸菌リボソーム（タンパク質合成の場となる細胞内小器管）の小サブユニット（1分子の核酸（RNA）と互いに異なる21個のタンパク分子から成る巨大な分子集合体）で、1974年の実験開始以来、測定された距離の数も増え、併せ

てデータ解析法も改良が進み、21分子中14分子の位置関係を示すモデルが提出されている。(Fig.1)。

この種の仕事が成功するには、再構成可能な分子集合体であることが前提条件となるので、仕事はこれからである。最近急ピッチで進められているのは、大腸菌のリボソームの大サブユニットについてである(グルノーブル)。

(3) 成分分子の in situ での形状

形状といっても、溶液の散乱から得られる知見は回転半径に過ぎない。しかし、分子量との比較ができれば、形がおよそ丸いか、細長く伸びているか推定できる。

(a) 直接的方法

コントラスト・マッチングにより、注目する成分分子だけ、つまり、“ラベルされた”分子だけ見える条件で中性子散乱の角度依存を測れば、単一分子の時と同様に分子の in situ での回転半径が得られるはずである。しかし、実は、集合体内のラベルされていない部分の散乱振幅密度の分布は一樣でなく(“ゆらぎ”がある)。その部分からの散乱への寄与を完全には除去できないことから、この方法で、ギニエプロットにより、巨大な分子集合体中の小さな成分分子の回転半径が正しく求まるのかはまだ検討を要する問題である。²⁾最近グルノーブルのグループ

(Nierhaus ら)は“ゆらぎ”の寄与を最大限抑えるために、D化率が異なる(その結果、平均散乱振幅密度は等しい)RNAとタンパクをつくり、それを用いて、ラベルされていない部分の散乱振幅密度分布が非常に一樣なリボソームの大サブユニット(大腸菌)を再構成し、34個中4個のタンパク分子の回転半径を求めている。³⁾

(b) 間接的方法

Moore らは、成分分子の相互配置を決定するために2つの成分分子の質量中心間距離を求める際、各々の分子の回転半径も同時に決定される方法を採用している。この方法では、理論的にはゆらぎの影響は受けないので、魅力的な方法であるが、現状では、まだ精度に乏しい。¹⁾

ほとんどの生体高分子集合体が結晶化しない以上、溶液系での構造研究に負う以外にない。上述した程度の粗っぽい内部構造に関する知見で、分子集合体の機能の理解が完全にできるとは期待できないが、種々貢献できるであろうことに疑問はない。同様な仕事は他の色々な重要な生体高分子集合体について展開されていくことが期待されている。

参 考 文 献

- 1) P.B. Moore, D.M. Engelman, J.A. Langer, V.R. Ramakrishnan, D.G. Schindler, B.P. Schoenborn, I-Y. Sillers and S. Yabuki : Neutrons in Biology (ed. B.P. Schoenborn), pp.73-91, Plenum Publishing Co. (1984).
- 2) P.B. Moore : J. Appl. Crst., 14, 237-240 (1981).
- 3) K.H. Nierhaus, R. Liefetzke, R.P. May, V. Nowotny, H. Schulze, K. Simpson, P. Wurmbach and H.B. Stuhmann : Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 80, 2889-2893 (1983).

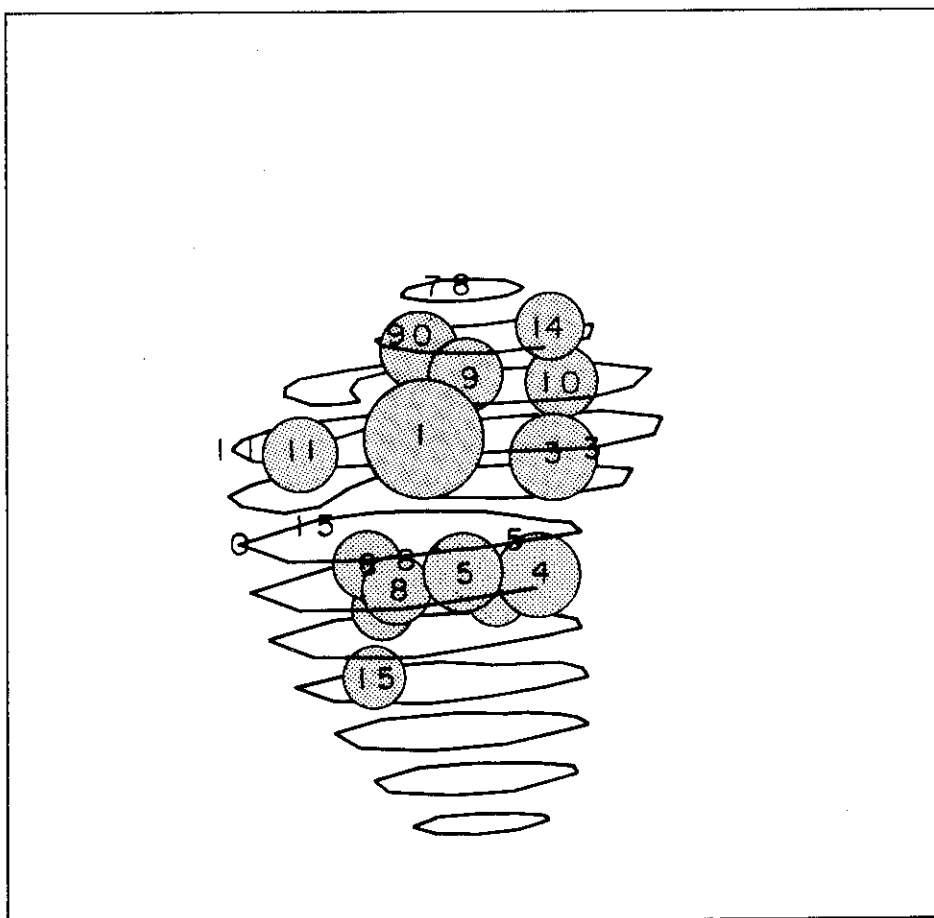


Fig. 1 Superposition of the neutron map on the electron microscopic image of the 30 S subunit (12). The contours in this drawing represent the outline of the 30 S subunit as visualized in negative stain in the electron microscope. The neutron map is superimposed on the EM image so as to place neutron-located proteins (circled numbers) as close as possible to the positions of their corresponding antigenic determinants as discovered by antibody staining (uncircled numbers).¹⁾

3.5.5 (3) 筋肉の収縮機構

大阪大学基礎工学部 若林克三, 浜中俊明, 三井利夫

筋肉は ATP の化学エネルギーを収縮をととして力学的エネルギーに変換する巧妙な分子機械である。X線や中性子回折による筋肉研究の目的はこのような分子機械でのエネルギー変換がどのようにして起こるかを実際の分子構造に立脚して理解することにある。最近の高速 X 線回折は筋収縮の過程で起こる構造変化に重要な知見を提供しつつあるが、中性子回折は、X 線回折と相補助な面を持ち、今後その寄与は次第に大きくなることが期待される。

Fig. 1 (a), (b) に横紋筋の構造を縦断面と横断面とで示す。(a) で、Z から Z までが筋肉の収縮という機能における基本単位でサルコメアと呼ばれ、その長さは $2 \sim 4 \mu\text{m}$ である。筋収縮は太いフィラメントと細いフィラメントの滑りとして起こる。Fig. 1 (a), (b) で M は太いフィラメント、A は細いフィラメントを示す。(b) において、M は六方格子を形成し、A は 3 回軸上に位置する。単位胞の長さはサルコメア長に依存して $400 \sim 450 \text{ \AA}$ である。(c), (d) は M と A の微細構造を示す。太いフィラメント (c) の主体はミオシンと呼ばれる細長い蛋白質の重合体であり、その上に C-蛋白質が結合している。ミオシンは太いフィラメントの骨格の表面から軸にそって $143 \text{ \AA}$ の間隔で 2 つの頭部からなる ((e) 参照) クロスブリッジを出している。基本周期は $429 \text{ \AA}$ である。一方、細いフィラメント (d) はアクチンと呼ばれる球状に近い蛋白質のらせん構造をした重合体である。その重合体の上にトロポミオシン、トロポニンと呼ばれる筋肉の収縮-弛緩の制御をあずかる蛋白質が規則的に結合している。全体としての構造周期は約 $750 \text{ \AA}$ である。

筋肉の張力は、太いフィラメントと細いフィラメントが重なった部分で発生する。収縮のエネルギー源 ATP はミオシン頭部で分解される。またミオシン頭部はアクチンと結合する部位を持つ。このミオシン頭部のアクチンとの結合・解離 ((e) 参照) と云うサイクリックな反応が筋収縮の素過程で、そのサイクル中に ATP が分解され、筋張力が発生し、その結果化学エネルギー→力学エネルギーの変換が起きる。

中性子回折法によって筋肉の研究を行う上での利点としては、水素と重水素の散乱長に大きな差があることを利用できる点にあると思われる。その 1 つとしては、重水素置換した分子 (例えば ATP など) を用いて特定の結合部位を明らかにするといった研究が考えられる。また、筋原線維の周りの溶液を適当な濃度の重水で置き換えて、筋蛋白質の散乱長密度の溶液に対するコントラストを変えることにより、特定の蛋白質を選択的に見えるようにすることなども考えられる。

筋肉について中性子回折法を用いて行われた静的構造研究の報告としては、グルノーブルの ILL で Worcester ら⁴⁾ によって行われたカエル骨格筋 (縫行筋) とウサギ骨格筋 (グリセリン処理腸腰筋) に関するものと Roger ら⁵⁾ による昆虫飛翔筋に関するものがある。Worcester らによって得られた 1 例を Fig. 2 に示す。(a) はカエル骨格筋からの中性子回折像を示すもので、(b) は筋肉を浸している溶液中の重水濃度を変えたときの赤道反射と、 $143 \text{ \AA}$ 子午反射の強度変化を示す。赤道反射は筋線維の線維軸にそっての投影 (Fig. 1 (b) 参照) に関係し、 $143 \text{ \AA}$ 子午反射は太いフィラメントの線維軸上への投影の周期 (Fig. 1 (c) 参照) にあたる。Fig. 2 (b) で、回折強度が重水濃度に比例して変化することは、線維軸に平行および垂直に投影した構造がそれぞれ対称心を持つことを示唆するものである。また赤道反射 (100) ($d_{100} = 320 \text{ \AA}$) およ

び (110) ($d_{100} = 185 \text{ \AA}$) の強度が 42% 重水のときに 0 となることは、ミオシンおよびアクチンフィラメントをその軸に平行に投影したときの散乱長密度が均一で、42% 重水のそれとはほぼ等しいことを意味している。一方、 $143 \text{ \AA}$ 子午反射の強度は 37% 重水のときに 0 となり、赤道反射より小さい。このことは 42% 重水で同じ構造を線維軸に垂直に投影したとき、散乱長密度が均一でないことを意味している。

このように、中性子回折法を用いると、例えば X 線回折法では得られないような知見が得られることにより筋肉の分子構造および筋収縮の機構がより明らかにされることが期待される。収縮中の筋肉の動的中性子回折実験も、Worcester らのグループにより行われている。例えば等尺収縮時（筋長を一定にして張力を発生させる）の赤道反射の強度分布の変化の測定は収縮時に全体の約 80% のミオシン頭部が細いフィラメントの近傍に移動しているという結果を示している。⁶⁾

References

- 1) H. E. Huxley: *Science*, **164**, 1356 (1969).
- 2) S. Ebashi: *Proc. Roy. Soc. Lond. B207*, 259 (1980).
- 3) D. C. White and J. Thorson: *Prog. Biophys. Mol. Biol.* **27**, 175 (1973).
- 4) D. L. Worcester, J. M. Gillis, E. J. O'Brien and K. Ibel: *Brookhaven Symposia in Biology*, **27**, 101 (1975).
- 5) C. D. Roger, D. L. Worcester and A. Miller: In *Insect Flight Muscle* (ed. by R. T. Tregear) p337, North-Holland, Amsterdam (1977).
- 6) D. L. Worcester et al. cited by J. Squire in *The Structural Basis of Muscular Contraction*, p582, Plenum Press, New York and London (1981).

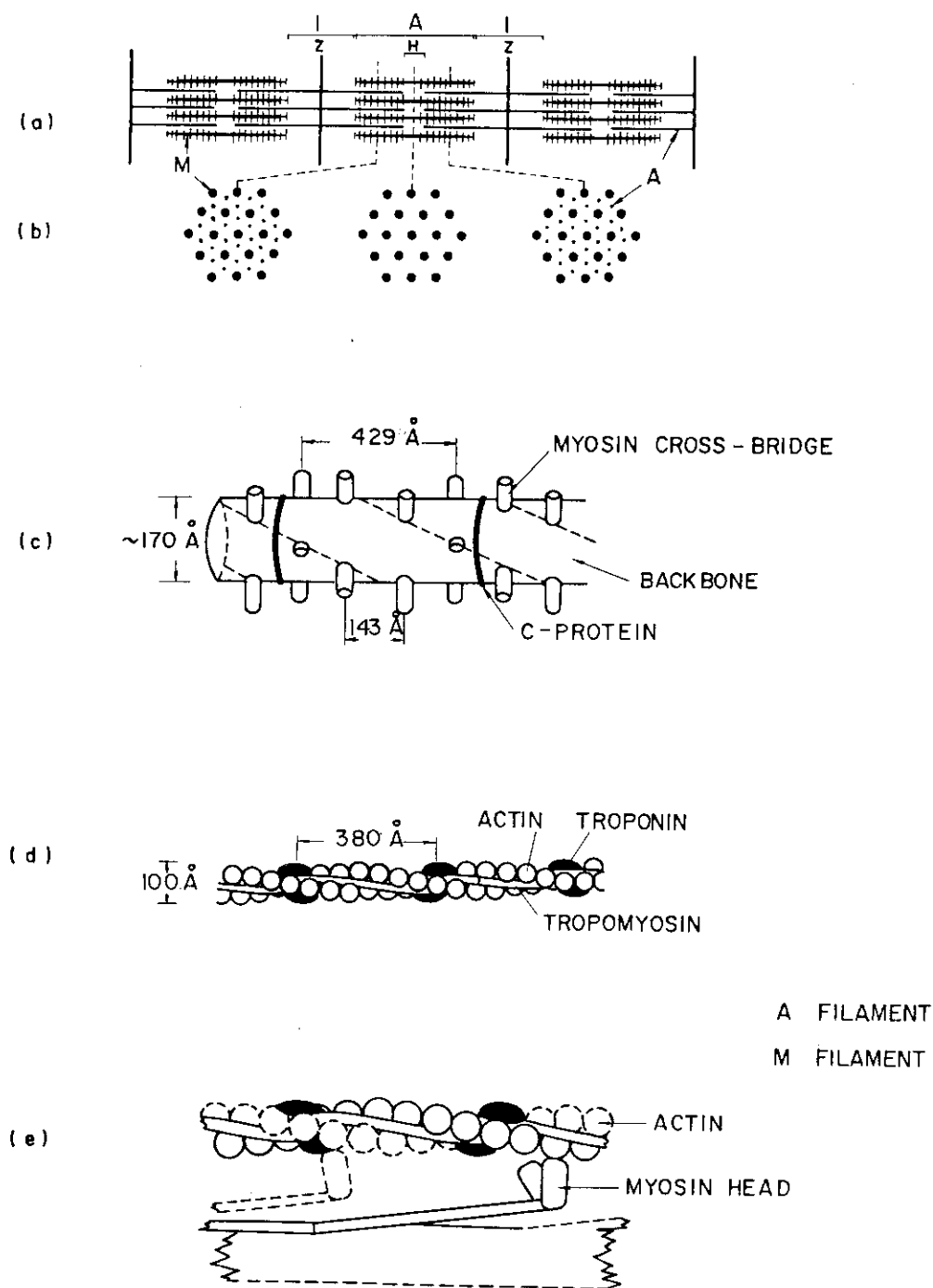
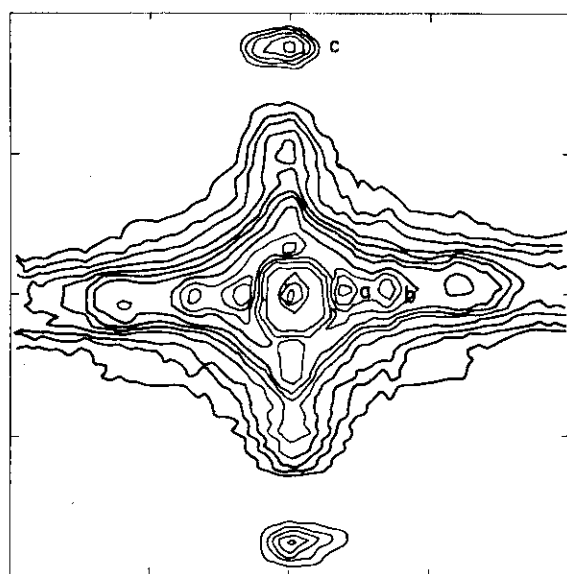
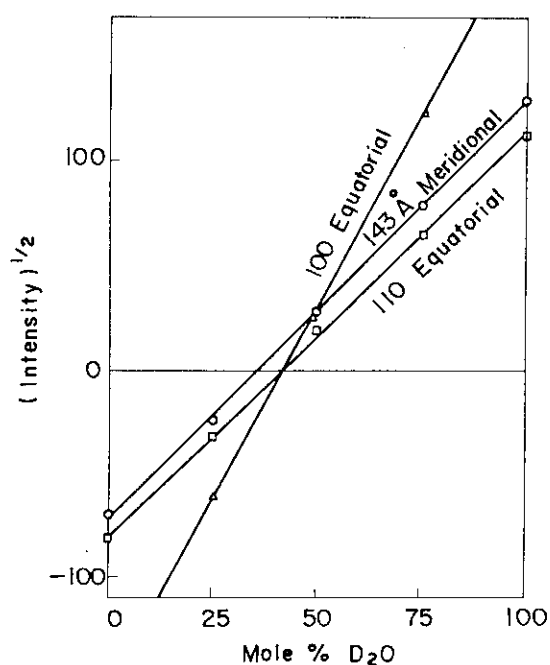


Fig. 1 Schematic representation of the structure of vertebrate striated muscle.
 (a) Longitudinal section.¹⁾ I; I-band. A; A-band, Z; Z-line, H; H-zone.
 (b) Cross-section.¹⁾
 (c) The structure of thick filament.
 (d) The structure of thin filament.²⁾
 (e) Interaction between myosin heads and actin.³⁾



(a)



(b)

- Fig. 2 (a) Contour map of neutron diffraction pattern from living frog sartorius muscle in D₂O Ringer's solution.⁴⁾ The muscle fibres are vertical. The distance from the sample to the 64×64 cm² detector is 536.5 cm, and the wavelength is 7.5 Å. The area of muscle exposed is 0.5 cm×0.4 cm, and the exposure time is 7.5 hr. a; the 100 equatorial reflection, b; the 110 equatorial reflection and c; the 143 Å meridional reflection.
- (b) Contrast variation of the 100 and 110 equatorial reflections and the 143 Å meridional reflection from living frog sartorius muscle.⁴⁾

3.5.6 中性子光学と超冷中性子

3.5.6(1) 中性子回折トポグラフィの応用

原研物理部 富満 広

中性子回折トポグラフィ (NDT) が、X線回折トポグラフィ (XDT) のアナロジーとして日本で創始されて以来、本技法は欧米でも発展させられ、その特徴を生かした応用がいくつか行われている。

土井らは1971年、熱圧延で大きな格子歪みを導入した厚さ8 mmのGe単結晶のトポグラフィが、圧延を施す前に較べて特異なコントラストを生じることを見出した。¹⁾同様の事実は、試料表面のX線振動トポグラフィによっても追認され、XDTや電子顕微鏡 (EM) と相補的手段としての本技法の試みは成功した。

この試料は更に、筆者も加えて、セクション・トポグラフ (断層撮影法) や、ステレオ・ペア (立体撮影法) の技法をも併せ用いて詳細に観察され、その歪み場が凡そ熱圧延方向に沿った柱状のもので、かなり不均一に分布するものであることが明かにされた。^{2~4)}その結論が試料を0.3 mmにまで薄く切出して試みられたXDTによって初めて確認されたことも明かのように、本研究は中性子の物質透過能が大きいことを利用している。

その後France CNRS (Grenoble) のSchlenkerらは、Fe-3%Si中の亜晶粒界や析出物を、それらの周辺に集中した歪み場を検出することにより観察し、XDT像との比較を行っている。⁵⁾

また、Michalecらは、振動中の水晶発振子をNDTで観察し、結晶中の定在波の分布を直接的に検出するという、興味ある応用を行っている。⁶⁾

結晶中の転位線の観察も行われている。⁷⁾特にParis大学のMalgrangeらは1976年、水晶中の転位線を、⁶Liや¹⁰Bによる(n, α)反応を利用してセルロイドに記録する方法により、像幅約30 μ mで鮮鋭にとらえた。彼女らは、その転位線のNDT像の幅が理論値とよく一致することを見出し、“NDTは今や確立した技法である”と結論している。⁸⁾

完全性の高い結晶においては、中性子線も動力的な回折現象 (Dynamical Diffraction) を生じ、特徴的な挙動を示す。その一つに等厚干渉縞 (ペンデル縞) の出現があり、XDTやEMでもよく観察され、散乱因子の精密測定等に応用されている。

菊田らは、楔角 $1^{\circ}59'$ をもつSi完全結晶のトポグラフィを、ポラロイドフィルムに記録した。⁹⁾トポグラフィには、三本の干渉縞が認められ、その間隔は計算値によく一致した。その後Malgrangeらも、楔角約 $10'$ のSi結晶について実験を行い、Rh変換体とX線フィルムを用いた通常の写真系で、同じく等厚干渉縞を約十本記録した。⁸⁾以上はいずれも人為的に厚さを変えた楔形結晶を用いているが、筆者らはSi双晶の観察において楔角約 40° という大きい傾角をもつ結晶において、この等厚干渉縞を観察し、その縞間隔が非対称反射の場合の一般的な計算値とよく一致することを確認した。¹⁰⁾(Fig. 1 参照) なおこの研究は、ラウエ・ランジェバン研究所のビームガイド・ホールの質のよい中性子線束を用いて行われた。¹¹⁾

中性子と物質との磁氣的相互作用は独特のものであり、磁性体研究に早くから応用されている。

NDTで磁区分布を初めて観察したのは、細谷と安藤である。^{12~15)}彼らは、完全性の高いCr

単結晶のスピン密度波 (SDW) の分布を、それぞれの衛星反射によるトポグラフで確認して、磁区の大きさが $10^{-3} - 10^{-2} \text{ cm}^2$ であることを結論した。

Schlenker と Shull は、Fe-2.8 wt % Si や、Co-8 wt % Fe の磁区分布と、印加磁場に対する挙動を、偏極中性子を用いた NDT で見事にとらえている。¹⁶⁾

近年、NDT の特長の一つである物質透過能が大きいことを真に生かした応用が行なわれている。一つの典型的な応用は、鉛を含む物質の観察である。最近 CNRS (Grenoble) の Baruchel らは、天然の炭酸鉛 PbCO_3 (Cersite) の成長欠陥 (Growth Defect) の NDT 観察を行なって、成長帯の方位や、成長の履歴に関する知見を得ている。¹⁷⁾

また筆者らは、Ge, Al, Si, Au, Ni 等を種々の濃度で含む銅合金 (いずれも Bridgmann 法製) の下部組織 (Substructure) の観察に NDT を利用した。本研究では、各試料は直径約 3 cm, 長さも数 cm から 10 cm あり、殆どの場合切断せず、そのまま用いられた。詳細観察の結果、各試料結晶の下部組織が成長方位 $[110]$ に平行な指数 (001) の、しかも厚さ約 1 mm の層状構造からできていること、各々の層状下部組織は更に、中心の薄い層の両表面に格子状に、 (100) や (010) の指数を持つ板状構造物が付着して出来上がっていることなどが解明された。^{18~19)} (Fig. 2 参照) この研究においては「解析に便利な方位の投影図を得る」ために、適当なブラッグ角の波長を選択するということが行なわれた。即ち、通常は「短所」とされている原子炉中性子の波長連続性が、長所として活用された。

その後更に、これらの合金を $[111]$ 方位に成長させた場合の結晶は、 $[100]$ の方位に成長した樹枝状晶の集合であることを明かにした。²⁰⁾ そして、それらの観察結果をもとに筆者らは、新たな結晶成長機構を提唱した。²¹⁾

このように NDT は今や、その特徴を生かした活用が行なわれつつあり、またそれが期待されている。

さて、直接感光能力の極めて小さい熱中性子線の記録は、多くの場合 (n, γ) や (n, β) , (n, α) 等の変換体を用いて、X 線フィルムやセルロイドを感光させるが、ORNL の Davidson は、TV 系と計算機とを用いた in-situ 観察の手法を開発しており、磁性体の回折曲線の三次元表示等に利用している。^{22~24)} この方法は、TV 系の走査線による分解能の限界に注意を払いながら利用すれば、結晶成長等の過渡的現象の直接観察に威力を発揮するものと期待される。

参 考 文 献

- 1) K. Doi, N. Minakawa, J. Motohashi & N. Masaki : J. Appl. Crystallogr. 4, 528 (1971).
- 2) K. Doi, N. Minakawa, H. Motohashi, N. Masaki & H. Tomimitsu : 9th Int. Conf. Crystallography (Kyoto, 1972).
- 3) 富満 広 : 日本結晶学会誌 15, 333 (1973).
- 4) H. Tomimitsu & K. Doi : J. Appl. Crystallogr. 7, 59 (1974).
- 5) M. Schlenker, J. Baruchel, J.F. Petroff & W.B. Yelon : Appl. Phys. Letters 25, 382 (1974).
- 6) R. Michalec, P. Mikula, L. Sedlacova & B. Chalupa : J. Appl. Crystallogr. 8, 345 (1975).
- 7) M. Schlenker, J. Baruchel, R. Perrier de la Bathie & S.A. Wilson : J. Appl. Phys. 46, 2845 (1975).
- 8) C. Malgrange, et al. : Phil. Mag. 33, 743 (1976).
- 9) S. Kikuta, K. Kohra, N. Minakawa & K. Doi : J. Phys. Soc. Japan 31, 954 (1971).
- 10) H. Tomimitsu & C. Zeyen : Japan, J. Appl. Phys. 17, 591 (1978).
- 11) 富満 広 : 日本結晶学会誌 19, 261 (1978).
- 12) M. Ando & S. Hosoya : Phys. Rev. Letters 29, 281 (1972).
- 13) 細谷資明, 安藤正海 : 日本結晶学会誌 15, 327 (1973).
- 14) 安藤正海, 細谷資明 : 固体物理 8, 489 (1973).
- 15) M. Ando & S. Hosoya : J. Appl. Phys. 49, 6045 (1978).
- 16) M. Schlenker & C.G. Shull : *ibid.* 44, 4181 (1973).
- 17) J. Baruchel, M. Schlenker, A. Zarka & J.F. Petroff : J. Crystal Growth 44, 356 (1978).
- 18) H. Tomimitsu, K. Kamada & K. Doi : Phil. Mag. 38, 483 (1978).
- 19) H. Tomimitsu : *ibid.* 43, 469 (1981).
- 20) H. Tomimitsu, K. Kamada & K. Doi : Physica 120B, 96 (1983).
- 21) 富満 広, 鎌田耕治 : 表面科学 第4巻 (1983) 1号 P. 35 - 40
- 22) J.B. Davidson : J. Appl. Crystallogr. 7, 356 (1974).
- 23) J.B. Davidson, S.A. Werner & A.S. Arrot : Proc. AIP Conf. 18, 358 (1973).
- 24) J.B. Davidson & A.L. Case : Int. Conf. Neutron Scattering (Gatlinburg '76).

(a)

(b)

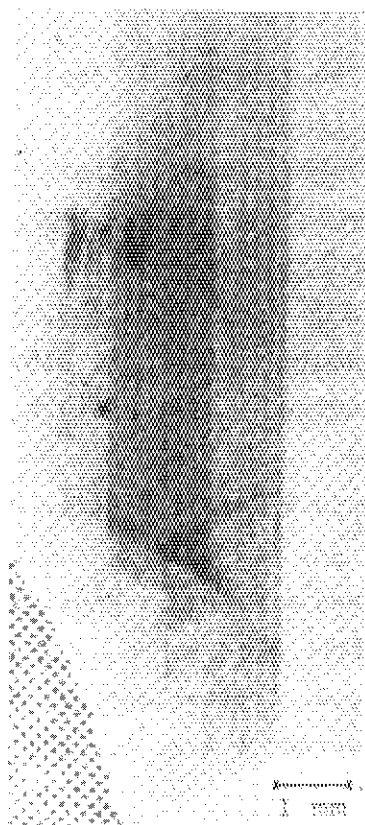
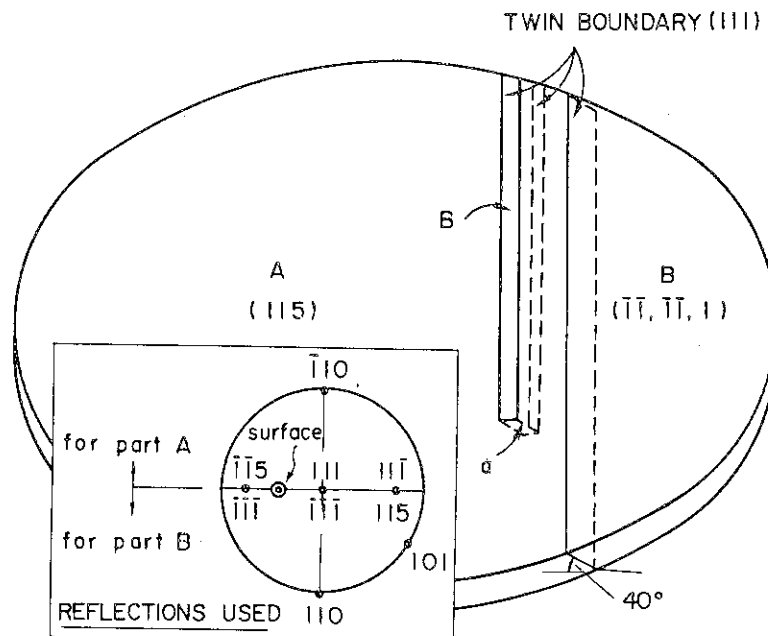


Fig. 1 (a) Shows the geometry of the specimen crystal, a water of 1.33 mm thickness with the diameter of about 2 cm, which is divided into twin pair A, B₁ and B₂ with (111) twin boundaries.
 (b) $11\bar{1}$ topograph, showing two sets of equal thickness fringes at the twin boundaries.

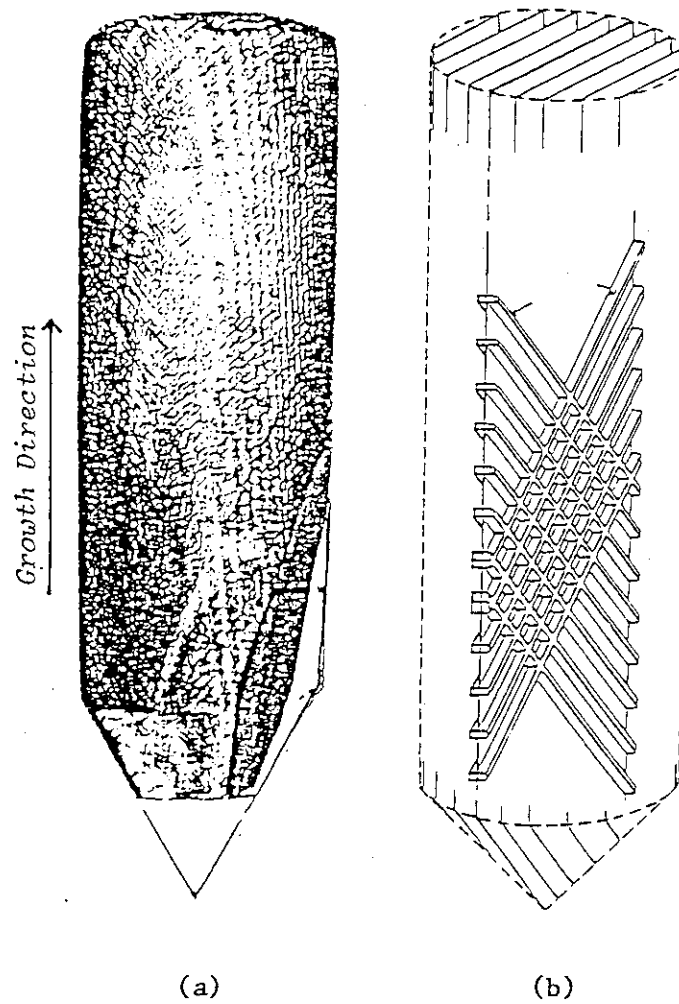


Fig. 2 (a) Optical photograph of the specimen crystal seen close to $[001]$ direction, showing three kinds of striations with jagged profiles on the surface, parallel to $[100]$, $[010]$ and $[110]$ directions corresponding to the traces of three kinds of 100 -planes at the crystal surface. The crystal was grown nearly along $[110]$ direction, with the diameter of about 3 cm and 10 cm length.

(b) The specimen crystal, with thorough NDT-observation, to be made up from 1) the layer-substructure parallel to (001) along the growth direction, and 2) each (001) -sublayer is made from the central thin layer (Z-sublayer) and (100) - and (010) -fin structures (X- and Y-plates, respectively) attached perpendicularly to both sides of the central sublayer.

3.5.6 (2) 中性子光学の応用

東大工学部 菊田惺志

(1) はじめに

中性子は完全結晶において回折条件を満たすと周期的に配列した格子面で多重の散乱を受け、結晶内に入射方向の波（o 波）と回折方向の波（h 波）からなる 2 つの Bloch 波が形成される。これらの波が干渉しあって動力的回折現象を生ずる。各 Bloch 波の o 波と h 波がカップルして、格子面に平行で格子面間隔の周期をもつ定在波ができる。また o 波どうし、h 波どうしが干渉しあって、うなり現象を起こす。結晶の外へは境界条件を満たして互いに可干渉な回折線と透過線として分れて出てゆく。ブラッグケースでは反射線の発散角は数秒でいって、反射率はほぼ 100 % である。非対称反射にすると、入射線と反射線の発散角が変わる。ラウエケースでは数秒の発散角の入射線が結晶中で回折面を中心に開き角が $2\theta_B$ の扇状の領域（wave fan）内に広がる。つまり 10^5 倍ぐらいの角度の拡大作用がある。

このような動力的回折の特徴を生かした完全結晶（おもにシリコン）からなる光学要素が用いられる。光学要素を組合わせることにより、中性子干渉計や平行配置の 2 結晶回折計などの高性能の光学系がつくられる。中性子干渉計では干渉作用が、平行配置の 2 結晶回折計では高角度分解能がそれぞれ利用される。

最近、動力的回折法を駆使した中性子光学の研究に目ざましい進歩がみられる。^{1,2)} 中性子光学は大別すれば、物理の基礎的問題に関わる研究と材料科学に寄与する研究に分かれる。前者は、中性子がマクロな時間スケールで実験のできる素粒子であって、その粒子的あるいは波動的な研究に適していることによる。中性子が比較的大きな質量をもち、電荷をもたず、磁気モーメントをもつという特徴があることと、中性子干渉計の実現によって中性子波の位相のずれの観測が可能になったことのために量子力学に関連した諸問題の直接的な検証が行われるようになっている。後者では、中性子干渉計や高角度分解能をもつ光学系を材料の評価あるいは物性研究に役立てている。以下ではそれらの研究例をあげる。

(2) 中性子干渉計の応用

1) 核散乱振幅の精密測定

固体、液体や気体の試料を位相物体として用い、干渉計から出射する中性子の強度の振動周期を測定すれば、それを構成するアイソトープの核散乱振幅を 10^{-4} の精度で決定できる。気体の場合は Fig. 1 のようにガスセル中の圧力を変えて、原子密度の変化によって中性子強度の振動が観測される。³⁾ 単独のアイソトープを用いれば、より精密な核データが得られる。少数の核子からなるアイソトープの場合は少数体問題として解析される。また特定のアイソトープに対しては核散乱振幅の波長依存性の測定が共鳴散乱の研究に役立つ。

2) スピンの関わる干渉

中性子のようなスピン $1/2$ のフェルミオンは 2π だけ回転すると波動関数の符号が変わる。干渉計の 1 つの光路中の中性子スピンを磁場によって回転させ、中性子波の位相を変えて観測された。また互いにスピン状態が逆の 2 つのコヒーレントな中性子線束を重ね合わせると、偏極ベクトルははじめの偏極方向に垂直な方向を向くことが理論的に示されるが、それが Fig. 2 のような実験で確かめられた。⁴⁾ 偏極した中性子を干渉計に入射し、光路の 1 つでスピンを π

だけ回転させたのち干渉させる。干渉計のうしろで偏極の向きを分析する。

3) 地球の重力場や自転の影響

重力場が量子力学的現象に関わることはほとんどないが、中性子干渉計による実験で地球の重力ポテンシャルが中性子波動関数の位相を変化させることが実証された。干渉計を回折条件を満たしながら入射線の光軸のまわりに回転させることによって干渉図形の変化を観測した。また光学干渉計で回転によって2光路に位相差が生ずる Sagnac の実験に類似の実験として、地球の自転が中性子の干渉に及ぼす効果も調べられた。

4) 材料の分析への応用

干渉縞の周期の変化から物質の組成のわずかなちがいを検出できる。また物質の屈折率の局所的な不均一性の増加が干渉縞の visibility の低下をもたらす。これを利用して V-H, D 系や Nb-H 系を熱処理したときの水素化物の析出状態が解析されている。

(3) 中性子の動力的回折現象とその応用

1) 動力的回折現象に及ぼす外力の効果

Wave fan 内を進む中性子の軌道はふつう直線的であるが、入射線と回折線を含む散乱面を鉛直に立てた場合、重力の作用により軌道は双曲線を描く。磁場の勾配から生ずる力でも同じ作用をする。これらの現象はまだ観測されていない。

2) 磁性完全結晶における動力的回折現象

逆格子空間に描かれる分散面はふつう2葉であるが、磁性完全結晶の場合、中性子の2つのスピン状態に応じて散乱振幅 $b \pm p$ をもつ4葉の分散面になる。このためペンデル縞やロッキングカーブに顕著な変化が現われる。これは良質の Fe-3%Si 結晶などで観測できる可能性がある。

3) 屈折による散乱振幅の精密測定

平行配置の2結晶回折計で2つの結晶の間にプリズム状の物質を置いて、中性子線の数秒あるいはそれ以下の微小な屈折角を測定する。屈折等から核散乱振幅が高精度で求まる。磁性体の場合は $Q = 0$ の磁気散乱振幅が求まる。

4) 極小角散乱

3) の方法で散乱体を置けば、 $10^{-3} \sim 10^{-6} \text{ \AA}^{-1}$ 程度の Q までの極小角の散乱が測定でき、散乱体の慣性半径が求まる。非晶質物質の密度ゆらぎを調べるのに有効である。偏極中性子によって非晶質磁性体中の磁氣的構造不均一性の解析もできる。

参 考 文 献

- 1) A.G. Klein and S.A. Werner : Rep. Prog. Phys. 46, 259 (1983).
- 2) 菊田惺志：月刊フィジクス 2号(1984)p. 112.
- 3) H. Kaiser, H. Rauch, G. Badurek, W. Bauspiess and U. Bonse :
Z. Phys. A291, 231 (1979).
- 4) J. Summhammer, G. Badurek, H. Rauch and U. Kischko : Phys. Letters
A90, 110 (1982).

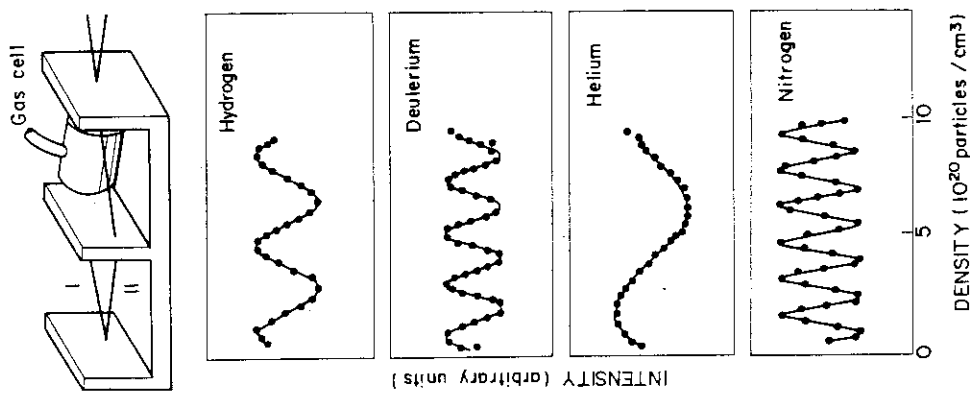


Fig. 1 Interference experiment for various gases used as phase objects.

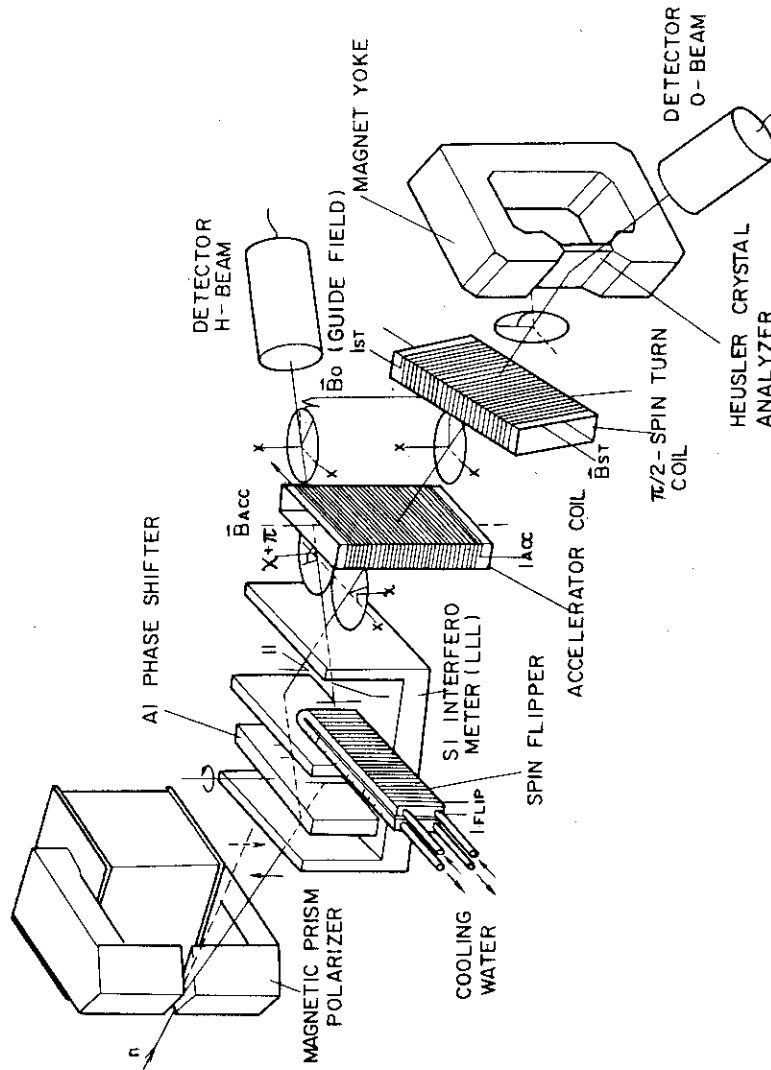


Fig. 2 Schematic view of the experiment for spin superposition.

3.5.6(3) 超冷中性子の物理と応用

高エネルギー研 吉城肇

現在素粒子物理学で長い間解答が求められているものの一つに、中性子に電気双極能率 (e. d. m.) が存在するのか、すればいくつか、という問題がある。Yang, Lee による偶奇性非保存の発見は既に 30 年程前にさかのぼるが、この時荷電共軛非保存も帰結された。これは素粒子系に偶奇変換 (左右を入れかえる変換) をほどこし、更に荷電共軛変換をほどこしたものは (所謂 CP 変換) 保存されるという当時の認識に基づいている。一方素粒子理論で CPT 変換は保存するという、いわば公理的な基礎的な事実がある。これは時間変換 (時間の流れを逆にとって見る変換) をした後、偶奇変換 (P) を行い更に荷電共軛変換 (C) を行えばその結果は自然の状態に違反しないということである。その後 K 粒子の崩壊過程を調べていた Cronin・Fitch のグループは 2 個の π 粒子へと 3 個の π 粒子へと二通りの崩壊過程があることを発見し、これから CP も又一般には保存量ではないことが認識された。若し CPT が保存し、しかも P が保存しないならば、それは T が保存しないことを意味する。現在多くの理論では T の破れも考慮に入れるのが普通であるが、現実には T が破れているのを実験的に検証するのは T 変換によって符号をかえる素粒子系を探すか、系の始めと終わりで T 変換した時の符号があわない様な相互作用を探し出すことである。T 変換で符号が変わる系とは例えば極性ベクトルと角運動量ベクトルが同時に存在する様な系である。若しスピンを持つ中性子に e. d. m. があればまさにその様な系に相当する。つまりこれに T 変換をほどこせばも早その状態は自然には見られない。これを検証するために現在 ILL と Catchina (USSR) の二グループが超冷中性子 (UCN) を使って e. d. m. 測定実験をくり返しているが現在迄のところ共に e. d. m. 上限値を出すだけで零と一致している。その測定原理は磁気能率の場合と同じで弱い磁場の中で Larmor の歳差運動を行う中性子に強い電場をかけてその周期の変化をとらえるものであるが、e. d. m. が非常に小さいので大変困難な実験となる。嘗て Ramsey の分子ビーム法¹⁾ではその精度に限界があることが知られ、現在は ILL²⁾でも Gatchina³⁾でも UCN が使われているが、その理由の一つは中性子が一方向だけに走ると相対論効果により E に起因する弱い磁場と中性子の磁気能率がカップルして誤差となるため、箱の中に溜った UCN ならその効果は相殺されるからである。また測定感度は (電場) $\times$ (測定時間) $\times \sqrt{\text{(中性子数)}}$ であり分子ビーム法では測定時間は 10 ms 程度であるが UCN なら 100s にもなるので中性子数で損をしても時間で稼いでありあまるのである。現在 e. d. m. の上限値が UCN によって測定されていて 10^{-25} e $\cdot$ cm 台である。

以上 e. d. m. について述べたが、これに関連して全く同じ装置で質量双極子について調べることが出来る。慣性質量と重力質量の同等なことは有名な Eötvös の実験で 10^{-11} の精度でマクロな物体について示された。しかし素粒子レベルでもこれが成立しているかどうか分からない。⁴⁾若し中性子レベルでそのような質量の分極が起っているとすれば重力場の中に置かれた中性子は Larmor の歳差運動をする筈で、コンプトン波長程度の分極があれば地表では 2×10^{-23} eV 程度のエネルギー・シフトが生ずる (太陽重力場は約その 1/10)。これは現在の e. d. m. の測定リミットより更に 50 倍の感度が必要であるが、現在迄に知られている NMR による上限値は $10^{-8 \sim 10}$ $\times$ コンプトン波長であることを考えれば NMR よりはるかに精度のよい上限値を与えることが出来る。地球重力場を用いる場合は磁場を反転させ、太陽重力場を用いる場合は 24 時間中の Larmor

振動数の変化を調べる。

素粒子に於ける次の問題として大統一理論の問題がある。弱い相互作用 (β 崩壊等) と電磁相互作用の統一は Weinberg-Salam の理論によって成功を収め、予言されたゲージ粒子 W, Z も現実に発見された。大統一理論はこの電磁弱相互作用と強い相互作用 (核力等) を大統一しようというもので、既に多くのゲージ理論が提出されて居る。この中で Marshak・Mohapatra⁵⁾ のモデルでは諸実験に照して見ても矛盾のない魅力的粒子体系が作られるだけでなく、バリオン数レプトン数非保存が考えられ、この結果中性子が反中性子に転換し、反中性子が中性子に転換するという所謂中性子-反中性子 ($n\bar{n}$ -oscillation) 振動が陽子崩壊と同程度の結合常数で起ることが予言された。これを受けて Fidecaro⁶⁾ のグループが一昨年 ILL で実験を行い振動があったとしても周期は 10^6 s より長いと報告した。このグループは飛翔中の冷中性子を用いる。この実験では $n-\bar{n}$ 振動があるかないかは自由中性子、つまり他の場 (例えば核力や磁場) の中に置かれていない中性子によって調べる必要があるので中性子を飛翔させるのである。この為には長い飛行距離が必要であり龐大な装置が建設されねばならないが、UCN では観測時間が長いので、比較的小型の装置ですむ。ただし UCN が容器の壁から反射する度に位相が変わるので、このことは考慮しなければならない。⁷⁾

この他に UCN によって重力の素粒子に及ぼす影響を観察することが出来る。速度が更に減って 2 cm/s 程度になれば水平な壁と重力場の間に掟えられた量子化された準位が生じる。このようなことは素粒子と重力場の相互作用という点で新しい研究分野を開く可能性をもっている。

以上、素粒子論に関係した分野での UCN 物理について述べた。UCN はその特性 (波長の長いこと、エネルギーの小さいこと、光学的性質等) を活して従来にない方法での物性研究を行うことも可能である。この為の種々なスペクトロメーターが開発されつつあり、その多くは高いエネルギー分解能を有し、⁸⁾ 又集束効率の高いもの⁹⁾ も提案されている。応用として金属中の水素の振舞、高分子主鎖のダイナミックス等の研究分野が開けることが期待される。これらについては文献¹⁰⁾ に概説され本論文が引用されているので UCN での物性物理、表面物理の研究への広い展望はこの節では敢えて取扱わず、他稿に譲ることとする。

参 考 文 献

- 1) F. Ramsey, et al. : Phys. Rev. 179, 1285 (1969).
- 2) J.M. Pendlebury, et al. : Phys. Lett. 136B, 327 (1984).
- 3) V.M. Lobashev, et al. : Supplément au Journal de Physique, FASC.3, C3-1984, page C3-11.
- 4) J. Leitner, S. Okubo : Phys. Rev. 136, 1542 (1964).
- 5) R.N. Marshak, R.E. Mohapatra : Phys. Rev. Lett. 44, 1316 (1980).
- 6) M. Baldo-Ceolin : Supplément au Journal de Physique, FASC.3, C3-1984, p.C3-173.
- 7) H. Yoshiki : KEK Preprint 80-10.
- 8) A. Steyerl, et al. : Z. Phys. B50, 281 (1983).

- 9) M. Utsuro, Y. Kawabata : Phycica 120B+C, 118 (1983), M. Utsuro :
Nucl. Instrum. Meth. 213, 283 (1983).
- 10) 宇津呂雄彦, 吉城 肇 : 月刊フィジックス 5, 135 (1984).

3.6 中性子ラジオグラフィの最近の動向

3.6.1 中性子ラジオグラフィの特長と応用

原研大洗研究所 山本 章

(1) 特長と現状

中性子ラジオグラフィの技法は、この10年間に急速に発展し普及した。中性子線が物質を透過することは良く知られている。中性子は原子核との相互作用によって吸収または散乱される。中性子線の物質透過率は、被写体を構成する元素—と言うより原子核の種類によって特異な値を持つ。X線やガンマ線は電子との相互作用によって吸収または散乱される。そのため、X線やガンマ線の物質透過率は、被写体を構成する元素の原子番号に単純な曲線で関係付けられる。中性子線とX線の元素による質量減衰係数の違いをFig. 1に示す。

X線やガンマ線によるラジオグラフィの技法は、例えば金属構造物の溶接欠陥の検査、即ち金属材料中の空隙の検出に応用されている。中性子線によるラジオグラフィの技法は、例えば火工品の欠陥検査、即ち金属構造物中の火薬の装填状態の観察等に典型的な応用例を見ることができる。

我が国に於る殆どの研究炉は、中性子ラジオグラフィに必要な設備を持ち、また、 ^{252}Cf 線源や加速器を用いた中性子ラジオグラフィを行っている。Table 1に国内に設置されている中性子ラジオグラフィ設備の一覧表を示す。

国際的には、第1回中性子ラジオグラフィ国際会議が1981年に米国のSun Diagoで開催され、120件を超える論文が提出された。第2回国際会議は、1986年6月にパリで開催する準備が進められている。

中性子ラジオグラフィによる透過試験は、NRT (Neutron Radiography Testing) と呼ばれる。NRTは、照射後試験等の原子力分野で早くから実用されていたが、米国のアポロ計画で採用された後、ロケット産業に於いて急速に普及した。航空機産業では、製品検査と供用期間中検査にNRTを適用する事が進められており、自動車産業に於てもNRTに期待を寄せていると言われている。

NRTに関する日本の技術水準は、開発の先端では欧米の水準を越えている部分もあると言われているが、実用化に関しては米国が最も進んでおり、小型の研究所がNRT専用に移動している。

(2) 実用化への期待

米国において実用化が進んでいる産業は、主としてロケット産業と航空機産業であり、すでに規格化されたNRTが契約上義務付けられていると言われている。線源は主に原子炉と ^{252}Cf が用いられている。NRT専用の原子炉はFig. 2のような250 KW程度のTRIGA炉がある。¹⁾ ^{252}Cf 線源は、トラックに線源容器を積載し、油圧式支持腕の先端に撮影部を取付けた移動型の装置が開発されている。Fig. 3にモバイル型NRT装置の例を示す。²⁾

日本に於ても、宇宙開発に必要なロケット部品の検査の一部にNRTが採用されており、ロケット部品の検査を目的として、ベビーサイクロトロンが設置され、すでに稼動している。Fig. 4にベビーサイクロトロンを使用したNRT装置の例を示す。³⁾

固体ロケットモータは、所謂ワンショットミッションであり、事前運転を行って性能検査をすることなく、唯一回だけ使用される。ロケットに使用される材料は、特殊合金鋼、アルミニウム合金、セラミックス、強化プラスチック、火薬、酸化剤等、様々であり、接着結合が多用されている。従って、重要なパーツは、部品欠損、クラック等の欠陥、積層状態の欠陥、接着状態の欠陥、装薬状態の欠陥等に関する非破壊検査を行って、完全製品であることを確認することが必要である。非破壊検査は、放射線透過試験、磁粉探傷試験、液体浸透探傷試験、超音波探傷試験等の組合せによって行われる。NRTは従来のX線透過試験と相互に補い合って検査の目的を達成するのに、必要不可欠な検査法として実用化されるに至った。

航空機もロケット同様、使用条件が苛酷で、性能、信頼性、耐久性、経済性等の重要さは言うまでもない。特に、信頼性、即ち飛行の安全性は人命にかかわるものとして重要である。従って、製品検査と共用期間中検査（ISI）が重視される。

例えば、ハニカムとスキンの接着状況は、X線透過試験では困難であり、NRTに期待される等、接着結合の多用や複合材の使用等、NRTに期待する要素は多い。また、ISIとしては、タービンブレードの腐食、エンジンの燃料ノズルのコッキング、機体の腐食等、NRTによる検査技術の開発が行われ、適用が進められている。

自動車産業では、その使用条件が航空機のように苛酷ではないが、使用材料の共通点は多く、コスト低減に役立てば製品検査に適用されるものと思われる。

製品開発の分野では、例えばキャブレタ内のガソリンの気化メカニズムの解明、エンジン内の燃焼過程の解明によって燃焼効率の向上を図る等、金属容器内の水素化合物の挙動の解明に、NRTは有効な手段である。これは、NRTによるリアルタイム画像の観察技術（Fig. 5 参照）の進歩によって、製品開発手段として新しく産業活動のなかに取入れられる可能性を持っていることを示している。⁴⁾

(3) 産業活動への適用に関する分析

産業活動のNRTへの期待は次の様に分類できる。

- ① 製品検査にNRTを適用すること
- ② ISIにNRTを適用すること
- ③ 製品開発にNRTを活用すること

NRTを産業活動に取入れるには、技術的問題の他に、経済性の問題、規格化の問題、法規制の問題がある。

X線やガンマ線によるNDIが普及したのは、検査装置の製品化が容易であったこと、製品の品質管理に成果を上げたことによる製品の信頼性、耐久性が向上し、経済的にも有効に作用したためと考えられる。

NRTは、原子炉、加速器、²⁵²Cfのいずれを用いても高価な線源が必要である。原子炉は、建設費、運転維持費が高価だけでなく、立地問題にも困難があり、検査設備の市場性はあまり期待できない。加速器または²⁵²Cfを用いたNRT装置の製品化は容易であると考えられるし、加速器は据置型と可搬型、²⁵²Cfは可搬型として、市場性はあると思われる。

可搬型加速器としては、(D, T)反応を用いる中性子発生装置、医療用に開発されたベビーサイクロトロン¹⁾の転用等、日本に於ける生産実績は十分である。実用化には線源強度と透視像の検出

感度の向上が望まれているが、日本におけるリアルタイム画像処理技術に関する開発研究の成果は、欧米諸国の注目を集めていると言われている。実用化の推進には、装置のコスト低減化を図り、現場における使用実績を重ね、規格化を進めることが必要であると思われる。

前述の①に対応する検査設備は、生産ラインの中での検査方法、検査量、検査時間等の問題によって、据置型か可搬型のいずれかを選択することになる。米国の先例を見るまでもなく、検査量が多くて必要性があり、検査物の移動が容易であれば、専用原子炉による検査が有力になるであろう。日本に於ては、すでに専用の加速器による製品検査が開始されていることに注目したい。

分類②に対応できるものは、可搬型加速器と ^{252}Cf である。多くの場合、ISIにNRTを導入するには、検査装置が可搬型である必要がある。この普及には、NRTによるISIが直接的に経済的効果をもたらすと言うより、安全上の必要性、言い換えればISIによる安全性の向上による、長期的な経済性の向上見込みが影響を与えるであろう。また、検査装置の生産者にとっての市場性に関する関心も普及の度合を決める要素になると考えられる。

分類③に関しては、NRTに関する技術開発、応用開発を伴うものが多い。NRT施設の設置場所や使用上の困難を克服して活用されと思われ、既存のあらゆるNRT装置を使用することになるであろう。

(4) 研究炉におけるNRTの展望

NRTによってX線ラジオグラフィと異なる有用な情報が得られることは前述した通りである。照射後試験に於ては、前述したNRTの特長の他に、被写体が放射化しているためX線撮影が困難である場合、試料がウランであるためにX線透視像が得難い場合等、照射後試験特有のNRTの利点がある。また、キャプセル照射に際して、照射期間の途中でNRTによるキャプセル内部の観察を行うことは、照射の安全確保の為だけでなく、照射途中の変化に関する情報を得る手段としても有効である。キャプセル照射を行う研究所に於て、NRTの技術を発展させ、照射後または照射途中の試験法としてNRTを活用することは重要な課題である。

前述した産業界のNRTへの期待と適用への分析から、既存の研究炉におけるNRTが産業活に寄与できる分野が想定できる。即ち、前述した分類③の製品開発にNRTを活用することで、製品検査やISIに関しては、規格化や実用化に必要な試験を行う程度なら可能であろうが、定常的な製品検査やISIはかなり限定されたものとなるであろう。

また、NRTを普及させるには、初心者が使い易い設備と受け入れ体制を持ち、できるだけ広い分野にわたってNRTの利用可能性をテストする条件を準備する必要がある。これに原研の研究炉が寄与することは可能であろう。

原子力の開発と普及に大きな役割を果たすことは、原研の使命である。NRTの実用化に向けて、原研の研究炉が果たすべき役割は、前述した通りであると思われる。また、研究炉の利用について考慮すべきことは、それが広範な分野の研究活動に寄与しているため、利用全体のなかで共存できるようにすることである。この研究炉の特殊性のなかで、NRTに対する期待にどう対応するかが今後の課題である。

産業界がNRT技術に期待を寄せ、動き始めていることは確かである。原子力の普及と新材料の使用は、NRT技術を発展させ普及させる可能性を持っていると思う。

今後のNRTの発展を期待したい。

参 考 文 献

- 1) C.N. Jackson, et al. : Neutron Radiography Facility at the Hanford Engineering Development Laboratory, Materials Evaluation/June 1979.
- 2) M.R. Hawkesworth : Mobile equipment for neutron radiography using a californium-252 source, AERE-R9211, Nov. (1978).
- 3) 飯島 昭, 非破壊検査の新分野—ベビーサイクロトロンを利用した中性子ラジオグラフィ, Isotope News, June 6 (1984).
- 4) S. Fujine, et al. : An on-line video image processing system for real-time neutron radiography, Nucl. Instrum. Methods, 215, 277-289 (1983).

Table -1
SOURCES FOR NEUTRON RADIOGRAPHY LOCATED IN JAPAN

Name	Location	Radiographic intensity ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	Radiographic field size (mm)
Reactor			
JRR-2 (10 MW)	JAERI-Tokai	1.1×10^7	80 x 80
JRR-4 (3.5 MW)	JAERI-Tokai	3.3×10^7	60 ϕ
NSRR (0.3 MW , 23000MW-pulsed*)	JAERI-Tokai	$*1.0 \times 10^{10}(\text{cm}^{-2})$	200 x 200
KUR	Kyoto University-Kumatori	1.8×10^6	160 ϕ
TRIGA-II(100kW)	Musashi Tech. Univ.-Kawasaki	2.0×10^5	300 ϕ
Accelerator			
Baby Cyclotron (p16MeV)	The Japan Steel Works Ltd. -Muroran	5.0×10^5	360 x 430
Sub-Compact Cyclotron (p18MeV)	Sumitomo Heavy Industries Ltd. -Araihama	5.0×10^5	360 x 430
Linac (e18MeV)	Radiation Center of Osaka	1.5×10^5	130 ϕ
Van der Graaff (d1MeV)	Radiation Center of Osaka		90 x 120
Neutron Generator (d160keV)	Nagoya University	1.0×10^4	
Radioisotope			
^{252}Cf (1 mg)	JAERI-Oarai	3.4×10^3	200 ϕ

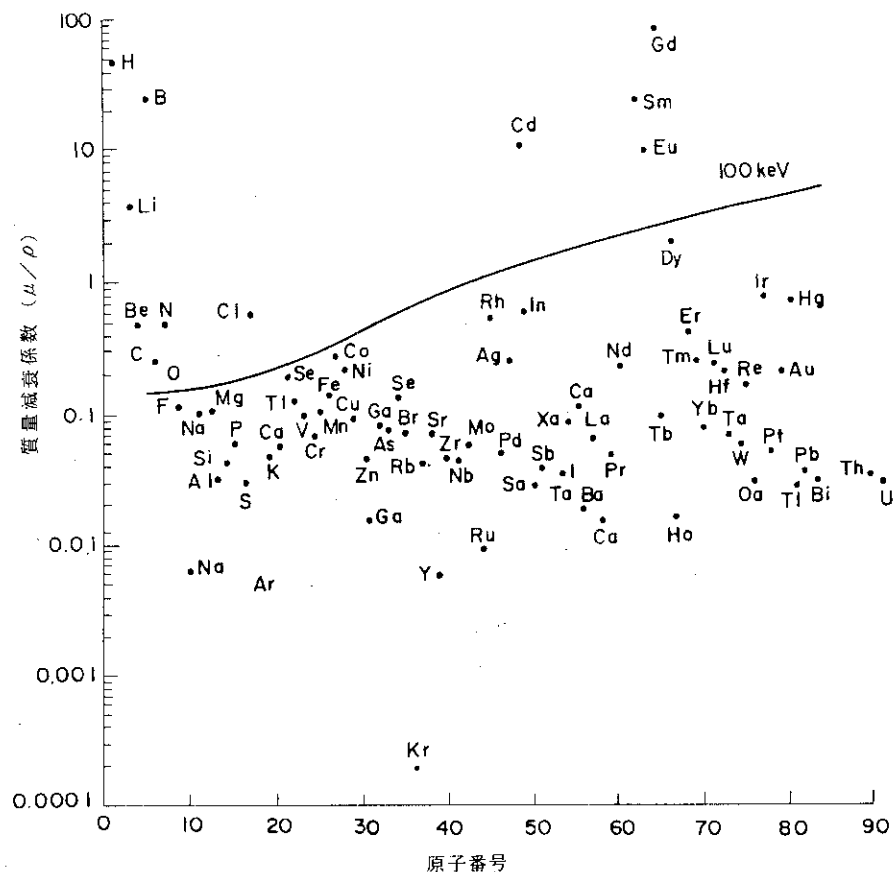


Fig. 1 Mass absorption coefficients of elements for neutron (0.025 eV) and X-ray (100 keV).

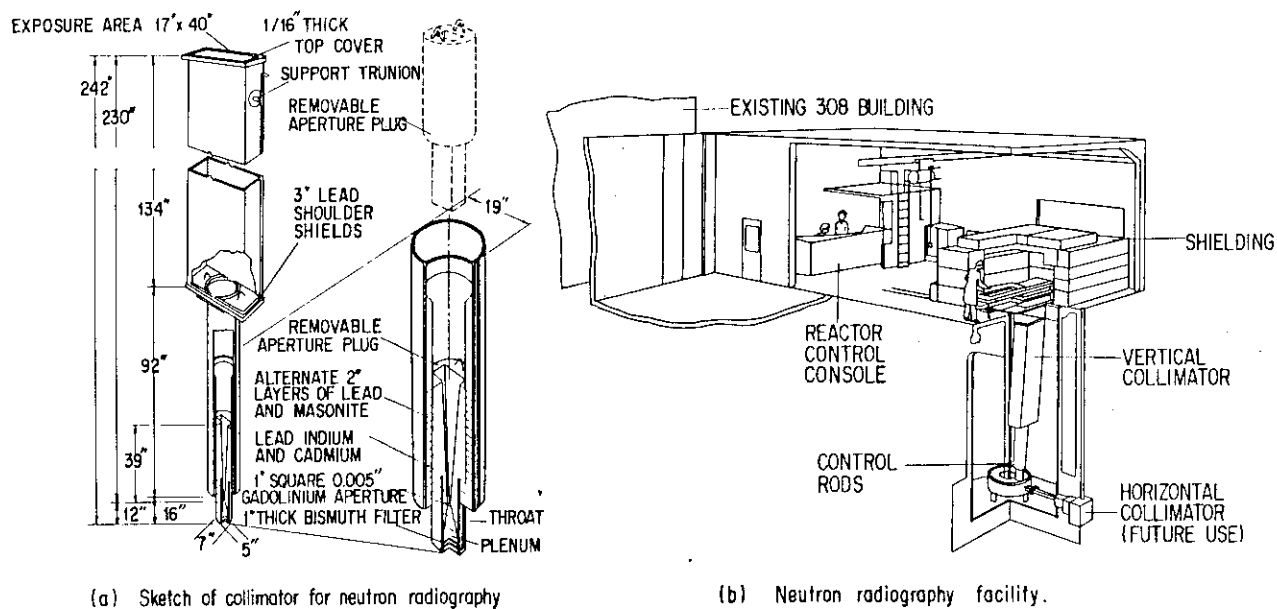


Fig. 2 Neutron radiography facility and collimator on 250kW TRIGA reactor.

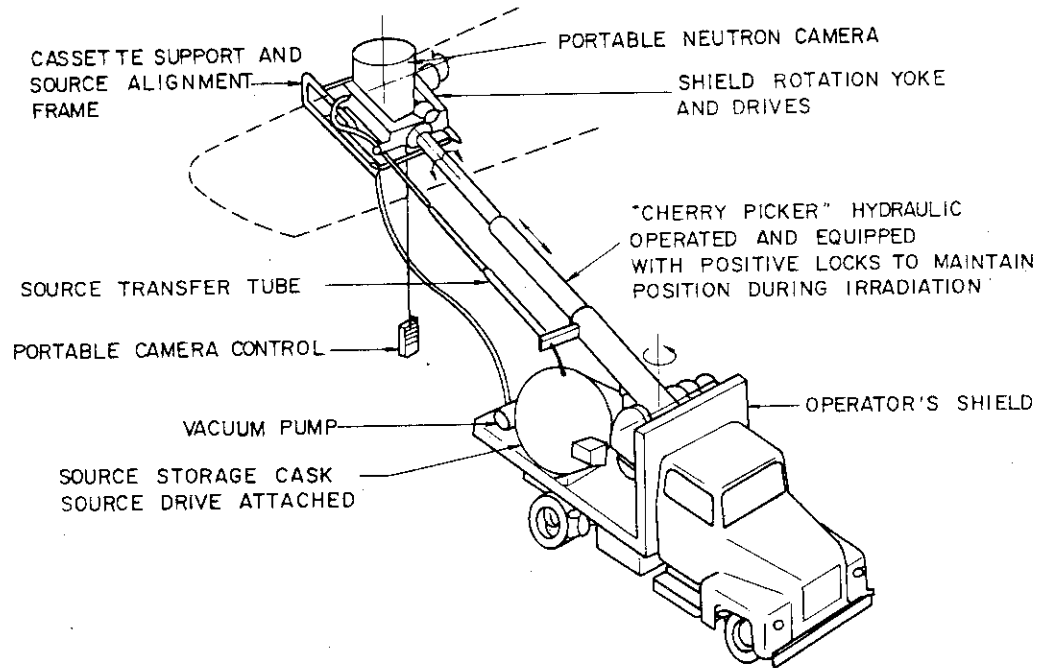


Fig. 3 Outline of mobile equipment for neutron radiography using ^{252}Cf proposed by science Applications Inc., San Diego.

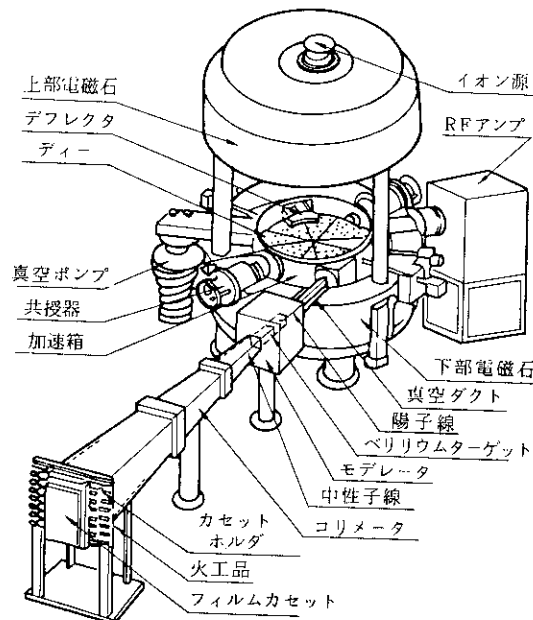


Fig. 4 Neutron radiography facility.

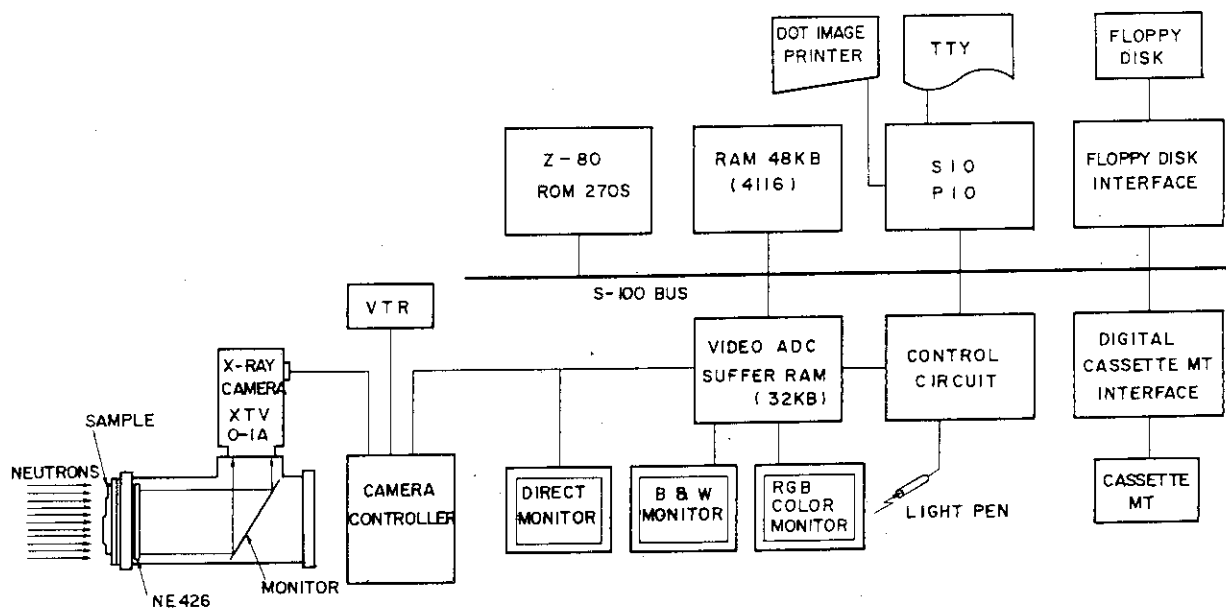


Fig. 5 On-line neutron radiography system.

3.6.2 開発研究の動向

原研アイソトープ部 和田延夫

(1) ラジオグラフィ用中性子源

ラジオグラフィ用中性子源としては Table 1 に示したように原子炉、加速器または同位体中性子源が利用できる。これら3つの中性子源にはそれぞれ長短があり、そのいずれを用いるかは、各中性子源の強度、中性子エネルギー、バックグラウンド放射線、減速材・遮蔽材を含めた線源の大きさ、可搬性及び価格などを被検査物に応じて勘案して決める必要がある。一般に原子炉は得られる熱中性子束密度が大きく、像質と露出時間の点で他の2つの中性子源よりも有利であり圧倒的に多く用いられている。原子力専業の研究機関では、英国 Harwell やオランダ Petten JRC、フランス Saclay 及び Grenoble の例にみられるように多目的の研究炉を熱中性子ラジオグラフィにも有効に利用している。被検査物位置における熱中性子束密度は各施設によって異なるが $10^5 \sim 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の広い範囲にわたっている。また照射野の形は円、正方形または長方形の3種で、それらの大きさはやはり各施設によって異なり、小さいもので $15 \times 2.5 \text{ cm}$ 、大きいものは $60 \times 15 \text{ cm}$ に達する。¹⁾

熱中性子では透過像を得ることが困難なプルトニウム核燃料ピンなどの検査には熱外中性子によるラジオグラフィが有効であり、たとえば Grenoble の SILOE 原子炉では $8 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の熱外中性子ビームを利用できる。¹⁾

一方、冷中性子は熱中性子よりも鉄などの結晶質の物質を透過しやすく水（水素）を透過しにくい。したがってプラスチックと金属材料から成る被検査物に対しては冷中性子によるラジオグラフィが熱中性子ラジオグラフィよりも有効である。Harwell の DIDO 原子炉や Grenoble の MELUSINE 原子炉では Be フィルターを用いた冷中性子ビームが利用できる。DIDO の場合、原子炉から 25 m 離れた建屋外の防舎 ($1.7 \times 3.4 \times 1.6 \text{ m}^3$) に充分にコリメートされた冷中性子ビームが到達する。その照射野は直径 30 cm であり、冷中性子束密度は $3.3 \times 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、同位置における γ 線バックグラウンドは $0.2 \text{ R} \cdot \text{h}^{-1}$ である。²⁾

中性子ラジオグラフィに有用な加速器は高エネルギーの正のイオンをターゲットに衝撃するものである。興味ある反応は $^3\text{H}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 及び $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$ である。 $^3\text{H}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 反応は低い衝撃エネルギーで高い中性子収率が得られ、かつ装置全体も比較的小型であるため移動可能な熱中性子ラジオグラフィ装置の線源として興味あるものであるが、³⁾ ^3H ターゲットの寿命が短く、また熱中性子への減速効率が低いという短所もある。一方、 $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$ 反応は中性子収率および減速効率ともによく、また γ 線バックグラウンドが低いという長所をもっている。 3 MeV 、 $300 \mu\text{A}$ の場合、被検査物位置で $\sim 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の熱中性子束密度が得られる。⁴⁾ この線源を用いた熱中性子ラジオグラフィシステムの概念図を Fig. 1 に示す。¹⁾ このような装置は米国において実用に供されている。一方、当初は医療用短寿命ラジオアイソトープの生産を目的としてわが国で開発されたベビーサイクロトロンがラジオグラフィ用中性子源として有効であることが実証され、その実用化が始まった。^{5~6)} $^9\text{Be}(\text{p}, \text{n})^{10}\text{B}$ 反応を利用したもので、 16 MeV 、 $50 \mu\text{A}$ の場合、被検査物位置での熱中性子束密度は $> 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、照射野は $36 \times 43 \text{ cm}$ である。

なお、高エネルギー X 線を発生させるためのライナックを利用して、 (x, n) 反応により Be や

U または Pb⁷⁾ から放出される中性子をラジオグラフィに適用しようとする試みがなされている。この場合、中性子ビーム中に含まれる強い X 線のかぶりをどのようにして避けるかが大きな課題である。

最も可搬性に富むラジオグラフィ用中性子源は ²⁵²Cf 同位体である。²⁵²Cf は自発核分裂により 1 mg 当たり $2.3 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ の中性子を放出する。中性子の平均エネルギーは 2 MeV であり、減速効率は加速器中性子の場合より高い。実効半減期は 2.64 年でやや短いのが難点であるが、この中性子源の登場によって同位体中性子源による熱中性子ラジオグラフィは初めて実用性をもつようになったといえる。可搬型、据置型いずれの装置もあるが、1~10 mg の ²⁵²Cf が使用され、被検査物位置での熱中性子束密度は $10^3 \sim 10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ S}^{-1}$ である。照射野は比較的大きく直径 20 cm のものもある。移動型 ²⁵²Cf 熱中性子ラジオグラフィ照射装置の一例を Fig. 2 に示す。⁸⁾ 据置型の代表例としては米国 Mound Facility に設置されている Californium Multiplier がある。これは ²⁵²Cf 中性子源を 93% 濃縮ウラン (²³⁵U; 2 kg) で取り囲み、約 30 倍の高速中性子が得られるように工夫された中性子増強装置であり、被検査物位置での熱中性子束密度は $1.5 \times 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ S}^{-1}$ で、その照射野は $45 \times 45 \text{ cm}$ である。⁹⁾

(2) 撮像法

フィルムを用いる撮像法に 2 通りあり、その 1 つは直接露出法であり、他の 1 つは像転写法である。直接露出法には X 線フィルムを用いる方法とニトロセルローズフィルムを用いる方法とがある。X 線フィルムを用いる場合にはコンバータとして厚さ 25 μm の Gd 金属箔をフィルムの後方に密着させて露出する。MTF (振幅伝達関数法による像質の解析結果は Gd コンバータと微粒子 X 線フィルム (Kodak SR) との組み合わせがもっともすぐれたラジオグラフを与えることを示している。¹⁰⁾ この場合 γ 線バックグラウンドが小さくなくてはならず、 n/γ 比は $10^6 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{mR}^{-1}$ 以上であることが望ましい。

一方、照射野における熱中性子束密度が $10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 以下の場合にはさらに高効率のコンバータが必要で蛍光コンバータ NE-426 (英国 Nuclear Enterprises 社製) が用いられている。この場合、 n/γ 比は $5 \times 10^4 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度でよい。

被検査物が放射性である場合には、Dy または In 箔をコンバータとする像転写法が適用される。In コンバータは熱外領域の中性子にも感度をもっているので、熱中性子では透過しにくい Pu を含む核燃料ピンの検査に有用であり米国 Argonne National Laboratory, Idaho Falls ではこれを賞用している。一方、高放射性の原子炉部品の検査にニトロセルローズフィルムを用いる直接露出法が γ 線には感じない高分解能像検出法として着目され、ひろく利用されるようになった。フランス Saclay においては以前からこの方法を採用しているが、¹¹⁾ 最近、米国 Hanford Engineering Development Laboratory において、濃縮 ¹⁰B を用いた炭化ホウ素コンバータが開発され、¹²⁾ 露出時間が大幅に短縮されるようになったので今後の発展が期待される。

イメージ・インテンシファイアと TV システムを組み合わせたリアル・タイム・イメージングの開発研究も進み、動的現象の実時間撮像への応用が進展している。米国 Precise Optics 社は熱または冷中性子入射面に Gd を含む蛍光コンバータをとりつけた中性子撮像管 (Fig. 3) を開発し、これを用いた中性子 TV システムを発売している。¹³⁾ 最低必要な中性子束密度は $10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である。同様な撮像管はフランス Tomson-CSF 社からも発売されている。

日本においても中性子TVシステムの開発研究は進められている。米仏のような熱中性子コンバータと一体化した撮像管は開発されていない。NE-426蛍光コンバータやBN蛍光コンバータとイメージ・インテンシファイアとを組み合わせた撮像システムが開発されている。¹⁴⁾ またリアル・タイム・イメージを画像処理を加えて改善するシステムの開発も進められた。¹⁵⁾ 中性子TVシステムの今後の課題としては $10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 以下の低い熱中性子束の下でも撮像可能な増強撮像システムを開発することが挙げられる。その試みとしてマイクロ・チャンネル・プレートを用いたイメージ・インテンシファイアを用いるシステムの開発研究が行われている。¹⁶⁾

画像処理の応用として断層撮像(Computed Tomography)の技術開発も進展し,^{15), 17)} 二次元像からは得られない新しい情報が得られつつある。

(3) 応 用

原子力、宇宙・航空分野を先頭に中性子ラジオグラフィの実用化は着実に進展している。原子力分野におけるユーラトム中性子ラジオグラフィワーキンググループの活動はとくにめざましく、像質レベルの規準化、核燃料ピンに生ずる欠陥の分類、中性子ラジオグラフィによる寸法測定の方法及び装置の検討などを行ってきた。その活動の成果として次の三つの出版物がある。

Neutron Radiography Handbook (1981)

Neutron Radiographic Finding in Light Water Reactor Fuel (1979)

Reference Neutron Radiographs of Nuclear Reactor Fuel (1984)

米国においてはASTMが中性子ラジオグラフィの標準化のための活動を積極的に続けており、熱中性子ラジオグラフィにおける像質決定の標準法「ASTM-E 545-81」を定めている。現在、各国で使用されているビーム純度インジケータや感度レベルインジケータはこの標準法に基づいている。

注目される実用例として、米国ANL-Idaho FallsとAerotest Operations, Inc.及び英国Harwellの場合がある。ANLではHot Lab.施設内に中性子ラジオグラフィ専用の小型原子炉(TRIGA, 150 KW)を設置し高放射性試料の熱または熱外中性子ラジオグラフを得ている。Aerotest Operations, Inc.は中性子ラジオグラフィ専門の民間会社であるが、TRIGA原子炉を持ち、全職員わずか10人で、火工品やタービン羽根などの検査を商業的に行っている。またHarwellの場合、(1)において述べた冷中性子ビームを用いて、運転中のエンジン内部の油の動きをリアル・タイムで撮像し、TVモニターで観察しており、総合化されたシステムとして注目される。¹⁸⁾

日本においても、原子力分野における原研の活動、¹⁹⁾ 一般工業分野への京大炉の活動、¹⁵⁾ ベービサイクロトロンによる火工品検査、^{5~6)} 移動型²⁵²Cf中性子ラジオグラフィ装置の利用、⁸⁾ 小型中性子発生管の利用³⁾ など活発な開発研究が続けられており、撮像性能の向上、新しい手法の開発と相まって応用面の拡大が期待されている。

参 考 文 献

- 1) P. von der Hardt, H. Röttger : Neutron Radiography Handbood, D. Reidel Publishing Company, The Netherlands (1981).
- 2) Anderson M.R., Harris D.H.C. : Engineering, Feb., 129 (1979).
- 3) Matsumoto G., Doi S., Ohkubo K. : Nuclear Technology, 68, 94 (1985).
- 4) Stokes J.A., Parks L.A., Preskitt C.A., John J. : IEEE Transactions on Nuclear Technology, NS-30, 1623 (1983).
- 5) 中村富久他：第21回理工学における同位元素研究発表会要旨集, 4a-II-6 (1984)
- 6) 田沢修一他：同上, 4a-II-7 (1984)
- 7) Hiraoka E., Fujishiro M. : Annual Reports of Osaka Radiation Center, 19, 45 (1978).
- 8) 和田延夫 : Radioisotopes, 30, 177 (1981).
- 9) Hasting J.D., Crosbie K.L., Preskitt C.A., John J. : Materials Evaluation, 40, 584 (1982).
- 10) Liu G.T., Alger D.M., Bull S.R. : Materials Evaluation, 40, 218 (1982).
- 11) Barbalat R., Farny G. : Kerntechnik, 18(2), 83 (1976).
- 12) Jackson C.N., Barton J.P., Proudfoot E.A. : Materials Evaluation, 37(7), 55 (1979).
- 13) Precise Optics 社カタログ (1980).
- 14) Matsumoto G., Teramura M., Okubo K., Ikeda Y. : Materials Evaluation, 42, 1379 (1984).
- 15) 藤根成勲, 米田憲司 : 日本原子力学会誌, 25 793 (1984).
- 16) 和田延夫 : 第21回理工学における同位元素研究発表会要旨集, 4a-II-10 (1984)
: 同上, 625 (1983).
- 17) Matsumoto G., Kurata S. : Barton J.P. and Hardt V.D., Eds., Neutron Radiography, D. Reidel Pub. Co., The Netherlands, 899 (1983).
- 18) Stewart P.A.E. : 同上, 625 (1983).
- 19) 和田延夫, 鶴野 晃, 大友正一 : 原子力工業, 29(4), 71 (1983).

Table 1 Characteristics of neutron radiographic facilities.

Source	Basic fast neutron flux (neutrons/s)	Thermal neutron beam	
		L/D ratio	Intensity at film site (no specimen) (neutrons/cm ² s)
Large research reactor	10^{14}	250	10^8
Research reactor	2×10^{11}	100	10^6 Cold neutrons
Small reactor	10^{12}	250	10^6
1 mg Cf-252	2×10^9	12	10^4
5.5 MeV linac; Be(X, n)	4×10^8	18	8×10^4
Neutron tube T(d, n)	1×10^8	18	2×10^4
3 MeV van de Graaff	3×10^9	33	2×10^5
15 MeV linac; Pb(X, n)	3×10^{11}	8	1×10^5
Sb-Be, 270 Ci	1.5×10^9	10.5	2×10^4
10 mg Cf-252	2×10^{10}	20	3.5×10^3 Cold neutrons

(from Halmshaw R.)

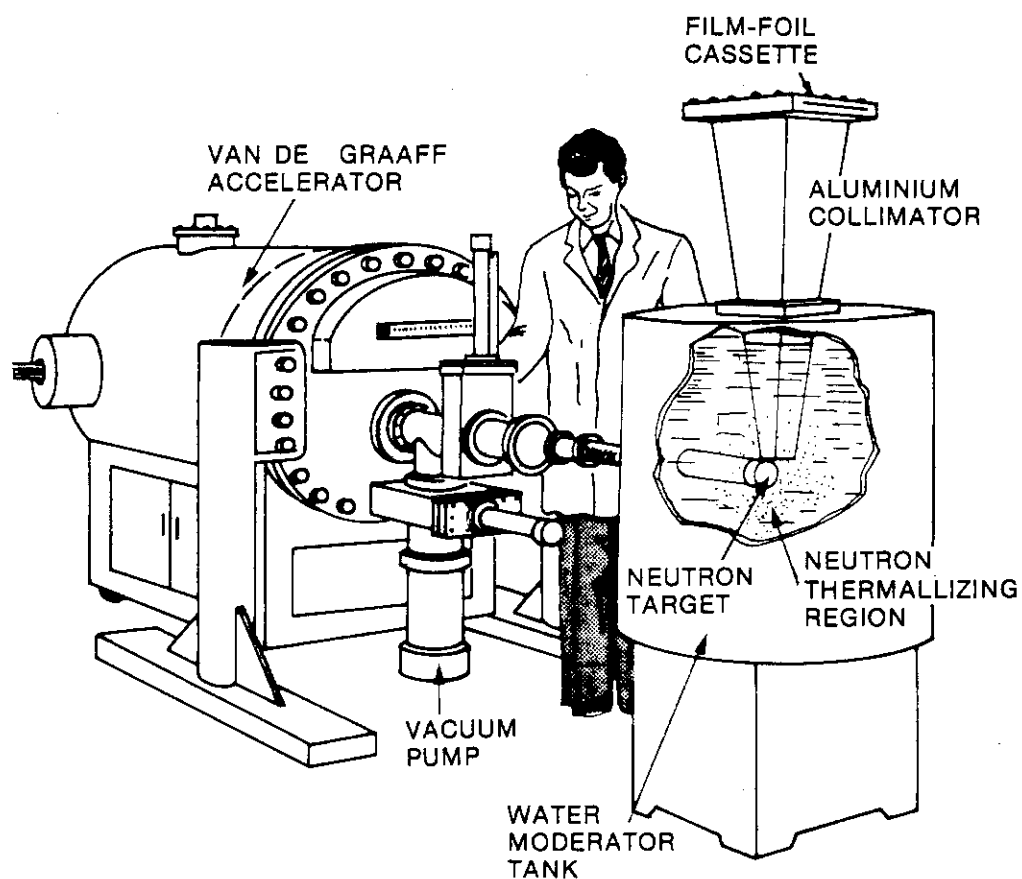


Fig. 1 Van de Graaff accelerator for Neutron radiography (from Hardt P.V.D. and Röttger H.).

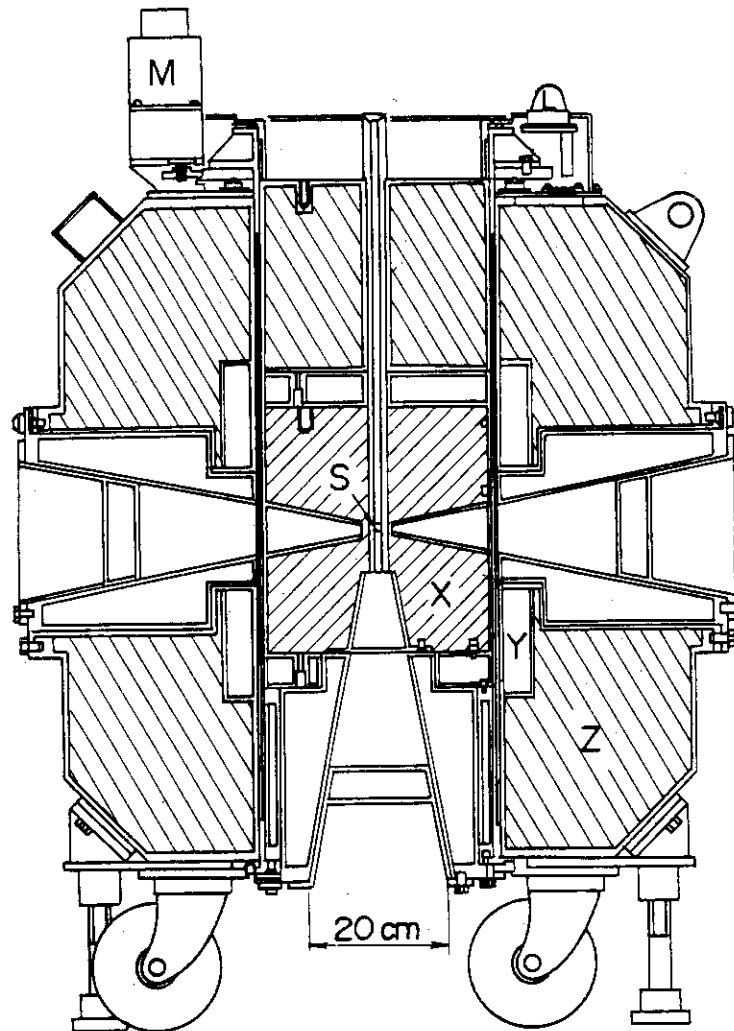


Fig. 2 Thermal neutron radiography equipment capable of using 1 mg ^{252}Cf .⁸⁾

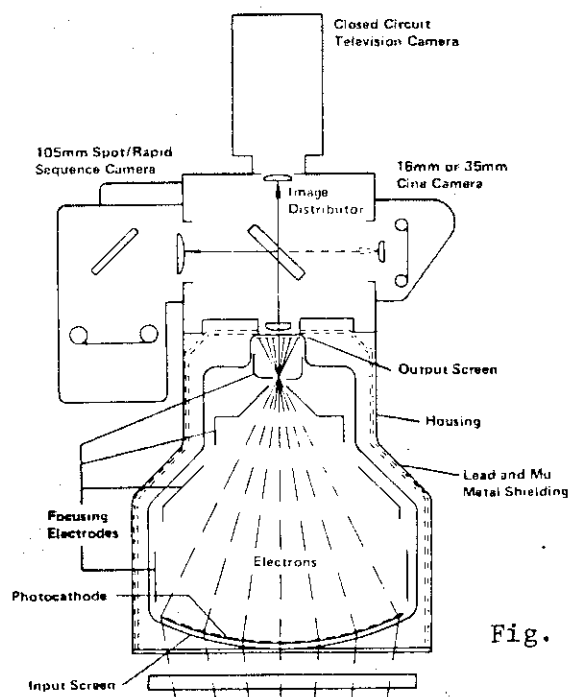


Fig. 3 Neutron image intensifier tube.¹³⁾

SUBTHERMAL or THERMAL NEUTRONS

む す び

JRR-3 は国産の研究用原子炉第1号として建設され、昭和37年9月初臨界後、幾多の使命を果たし、今ここに、その役割を終え、大きく成長して新しく生れ変わるに際して、新生 JRR-3 改造炉の概要とその利用分野を展望することは、研究炉を開発する者及び利用する者にとって誠に意義あるものである。

本報告書の作成によって、研究炉を使用した多くの研究及び研究炉の利用の動向が明らかとなり、あらためて改造炉への期待の大きいことが確認される。

第1は照射実験であり、炉心内で中性子照射し、新しい原子炉用の材料及び核融合施設の材料の研究開発である。これには、照射挙動解明のために、正確な照射条件と長時間照射の確保が重要である。また、長時間照射の途中における照射リグの健全性の確認、試料のスエリング特性の測定など従来できなかったものが、改造炉の水平実試孔(7R)に設ける中性子ラジオグラフィで可能となる。これは、照射実験の質的向上に寄与するものと期待されている。さらに、中性子照射効果と腐食やクリープ、疲労などの経年的損傷との複合効果の評価が可能な照射場での実験など高度な照射技術が今後の研究に重要であることが指摘されている。このような照射実験に欠かすことのできないホットラボの整備及びホットラボ技術の開発も重要であることが認識させられる。

第2は、工業、農業、医療の分野などで利用が広がっている RI の生産及びその安定供給である。このためには、安定した高稼働率運転と、運転中での試料の挿入、取出しが必要であり、試料取扱装置としては水力ラビットなどが有効である。

第3は、極微量物質の分析に利用される放射化分析の領域である。短寿命放射化分析装置の照射位置は重水反射体内で Cd 比約 200 と大きく高精度の分析が期待できる。

第4は、半導体の製造のためのシリコンドーピングである。このための均一照射装置は、良好な半導体素材の生産用に不可欠のものである。

第5は、中性子ビーム実験である。中性子散乱実験は、これまで固体物理の分野での研究が主体であったが、今後は生物、化学(含高分子化学)から実用材料の分野まで広がってきている。最近では、新素材、例えば水素吸蔵材、形状記憶合金、アモルファス(非晶質)金属、ファイン・セラミックスなどの開発にも寄与している。原研で初めて設置する冷中性子源装置による冷中性子ビームは、材料の照射損傷の研究での有力な武器であり、また、分子生物学の分野での生体高分子の構造と運動機能との関係解明に威力を発揮するものと期待される。

第6は、中性子ラジオグラフィ、中性子カメラによる結晶構造等のミクロの写真から大きな構造物の写真及びエンジンオイルの潤滑挙動を動的に観察できる中性子テレビの設置が予定されている。

中性子散乱実験から中性子ラジオグラフィを含む中性子ビーム実験の装置は、炉室及び実験利用棟に合計 25 台の設置が可能であり、第3章に記載したように設置する装置が既に具体化して

いるなどは、この分野が改造炉に寄せる期待の大きさを示すものである。

以上のように、今や、基礎研究から応用研究に至るまで、その存在が必須のものになっている研究炉を開発、整備することは、研究炉管理部にとって重大な責務であると考ええる。将来、この研究の芽が育ち、実を結ぶとともに、各分野での研究開発の要請に対応できるよう改造炉を整備して行き、研究炉の開発とその利用による研究面からの要請とが互に競合し合って、一層より良い研究炉が完成することを目指して行きたい。

研究炉管理部次長 二村嘉明

謝 辞

原研 JRR-3 改造は、関係者の御協力により本格的な工事が開始され、また、中性子照射施設及び中性子ビーム実験施設の実施設設計の段階に至っております。

このような時期に「JRR-3 改造炉とその利用の将来展望」に御執筆いただいた多くの方々の御協力に感謝いたします。特に、燃料材料の照射研究について近藤達男燃料工学部次長、中性子ビーム実験関係について飯泉仁物理部次長及び東大物性研の伊藤雄而助教授にテーマ選定などをお願いし、編集できたことを感謝いたします。

「JRR-3 改造炉とその利用の将来展望」

正 誤 表

頁	行	誤	正
ii	下から 6 行	Neutr <u>n</u>	Neutron
5	下から 12 行	水平	水
6	上から 9 行	UAl _x -Al	UAl _x -Al
7	下から 8 行	詰替セルが	詰替セルを
29	下から 10 行	(一行全部削除)	
34	Fig. 3 説明	facit <u>i</u> ty	facility
42	上から 3 行	進めていく上では	進めていく上で
56	Fig. 8 説明	Young 'S	Young's
61	Fig. 3 説明	<u>s</u> himizu	Shimizu
71	下から 17 行	(n, <u>P</u>)	(n, p)
73	下から 19 行	pieci	piece
81	Fig. 2 説明	agter	after
92	Fig. 9 説明	inter <u>a</u> ction	interaction
111	Fig. 4 説明	anddevelop <u>m</u> ent	and development
112	上から 9 行	in site	in situ
167	下から 4 行	専 <u>事</u> 床面	専有床面
171	上から 17 行	水素緩衝タンク コンデンサー	水素緩衝タンク, コンデンサー
177	Fig. 1 説明	diag <u>a</u> um	diagram
186	上から 3 行	第 1 図	Fig. 1
194	上から 3 行	FO urcircle	FOur circle
209	Fig. 1 説明	sensitive	sensitive detector
218	下から 7 行	TOF に用	TOF 用
222	上から 2 行	原研研究炉部管理 <u>部</u>	原研研究炉管理部
253	上から 10 行	LLL	ILL
261	Fig. 2 説明	DO	D ₂ O
266	上から 11 行	M <u>o</u> O ₃	MoO ₃
268	下から 5 行	CoC <u>l</u> ₂	CoCl ₃
269	Table 1 説明	Inter colant	Intercalant
271	上から 16 行	Thor <u>u</u> ton	Thornton
274	下から 3 行	その威力を発揮している。 (Fig. 3)	その威力を発揮している (Fig. 3)。
291	上から 17 行	Yamaba	Yamada
293	Table 2 の中で	$S(x) = \frac{1}{1+x^2}^2$	$S(x) = \frac{1}{(1+x^2)^2}$
298	上から 12 行	パラメー <u>ヨ</u>	パラメーター
326	上から 16, 17 行	<u>m</u> _i	<u>n</u> _i
"	上から 18 行	<u>m</u>	<u>n</u>
355	上から 9 行	荷電共 <u>軛</u> 変換	荷電共軛変換