

# 核破砕パルス中性子源による 科学の展開へのKENSの役割

KEK 川合 將義

*masayoshi.kawai@kek.jp*

物質科学研究における中性子の意義

KENSの歴史的意義

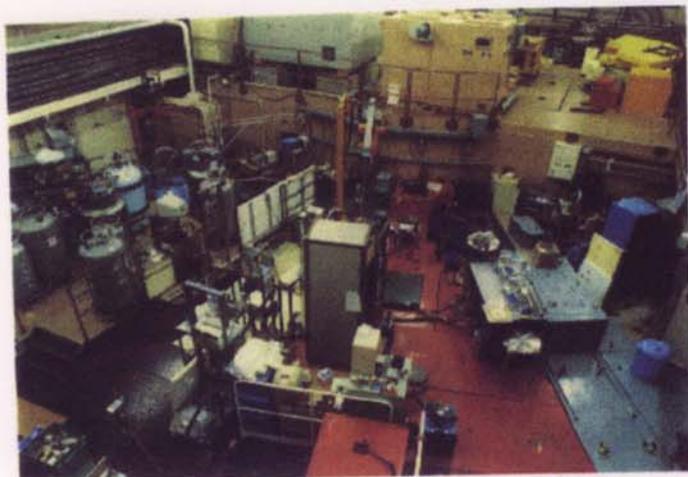
世界初の中性子散乱実験用の核破砕中性子源

パルス中性子を生かした分光器開発と科学の展開

KENSの主要な成果

最近の動きへの対応

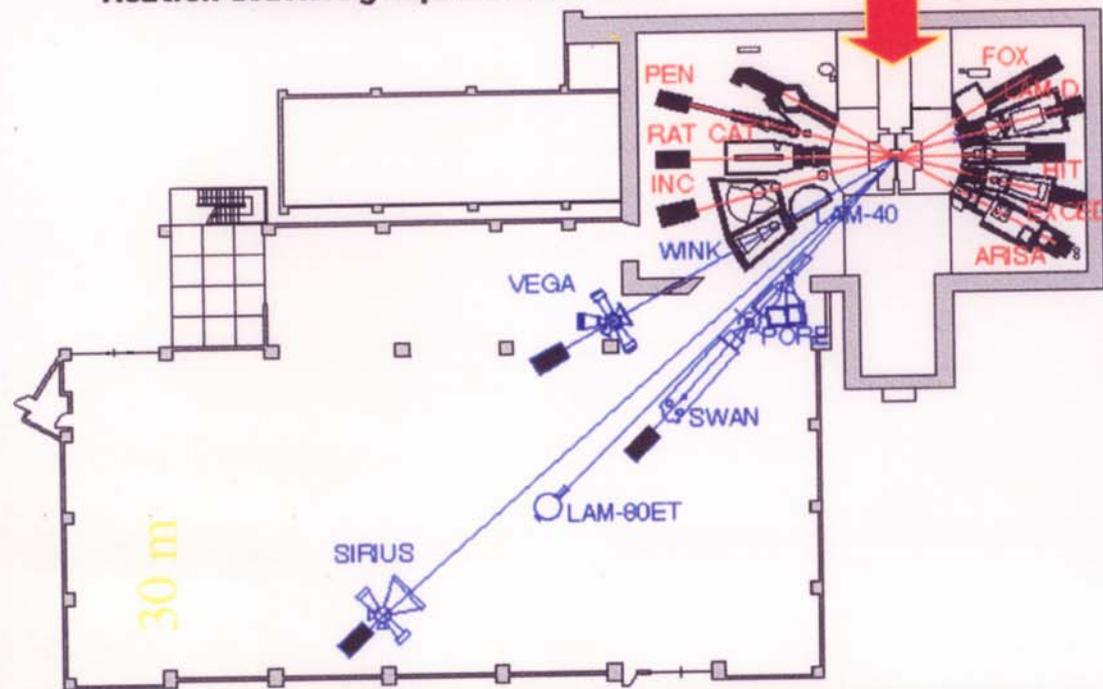
# Neutron Science Facility, KEK (KENS)



Neutron Scattering Experimental Hall B

- ARISA** Advanced Reflectometer for Interface and Surface Analysis
- EXCED** EXtreme Condition Epithermal neutron Diffractometer
- HIT** Liquid and Amorphous Diffractometer
- LAM-D** Molecular Spectrometer
- FOX** Single Crystal Diffractometer
- PEN** Polarized Epithermal Neutron Spectrometer
- CAT** Sub-eV Spectrometer
- RAT** eV Spectrometer
- INC** Chopper Spectrometer
- LAM-40** Quasi-elastic Spectrometer
- WINK** Small and Medium-Angle Scattering Instrument
- VEGA** Versatile Neutron Diffractometer
- SIRIUS** High Resolution Powder Diffractometer
- LAM-80ET** High Resolution Quasi-elastic Spectrometer
- PORE** POLarized neutron REFlectometer
- SWAN** Small and Wide-Angle Scattering Instrument

500MeV, 6  $\mu$ A, 20 Hz, Proton beam



Cold Neutron Experimental Hall

40 m



# 中性子科学研究施設

(合計46人)

- ◆ 常勤スタッフ (16人)
    - ◆ 教授 (4)、助教授 (2)、助手 (4)、技官 (6)
  - ◆ 非常勤スタッフ (8人)
    - ◆ 客員教官 (2)、研究支援員 (2)、COE研究員 (4)
  - ◆ その他 (16人)
    - ◆ 学振特別研究員 (3)、総研大学生 (4)、外国人研究員 (1)
    - ◆ 協力研究員 (8)
  - ◆ 業務委託 (6人)
- 
- ◆ 加速陽子トランスポート／中性子源維持／中性子施設維持／  
KENS中性子分光器維持／KENS共同利用実験／日英を含む国際協  
力／中性子科学研究／統合計画における設計・開発研究

## 世界の主なパルス中性子源

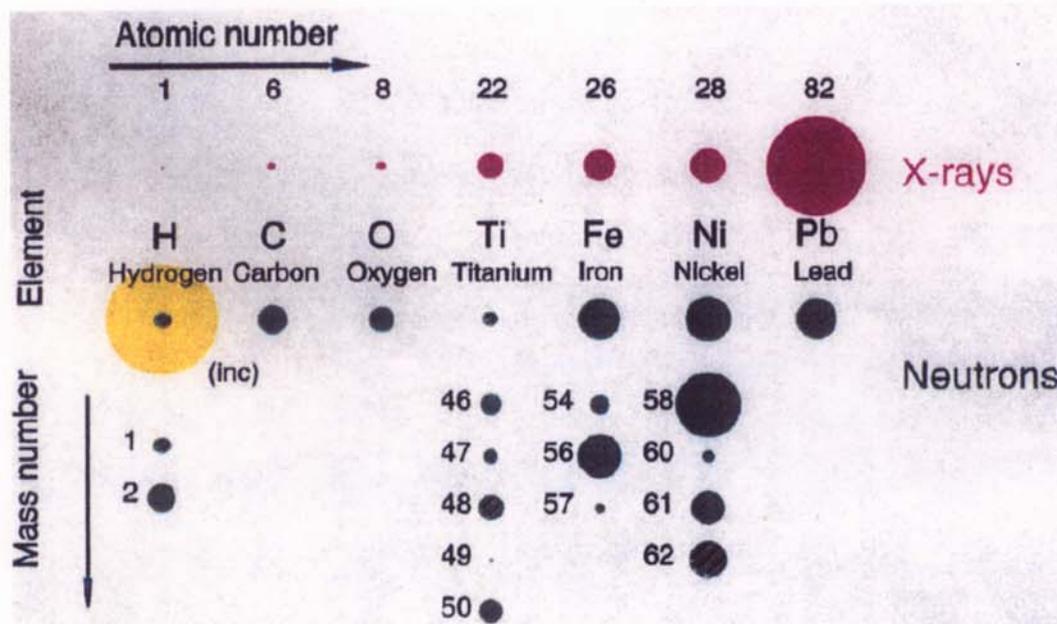
- ◆ 1980年 KENS (日本 高エネ機構) 0.003MW
- ◆ 1981年 IPNS (米国アルゴンヌ研究所) 0.006MW
- ◆ 1985年 ISIS (英国ラザフォード研究所) 0.160 MW
- ◆ 1986年 LANSCE (米国ロスアラモス研究所) 0.080MW
- ◆ 2006年 SNS計画 (米国) 1MW
- ◆ 2006年 統合計画 (日本、 KEK and JAERI) 1MW
- ◆ ? ESS計画 (欧州) 数MW



# 中性子の特徴

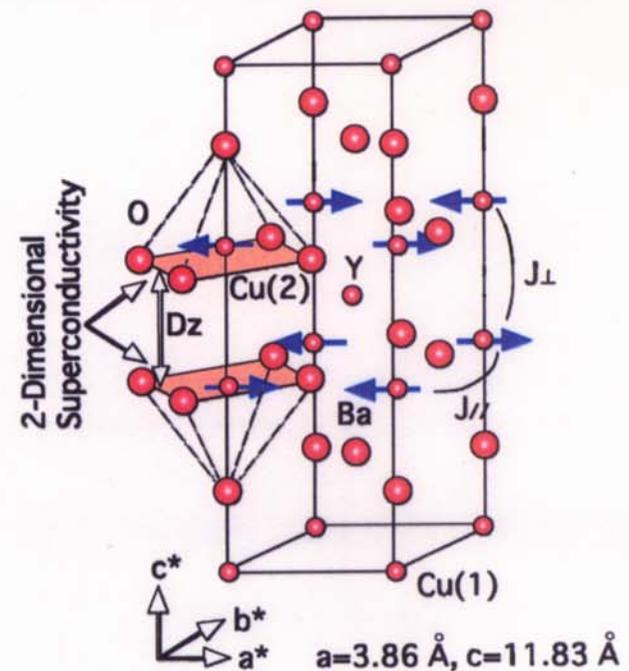
- ・ 中性子は電荷がなく原子核により散乱される

中性子は原子番号の小さい原子核に散乱されやすい。(X線は電子で散乱され、原子番号の大きい原子に散乱されやすい)



- ・ 中性子はミクロな磁石  
磁気散乱 → 磁気構造

Superconductivity in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$



# 物質科学研究における中性子の意義

ドブロイ波長

25.3 meVで1.8Å

冷中性子 数10<sup>10</sup>

電氣的に中性

磁気スピン1/2

質量：水素とほぼ同じ

散乱強度：軽元素でも大  
同位体での差

金属の結晶格子程度

高分子、タンパク質のサイズ程度  
(1 meV ~ 10 eVを利用)

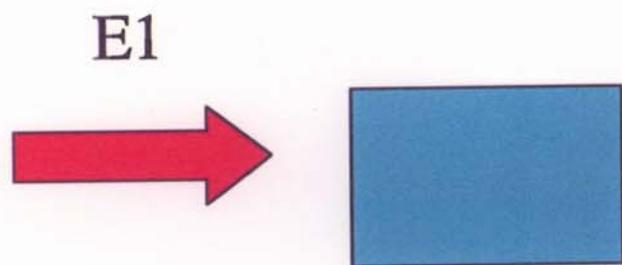
深い透過

**磁性研究**

物質の分子振動や運動を感じる  
**(ダイナミクス研究)**

**ソフトマテリアル、生命科学研究**  
コントラスト法測定

# 中性子の弾性散乱



$\lambda_1$

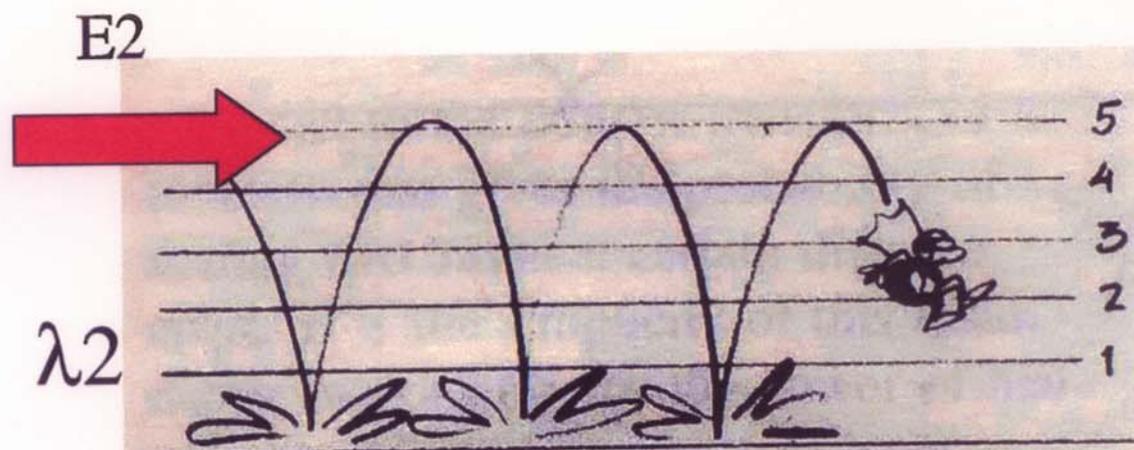
$$E_1 = E_2$$

$$\lambda_1 = \lambda_2$$

ブラッグ散乱



構造研究  
(骨格)



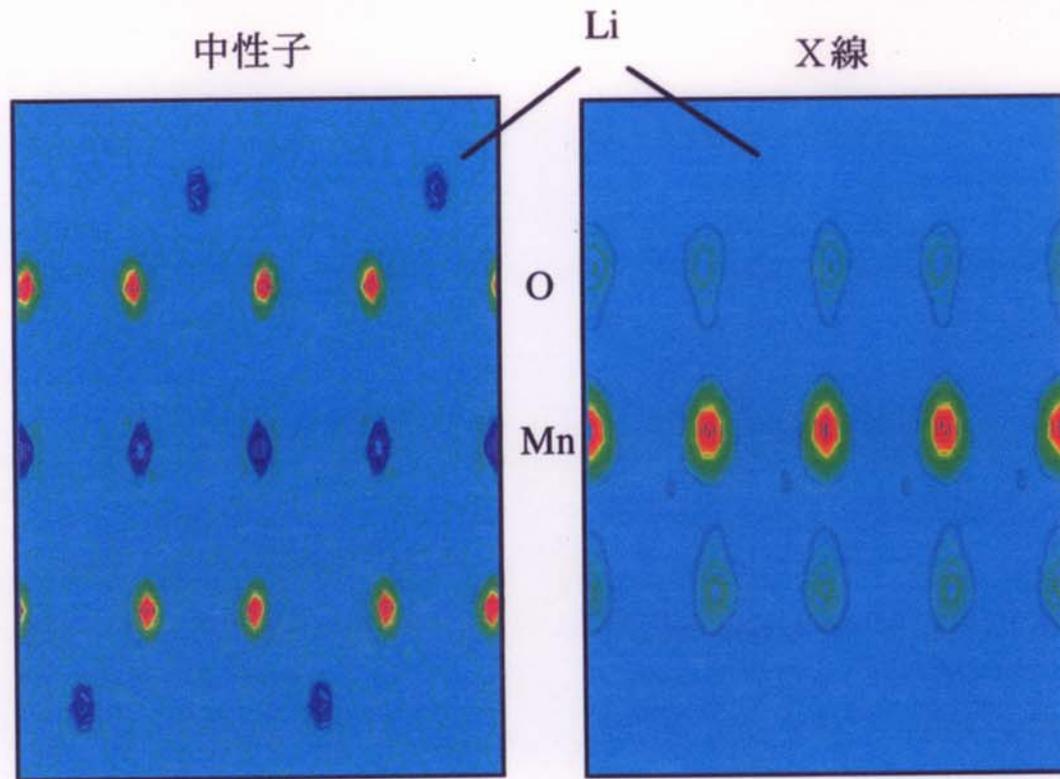
**BOING! BOING! BOING!**

**elastic scattering**

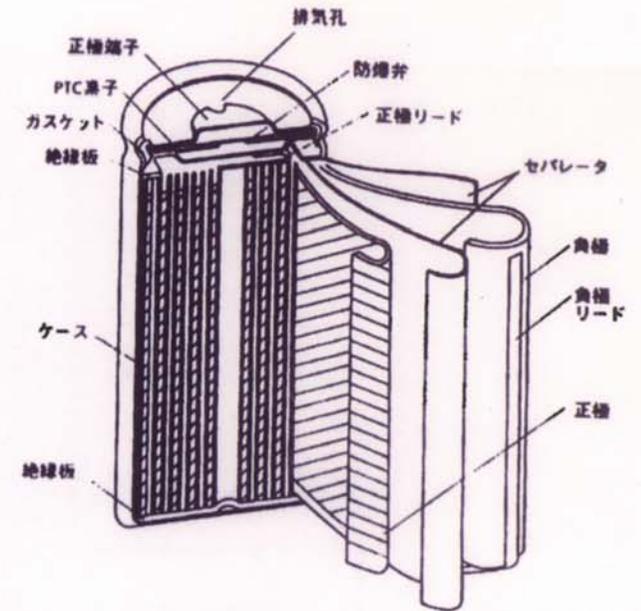
Scattering with no change in the energy of the incident neutron; or, in terms of the wave vector of the neutron, scattering in which the direction of the vector changes but not its magnitude.

# ○ 電池材料

リチウムイオン電池・燃料電池は携帯機器の急速な普及を影でささえると同時に、家庭用・自動車用大型電源としても急速な発展が期待されている。中性子はX線と比較し水素，リチウム，酸素など軽元素を高精度でとらえることができるために多くの研究が行われてきた。

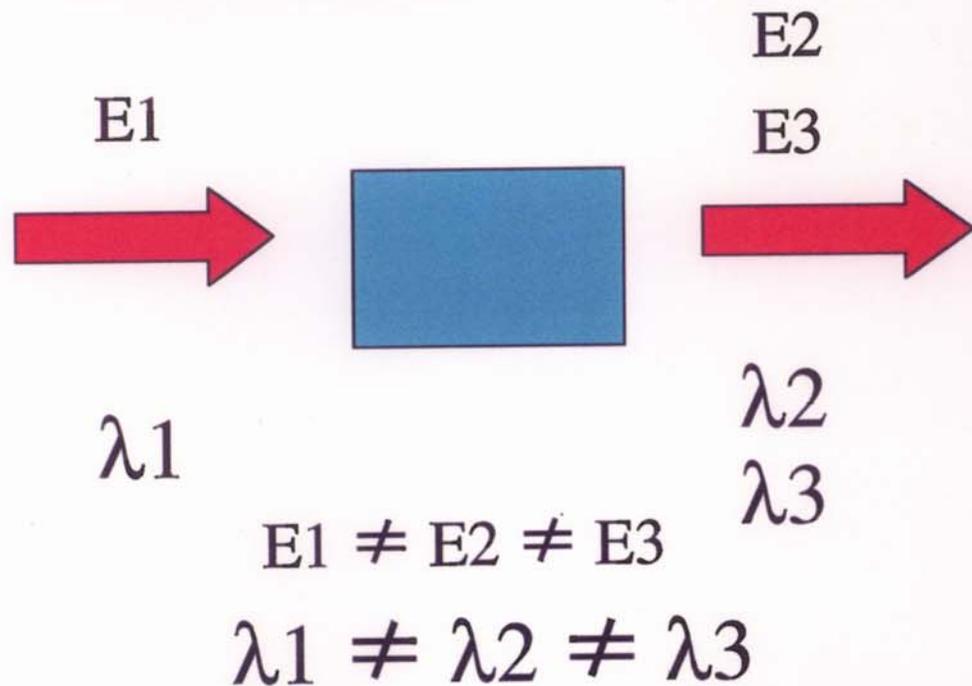


正極材料のフーリエマップ

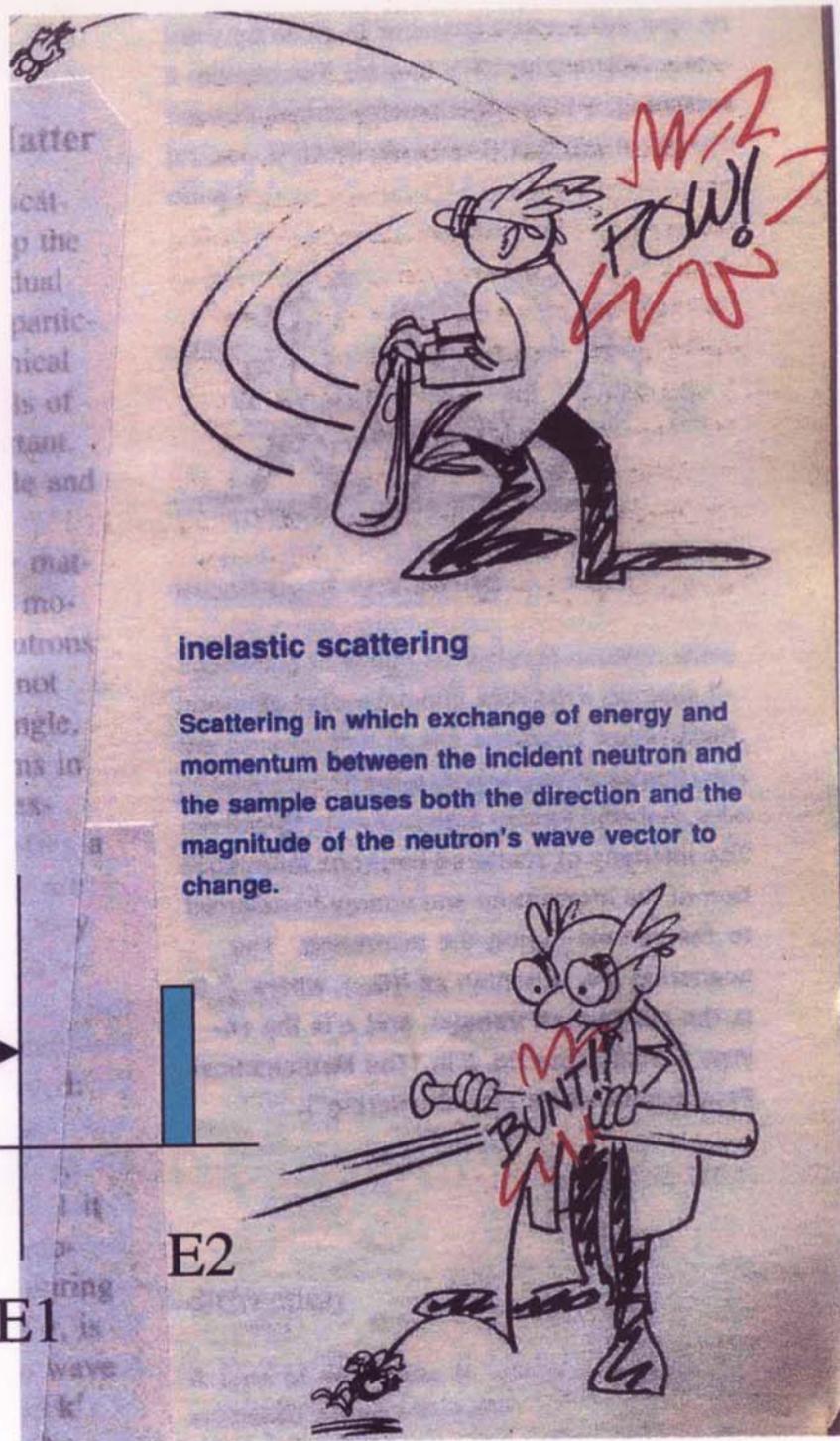
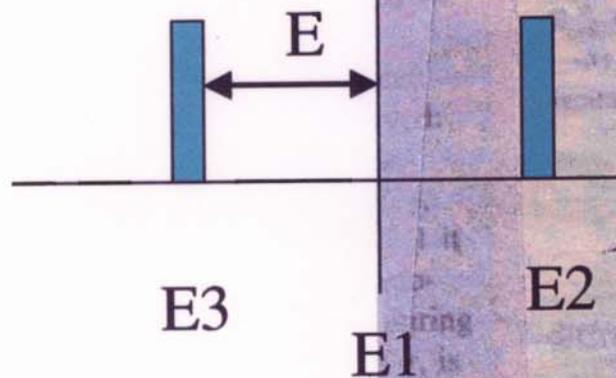


携帯用リチウムイオン電池の構造

# 中性子の非弾性散乱



ダイナミックス研究  
(能力)



## 飛行時間法 (Time-of-flight 法)

中性子が一定の距離を飛行する時間を計測し、中性子速度を割り出し、中性子エネルギーや波長を決める方法。パルス中性子源で極めて有効。

### **time of flight**

**The time it takes a neutron to travel from a pulsed source to a detector, which is thus a measure of the neutron's velocity and kinetic energy.**



## 主な中性子発生エネルギー

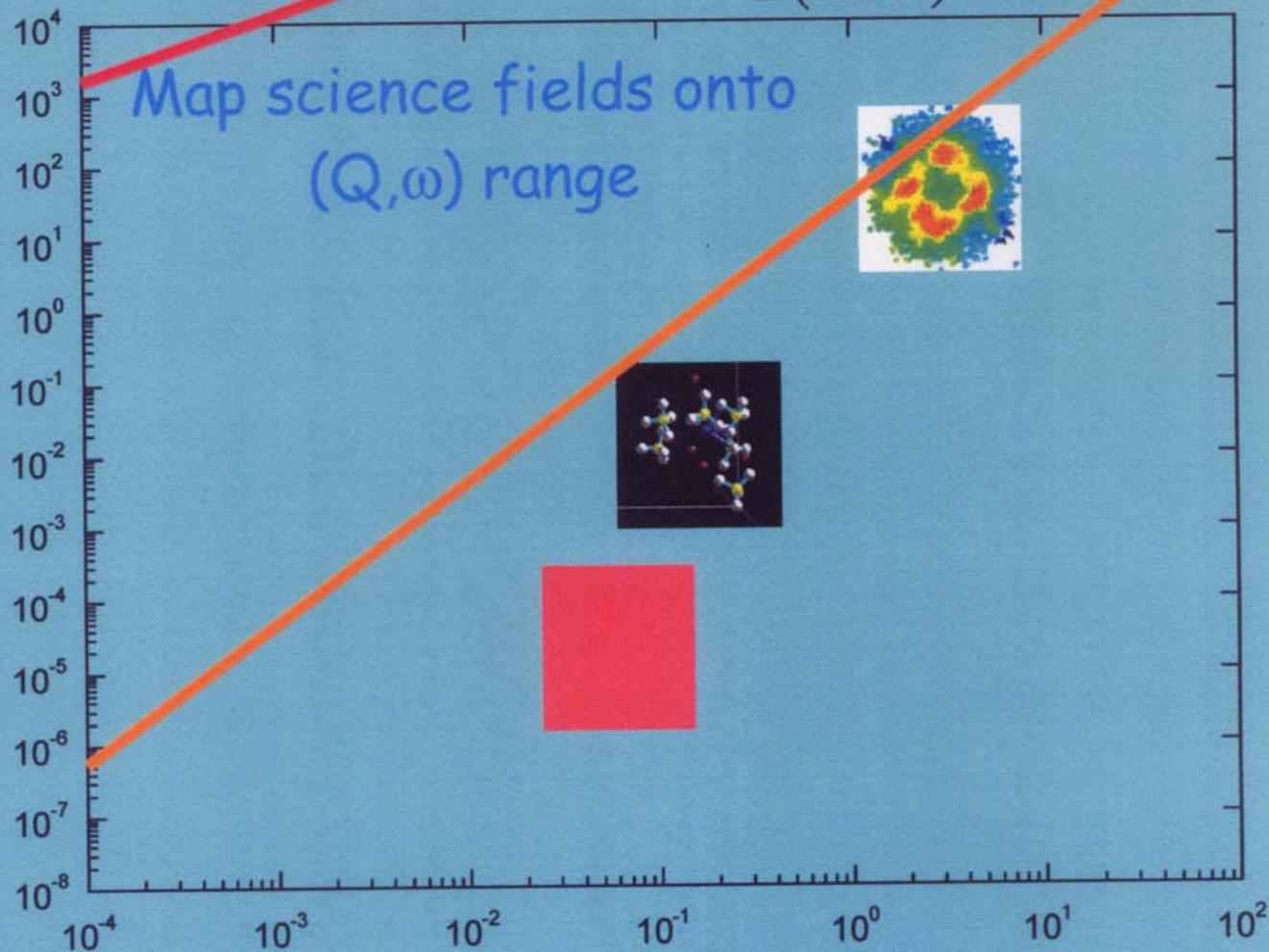
中性子発生方法	装置	プロセス当たりの中性子生成率	エネルギー吸収量 (MeV/n)	1MW当たり 中性子発生量
(d, t) 反応	DT固体ターゲット源	$4 \times 10^{-5}$ n/d	10000	$6.3 \times 10^{14}$
重陽子ストリッピング 反応	重陽子加速器 (35MeV, 液体Liターゲット)	$2.5 \times 10^3$ n/d	10000	$6.3 \times 10^{14}$
光核反応	電子加速器 (100MeV)	$5 \times 10^{-2}$ n/e	2000	$3.1 \times 10^{15}$
核分裂反応	原子炉	1n/fission	180	$3.5 \times 10^{16}$
核破砕反応	陽子加速器 (800MeV)	30n/proton	55	$1.1 \times 10^{17}$
慣性核融合反応	ペレットフュージョン 核融合炉	1n/fusion	3	$2.1 \times 10^{18}$

$$E(\text{meV}) = 12400000 / \lambda$$

$$E(\text{meV}) = 81.8 / \lambda^2$$

$(Q, \omega)$   
range

$E / \text{meV}$



$Q / \text{\AA}^{-1}$

# KENSの歴史的意義 (KENSにおけるR&D)

**中性子源** : KENS (500MeV, 50 ns 陽子, 3 kW) 1980年

固体メタンによる冷中性子源

JHF用の中性子源集合体 ==> JSNS

Ta被覆Wターゲットブロック実用化

**検出器等** : 位置敏感型中性子検出器(PSD)

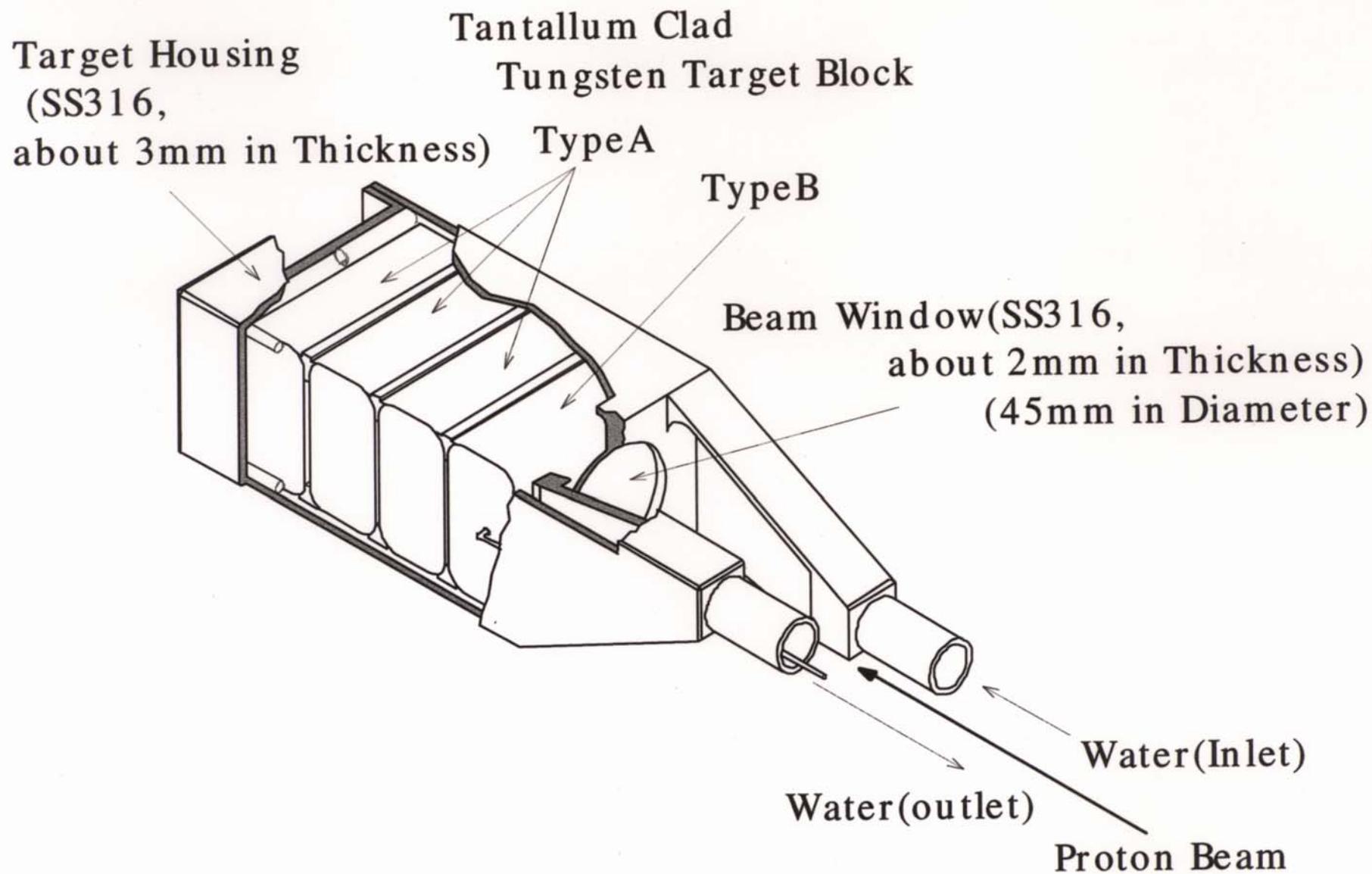
偏極中性子生成技術 :

偏極陽子フィルター、He3フィルター

大強度パルス電磁石 20T ==>磁性研究

超冷中性子技術

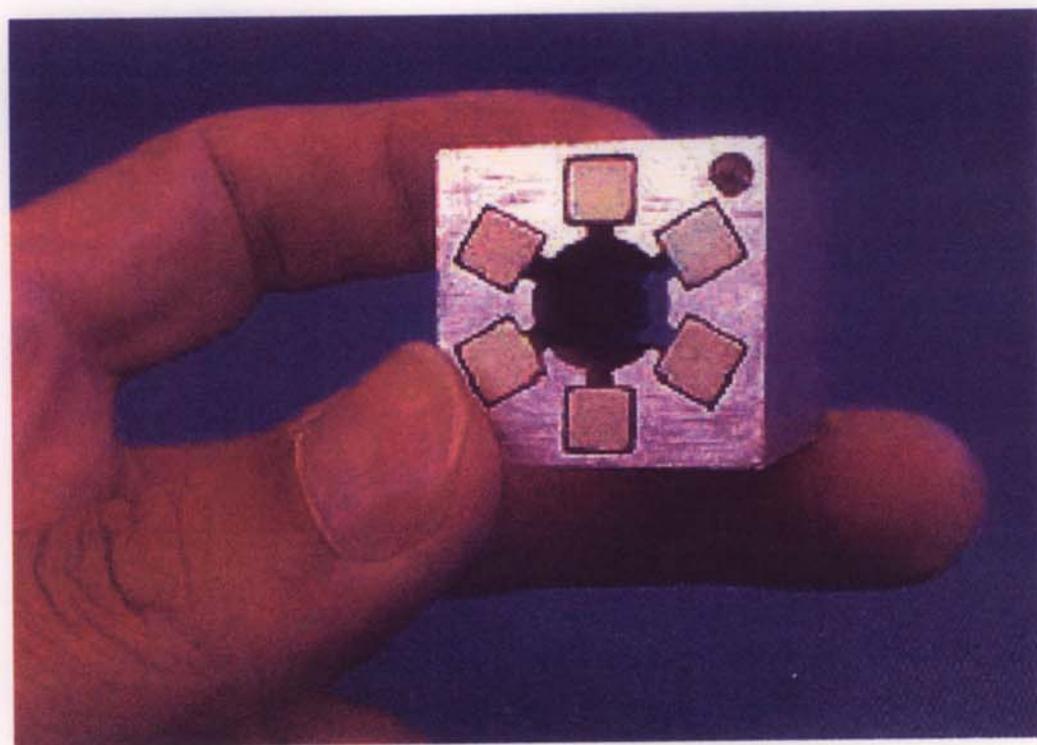
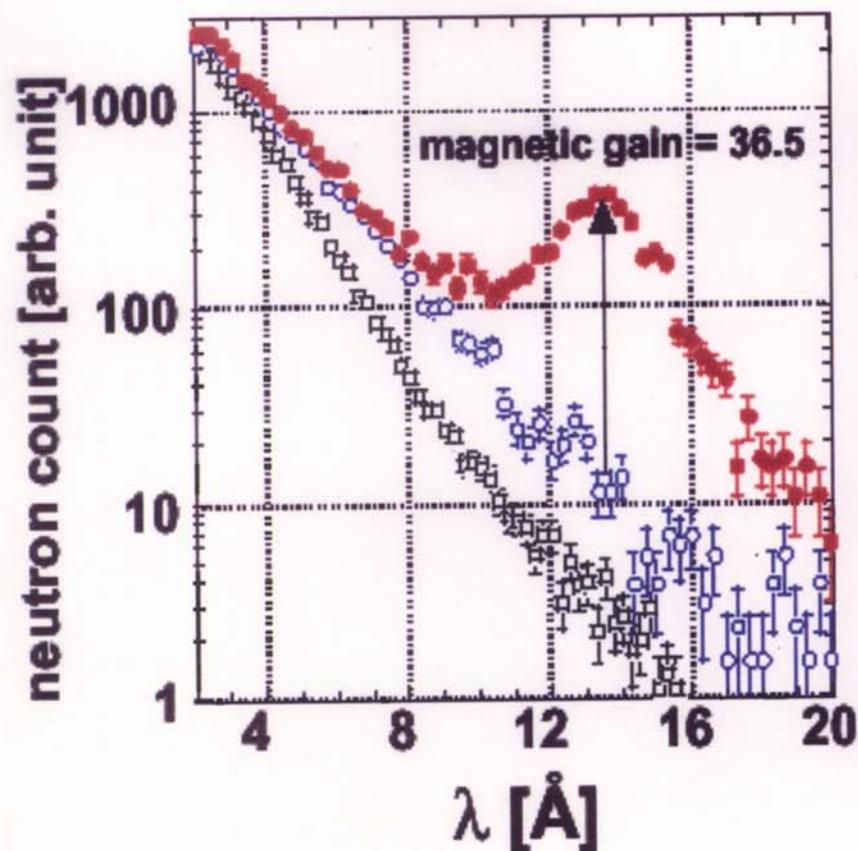




**Fig. 3 Bird's Eye View of Target Blocks and Their Housing**

# ○ 中性子磁気レンズ

強力な永久磁石を使うことにより、虫眼鏡のように中性子を収束することが出来るようになった。これにより40倍近い中性子強度を稼ぐことが出来た。



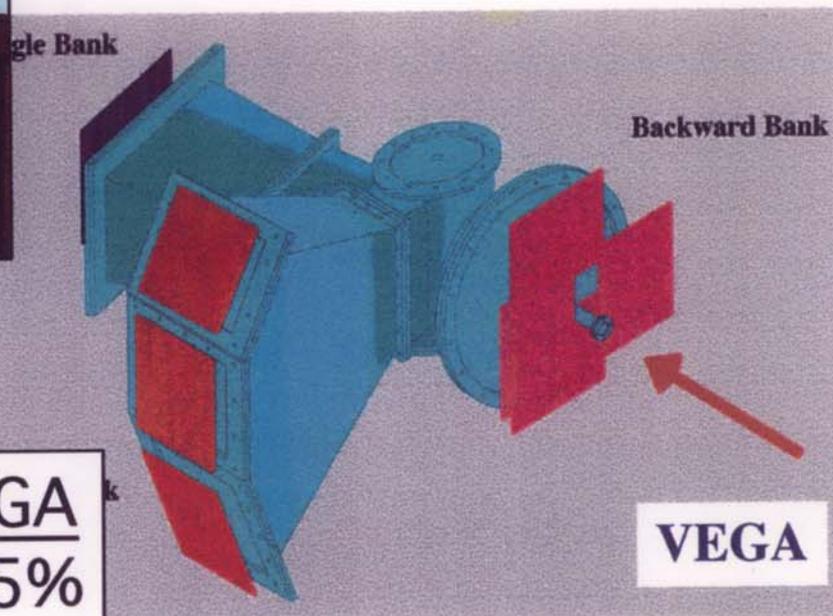
中性子磁気レンズの実験結果。磁石が無いときに比べ、磁石を入れることで中性子強度を大きく稼げることが分かった

6極の強力な永久磁石を組み合わせた中性子磁気レンズのユニット。実際には2mの長さを持つ。

# 高エネルギー加速器研究機構の中性子回折装置



超高分解能中性子回折装置 *Sirius*  
装置の分解能  $\Delta d/d \approx 0.1\%$



汎用粉末中性子回折装置 VEGA  
装置の分解能  $\Delta d/d \approx 0.25\%$

**分光器開発**：小角散乱装置(SAN)\*---> WINK---> SWAN

偏極冷中性子分光器 (TOP)\*

干渉性散乱分光器(MAX)\*

準弾性散乱中性子分光器(LAM)\*

偏極熱外中性子分光器 (PEN)

eV及びsub-eV中性子分光器(RAC)

共鳴ドップラー効果での物性研究

粉末中性子反射率計 (VEGA) PSD

高温超伝導材の機能解明

\*印：1980年KENS発足時に開発

# 中性子施設のおゆみ

1980

1985

1990

1995

2000

・1980年 18 国ピープル(TO-TOP)

・1980 ICANS - IV 国際会議

・1980  
LAM-40  
HIT  
TOP  
MAX  
SAN

・1982 KENS-II 計画

・1983  
GEMINI

・1983  
FOX  
PEN

・1983  
LAM-D MRP  
MRP

・1984  
CAT  
RAT  
LAM-80C

・1985 KENS-I

高化ウラン、H-入射

・1986 日英協力

・1988 水モデレータ  
・1988 大型ハドロン計画

・1990 ICANS - VI 国際会議

・1987  
WIT

・1989  
INC

・1991  
WINK

・1992  
HIT - I

・1993  
VEGA  
LAM-80ET



・1996 新冷中性子実験棟  
・1996 タンタルターゲット

・1997 日英協力 (第2期)

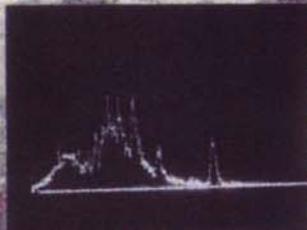
・1997年 高エネルギー加速器研究機構(KEK) 中性子科学研究所(INS) 設立

・1998 日英協力

・2000 TNRA 更新

・2000 ICANS - XV 国際会議

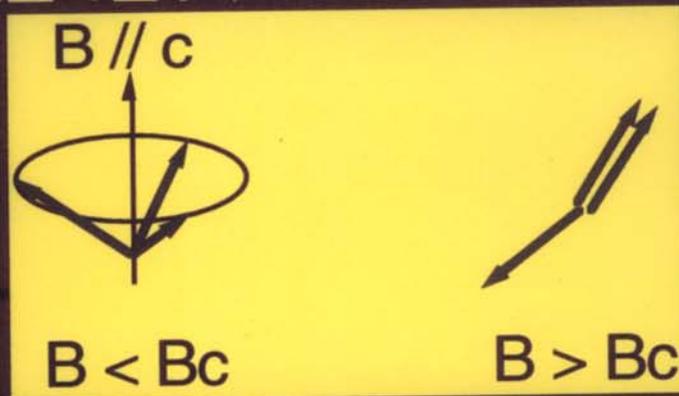
・1997  
Sirius  
SWAN  
CORE



# CsCuCl<sub>3</sub>における量子相転移の発見

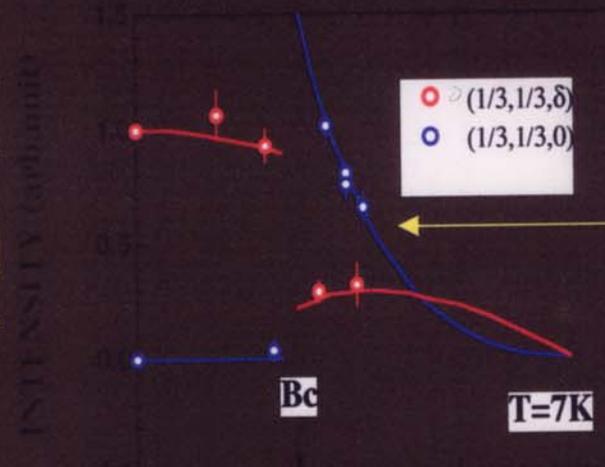
by M. Motokawa

- 世界最強のパルス磁場中性子実験装置 (MRP) を完成
- 臨界磁場 $B_c$ 以上で量子ゆらぎに起因する磁気構造を発見



磁気反射:  $(1/3, 1/3, \delta)$        $(1/3, 1/3, \delta)$   
 $(1/3, 1/3, 0)$

中性子強度



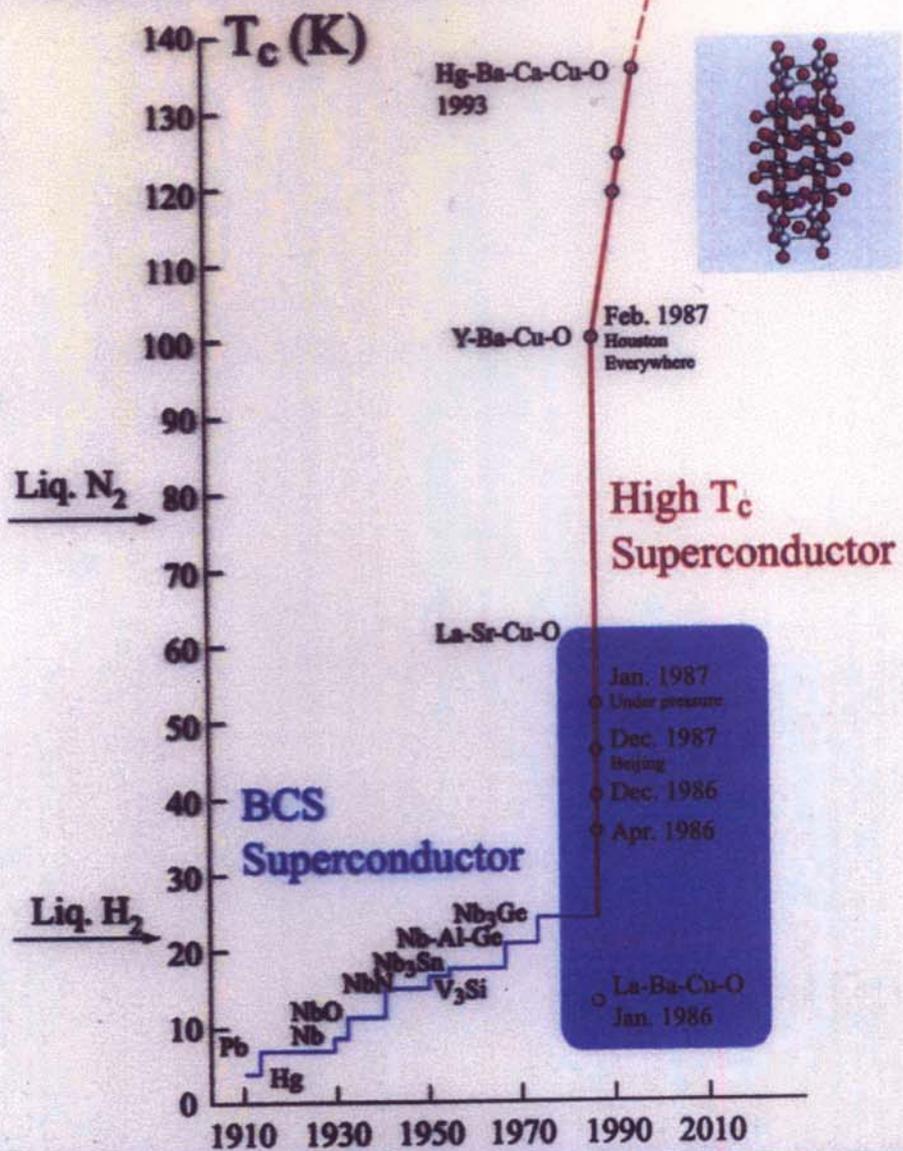
パルス磁場

新しい量子相転移の出現を示している

● Superconductor  $T_c$  Room Temperature ?

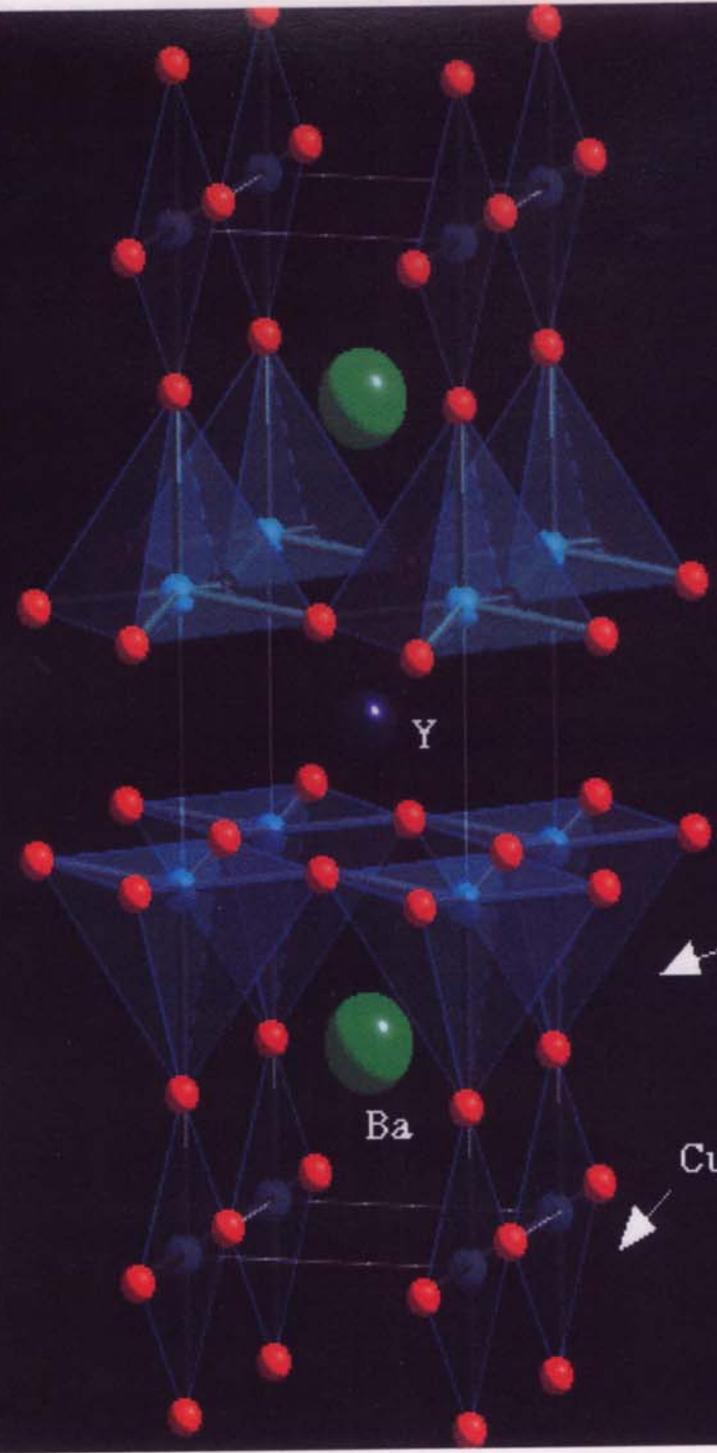
20世紀末の大発見

高温超伝導体



# YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>

西川所長（当時）が臨時  
加速器を動かす決断



CuO5

CuO4

Y

Ba

昭和62年（1987年）4月10日（金曜日）第2165号 (4)

**新しい超電導物質**  
**結晶構造決める**  
高工研の中性子散乱施設で

Ba<sub>2</sub>YCu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>

晶格定数  
a = 3.822 Å  
b = 3.823 Å  
c = 11.688 Å

● バリウム (Ba)  
● イットリウム (Y)  
● 銅 (Cu)  
○ 酸素 (O)  
◎ 酸素 (O) 空孔

1. 超電導物質の結晶構造は、中性子散乱法によって決定された。この物質は、銅酸化物の一種であり、超電導性を示す。結晶構造は、層状構造を有し、銅原子と酸素原子が配位を形成している。バリウム原子とイットリウム原子もこの層状構造に組み込まれている。この物質の超電導性は、銅原子間の相互作用と酸素原子の存在に強く依存していることが明らかになった。

2. この物質の結晶構造は、銅原子と酸素原子の配位によって決定される。銅原子は、酸素原子と配位を形成し、銅-酸素複合体を形成している。この複合体は、層状構造を形成し、超電導性を示す。バリウム原子とイットリウム原子もこの層状構造に組み込まれている。この物質の超電導性は、銅原子間の相互作用と酸素原子の存在に強く依存していることが明らかになった。

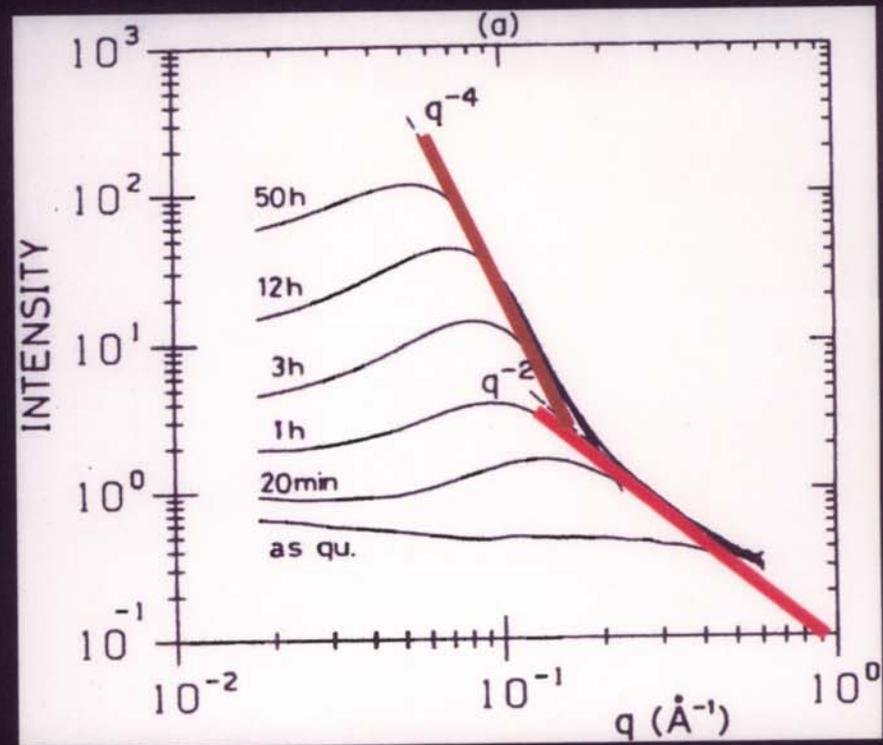
3. この物質の結晶構造は、銅原子と酸素原子の配位によって決定される。銅原子は、酸素原子と配位を形成し、銅-酸素複合体を形成している。この複合体は、層状構造を形成し、超電導性を示す。バリウム原子とイットリウム原子もこの層状構造に組み込まれている。この物質の超電導性は、銅原子間の相互作用と酸素原子の存在に強く依存していることが明らかになった。

4. この物質の結晶構造は、銅原子と酸素原子の配位によって決定される。銅原子は、酸素原子と配位を形成し、銅-酸素複合体を形成している。この複合体は、層状構造を形成し、超電導性を示す。バリウム原子とイットリウム原子もこの層状構造に組み込まれている。この物質の超電導性は、銅原子間の相互作用と酸素原子の存在に強く依存していることが明らかになった。

5. この物質の結晶構造は、銅原子と酸素原子の配位によって決定される。銅原子は、酸素原子と配位を形成し、銅-酸素複合体を形成している。この複合体は、層状構造を形成し、超電導性を示す。バリウム原子とイットリウム原子もこの層状構造に組み込まれている。この物質の超電導性は、銅原子間の相互作用と酸素原子の存在に強く依存していることが明らかになった。

# FeCr合金の相分離機構の 中性子小角散乱による説明

- 合金相分離の初期過程から後期過程への変化をとらえた。
  - 右図の赤い線から青い線に
- 初期過程では組成揺らぎが異常に成長することを示した。
  - 非線形-非平衡の理論で良く記述される。
- 後期過程は相分離した析出物の界面の運動で記述できる。
  - 初期過程との違いを明らかにした。
- Phys. Rev. Lett. **54** (1985) 2611



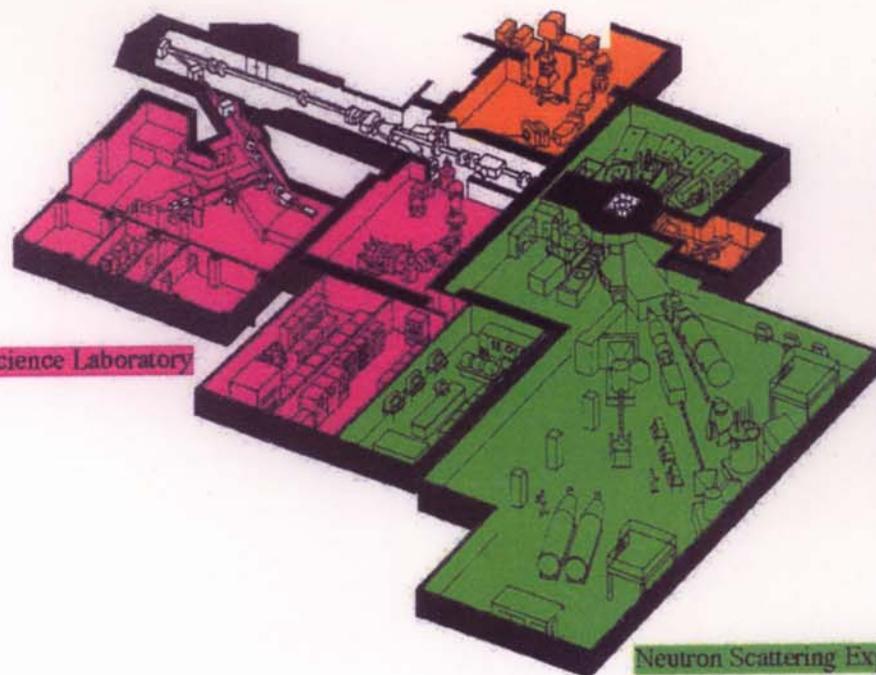
FeCr合金を時効処理した試料からの  
小角散乱の時間変化

# 中性子基礎物理研究

- 偏極中性子による対称性の破れの実験
  - 中性子 p 波共鳴反応における増幅効果
  - パリティ非保存 から 時間反転の破れへ
- 中性子偏極装置の開発
  - 偏極陽子フィルター( $P_n \sim 70\%$ )
  - 偏極 $^3\text{He}$ フィルター( $P_{\text{He}} \sim 40\%$ )

Proton Medical Research Center

Meson Science Laboratory



# 高速中性子の 遮蔽実験

(KEK放射線科学センター  
と共同研究)

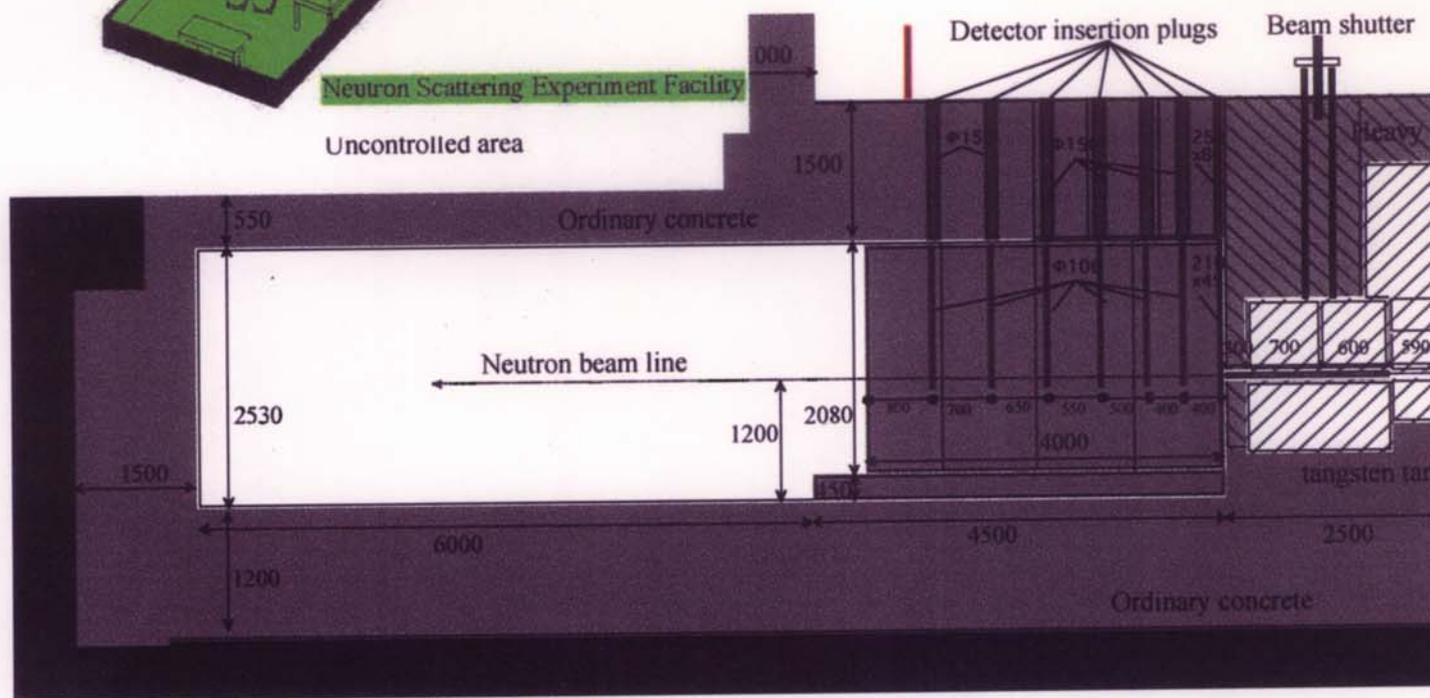
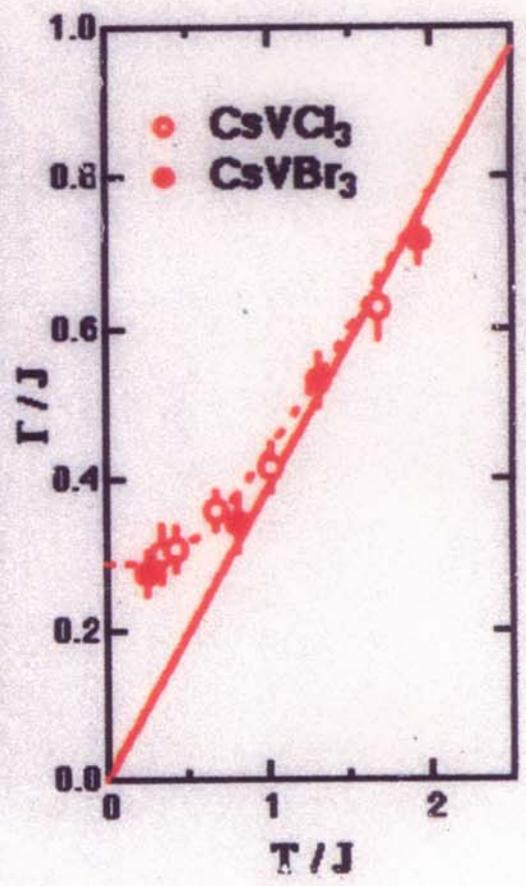
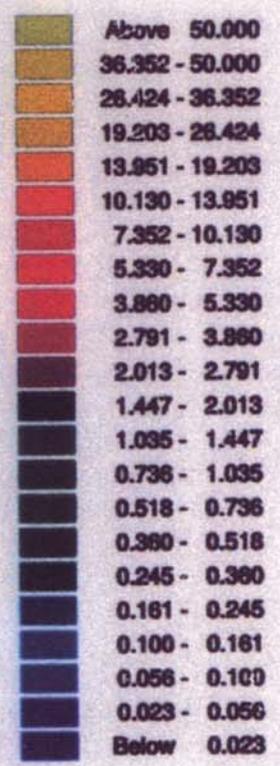
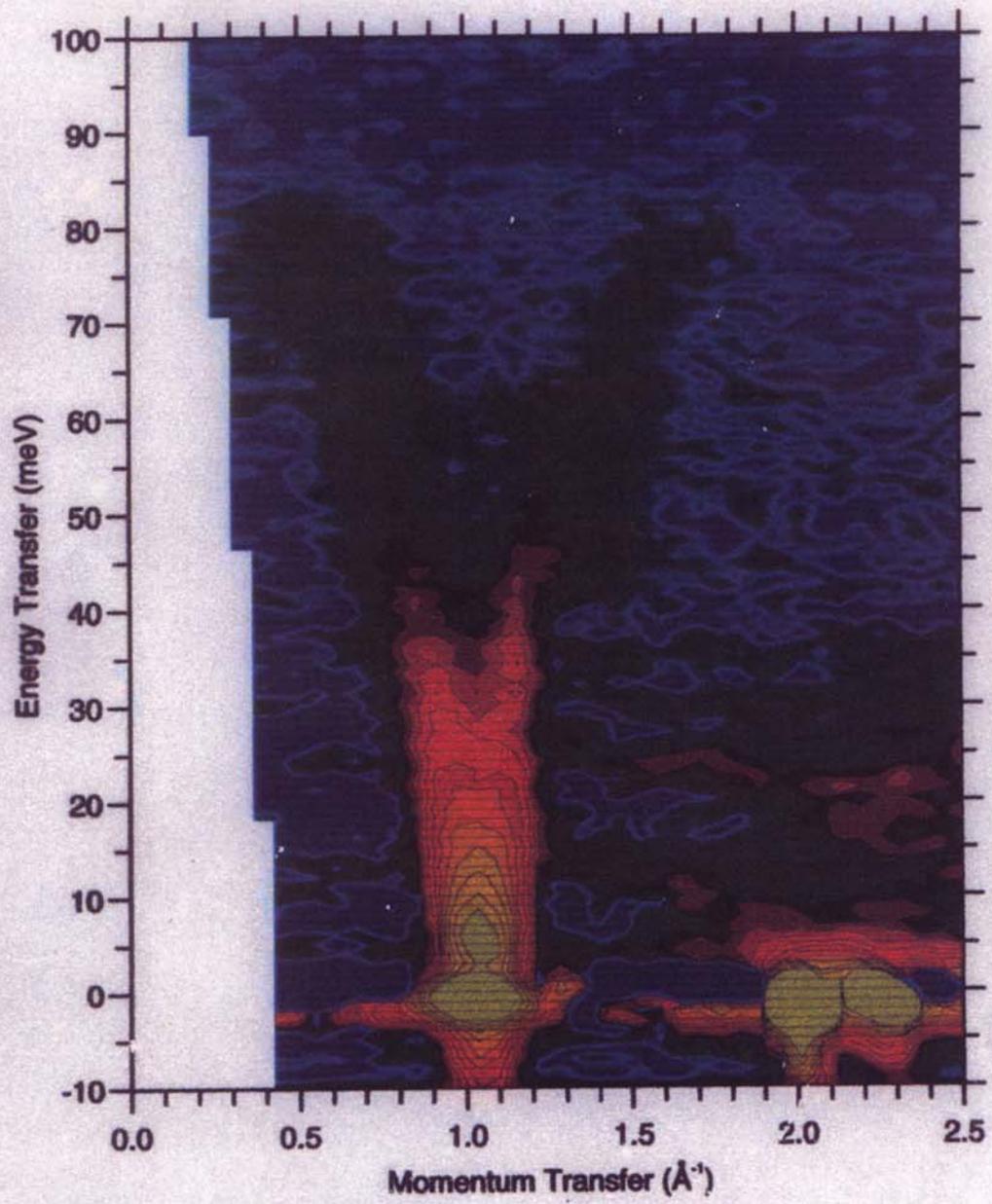


Fig.9 Shielding experiment setup at KENS neutron irradiation experimental room.

# CsVCl<sub>3</sub> 40K



# ○新しい中性子分光法

中性子共鳴吸収分光法(Neutron Resonance Absorption Spectroscopy, N-RAS)は、中性子共鳴吸収即発 $\gamma$ 線分析法と飛行時間法を組み合わせた、KEKの中性子実験グループRACにより提案・開発された全く新しい概念に基づく分光法である。N-RASの特徴の一つは、物質中のある特定同位元素の運動状態の情報のみを

取り出すことができることである。図1にイオン伝導体AgI中のAgとI、それぞれについての測定結果を示す。横軸は試料温度、縦軸は各元素の実効温度で、低温域ではAgとIがほぼ変わらないのに対し、150K~200K近辺からはAgに変化が生じていることがわかる。これは、この温度付近から、伝導イオンであるAg<sup>+</sup>が、I-の骨格構造の中で動き易くなったためと考えられる。

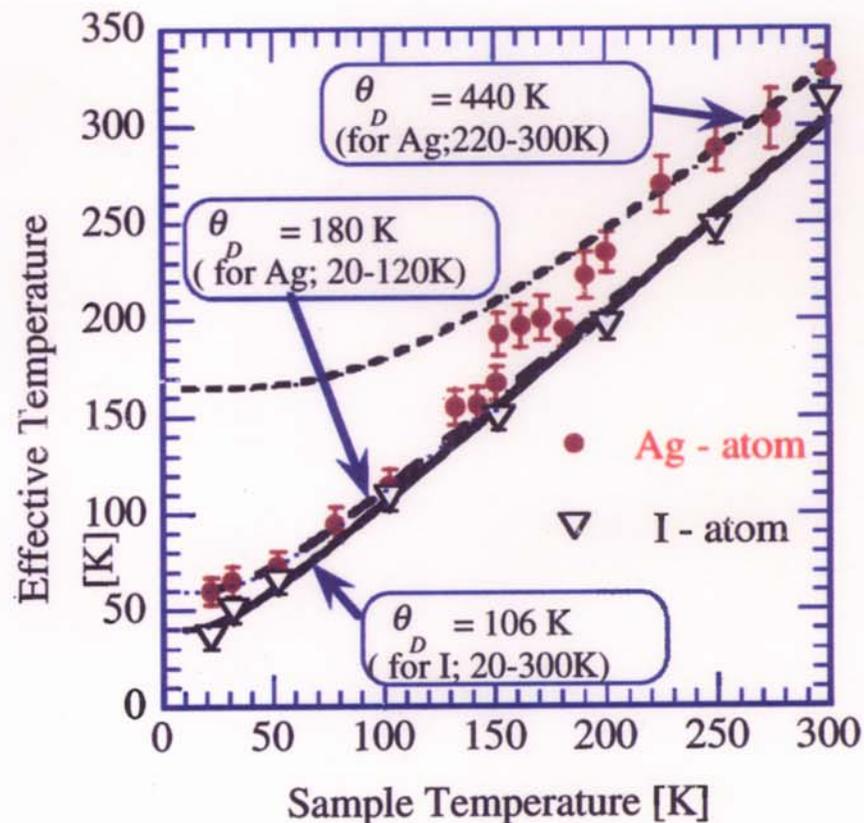


図1. N-RAS による AgI の測定結果

# ○ 南極の氷

氷の分子原子のダイナミクスを解明することが、化学物理や地球環境の研究において重要になっている。プロトンの振動状態の解明を目的として、氷Ih（プロトンが無秩序な通常の氷）、氷XI（プロトンが秩序化した氷）及び極地氷床の深層から掘削された氷の中性子散乱を世界に先駆けて測定した。237 K以下で6000年以上経過した南極の氷は秩序化していることが明らかになりつつある（図3）。この結果から、南極氷床の約30%が秩序氷であり（図4）、木星や土星の衛星に存在する氷も秩序化していることが推定される。

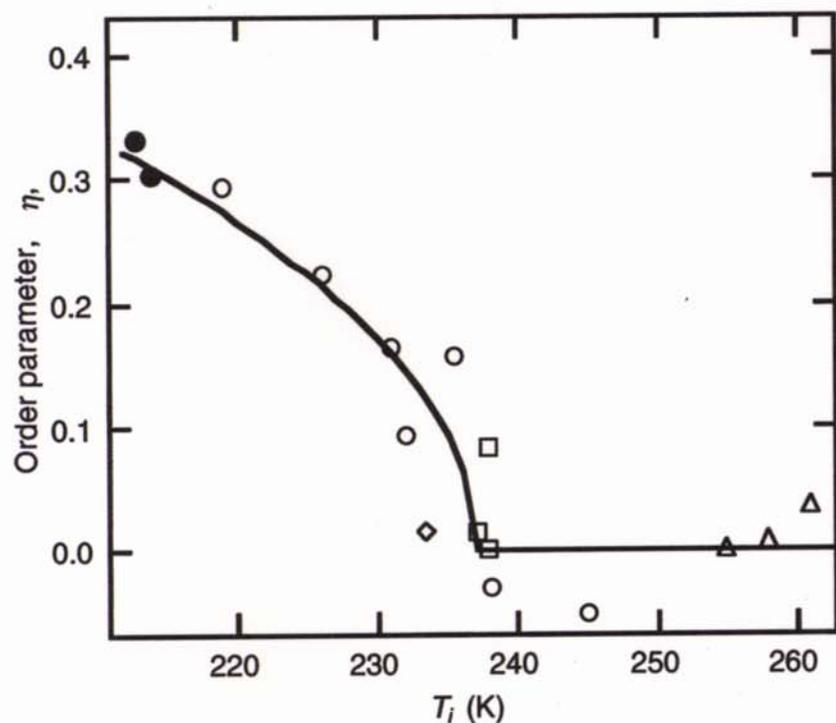


図3. 極地氷床氷における秩序度 ( $\eta$ ) の氷床温度 ( $T_i$ ) 依存性

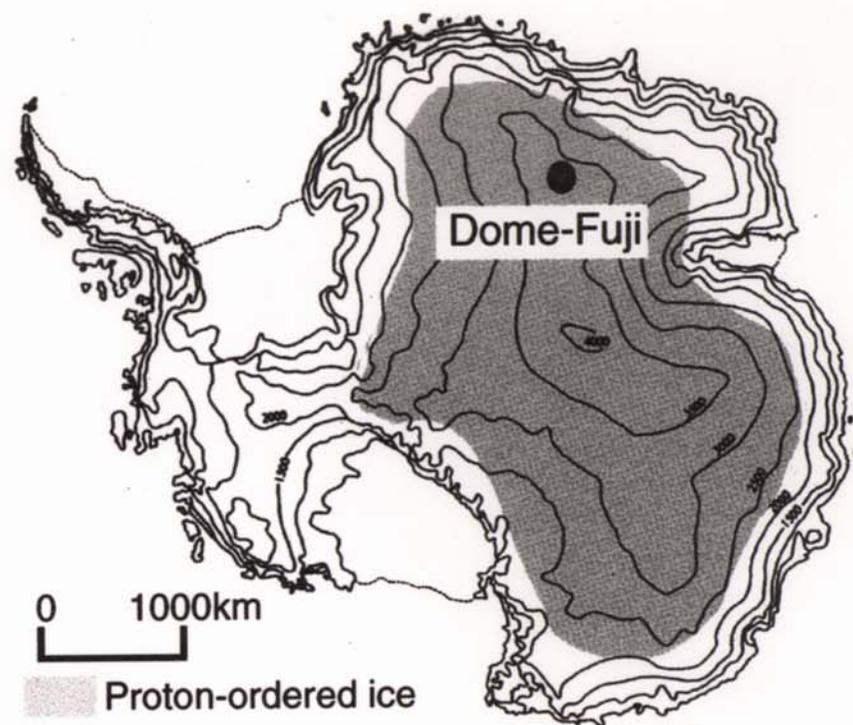
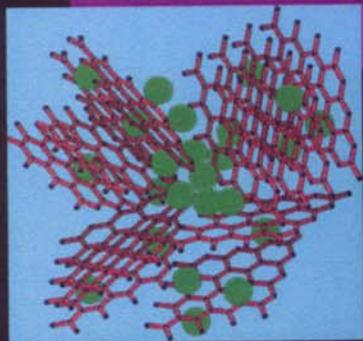
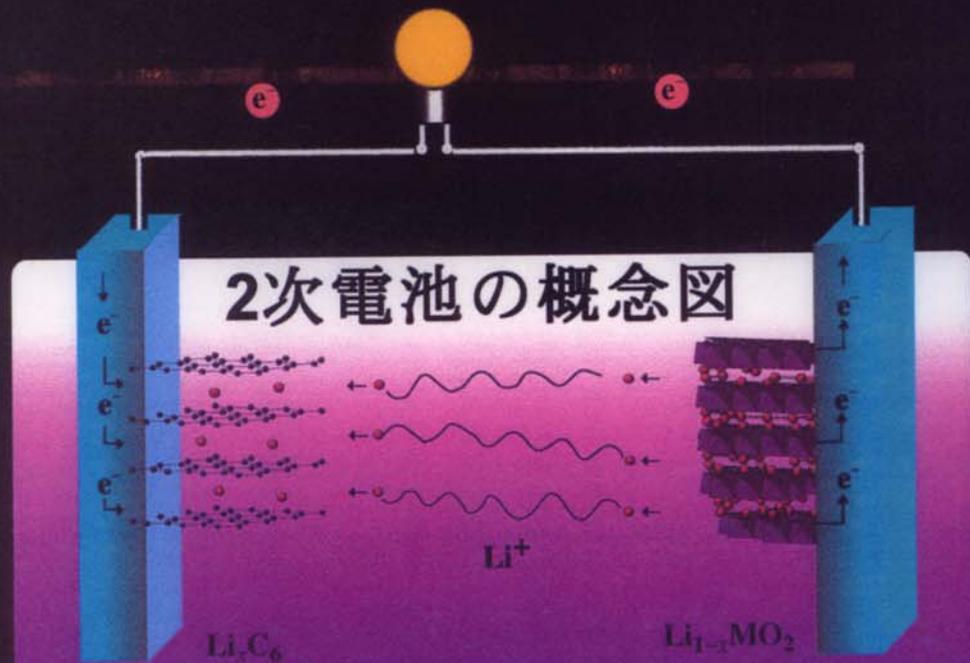


図4. 南極大陸 図中の網掛けの領域では氷のプロトンが秩序化していると推定している

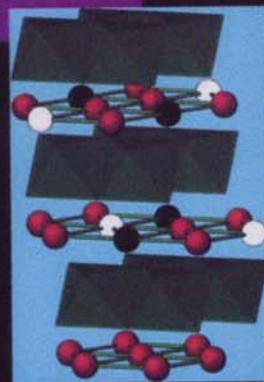
# リチウムイオン電池

性能向上のための研究

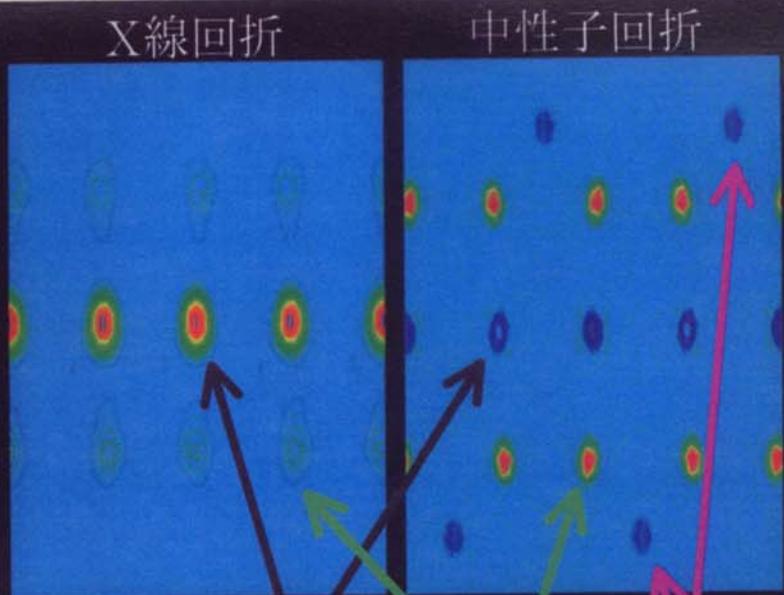
(松下, 日立, etc...)



負極のカーボンの層間だけではなく細孔にもリチウムが存在することを初めて直接示した



正極のマンガン酸リチウムの層間にリチウムが拡散。ここにマンガンなどが存在すると特性が悪くなることを確認



マンガン 酸素 リチウム

同じ試料を測定しても、X線回折ではリチウムや酸素原子がほとんど見えない

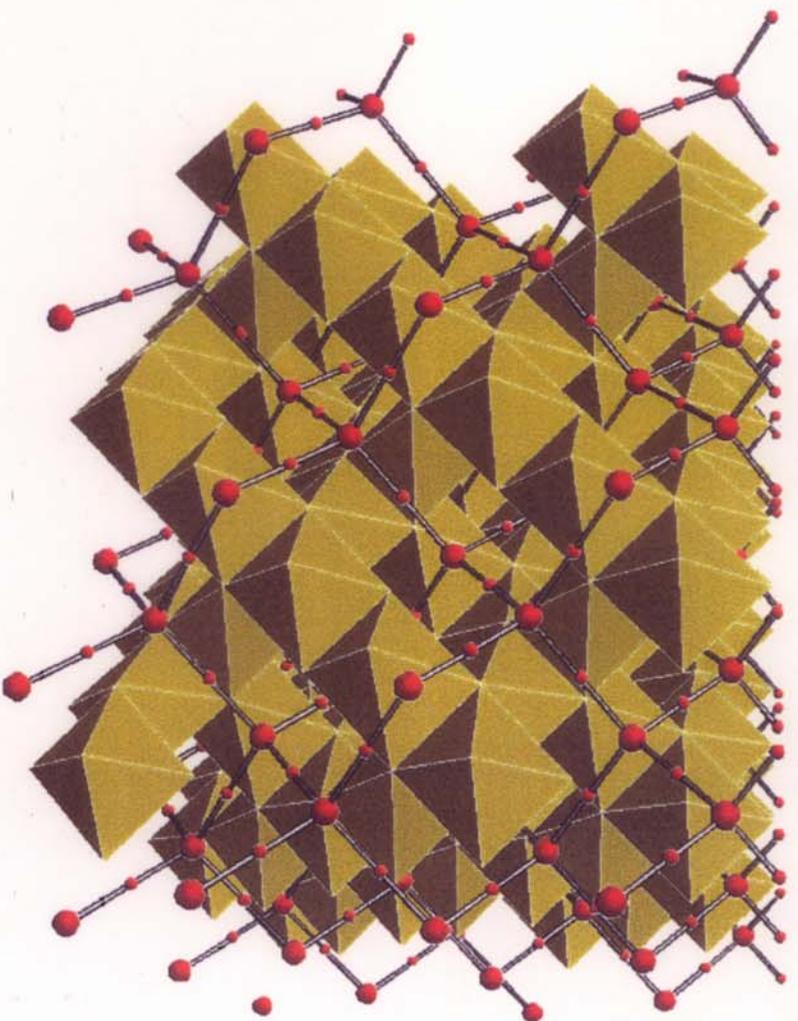


図1 八面体はマンガンと酸素からなる [MnO6], 大きな赤丸はリチウムを表し、リチウムをつなぐ線は、リチウムの拡散経路, 小さな赤丸はリチウムの準安定的な位置を示す

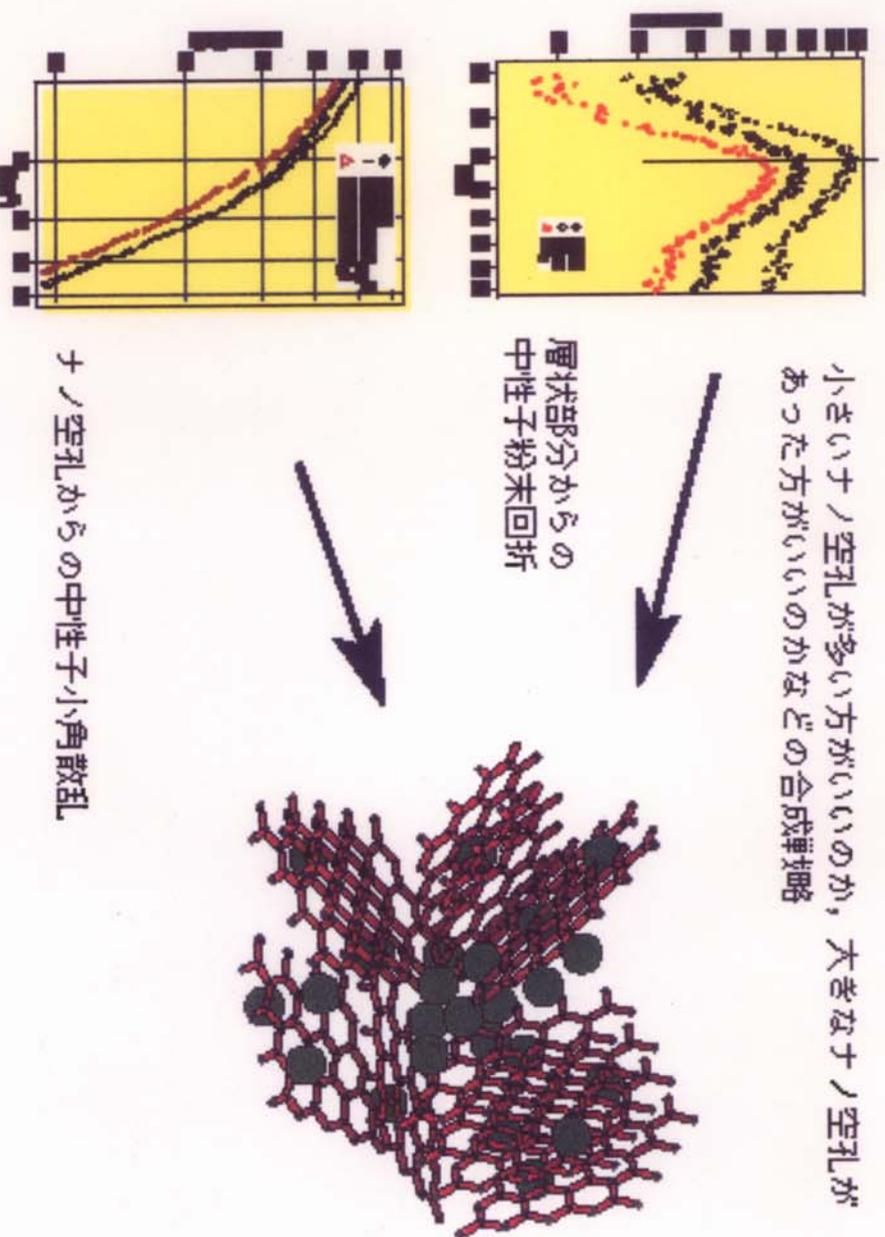


図2 ハードカーボンの中性子回折パターン(左)と、それ結果得られた概念図(右)．右図の緑の丸はリチウム原子をあらわし、六角格子状の板はグラファイト層を表す．原子レベルの構造(左上図に対応)からナノサイズの構造(左下図に対応)までSWAN, Vegaで直接調べた．

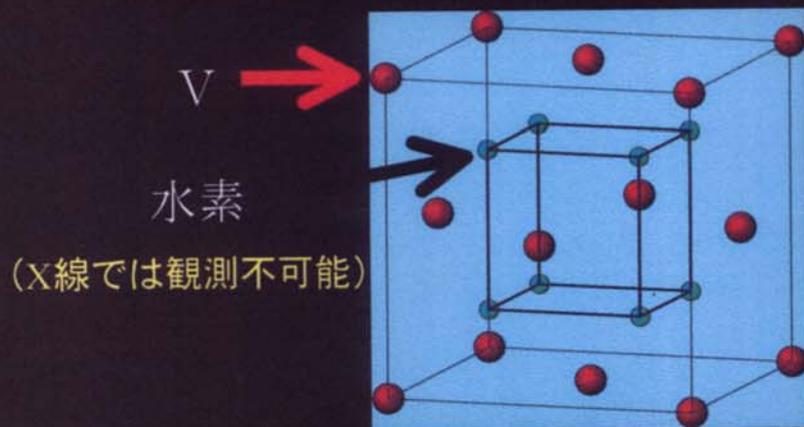
# 民間企業との共同研究

燃料電池自動車の水素貯蔵源  
としての 水素吸蔵合金 の研究

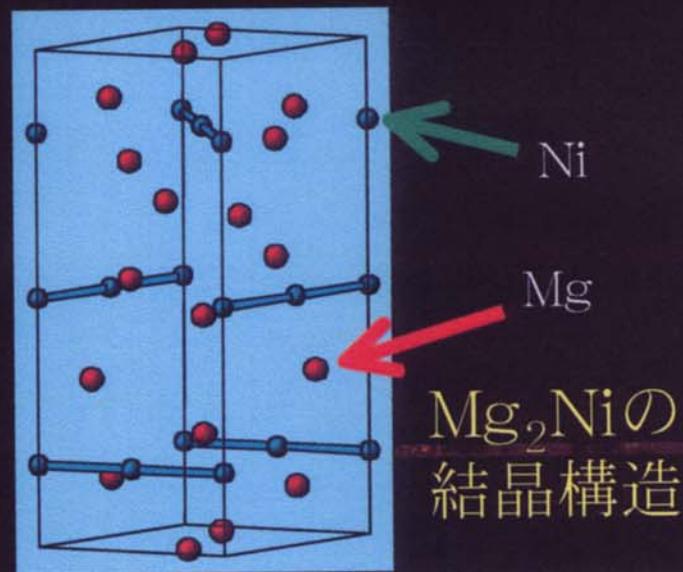


燃料電池自動車  
(1996 TOYOTA)

現在のバナジウム系合金の  
特性改善への指針 2001年度前期に終了



2001年度より開始  
より軽い  
マグネシウム系合金の研究

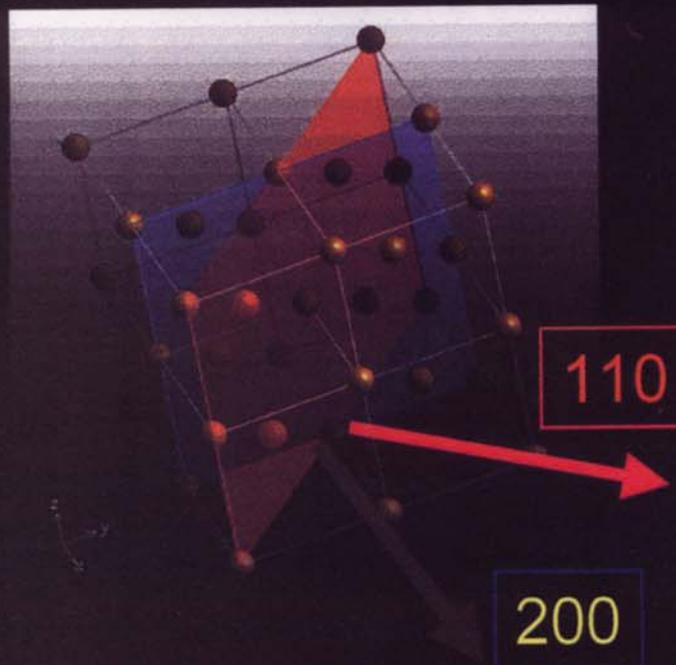


水素吸蔵初期および特性劣化後  
の合金を中性子で測定し、  
不活性水素原子の環境構造を  
決定

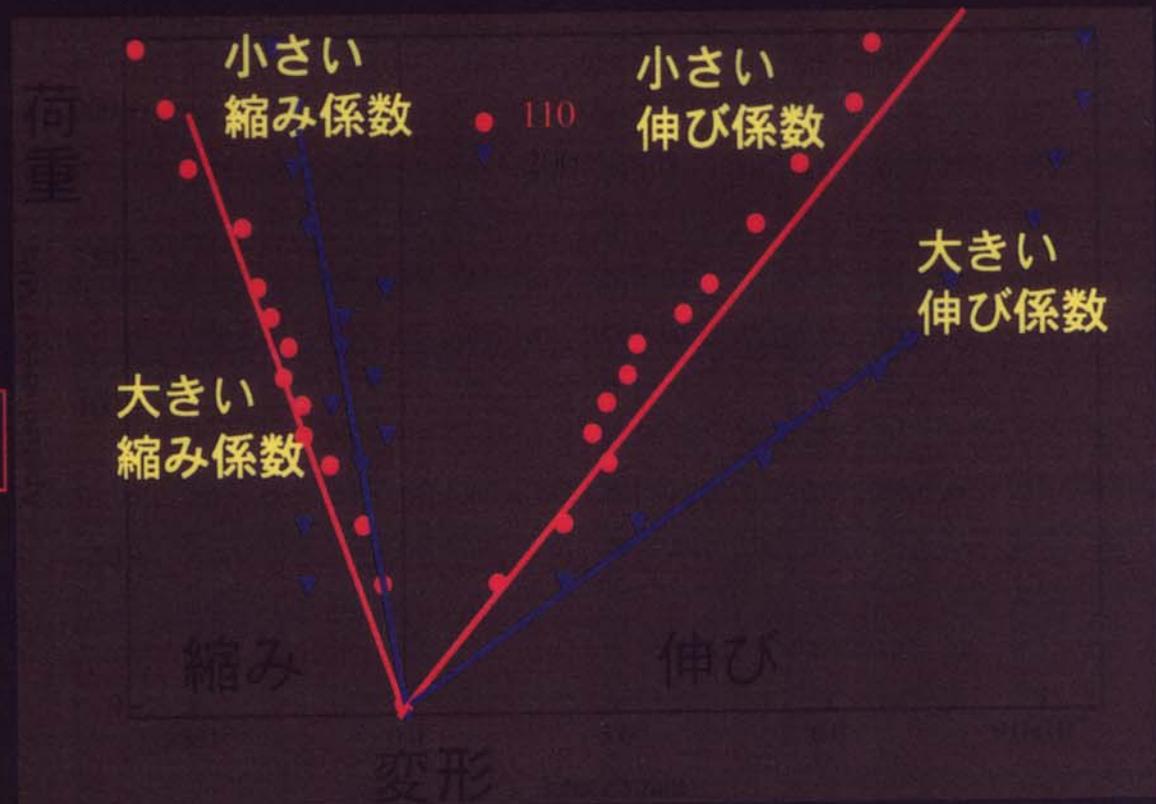
# パルス中性子源を利用した引っ張り試験に成功 —KENS粉末解析装置SIRIUS—

- 中性子は透過力が強い：物質内部の伸縮まで測定可能
- 結晶のいろいろな方向の伸縮を同時観測（パルス中性子源の特徴）
- 安全な製品設計に必要な物理定数を一度に測定：産業利用に光明

IF鋼（自動車用鋼板材料）  
の結晶構造



高品位な自動車設計



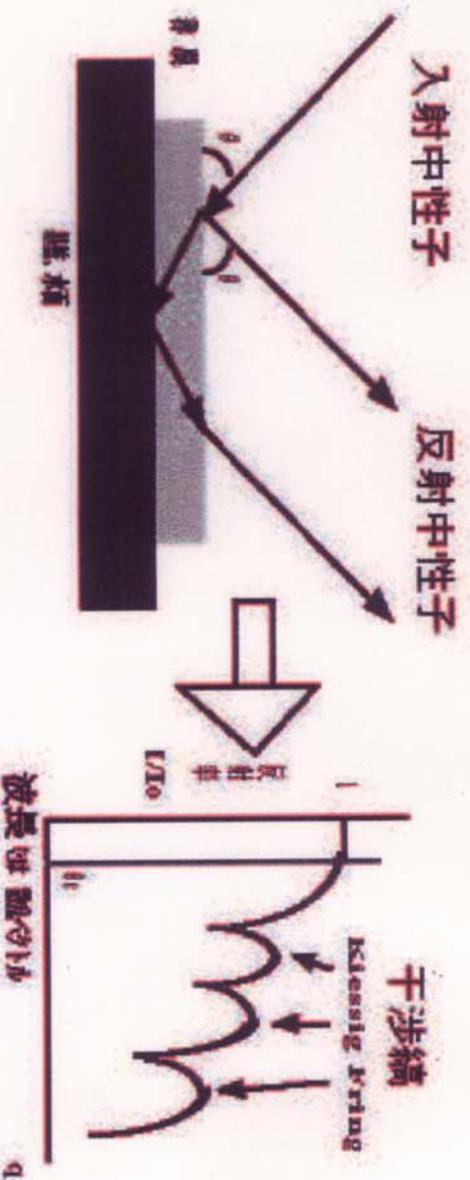


図1 中性子の反射で界面ナノ構造がわかる原理

平滑な表面はよく中性子を反射するが、凹凸があると反射は鈍る。また、薄膜の場合は、膜上下での反射光が干渉縞を作る。干渉縞のなまりぐあいから界面ナノ構造が評価される。

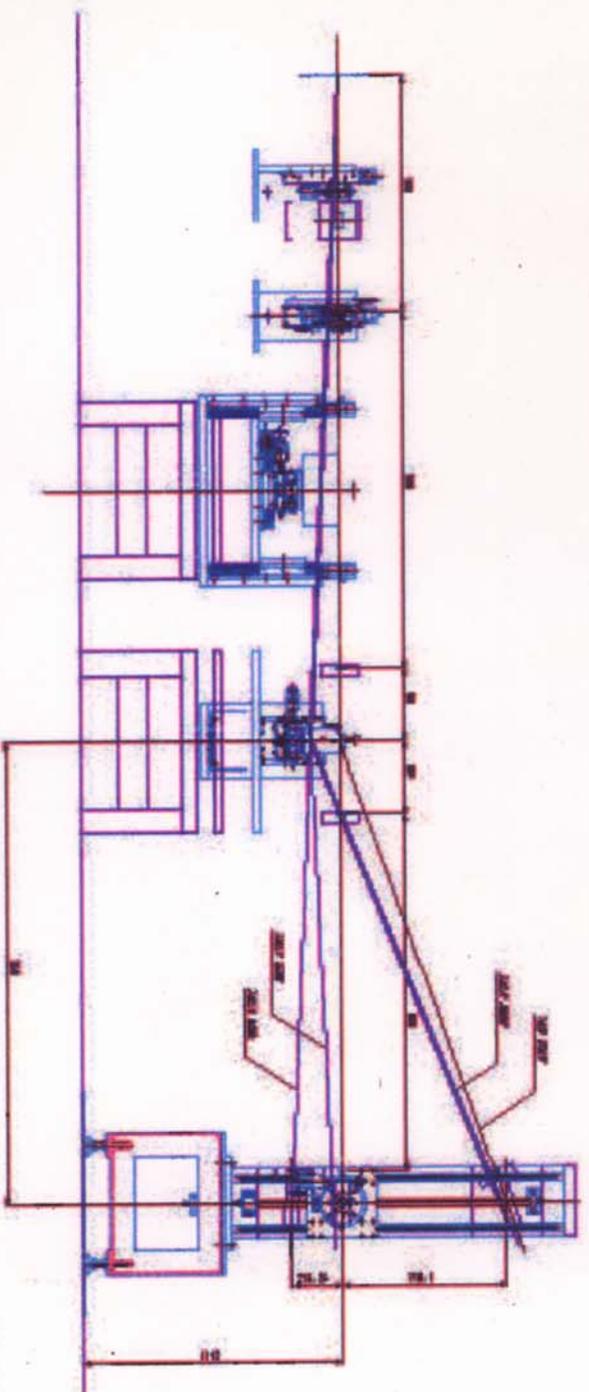


図2 ARISAの側面図

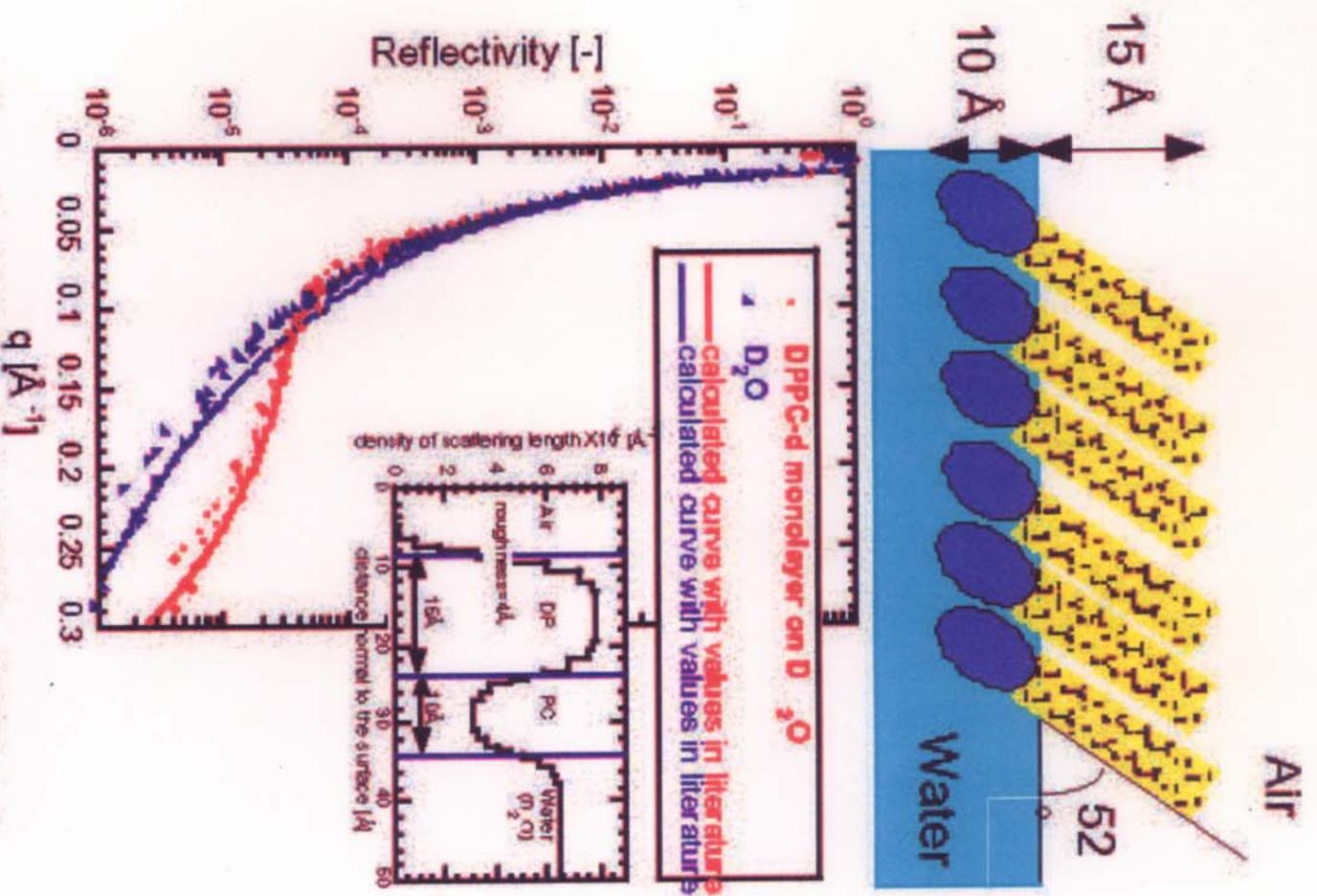
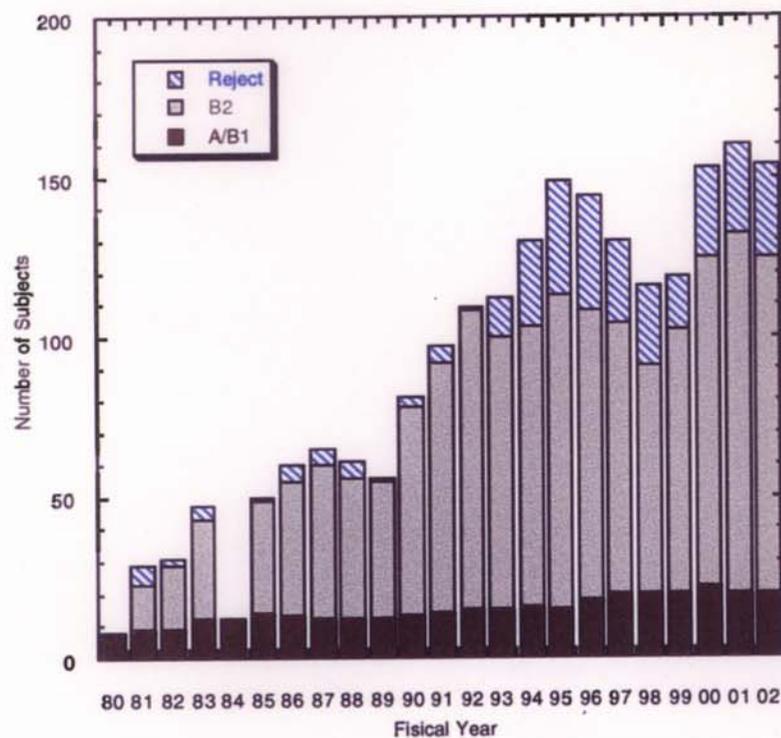


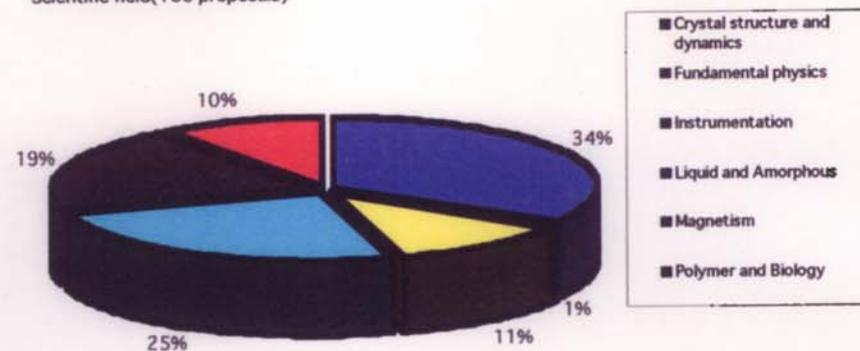
図5 細胞を形成する物質(脂質)が水面上で形成した、1層(1分子)だけの膜(単分子膜)からの中性子反射データ。膨らみが膜の存在を示し、その位置よりその厚さが、2.5nmと決定できる。この厚さより、水面単分子膜中で、分子は52°傾いていることがわかる。(1Å=0.1nm)このような系は細胞表面のモデルと考えることができ、生化学や生体工学に重要な知見をもたらすと期待できる。

# KENS共同利用



2001

Scientific field(160 proposals)



2002

Scientific field(156 proposals)



Fig. 2 The share of scientific subjects in the number of submitted proposals for FY2001 and FY2002

Fig. 1 The annual variation in the number of proposals since the beginning of facility operation in 1980. In the figure, A indicates the proposals for the construction or R&D of new instruments, B1 the proposals by large user's groups responsible for the operation, maintenance and improvement of the instrument, and B2 the proposals by small groups of pure users

# 日英協力事業

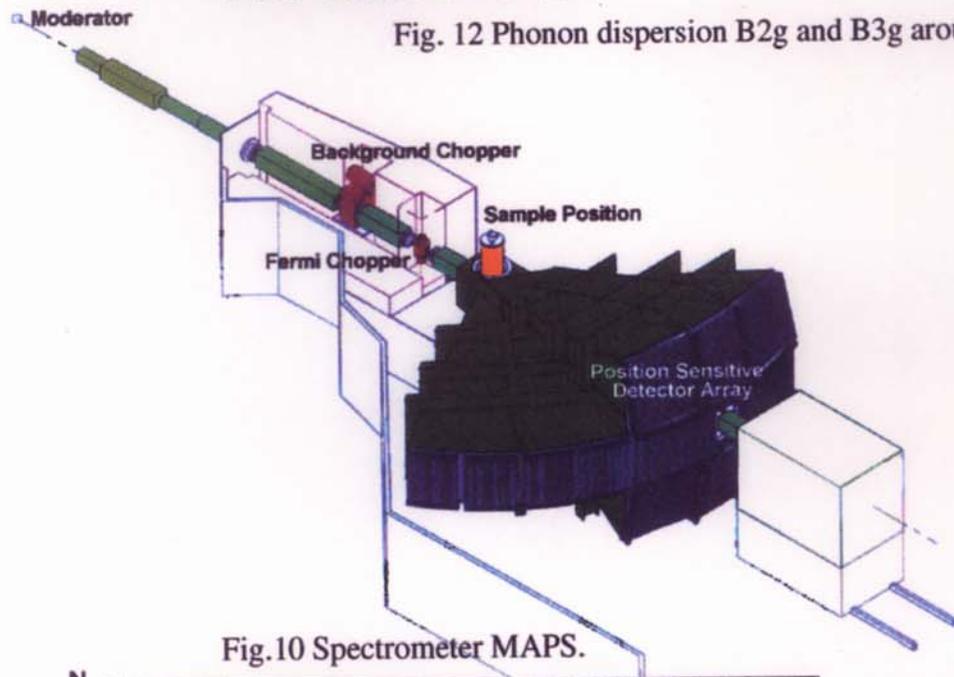


Fig. 12 Phonon dispersion B2g and B3g around (3,0,0)

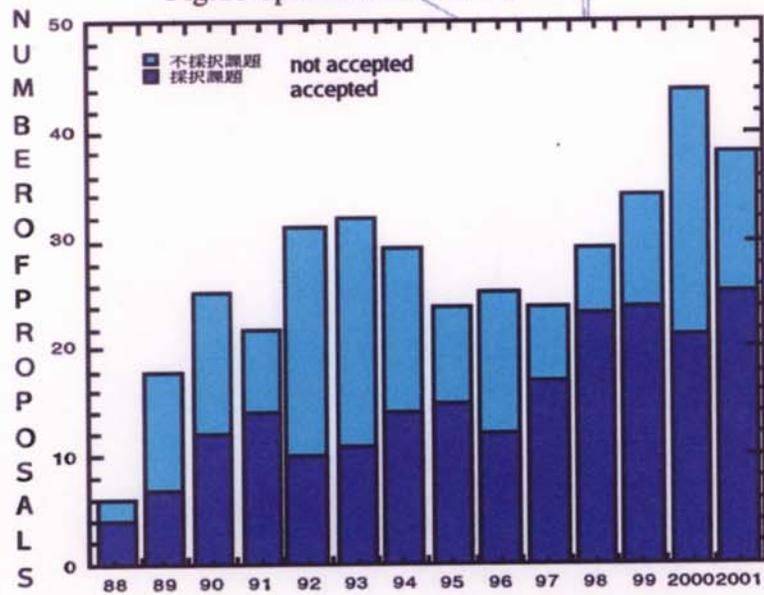
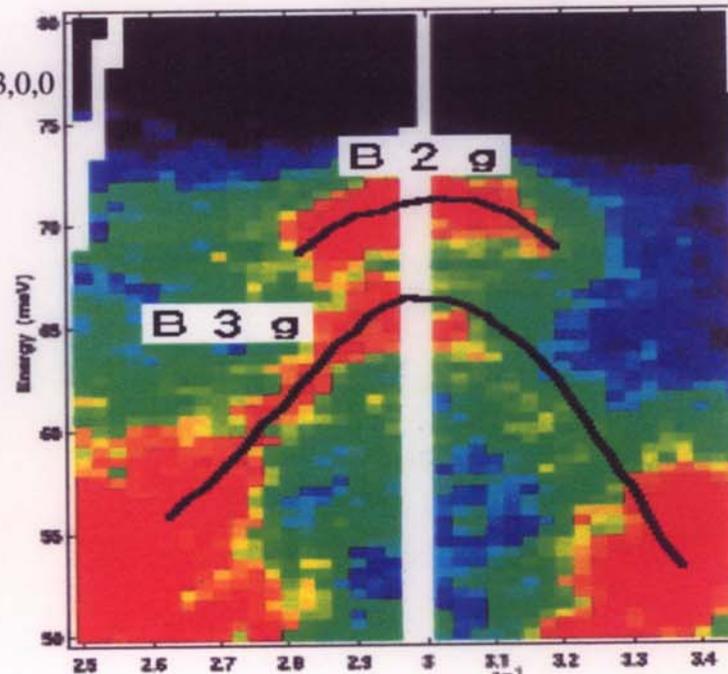
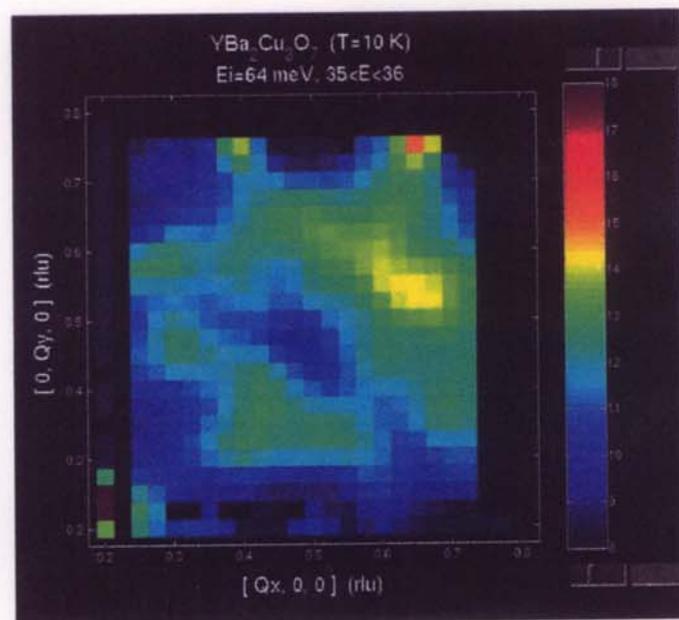


Fig. 11 Spin Dynamics in the Qx-Qy plane.



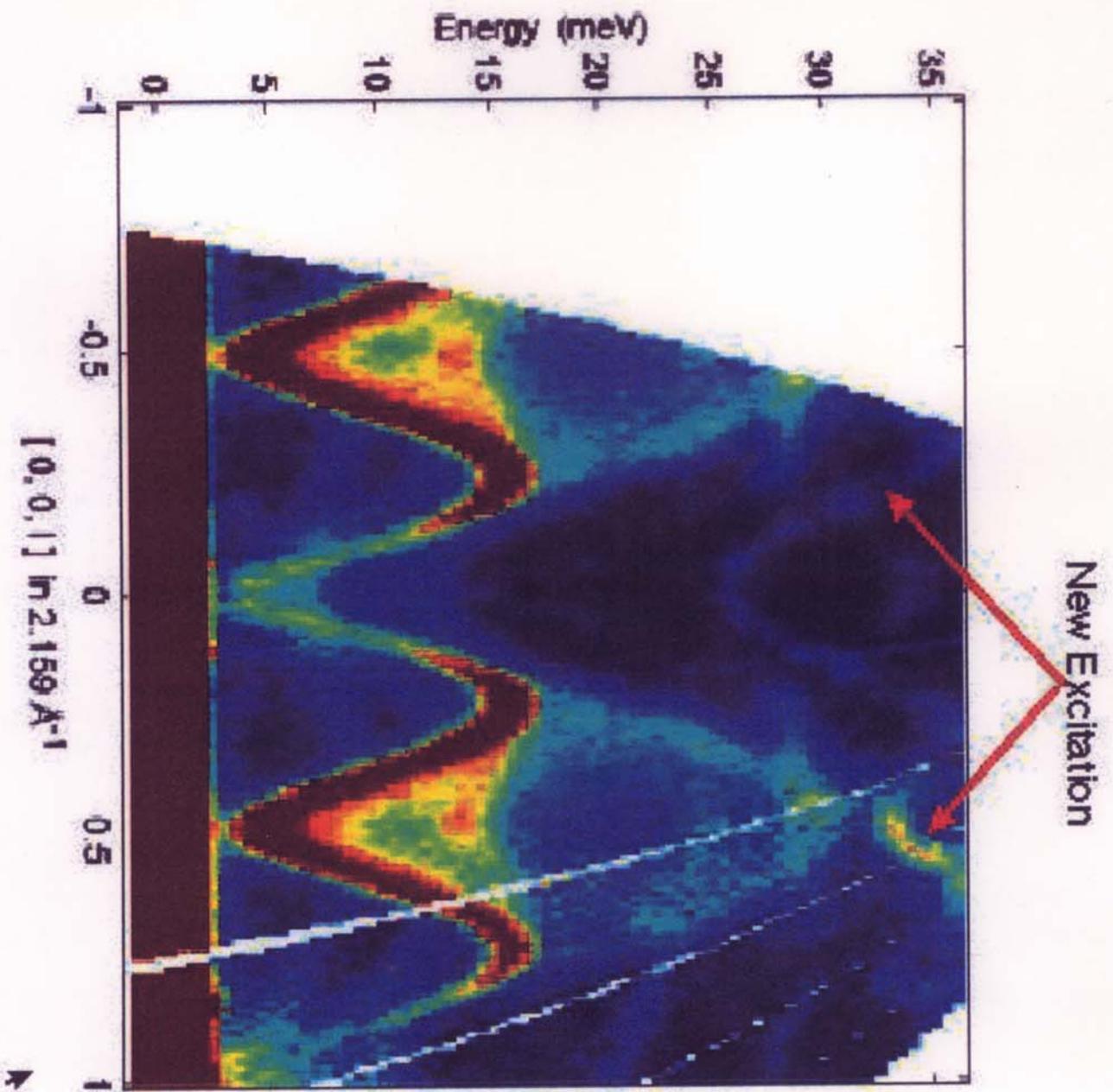
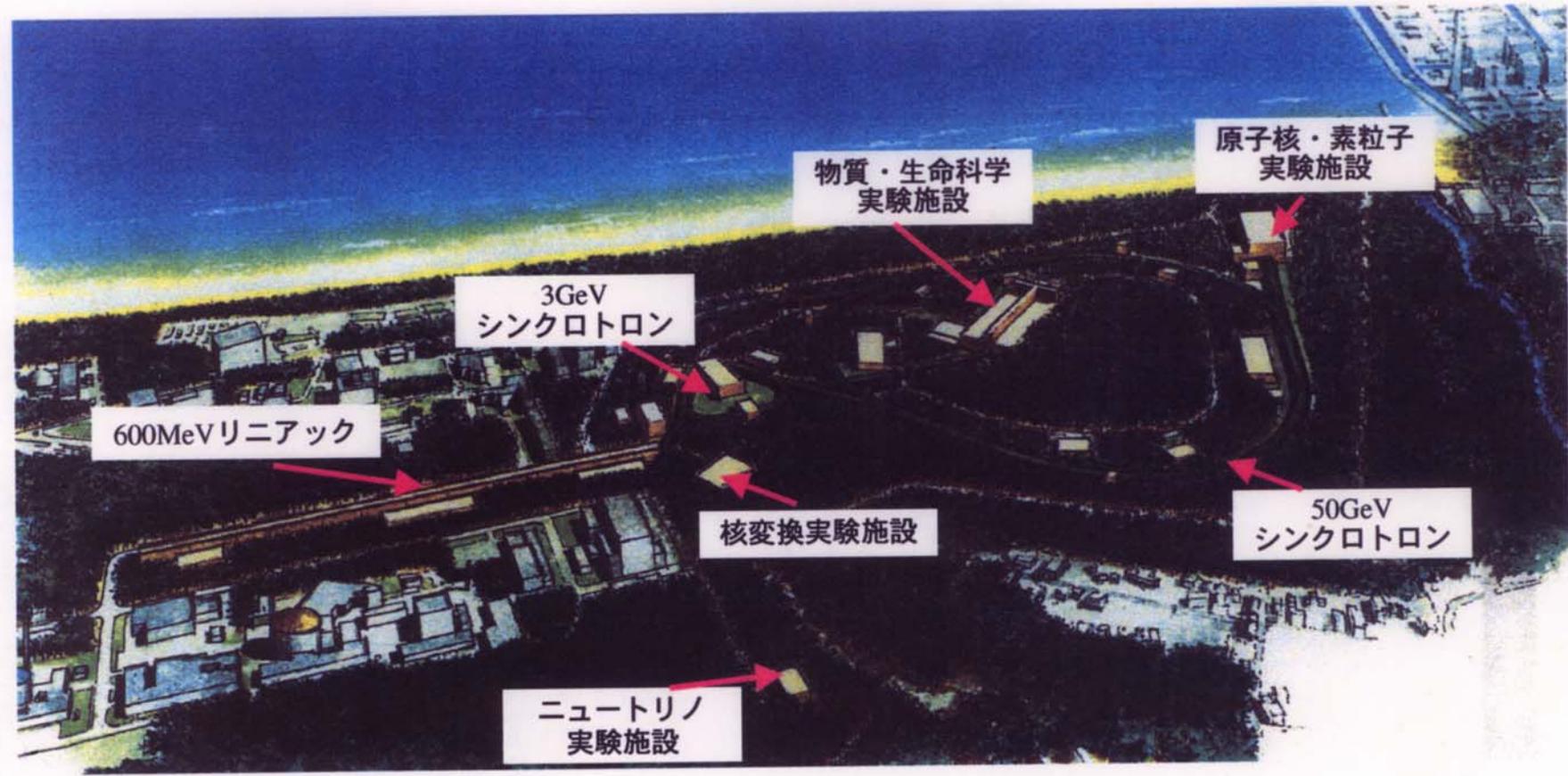
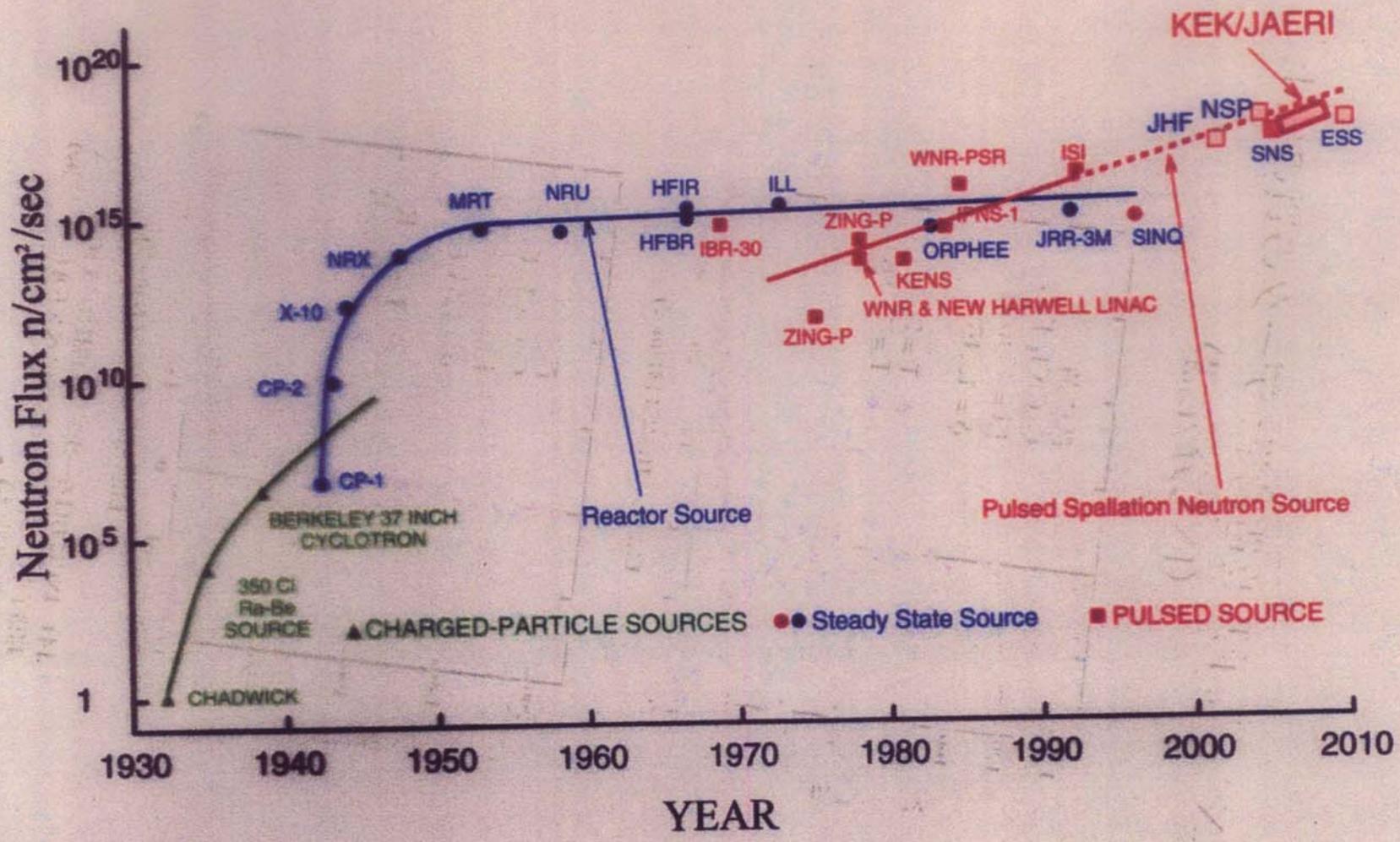


図4 MAPSによるCuGeO<sub>3</sub>の測定結果 (新しい励起状態が見つかった)

# 大強度陽子加速器施設のイメージ図

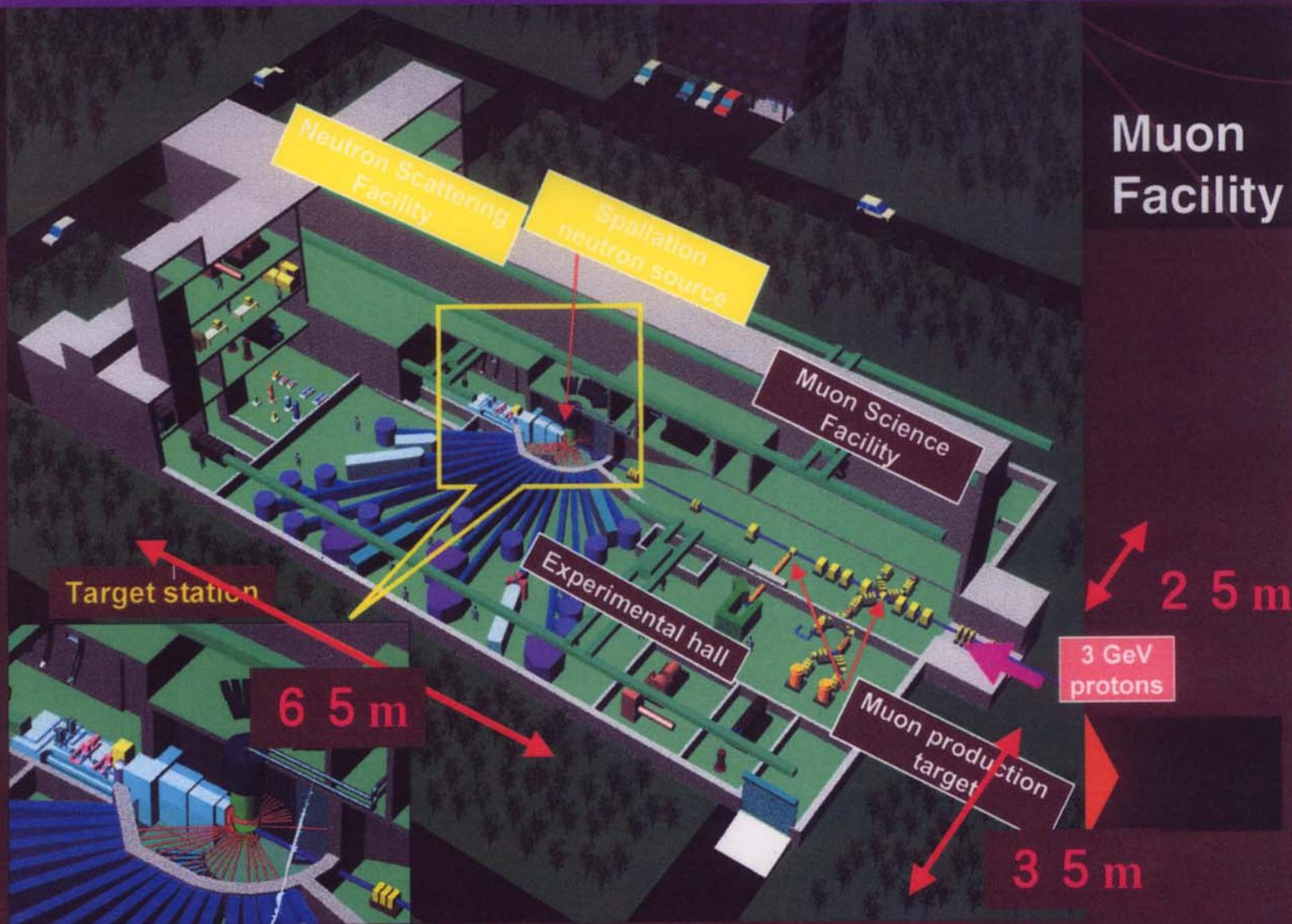




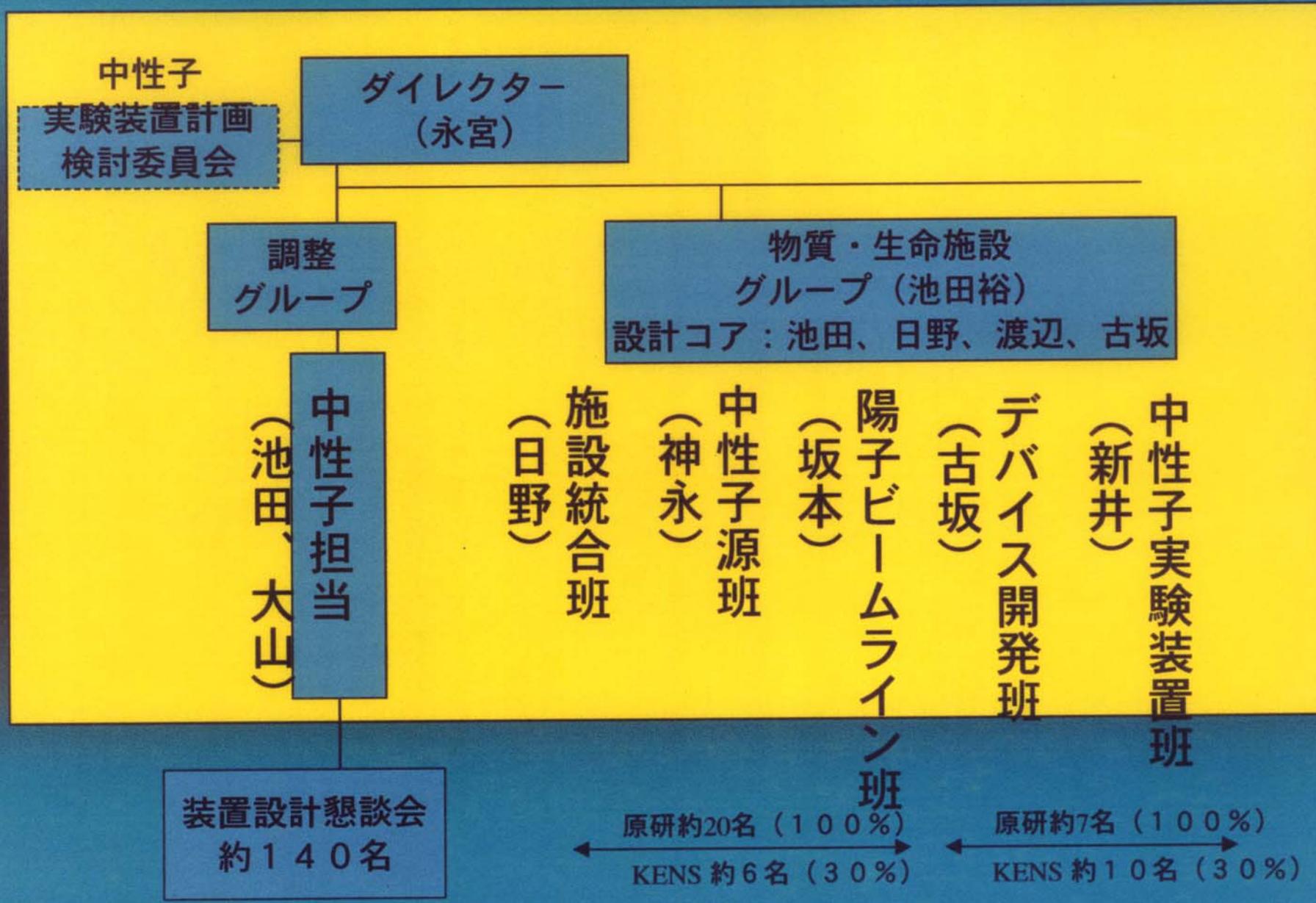
# Bldg. of Materials & Life Sciences Facility

Neutron  
Facility

Muon  
Facility



# 統合計画 中性子関連グループの組織図 (平成14年1月)



## 実験装置計画検討委員会

- (1) 施設建屋、中性子線源、中性子ビームラインの検討
- (2) 実験装置設置の基本ルールの検討
- (3) 中性子施設に建設される統べての実験装置の検討

(装置提案見込み ; 3 5 + 5 + x)

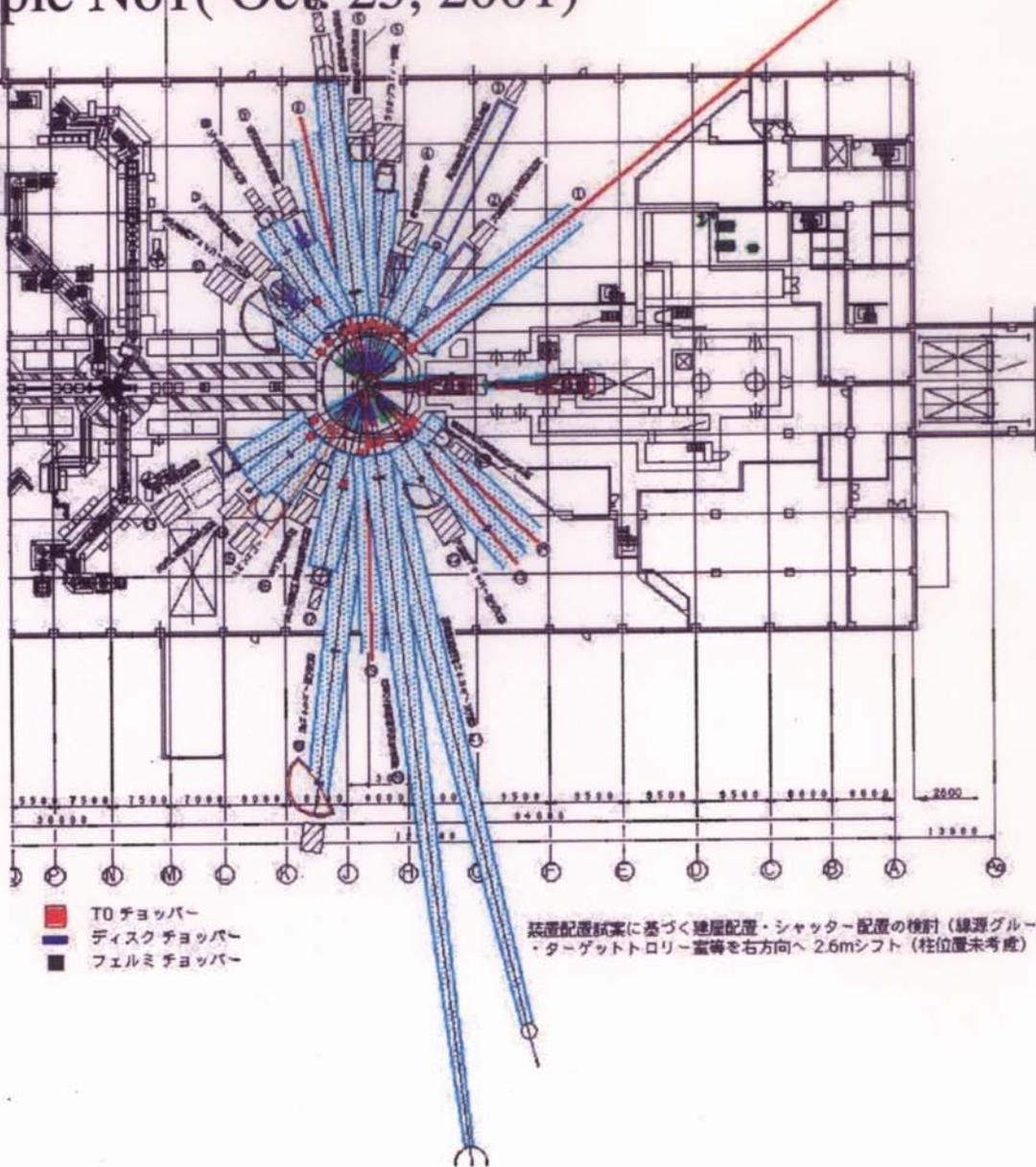
# プロジェクトチームで

装置配置試案 2001.10.25 v1

## 検討されている装置配置の一例

; Example No1 ( Oct. 25, 2001)

- ① テスト (基礎物理・ $\gamma$ -spectroscopy)
- ② 大強度型小角散乱装置
- ③ 高分解能型小角散乱装置
- ④ 垂直型反射率計
- ⑤ ラジオグラフィ装置
- ⑥ 残留応力回折装置
- ⑦ 汎用粉末回折装置
- ⑧ テスト (粉末・残留応力)
- ⑨ 液体用全散乱装置
- ⑩ 分子内励起分光器
- ⑪ 汎用全散乱装置
- ⑫ 高分解能チョッパー型分光器
- ⑬ 二結晶型極小角散乱装置
- ⑭ 汎用生物構造解析装置
- ⑮ スピンエコー
- ⑯ 水平型反射率計
- ⑰ 高分解能生物構造解析装置
- ⑱ 低エネルギー型分光器
- ⑲ テスト (残留応力・粉末)
- ⑳ 超高分解能粉末回折装置
- ㉑ 逆転配置型低エネルギー分光器
- ㉒ 大強度チョッパー型分光器
- ㉓ テスト (生物用非弾性)
- ㉔ テスト
- ㉕ 構造物性用単結晶回折装置



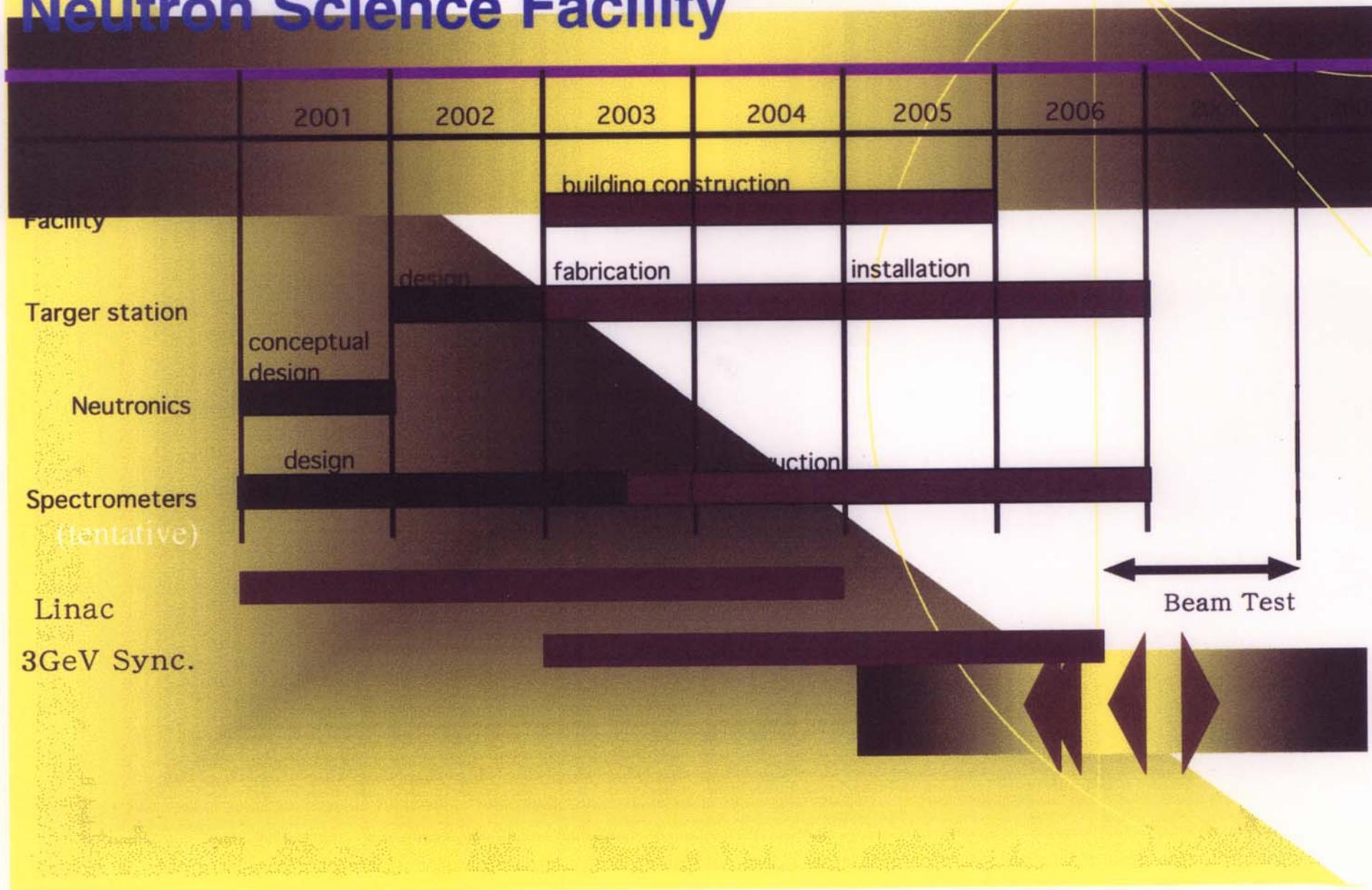
装置配置試案に基づく建屋配置・シャッター配置の検討 (線源グループ13.09.12)  
 ・ターゲットローリー室等を右方向へ2.6mシフト (柱位置未考慮)

# プロジェクトチーム中性子グループ 集中検討の実験装置（10台）

パルス中性子実験装置の性能はパルス中性子源の形状等に強く依存する。このため、典型的な実験装置を10台選び、実験装置自身の設計を集中してすすめると共に、それらの装置からの要求を反映させながら線源設計を行っている。

- 粉末構造解析装置 ; (1) 超高分解能 (2) 高強度
- チョッパー分光器; (1) 高分解能 (2) 高強度
- 中性子反射計
- S(Q)実験装置
- 小角散乱装置
- 残留応力実験装置
- 生物構造解析装置
- マイクロeV分光器

# Construction Schedule of Neutron Science Facility



# KEK中性子科学研究施設の将来

物質科学研究には、先端的研究と総合的研究の2つの共存が求められる。

(先端的研究と総合的研究の調和)

統合計画  
中性子  
施設

KEK物構研  
物構研  
中性子  
部門

物質科学研究ネットワーク  
(KEK物構研 + 東大物性研  
+ つくば研究機関)

学術創成研究グループ  
(分子研、東大物性研、  
京大化研、東北大金研、  
物構研)

# 中性子科学拠点ネットワーク構想



統合計画研究施設