

社会インフラから ライフサイエンス までカバーする 中性子技術の紹介



.....

新試験研究炉の
利用促進ガイドブック

.....

1 新試験研究炉の建設計画(1)

はじめに

試験研究炉は、原子炉で発生する中性子を利用し、様々な学術・産業分野における研究開発および人材育成を行う実験施設です。

中性子による研究開発は、学術や産業の両面で幅広く利用されているにもかかわらず、近年、廃止措置となる試験研究炉が増え、稼働基数の減少あるいは高経年化が進んでいます。

こうした中、国は平成28年度に高速増殖原型炉もんじゅの廃止を決定した際に、同敷地内へ新たな試験研究炉を設置することを決め、この試験研究炉を我が国の研究開発・人材育成を支える中核的拠点と位置づけました。現在、日本原子力研究開発機構、京都大学、福井大学において、実験装置の設計や企業・研究機関の利用を見据えた運営体制など様々な検討が進められています。

このガイドブックは、特に企業の皆様の課題解決や研究開発に取り組むための一助となるよう、試験研究炉で利用可能な技術・装置や活用事例などを紹介しています。

これらの情報が、企業の皆様にとって、先端技術の研究・開発をはじめとした新たなビジネスに着手する機会となれば幸いです。

もくじ

はじめに	1
1 新試験研究炉の建設計画	2
2 中性子の特徴	4
3 材料科学で活用する中性子による分析・解析技術の概要	5
4 中性子技術を利用している産業分野	6
5 中性子イメージング	7
6 中性子小角散乱	11
7 中性子反射率計	14
8 中性子回折	17
9 中性子放射化分析	21
おわりに	26

表紙の写真は、福井県が県内企業の優れたものづくりを紹介している「実は福井」の「技」を参考にしています。

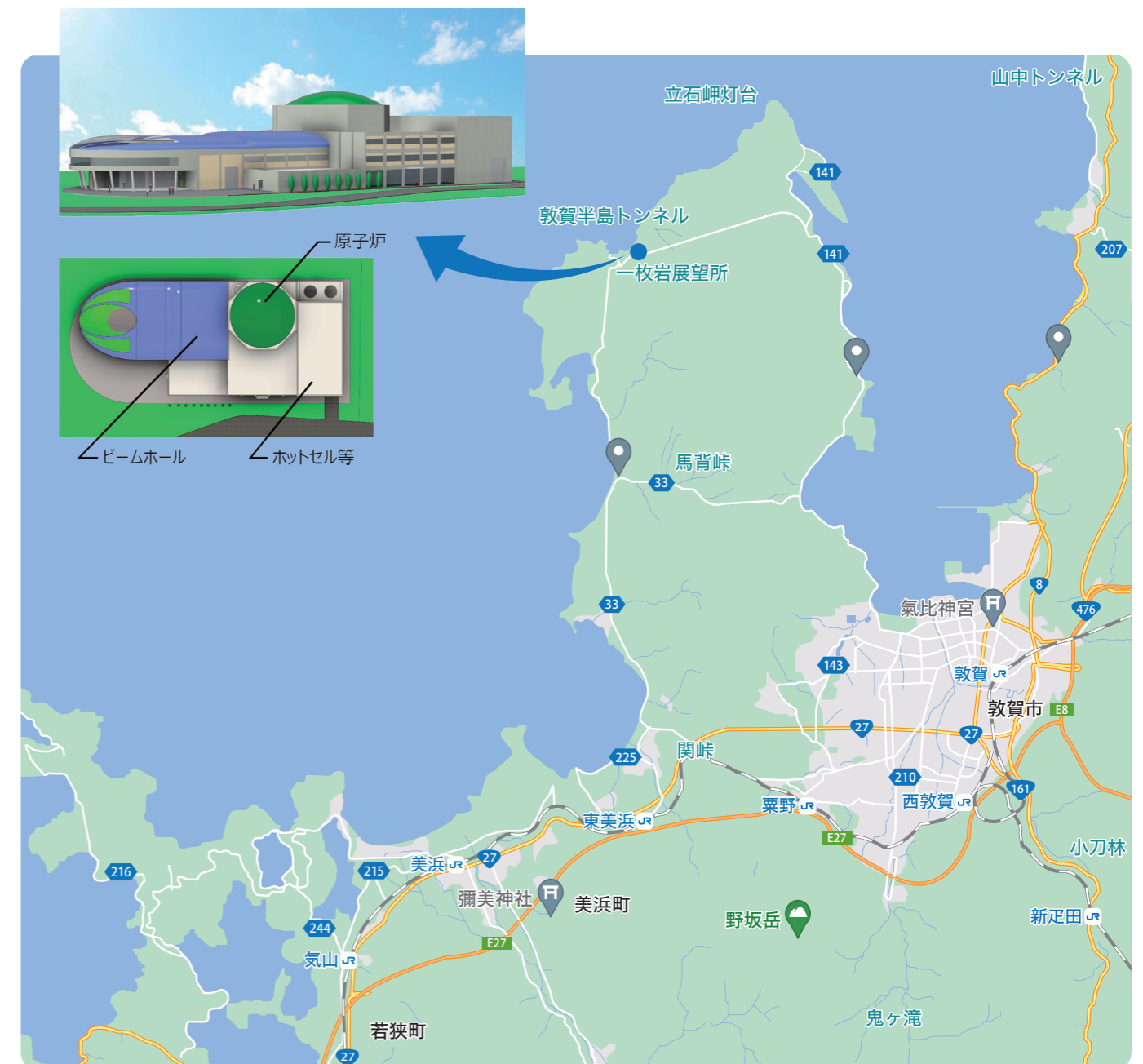
(1) 概要

● 設置目的

原子炉で発生した中性子を利用した様々な学術・産業分野における研究開発や人材育成

● 主要な施設

- ・ 原子炉：発電用原子炉に比べて1/100 程度の熱出力の小型原子炉
- ・ ビームホール：原子炉より中性子ビームを取り出し各種実験を行う施設
- ・ ホットセル：照射済の試料を扱う施設



資料提供：日本原子力研究開発機構

1 新試験研究炉の建設計画(2)

(2) 実験装置

新試験研究炉の設計概念において、汎用性があり国内外での利用頻度が高い5装置を優先的に設置することが提案されました。このうち4装置は、原子炉から取り出した中性子ビームを利用する装置で、「中性子小角散乱装置」、「中性子イメージング装置」、「中性子反射率計」、および「中性子回折装置」です。もう1装置は、原子炉から中性子を取り出さずに利用する装置である、「放射化分析装置」(下図の中央写真)です。本ガイドブックではこれらの内容を詳細に説明します。

中性子小角散乱装置

試料に入射した中性子ビームが散乱する角度と強度の関係から、原子や分子の集合構造のサイズ・形状を解析する実験装置

高分子・ゲル ▶ 新素材、電池、エネルギー材料
タンパク質・核酸 ▶ 薬剤開発
金属 ▶ 鉄鋼、金属工業



JRR-3 SANS-U

中性子イメージング装置

入射した中性子ビームの透過率の違いにより、機械や配管、植物などの内部の構造や現象を可視化するための実験装置

機械 ▶ 自動車産業、宇宙航空産業
熱流動 ▶ 原子力産業
素子・合金 ▶ 電池、エネルギー材料
植物 ▶ 農業



JRR-3 TNRF

中性子放射化分析装置

中性子の照射によって放射化された元素の出す放射線のエネルギーをもとに非破壊で微量元素分析を行うための実験装置

重金属・不純物 ▶ 化学・繊維産業、資源、環境
コンクリート ▶ 土木、建設
半導体 ▶ 電子産業



KUR圧気輸送管・Ge検出器

中性子回折装置

試料によって散乱された中性子ビームの回折パターンから結晶構造等を解析するための実験装置

金属・セラミックス・ガラス
▶ 金属工業、素材産業
構造材料・部材
▶ プラント、自動車産業
電極材・素子
▶ 電池、エネルギー材料、磁性材料



JRR-3 HRPD

中性子反射率計

斜めに入射した中性子ビームが反射したときの角度と強度の関係から、試料表面や界面の密度や粗さを解析するための実験装置

接着・界面活性
▶ 素材産業、化学産業
摺動・潤滑
▶ 機械工業、自動車産業
多層膜
▶ 磁性材料、センサー



JRR-3 MINE

出典：京都大学、JAEA

令和5年度 嶺南Eコースト計画推進会議 文部科学省説明資料(令和5年10月24日)を加工

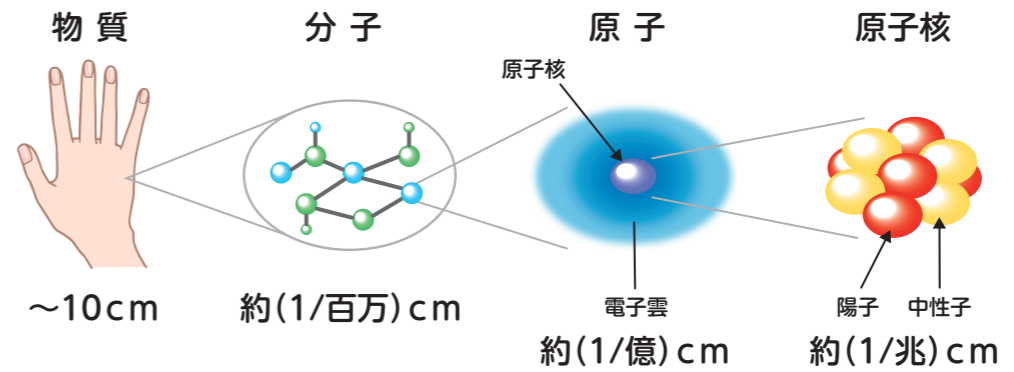
- ・ 中性子小角散乱装置(P11) ・ 中性子イメージング装置(P7) ・ 中性子反射率計(P14)
- ・ 中性子回折装置(P17) ・ 中性子放射化分析装置(P21)

2 中性子の特徴

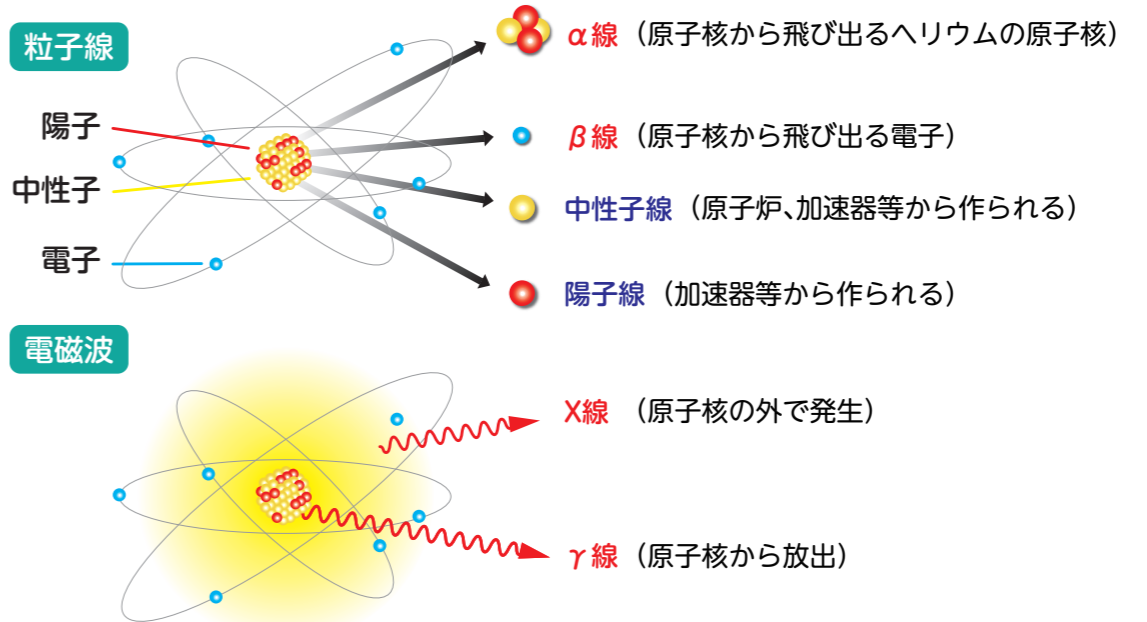
(1) 中性子とは

中性子は原子核を構成する素粒子の一つで、通常は原子核の内部に留まっていますが、学術研究や産業界で使われる中性子は、原子炉や加速器の原子核反応を利用して取り出して使います。

(2) 中性子の大きさは陽子とほぼ同じで(約(1/10兆)cm) 電気を帯びていない粒子



(3) 産業界が使っている放射線や量子ビーム

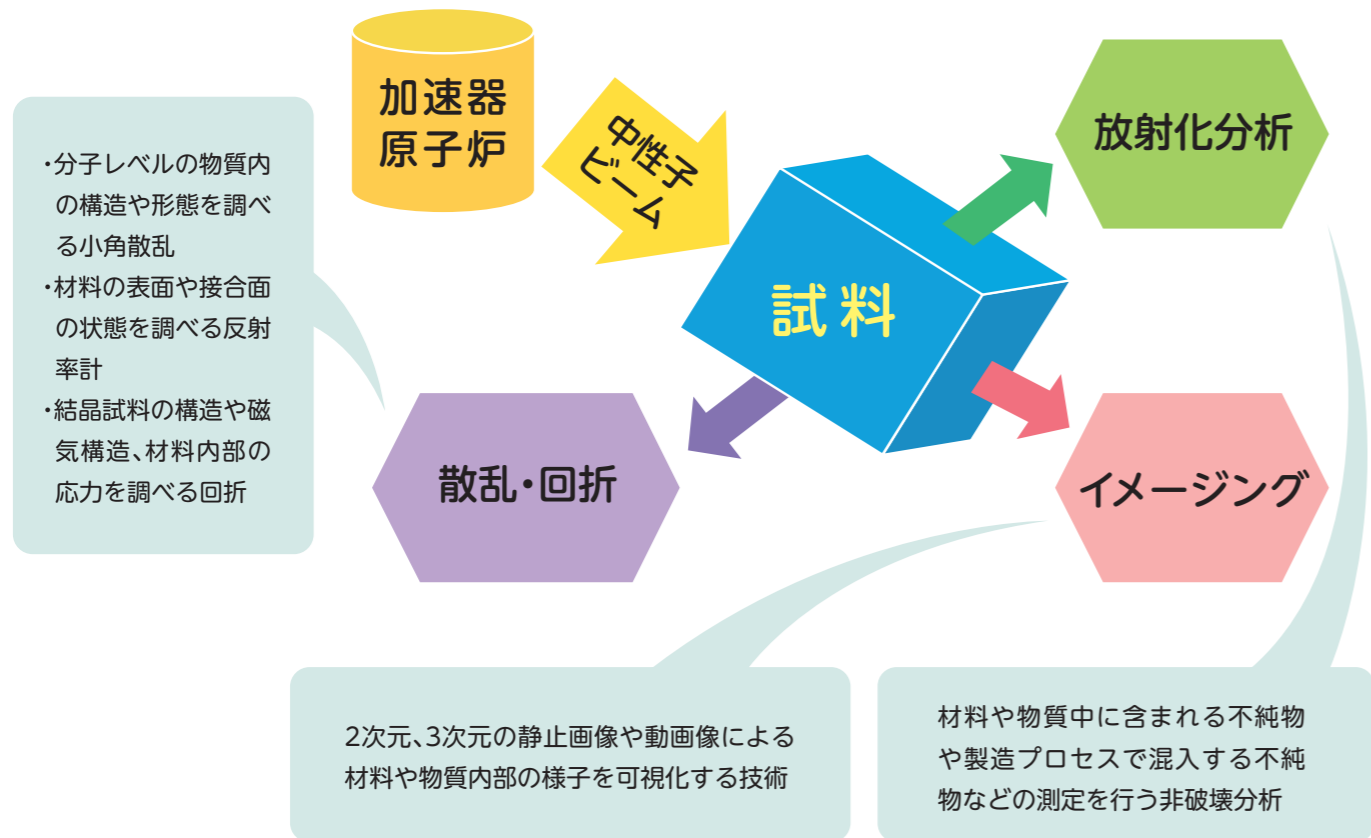


放射線とは、高い運動エネルギーで移動する物質粒子(α線、β線、中性子線、陽子線、中間子線などの粒子放射線)と高エネルギーの電磁波(X線とγ線のような電磁放射線)の総称です。これら放射線に光(レーザーを含む)やイオン(原子から電子を一つ以上取り除いた粒子)などを一括して量子ビームと呼んでいます。量子ビームは材料・物質科学の分野で広く活用され、物質内部の構造や状態を知るために最適なビームが使われます。

③ 材料科学で活用する中性子による分析・解析技術の概要

(1) 中性子を活用できる主要な分析・解析技術

材料・物質科学分野では、中性子ビームを使った構成元素の詳細分析(放射化分析)、原子・分子などのナノ・マイクロ構造の解析(散乱・回折)、さらに材料加工後の形状や形態の観察(画像化)などの技術が開発され、学術研究や産業界で使われています。



(2) 中性子の物質内部での反応の特徴

1. 中性子は電荷を帯びていないため、物質の内部を通り抜けやすく、壊さずに重い物質の中の様子を見ることができます。また、X線では測定できない水など軽い原子の測定ができます。
2. 中性子は物質内部では原子核と反応(エネルギーを失ったり、進行方向を変えたりする現象)するため、X線ではできない元素の識別や同位元素の識別も可能です。
3. 物質内部の原子や分子などの配置や運動を調べる構造・形態解析などX線や電子線との共通点がありますが、中性子は透過率の点から容易に鉄などの金属試料の構造解析が出来るという特徴があります。
4. 中性子のエネルギー(速度)を変えることで、構造解析の多様化や高精度化が実現できます。原子炉の中性子は速度が非常に速い高速中性子、ウランとの反応の確率が大きい熱中性子、それをさらに速度を落として使う冷中性子があります。
5. 中性子の磁石の性質を利用して、材料の磁気構造を結晶構造と合わせて解析することが出来ます。

④ 中性子技術を利用している産業分野

(1) 中性子技術を利用している主要な産業分野

中性子の特徴を活かした中性子の利用技術は、多くの産業分野で利用されています。主要な産業分野における代表的な製品を下図に示します。



(2) 中性子技術による解析・材料検査の実施例

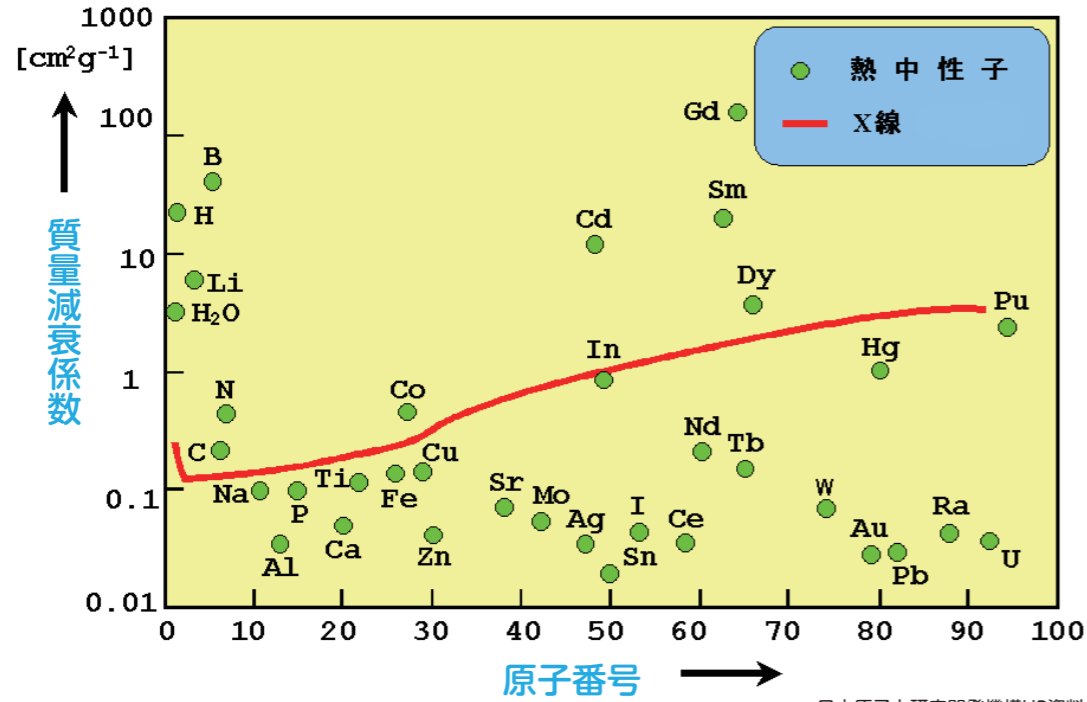
産業分野	散乱・回折 (小角散乱/粉末回折/反射率計)	イメージング	中性子放射化分析
ライフサイエンス	薬剤、生体高分子の構造解析	毛髪などの生体中の水分分布観察	薬剤中の不純物分析 食品中の元素分析
素材	金属・樹脂の表面状態観察 応力分析	鉄鋼・複合材中の欠陥観察	高分子・金属材料中の不純物分析
エネルギー	構造材の応力分布、腐食状況の観察	燃料や構造材の非破壊検査	構造材の組成、燃料の組成分析
機械・建設	構造材の応力解析	コンクリート、鉄鋼の非破壊検査	セメントの塩素浸透把握
電気・電子	電池電極、電解液の構造解析	電池内部の水分分布観察	半導体・電池電極などの不純物分析
輸送機器	タイヤ性能、車体・車軸の応力解析	エンジン、タービン翼の非破壊検査	燃料、電池材料、磁石材中の不純物分析

5 中性子イメージング(1)

(1) 測定原理

中性子イメージングは、レントゲンに代表されるX線を利用したイメージングと類似した、中性子の透過力を使った非破壊検査の手法の一つです。X線は、骨や脂肪、臓器でそれぞれ透過力に差があるため、私たちの体の内部構造を把握することができます(骨はX線を通しにくいのではっきり見えます)。X線の代わりに中性子を使うことでまた違った画像を得ることができます。

中性子とX線の質量減衰係数の違い



日本原子力研究開発機構HP資料を加工

上図に中性子とX線の物質中の質量減衰係数を示します。一般的にX線は水やオイルといった軽い元素で構成される物質は透過しやすく、金属などの重い元素で構成される物質は透過しにくい性質を持ちます。

一方中性子は、重い元素で構成される物質でも透過力が高く、逆に水素やリチウムなどの軽い元素で構成される物質は透過しにくい傾向を持ちます。

そのため、金属中の水やオイル分布の可視化計測に適しています。また、鉄や鉛などの金属に対する透過力はX線に比べて中性子の方が圧倒的に大きく、X線では難しい鉄などの金属でできた機械の内部構造や動作状況、高温や真空、高圧力の環境を維持した容器内のイメージングが可能である点が大きな特徴です。

ビームの種類	識別限界	鉛の透過度	鉄の透過度
中性子	低(mm)	大(cm)	大(cm)
X線	高(μm)	小(μm)	小(μm)

カッコ内はオーダーを示す

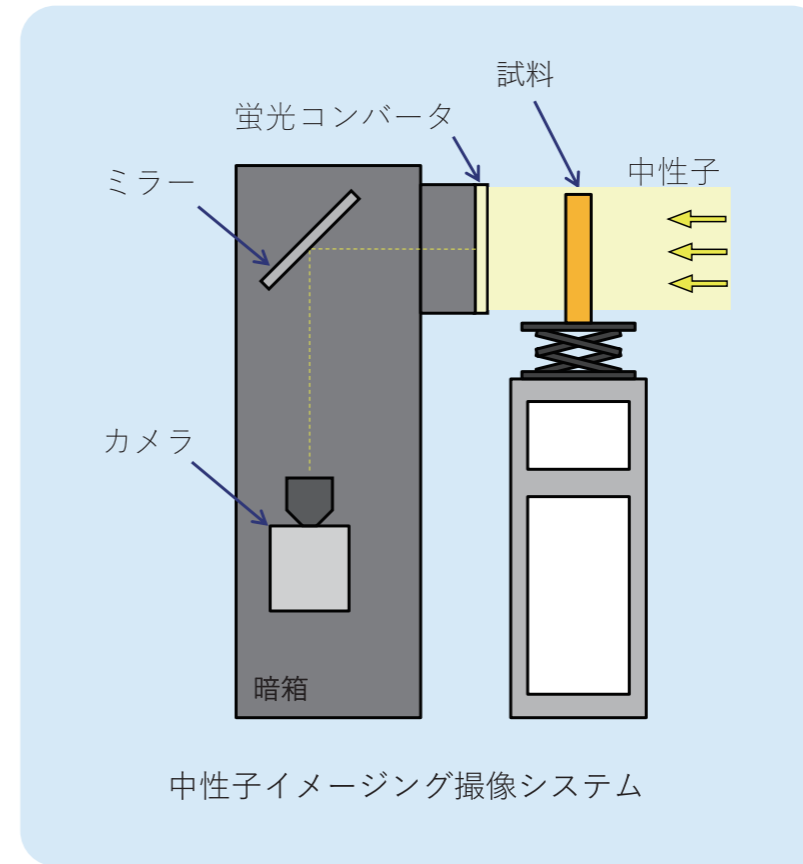
この表は画像化した結果の能力をX線と中性子を比較したもので、中性子の識別能力はX線に比べ低く、鉄や鉛の透過力は中性子が圧倒的に大きくなっています。

5 中性子イメージング(2)

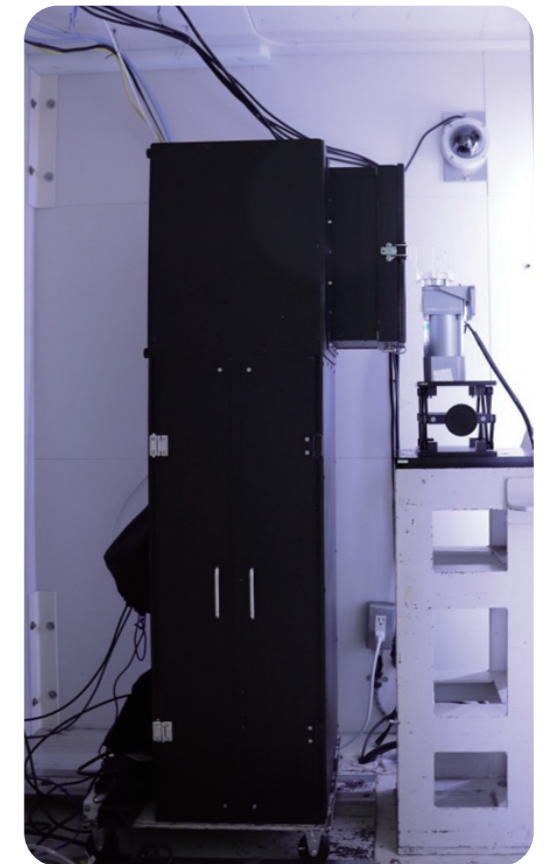
(2) 中性子イメージング装置

国内外の主な中性子イメージング装置では、熱中性子が用いられます。代表的な中性子イメージング撮像システムを下図左側に示します。右方向から中性子を試料に当てます。試料を透過した中性子は、蛍光コンバータによって可視光に変換され、高感度光学カメラによって撮像されます。

下図右側に、JRR-3における熱中性子ラジオグラフィ装置(TNRF)の実際の撮影室の写真を示します。TNRFでは、装置周辺の研究者の被ばくを避けるために、インターロック付きの遮へい室(撮影室)を設け、その中に試料や撮像システムを設置する方式を採用しています。



中性子イメージング撮像システム



JRR-3 TNRFの撮影室
資料/写真提供: 京都大学

(3) 測定対象や測定例

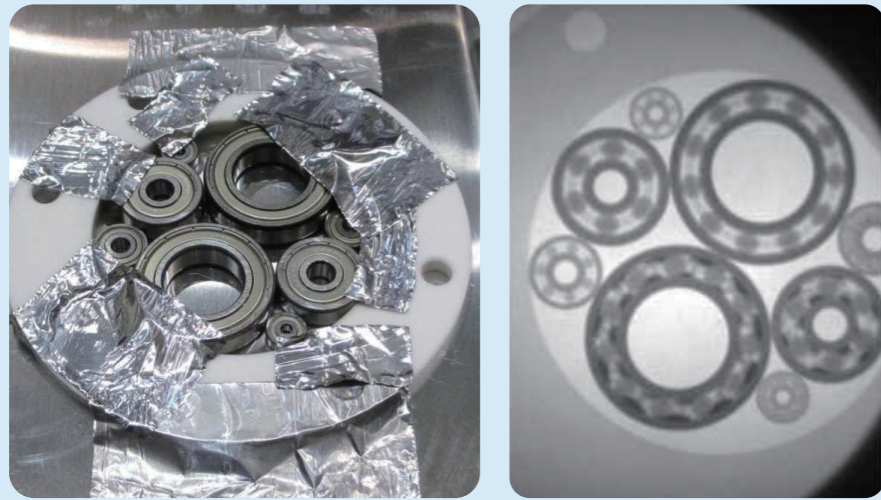
項目	内容
対象分野	機械、金属部品、電池、食品、植物、コンクリート、熱流体(伝熱流体ともいわれ、熱の輸送に使われる流体)
測定例	<ol style="list-style-type: none"> ① エンジン内部におけるオイルミスト挙動(霧状流体の動き) ② 工業製品および金属部品内部における欠陥(割れ、沈着物、変形) ③ コンクリート中の水分移動(爆裂の発生メカニズム) ④ エネルギー機器内における沸騰二層流(沸騰水型原子炉型発熱部や加圧水型原子炉や火力発電機の蒸気発生器の内部) ⑤ 燃料電池内で発生する水の空間分布(電解物質内の水の動き) ⑥ 植物中の水分分布(水分移動)

日本原子力研究開発機構HP資料を加工

5 中性子イメージング(3)

(4) 事例

1 機械部品(回転部を支える軸受け、ベアリング)のイメージング



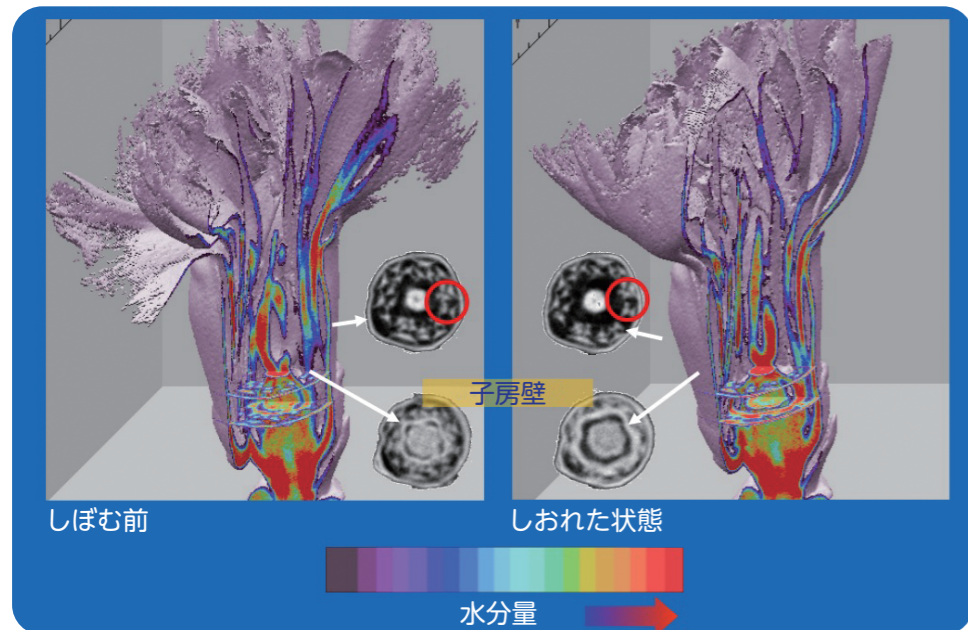
測定対象

中性子透過画像
(上:グリスなし,下:グリスあり)

写真提供:京都大学

ベアリングのような可動する部分は高精度の加工で仕上げることが必要であることに加えて、使っている間にかじりや溶着などを防ぐためにグリスなどの潤滑剤によりスムーズに動作するように維持されます。このグリスの付着状況を把握することは装置を維持する上で重要な要素です。そのため、試験研究炉を使って、ベアリング内部のグリスの有無が検出可能であることを確認しました。

2 植物のイメージング



写真提供:岩手大学

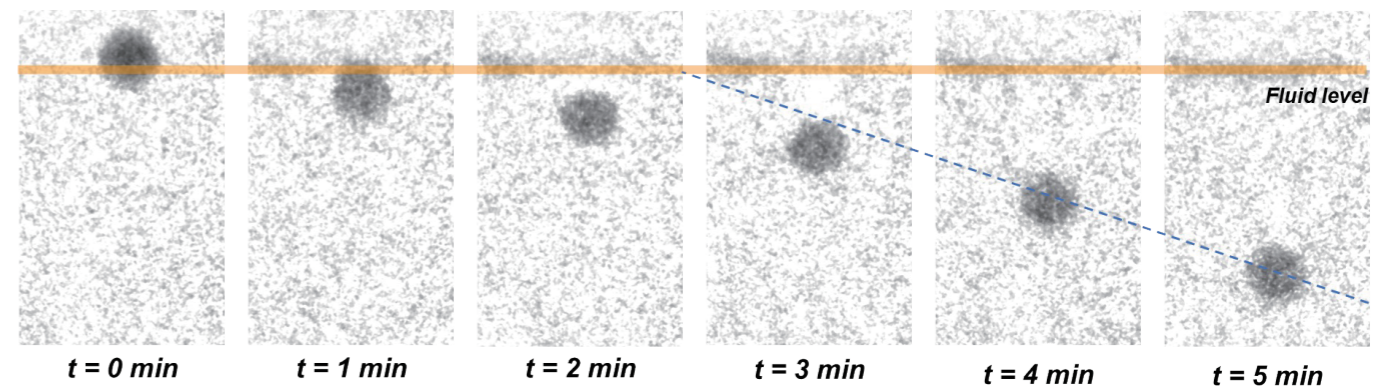
植物内における水分分布の把握も中性子イメージングの得意とする測定対象です。左図はカーネーションをエチレンガスによって人工的にしぼませて花弁のしおれと子房の膨張を観察した結果です。薄かった子房壁がしぼんだ後に厚くなり、さらに子房全体も大きくなっていることがわかります。

5 中性子イメージング(4)

3 高温熔融ガラス固化体中の金属塊の移動観察

原子力発電所の運転により発生する長半減期の放射性同位元素は、ガラス固化体中に放射性物質を閉じ込めて地下などに長期保管する方法が考えられています。このガラス固化体を高温で製造する過程を模擬し、熔融ガラス中の金属挙動の観察実験を京都大学研究用原子炉で実施しました。

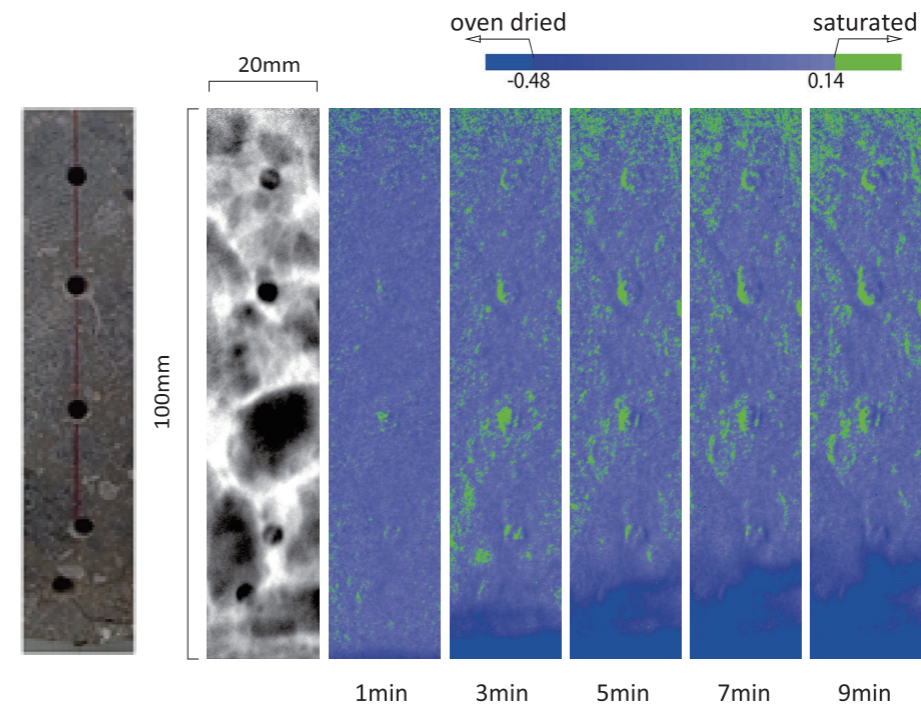
この実験では、電気加熱炉を用いて1,000℃を超える高温条件でガラスを熔融させ、その中に重金属廃棄物を模擬したWC(タングステン・カーバイド)の球を投入し、熔融ガラス中での振る舞いを可視化しました。その結果、直径10mmの金属球がガラスの内部で5分間に亘ってゆっくりと落下してゆく様子を1分おきに画像化しています(下図)。これは、高温流体中にある物体の様子を観察できるという「中性子イメージング」技術の特徴を活用した可視化計測の典型例です。



1,050度に加熱した熔融ガラス中を沈降するWC球の様子

写真提供:京都大学

4 高温コンクリート中の水分の挙動観察



高温加熱下におけるコンクリートの中性子イメージング

左:光学画像、左から2番目は圧縮画像、

3番目以降は時間差分画像

(画像下側よりブンゼンバーナーにより過熱し、下面より乾燥が進む様子)

写真提供:京都大学

鉄筋コンクリートは高い耐火性を有していますが、高強度コンクリートが火災時に急激な加熱を受けると、表層からコンクリートが爆発的に剥離する爆裂と呼ばれる現象が起きることが知られています。そこで、加熱環境下におけるコンクリート内部の様子を中性子イメージングにより、左図のような高温加熱に伴って生じる水分挙動を定量的に測定しました。コンクリートの内部での水分の移動も「中性子イメージング」によって観察可能です。

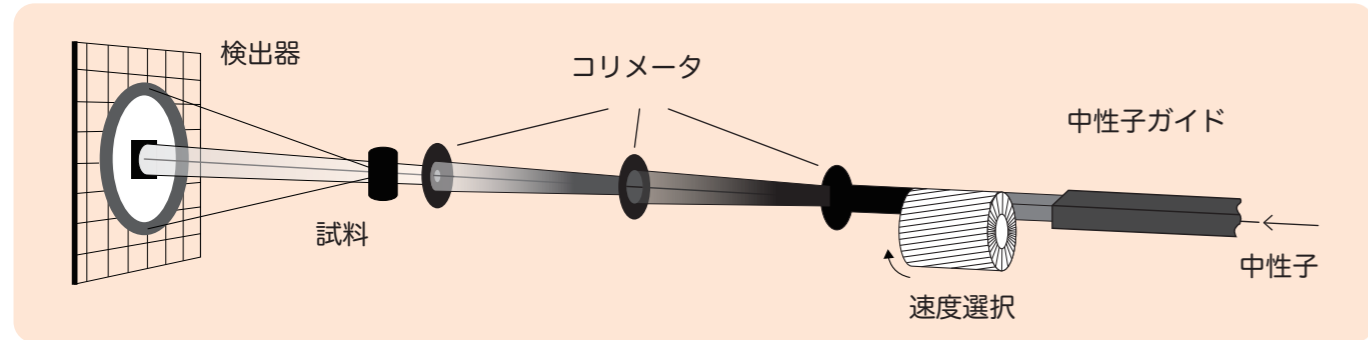
6 中性子小角散乱(1)

(1) 測定原理

小角散乱は、数度以下の角度に散乱した中性子を測定し、物質内部の分子レベル以上の大きさの構造を、ナノメートルからマイクロメートルの範囲で調べる技術です。特に水を含んだ生体試料や柔らかい高分子材料などの解析に広く使われている技術です。

産業利用ではタイヤ用のゴム材料、燃料電池の高分子膜、高分子の原材料、合金や単結晶中の不純物の影響、原子力材料腐食防止の評価など幅広い産業分野で使われています。

下の図は中性子ビームのエネルギーと、進行方向をそろえて試料に照射し、散乱された中性子の強度分布を測定する小角散乱の原理を示しています。



インディアナ大 ピーン氏資料を加工

(2) 装置の外観



集光型偏極中性子超小角散乱装置

左の写真は現在日本原子力研究開発機構の JRR-3 で使われている小角散乱装置の外観です。右奥の原子炉から取り出した中性子ビームを、エネルギーとビームの方向をそろえて試料に照射します。試料で散乱された中性子は、緑色の円筒状の容器の中で円錐状に広がり検出器に到達します。検出器によって計測された中性子の数と散乱角の関係をもとに、試料の内部構造や分子、原子のサイズなど、材料の特性を明らかにします。

写真提供:日本原子力研究開発機構

(3) 測定対象や測定例

項目	内容
測定対象	有機材料、無機材料、生物試料
測定例	<ul style="list-style-type: none"> ①高分子溶液の分子構造(界面活性剤のリン脂質分子が液体中に分散した集合体であるミセルのナノレベルの構造解析) ②生体物質分子の凝集・相分離構造(天然たんぱく質の凝集・相分離の構造解析) ③金属・鉄鋼中のナノ構造物(不純物、析出物と材料強度との関係調査) ④超伝導体の磁気量子評価(反磁性体を磁気量子数で評価) ⑤スキルミオン(光で誘起される電子的および磁氣的秩序に関する現象の観察)

日本原子力研究開発機構HP資料を加工

6 中性子小角散乱(2)

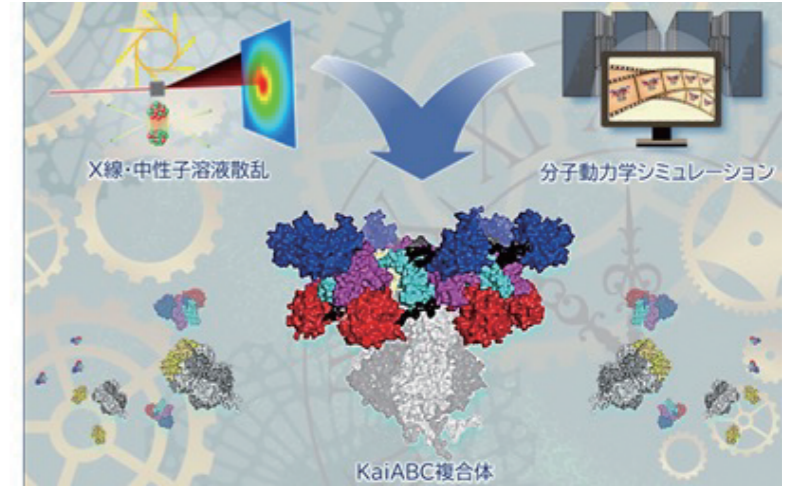
(4) 事例

1 創薬・医療

医薬品の開発には生体物質の構造や動きを理解することが必要です。下図にX線や中性子による小角散乱法による分子構造解析と解析シミュレーション技術を組み合わせて、生体を持つ時計の機能において中心的な役割を担っている大型の生体高分子複合体の構造を解明した学術的な事例を示します。

ここに示す例は最新の量子ビームによる構造測定手法と、計算機シミュレーションによる分子の運動解析手法を組み合わせた画期的な手法の研究成果です。

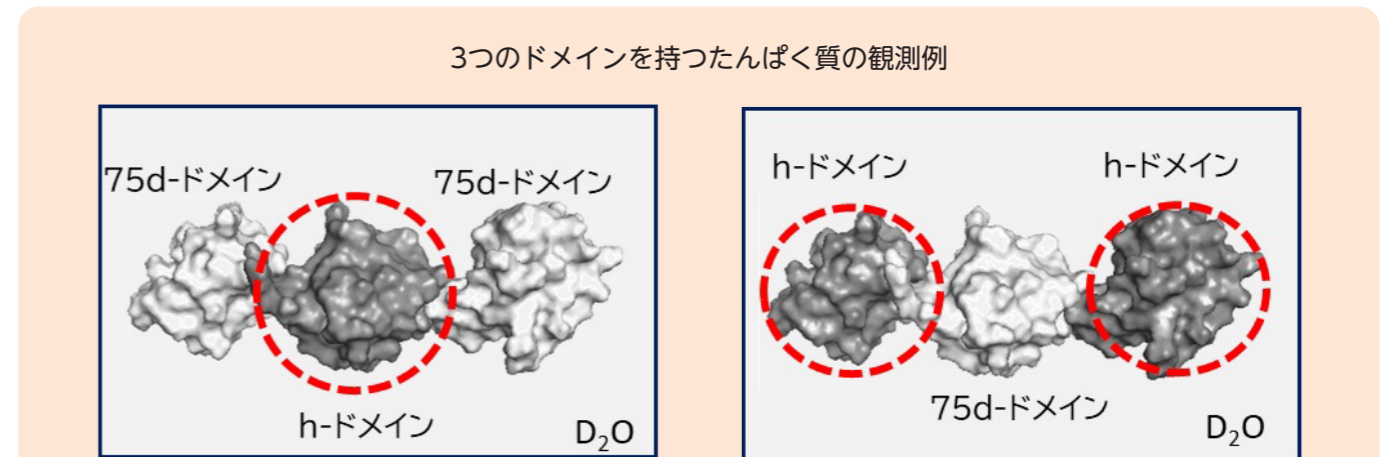
この事例から、中性子とX線の散乱技術と解析シミュレーションにより生体高分子構造のみならず動きまで解明できるようになり、更にクライオ電子顕微鏡・核磁気共鳴法・AI構造予測と組み合わせて「将来の薬剤開発」にとって重要な技術になると期待されています。



資料提供:京都大学

重水素化技術を使ったたんぱく質の特定ドメインの観測法

このような構造観察には、通常の水素(H)の代わりに中性子との反応の割合が大きな重水素(D)を使用して、目的とするたんぱく質だけを選択的に観測することが出来る技術が幅広く使われています。この例を下図に示します。



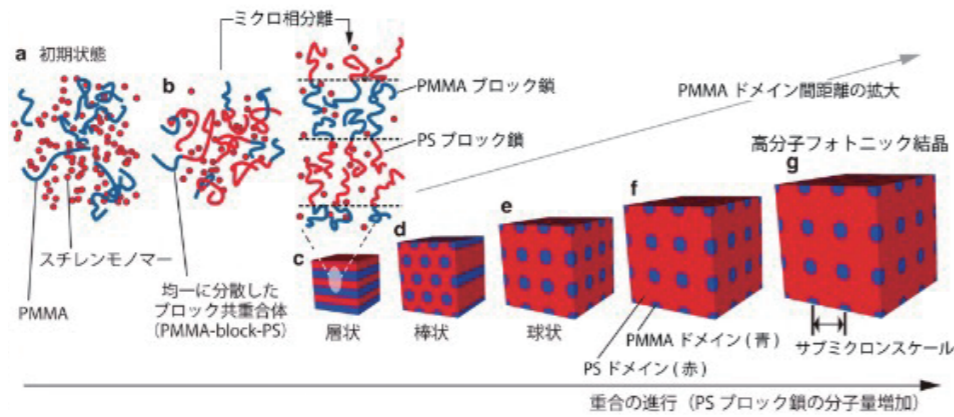
資料提供:京都大学

たんぱく質を構成するドメイン(図中の灰色・黒色)の中の水素の内75%を重水素に置き換える(灰色)と、そのドメインは重水中(同じく灰色)では、同化して見えなくなります。一方、そのような置換をしていない普通のドメイン(黒色)は、そのような事は起こらずに、問題なく観測されます。このことを逆手にとって、たんぱく質の中のドメインの配置(赤の点線の丸)を詳細に観測する手法が中性子独自の逆転コントラスト同調法です。ここで、重要な特殊な重水素化たんぱく質を作成する手法は京都大学複合原子力科学研究所にて開発・確立されています。

6 中性子小角散乱(3)

2 プラスチックの重合過程での結晶構造の変化観察

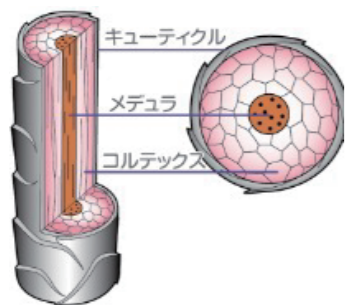
スチレン溶液中でポリメタクリル酸メチル(PMMA)を出発物質として、重合過程を小角散乱で調べた事例です。出発物質(図中a)のPMMAはスチレン溶液中で共重合体となり、さらに進むと相分離(図中b)を起こし、結晶体(図中c)の起源になります。それが時間経過とともに成長して最終的にはサブミクロンスケールほどの大きな結晶(図中g)に成長して重合が完成します。このように、水素・酸素・炭素などで構成される高分子の重合過程に中性子小角散乱法を適用することで、結晶の成長過程を観察できることが確認されています。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

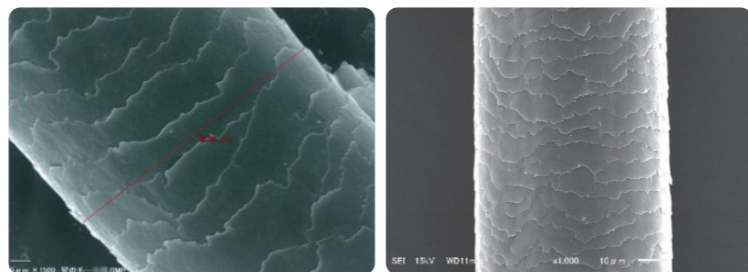
3 ヘアケア材の開発に向けた毛髪の構造解析

毛髪の性質を詳細に調べる構造解析に、中性子小角散乱を使った事例が報告されています。毛髪は、皮膚の中にある毛根と皮膚から外に出ている毛幹から構成され、毛根の中で毛髪の細胞が毛細血管からアミノ酸やビタミン・ミネラルなどの栄養を受け取り、分裂を繰り返して細胞数を増やし、毛髪に変化(角化)し、髪が伸びていきます。成長した毛髪は、下図に示すように、一番外側のキューティクル、中間を埋めているコルテックス、中心部のメデュラから構成されています。



キューティクルは外部からの物理的な力や水・薬剤などの化学物質から守り、コルテックスは水分を保持して毛髪の強度を維持しつやを出し、さらに内部のメデュラと言われる中心部も「つや」を出す役目をしています。

これらの構造物質は、各種のたんぱく質やアミノ酸から構成され、水に対する「なじみ」が部位によって異なることから、毛髪の内部構造と水の挙動の把握はヘアケア剤などの開発に重要な役割を果たす因子です。従来簡便に行われてきた右図に示す電子顕微鏡では水の挙動が把握しにくいので、水に対する感度の高い中性子を使った内部構造の解析に中性子小角散乱法を適用する試みが行われ、今後の研究の有効な手段として期待されています。



毛髪の電子顕微鏡写真

資料提供: 日華化学(株)

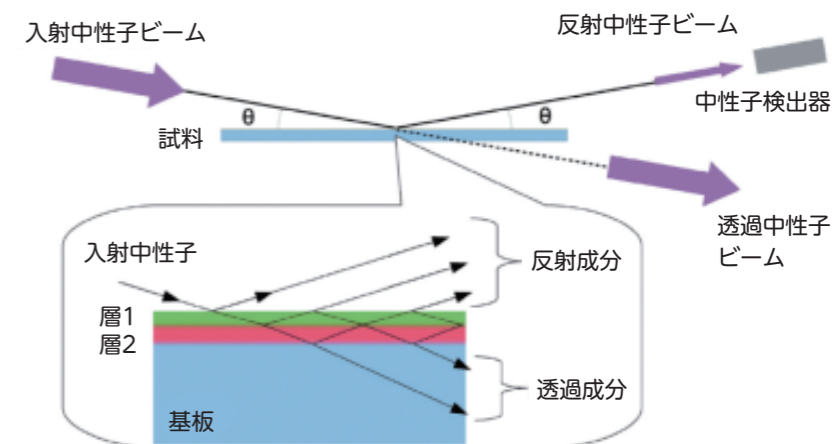
7 中性子反射率計(1)

(1) 測定原理

中性子反射率計は、異なった材料の境目(界面)で、中性子が光の反射と同様の振る舞いをする性質を利用して、材料の表面付近の構造や表面に生成されている薄膜や多層膜の厚み、密度、組成、粗さなどを非破壊で測定する技術です。

対象とする層は、ナノメートル(千分の1マイクロメートル)から数マイクロメートルの範囲です。

この中性子の反射率の測定装置は電子線やX線などのビームに比べて、材料のかなりの深い内部に入り込み、軽元素(水素や炭素など)を含む材料(高分子や水や油などを含む界面活性剤)の構造解析や磁気構造などの解析ができることが大きな特徴です。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

(2) 装置の外観

右の写真は日本原子力研究開発機構のJRR-3に設置している反射率計の外観です。

小角散乱装置と比較すると中性子ビームの供給系や検出器周りがかかなり簡素化されています。なお、この装置は熱中性子を利用する設計となっています。



偏極中性子反射率計

写真提供: 日本原子力研究開発機構

(3) 測定対象や測定例

項目	内容
対象分野	塗料塗布材、薄膜、フィルム
測定例	<ul style="list-style-type: none"> ①情報・通信部品(電子素子の導通・絶縁メッキ) ②高分子・化学材料(マイクロマシン電子接合のための銅・エポキシ接合の界面状態) ③エネルギー関係材料(燃料電池電極表面の酸化チタン薄膜の界面構造の測定、製造条件の把握) ④医療・生体組織(糖尿病検査のためのグルコースセンサの電極表面の構造観察) ⑤繊維素材(撥水・浸水処理繊維の界面状態やカーボンナノチューブなどの繊維接合面の観察) ⑥機械部品のメッキ材や塗装剤(腐食防止メッキや摺動部への耐摩耗材塗布) ⑦鉄鋼・金属材料などの複合金属(アルミ・鉄材の接合面) ⑧建設用機器部材(2重ガラス充填剤の界面) ⑨食品素材(食品ろ過の界面)

日本原子力研究開発機構HP資料を加工

7 中性子反射率計(2)

(4) 事例

1 製品分野ごとの適用例

日本原子力機構のJRR-3では、下表に示すように多くの産業分野の多岐にわたる製品の部品表面や複合的に構成している材料の界面の解析に使われております。

事業分野	製品分野の事例
情報・通信	①半導体製造部品の層間絶縁・導電被覆材(半導体・コンデンサ・スイッチなどの部品接続や絶縁被覆材の影響評価) ②ハードディスク用磁性材料(磁気ヘッド素子の反強磁性と強磁性体交換結合膜の評価) ③量子ドットレーザー(半導体レーザー表面の構造観察) ④フォトニック結晶(屈折率が周期的に変化する構造、半導体結晶体の構造観察)
化学	①触媒(光触媒の表面構造観察) ②腐食(材料の表面腐食状況観察) ③界面活性(洗剤効果観察) ④接着(接着面観察) ⑤粘性(液体接触面の評価) ⑥濡れ(液体物質表面の付着状態評価)
エネルギー	①燃料電池(電極材と電解液の界面観察・界面観察) ②太陽電池(シリコン結晶と電極材接合観察) ③超電導材料(金属接合部観察) ④水素吸蔵材料(材料内部の水素量測定)
医療・生体	①生体膜(細胞膜、細胞内の核膜などの界面の評価) ②バイオセンサー
繊維・素材	①撥水・親水処理
機械	①摺動(摩擦防止塗布材の密度) ②潤滑(潤滑材の接触面状態、効果測定) ③接合(圧着強度などの状態観察) ④センサー(歪センサーなどの圧着状態観察)
鉄鋼・金属	①熱処理(熱処理温度による酸化膜の発生状況の把握) ②塗装(防食塗装などの被膜検査) ③メッキ(防食などのメッキ膜厚測定) ④酸化膜(金属の熱間圧延や焼鈍時の酸化膜発生度合いの評価)
建設	①軽量構造材料(表面観察) ②耐候性材料(金属材料の表面状態観察) ③遮光ガラス(合わせガラスの充填フィルムの水分と密度測定)
食品	①包装フィルム ②濾過(溶液との界面評価) ③分離精製(分離膜の界面特性) ④生分解プラスチック(表面密度)

日本原子力研究開発機構HP資料を加工

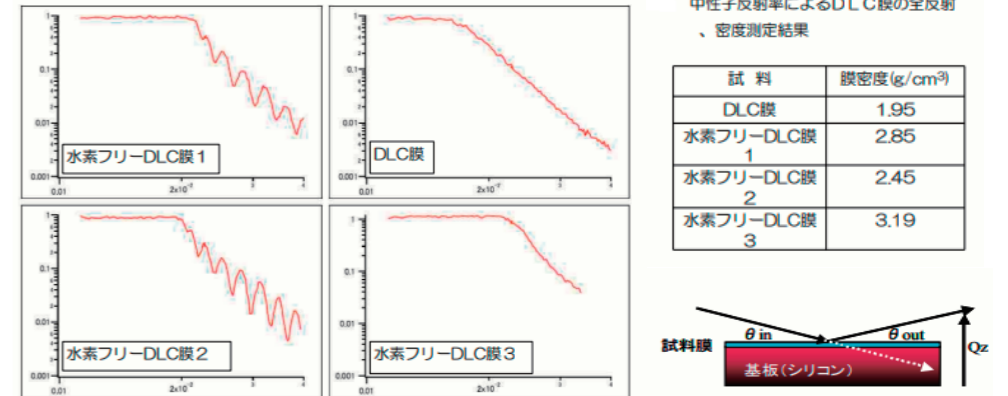
7 中性子反射率計(3)

2 水素フリーDLC膜の膜密度評価

金属材料が摺動し合う自動車部品や工具部品等は低摩擦、耐剥離、表面円滑、高寿命などが要求されるため、金属表面にダイヤモンドライクカーボン(DLC)膜を塗布する方法が開発されてきました。DLC膜の高密度化や高硬度化を図るために、水素を減らす研究が行われており、その一つとして水素の挙動に敏感な中性子反射率法により評価した事例が報告されています。

アーカイオンプレーティング法により、DLC膜をウエハー上に製膜し、JRR-3で膜の密度の評価を行いました。

本実験では、通常のDLC膜と水素の量を制御したサンプル3個を用意し試験をしたもので、中性子反射率計により試料ごとの中性子の反射パターンが得られました。これらの反射パターンを解析したところ、表に示すように、初期の目的である水素の含有量の制御により密度が確実に高くなったことが確認され、膜の評価手法として中性子反射率法が有効であったことが報告されています。



出典: 文部科学省: 「中性子利用技術移転推進プログラム」業務実施結果報告書

3 Bi系高密度光記録材料薄膜の深さ方向の組成分布解析

保護層の異なるBi系高密度光記録材料(下図に示す4層の薄膜構造)の試験に中性子反射法を利用した事例を紹介いたします。同様の試験はX線反射法でも行われ、記録層(断面図の2層目)のホウ素(B)に対する散乱断面積が小さく、界面構造や組成分布の解明が困難だったため、ホウ素の存在に敏感な中性子を併用することで、これらの解明を試みたものです。

その結果、下の2つの反射率測定結果(グラフの赤線は試料1、青線は試料2)に示すように、保護層の種類によって反射率特性(薄膜中の層構造)に違いが生じることが判明しました。また、X線の反射率特性に対する3層モデル解析を試みたところ、試料1については図3に示す結果が得られましたが、試料2については良いフィッティングが得られませんでした。

このことから、保護層にSiNを用いた場合は、保護層と記録層の間に拡散遷移層が形成されることが示唆されたことから、今後、中性子の反射率特性を解析して比較検討を行う方針としています。

本試験のように、より広い空間領域を調べられるX線と、軽元素の識別に力を発揮する中性子を併用することで、それぞれ単独の測定より範囲・精度の高い構造解析が可能とされています。

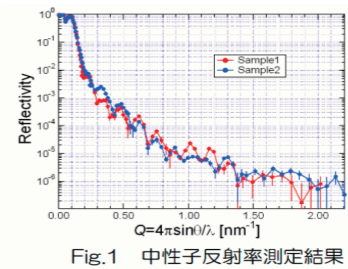
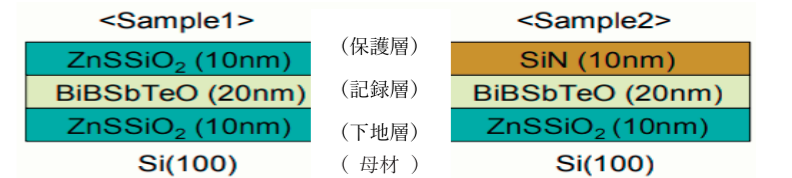


Fig.1 中性子反射率測定結果

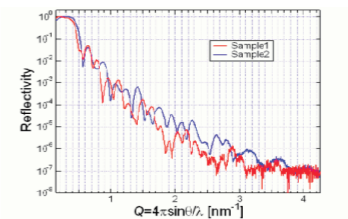


Fig.2 X線反射率測定結果

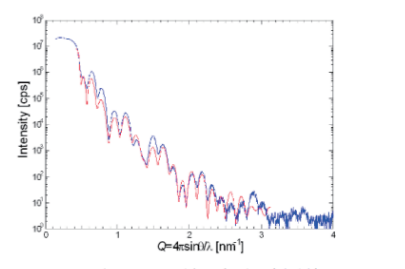


Fig.3 試料1のX線反射率(青線)とそのシミュレーション(赤線)

	密度g/cm ³	膜厚nm	界面粗nm
ZnSSiO ₂	4.21	12.05	0.93
BiBSbTeO	6.30	21.59	0.82
ZnSSiO ₂	3.06	11.96	1.26
Si	2.33	∞	

出典: 文部科学省: 「中性子利用技術移転推進プログラム」業務実施結果報告書

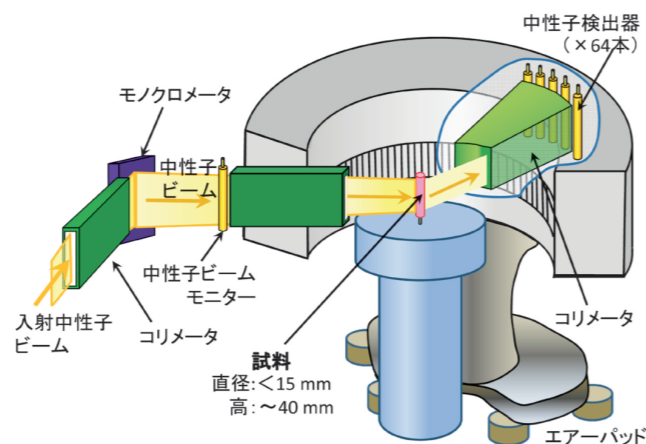
8 中性子回折(1) 粉末回折(その1)

(1) 測定原理

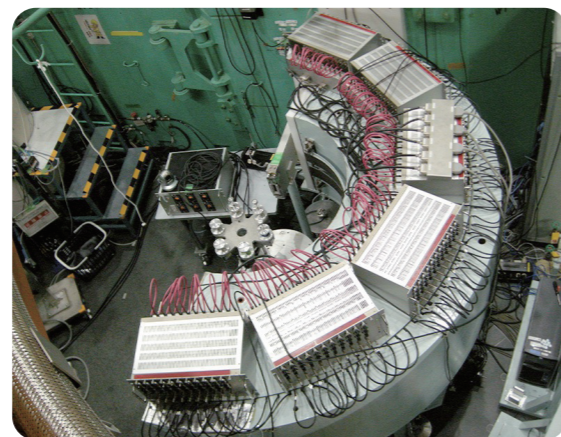
粉末回折は、粉末試料の原子の配列を中性子の回折現象を利用して解析する方法で、特に水素やリチウムなどの軽元素を含む物質の原子構造や磁気の構造解析に広く使われている手法です。

高分解能により複雑な結晶構造の解析や変調構造と言われる単純な周期性を示さない物質の構造分析も可能で、回折装置の中でも幅広い分野で使われています。

測定原理を右図に示します。中性子のエネルギーやビーム幅をそろえて試料に照射し、試料中の結晶で回折された中性子の強度を、数度刻みに複数の中性子検出器で測定しデータ処理により構造解析をします。



資料提供: 日本原子力研究開発機構



高分解能粉末中性子回折装置

写真提供: 日本原子力研究開発機構

(2) 装置の外観

右の写真はJRR-3で使用されている回折装置です。緑の部分がビームラインで、中性子ビームを取り出し、中性子を中央にある試料にあて、回折された中性子は右側の円弧状に設置された検出器群(64個)で計測します。

(3) 測定対象や測定例

中性子は軽元素である水素やリチウムの存在に敏感であることから、電池材料の電極や電解質の材料中の水素イオンやリチウムイオンの位置同定や運動についての解析に広く用いられています。また、磁気散乱を用いて、金属の磁気構造や各種無機材料の構造解析に広く使われています。

なお、中性子は鉄などの容器を貫通する能力があることから、JRR-3では約マイナス270℃から常温までの低温領域、600℃までの高温領域(電気炉設置)について、金属やセラミックスの温度依存性や特性変化なども調べることが出来るようになってきました。

以下に代表的な対象と測定例を示します。

項目	内容
対象分野	電池材料、鉄鋼材料、セラミックス、無機化合物、ガラス材料など
測定例	①リチウムイオン電池電極や燃料電池電解質などのイオン伝導体(セラミックスや高分子シート) ②鉄鋼材料の原子構造や磁気構造解析(ステンレス鋼のマルテンサイトの体心正方結晶構造、フェライト体心立方結晶構造) ③セラミックスなどの結晶構造(炭化ケイ素(SiC)) ④磁性体の磁気構造(磁性体の結晶構造解析) ⑤ガラスなどの非結晶体の構造(分子構造)

日本原子力研究開発機構HP資料を加工

8 中性子回折(2) 粉末回折(その2)

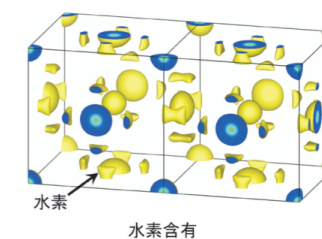
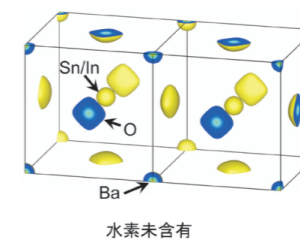
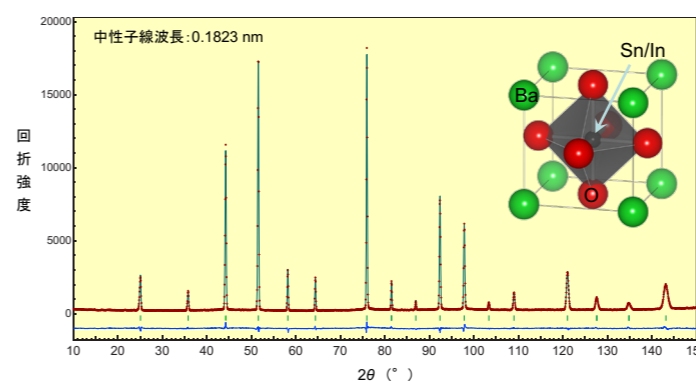
(4) 事例

1 水素伝導体の解析結果

下の図は、リチウムイオン電池の固体電解質(イオンの移動が可能な固体結晶体)の一種であるプロペスカイト(バリウム:Baと錫・酸化インジウムの化合物:Sn/In)の構造を、低温(約マイナス260℃)粉末回折法を用いて測定し、解析した例を示します。

左側のグラフは回折強度と回折角の関係と測定値から導かれたバリウム(緑色)、酸素(赤色)、錫とインジウムの化合物(中央の正方形)の構造を示しています。

また、右の図は、この結晶体が水素を吸収する前後の状態を示しています。



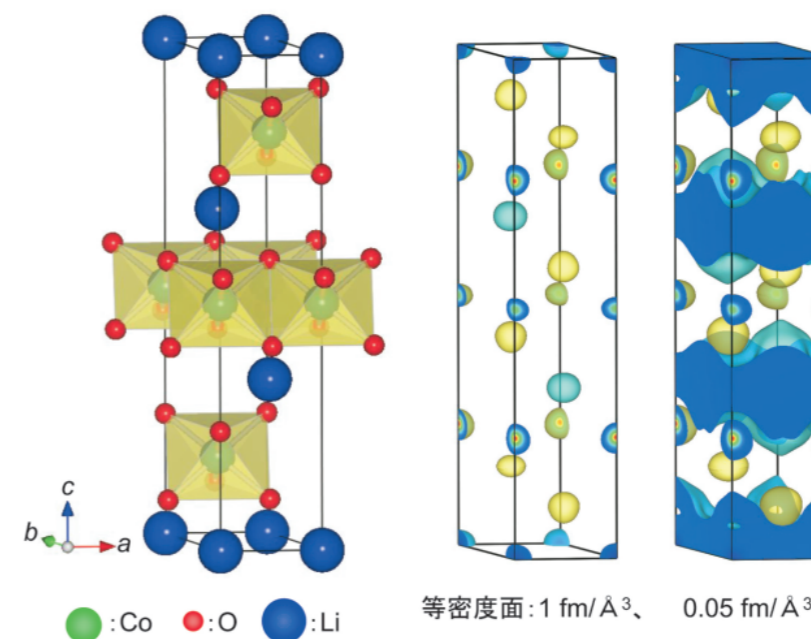
資料提供: 日本原子力研究開発機構

2 リチウムイオン電池の正極材料の結晶構造

粉末回折装置によってリチウムイオン電池の正極材料である、リチウム酸化コバルト・マンガン・ニッケルの結晶構造を解析し、下に示すような構造であることが確認されています。

右端の拡大図に示すように、リチウム原子だけが2次的に広く分布しLiイオンの伝導経路に対応しています。

このようにリチウムのような低原子番号の元素の動きが分かるという特徴があります。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

8 中性子回折(3) 残留応力(その1)

(1) 測定原理

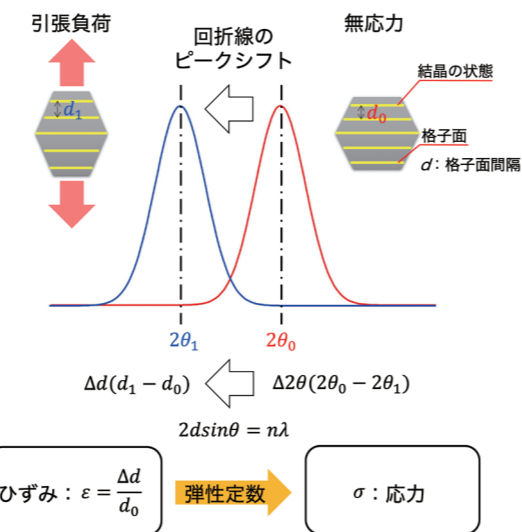
結晶格子面の間隔(隣り合う原子格子面どうしの配列)の変化を試料の「ひずみ」の変化として測定し、数値計算により応力を算出する方法は「応力測定」法と呼ばれ、国内外の研究炉の産業利用ではかなり多くの実施例が見られます。

中性子応力測定は、中性子の優れた透過能を生かすことで、数mmから数十mmオーダーの材料内部のひずみ・応力状態を非破壊・非接触で測定することができる唯一の測定技術として知られています。

角度分散型回折装置を使って格子面のずれを求め、回折線のピークシフトから金属や高分子固体材料の残留応力を測定することができます。

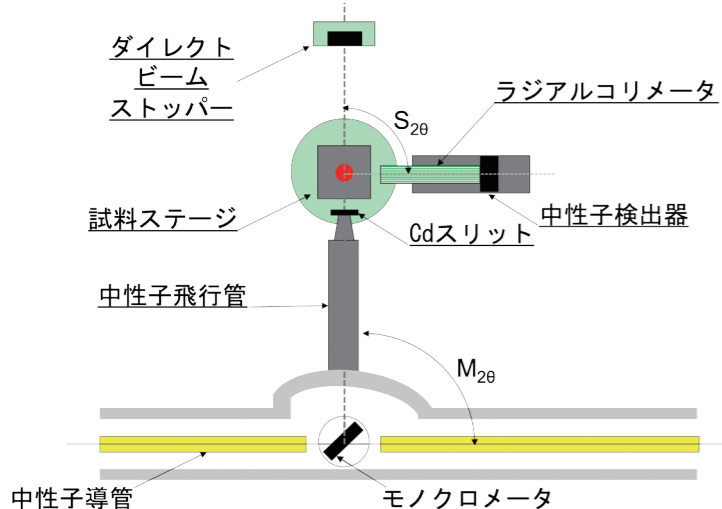
この手法は、自動車の機械部品、発電所などの構造材料、などの高い信頼性が要求される構造設計や健全性検査に使われるようになってきています。

X線と中性子線による回折法の大きな違いは、金属材料中での応力測定可能な深さは移動式X線装置では約20 μ m、放射光X線でも約10mm程度に対して、中性子は6~8cm程度とかなり厚物の金属材料の応力測定が可能です。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

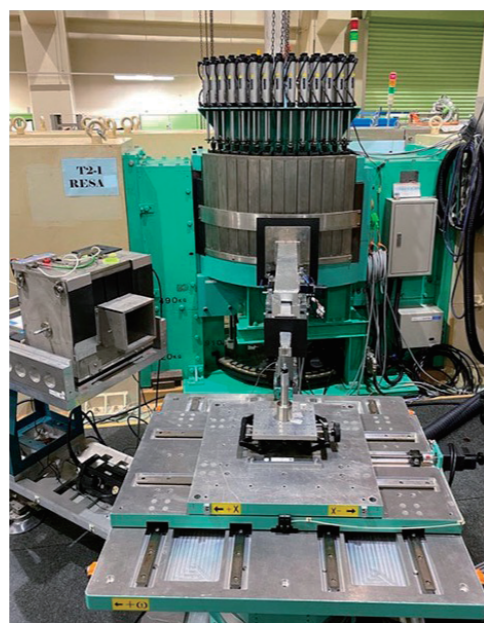
左図は応力測定装置の概念図を示します。試料ステージに固定された測定試料に向けて図の下部から、モノクロメータでエネルギーを選別した中性子を照射します。試料の内部で回折した中性子は右側に設置した検出器により、回折線を測定します。測定された回折線は回帰分析処理し、試料内部の応力分布を解析しています。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

(2) 装置の外観

右の写真は残留応力を測定するための装置で試料ステージ方向から見た写真です。中央部の台座に試験体を設置し、左側の四角の箱の中に設置した中性子検出器により、試料より回折した中性子を測定します。



中性子応力測定装置
写真提供: 日本原子力研究開発機構

8 中性子回折(4) 残留応力(その2)

(3) 測定対象や測定例

項目	内容
測定対象	金属材料、複合材料
測定例	①アルミニウム合金や鉄鋼材料などの構造材料 ②自動車エンジンやロケットエンジンなどの高温で使用する輸送機械部品 ③インフラ施設構造物(橋梁、水道・ガス管、送電用鉄塔など) ④鉄道レールや車両 ⑤発電プラントなどの溶接構造物 ⑥鉄筋コンクリート建造物

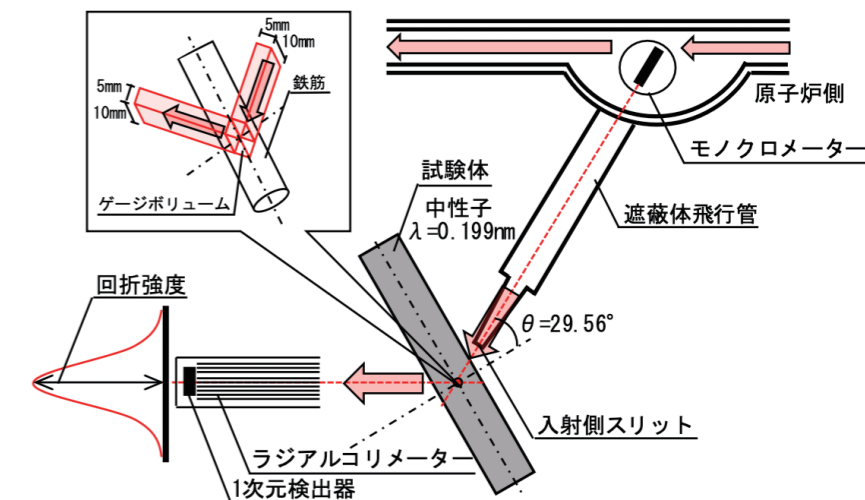
日本原子力研究開発機構HP資料を加工

(4) 事例

1 鉄筋とコンクリート間の付着力評価

鉄筋コンクリートは、圧縮に強いコンクリートと引張に強い鉄筋を相補的に組み合わせた複合材料であり、鉄筋とコンクリート間の付着力が、コンクリート構造物の性能発揮に重要なパラメータとなります。この付着を一旦失えば、人命はもとより経済的な損失をも被る甚大な被害を招く可能性があります。そのため、この付着力を正確に評価しておくことは重要となります。

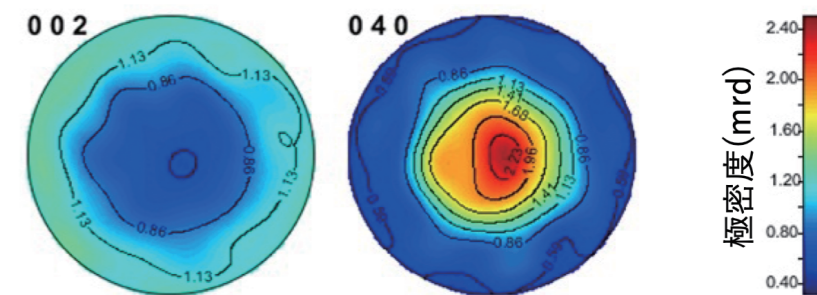
付着力は、コンクリートに埋設された鉄筋の応力分布を測定することにより評価することができます。これまでは、鉄筋に貼付したひずみゲージを用いて測定されてきましたが、ひずみゲージ周りの付着劣化によって、正確な付着特性を評価することが困難とされてきました。この問題を解決するため、鉄筋コンクリートの付着力評価に中性子回折法による非破壊応力測定技術が応用されています。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

2 炭化鉄(Fe₃C)の集合組織測定

鉄鋼材料の構成相の一つであるセメントイト(Fe₃C)変形メカニズムを理解することは、鋼の機械的特性を明らかにし、改善することに関して非常に重要です。しかし、セメントイトの単相構造の研究では、試料調整の困難さがあるため、セメントイトの変形挙動は十分に評価されていませんでした。本研究では単相構造のバルクセメントイトを製造し、EBSD(電子後方散乱回折)法と中性子回折法を相補利用することで、一軸圧縮によって形成される変形集合組織(変形によって結晶が任意の結晶方向に配列する組織のこと)を対象にしました。製造されたままの試料はランダムな集合組織で、これに833Kで50%の圧縮ひずみを加えると、圧縮軸に沿って、(040)繊維集合組織が形成されました。その結果、セメントイトの主すべり面は(040)である可能性を導き出しました。



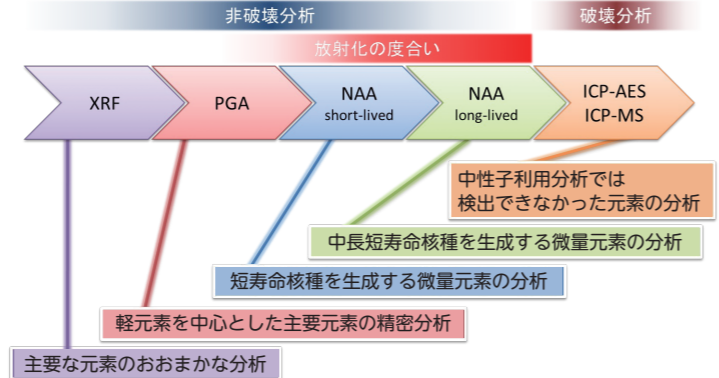
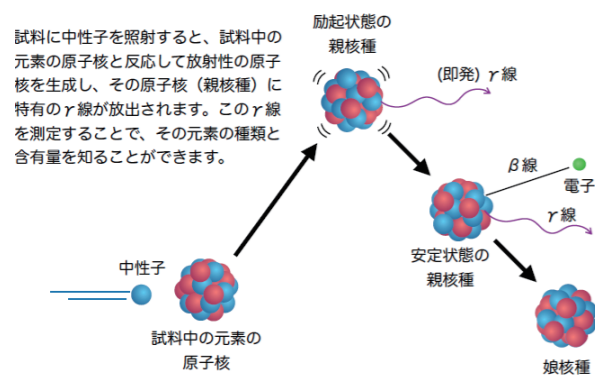
炭化鉄(Fe₃C)の変形集合組織

資料提供: 日本原子力研究開発機構

9 中性子放射化分析(1)

(1) 測定原理

放射化分析は試験研究炉において広く利用されている分析手法です。下図に示すように、試料中の元素（図では親核種と記載）が中性子と相互作用した瞬間に放出されるγ線を測定する「即発γ線分析法 (PGA)」と、中性子と親核種の相互作用によって生成する比較的半減期の長い放射性核種から放出されるγ線を測定する「中性子放射化分析法 (NAA)」とがあり、どちらの方法でも試料中の元素の種類と含有量を測定することができます。右図のように、中性子放射化分析を含む様々な分析技術の特徴を活かして組み合わせて実施することで効率的な元素分析が可能となります。一般的な分析方法と中性子放射化分析法の特徴を比較すると下表のようになります。



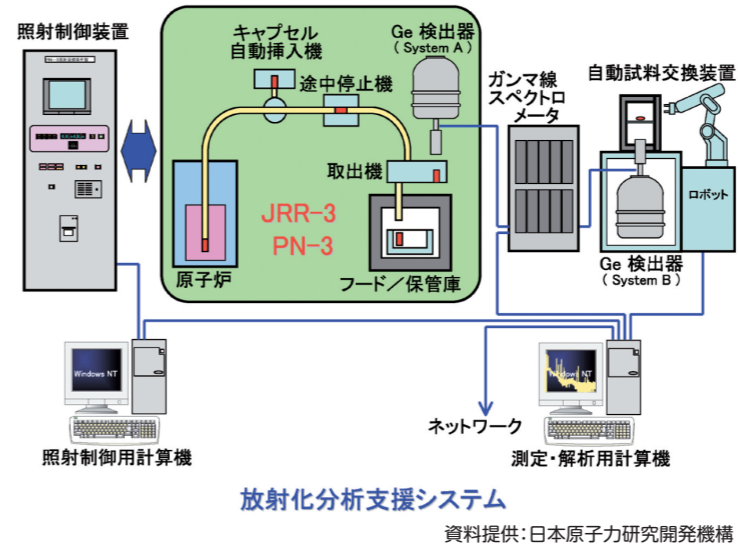
資料提供: 京都大学

測定手法	特徴					
	照射線	精度	形態	放射化	試料量	前処理
X線分光分析法 (XRF)	X線	低	非破壊	無	小	不要
即発ガンマ線分析法 (PGA)	中性子線	高	非破壊	小	中	不要
中性子放射化分析法 (NAA)	中性子線	高	非破壊	高	極小	不要
原子分光分析法 (ICP-AES, ICP-MS)	無	高	破壊	無	極小	要

9 中性子放射化分析(2)

(2) 装置の構成

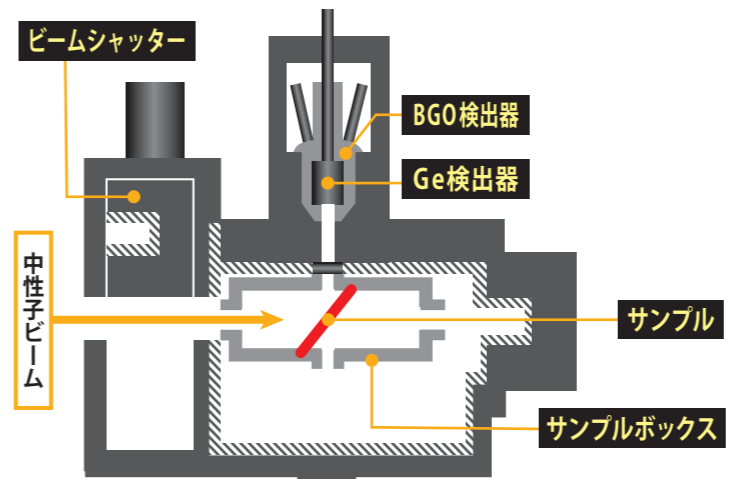
1 放射化分析 (NAA) (JRR-3の例)



資料提供: 日本原子力研究開発機構

この分析法では、試料が汚染したり放射化した試料が飛散したりしないようにプラスチックや石英ガラス、アルミニウムなどのキャプセルに密封した試料を、原子炉炉心に気圧や水圧などで送り込み、分析目的元素や母材の元素構成に応じて一定の時間中性子を照射します。照射後の試料を炉外に取り出してGe(ゲルマニウム)検出器でγ線のスペクトルを測定し、解析することで元素の同定や定量を行います。全体の構成は図のようになっており、試料の交換や照射時間などが自動化され、あらかじめ決められた条件で安全にかつ正確に分析が行われるように機器が構成されています。

2 即発γ線計測法 (PGA) による分析



即発γ線分析装置
写真提供: 日本原子力研究開発機構

この分析法では、原子炉の外部にビームとして引き出された中性子を試料に照射し、試料に含まれる元素と中性子が核反応した時に即時に放出されるγ線を計測します。機器は左図のように構成されており、左側から装置に導かれた中性子ビームを試料に照射し、元素と中性子の反応時に放出されるγ線をGe検出器で測定します。ゲルマニウム検出器のまわりには試料から放出されるγ線と、周囲の装置の構成物から放出されるγ線とを識別するためのBGO(ビスマスゲルマニウムオキシド)検出器が設置され、より精度の高い分析ができるようになっています。

9 中性子放射化分析(3)

(3) 測定対象や測定例

項目	内容
対象分野	固体試料、液体試料、気体試料
測定例	①宇宙関係(小惑星の試料、隕石) ②岩石(産地同定) ③環境試料 ④機能性材料(形状記憶合金、圧電材料、熱電素子などの材料) ⑤食品含有不純物(ホウ素(B)、重元素・金属類(Cd、As、Thなど))

日本原子力研究開発機構HP資料を加工

放射化分析は国内外で多くの利用例があり、生体試料から宇宙の惑星試料まであらゆる物質を対象に数多くの研究実績が公表されています。非破壊での分析が可能であり、試料の物理状態も固体から液体、気体までが対象となります。大きさもPGAではある程度の大きさまで分析可能です。

以下の周期表に示すように、分析精度は、一部の分析不可能な元素を除いて、最も高感度の元素で0.01 μg未満の量を検出できます。また、NAAとPGAを組み合わせることにより、より多くの元素の分析が可能です。

特にPGAでは、蛍光X線分析(XRF)などの分析法では検出が難しい軽元素の「水素、リチウム、ホウ素」の分析が可能であるという特徴があります。

NAAとPGAの検出感度

	H		元素																	He
NAA			NAA																	
PGA			PGA																	
	Li	Be										B	C	N	O	F	Ne			
NAA																				
PGA																				
	Na	Mg										Al	Si	P	S	Cl	Ar			
NAA																				
PGA																				
	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr		
NAA																				
PGA																				
	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe		
NAA																				
PGA																				
	Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn		
NAA																				
PGA																				
	Fr	Ra																		
NAA				La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu		
PGA																				
				Ac	Th	Pa	U													

NAA: 熱中性子束 10¹³n/cm²/s で算出した値
PGA: JRR-3冷中性子ビーム利用のPGA装置の値

資料提供: 日本原子力研究開発機構

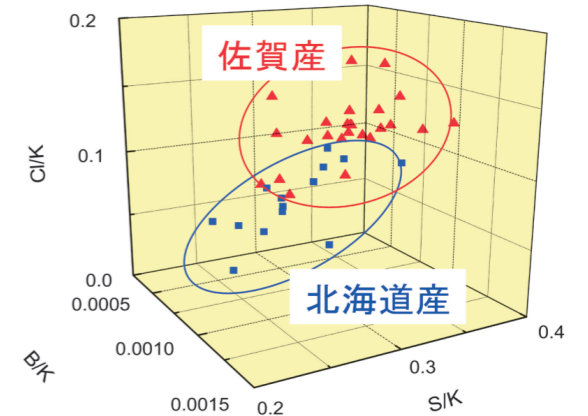
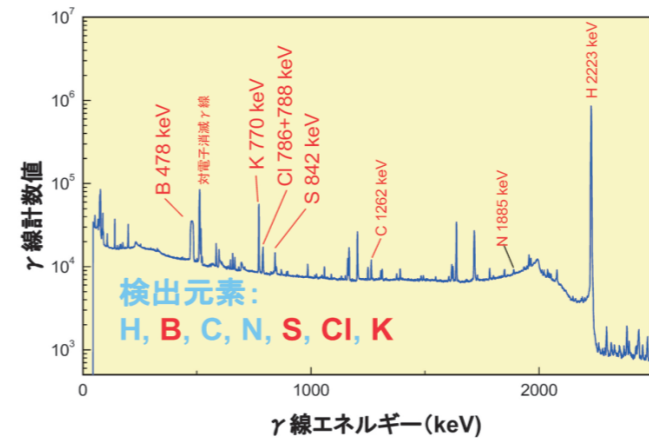
9 中性子放射化分析(4)

(4) 事例

1 玉ねぎの産地同定

玉ねぎ中の元素についてPGAによる放射化分析を行うと、下図左のようなγ線スペクトル(γ線のエネルギーと強度の関係)が得られます。

特に大きな信号が得られる元素は水素、ホウ素、カリウム、塩素、硫黄などで、水素は水由来と考えられます。このデータから、カリウムとホウ素の比、カリウムと塩素の比、およびカリウムと硫黄の比の相関を比較すると、下図右のように北海道産と佐賀県産の玉ねぎによる差が見られることから、産地の同定が可能になります。



資料提供: 日本原子力研究開発機構

2 コンクリート中の塩分測定

海水中の塩分の影響によるコンクリートの劣化は、コンクリート構造物の健全性の観点から大きな問題となっています。それを調べるために、20年から30年程度防波堤として用いられていたコンクリート中のカルシウムと塩素の分布を放射化分析により測定した結果を下図に示します。

左の写真はサンプリングしたコンクリートであり、右の2つのグラフはPGAによる分析結果です。中央のグラフはカルシウムと塩素のγ線スペクトルを、右のグラフはその結果より明らかとなったコンクリート表面からの距離に対する塩素とカルシウムの重量比の相関関係を示します。

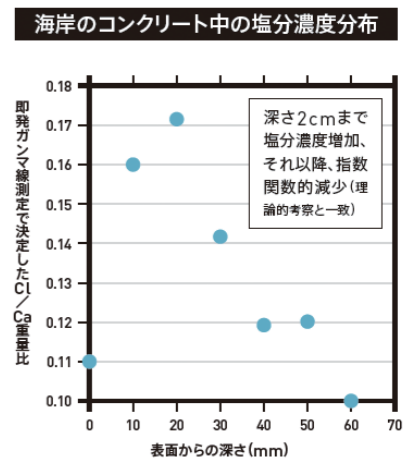
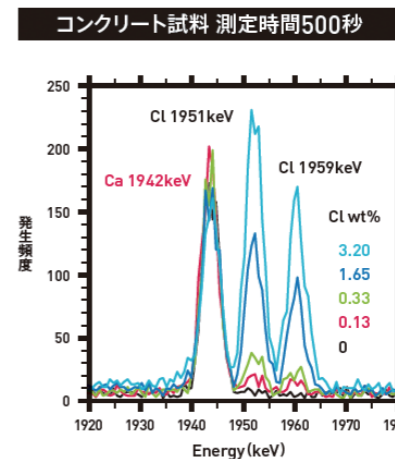
分析の結果、この年数で塩素が60mm程度まで浸透していることが判明しました。



20~30年程度、海風にさらされていたコンクリート



コア抜きしたコンクリート表面から1cm間隔で試料を採取



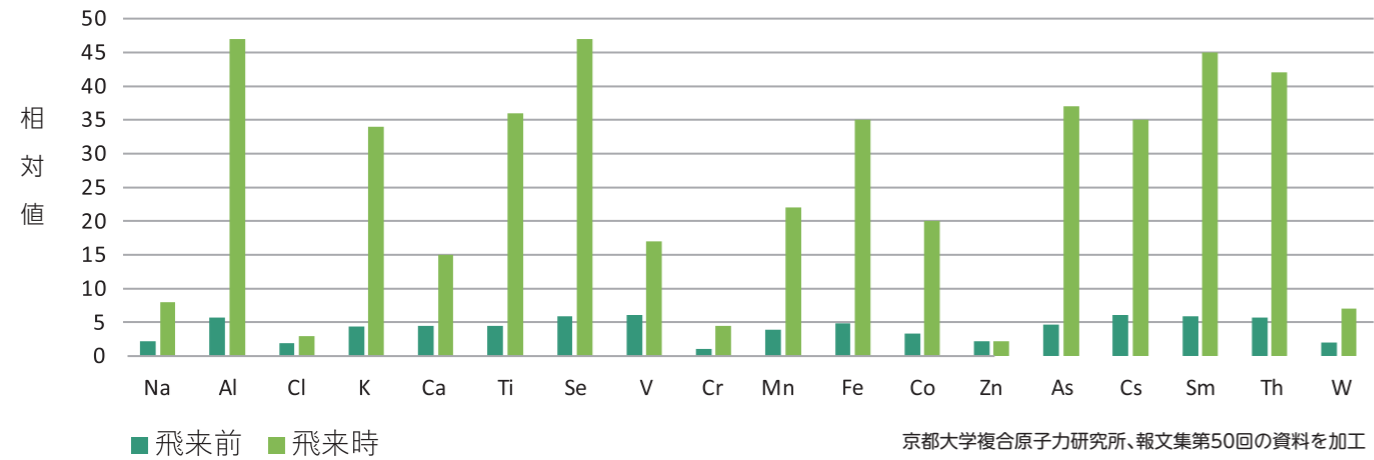
出典: 文部科学省: 「中性子利用技術移転推進プログラム」業務実施結果報告書

9 中性子放射化分析(5)

3 大気中の黄砂の含有量の測定

中国から飛来する黄砂の中の元素をNAAにより分析し、主要な元素の含有量を求めた結果です。このように大気中を漂う黄砂のような微粒子の元素の同定や定量も可能です。

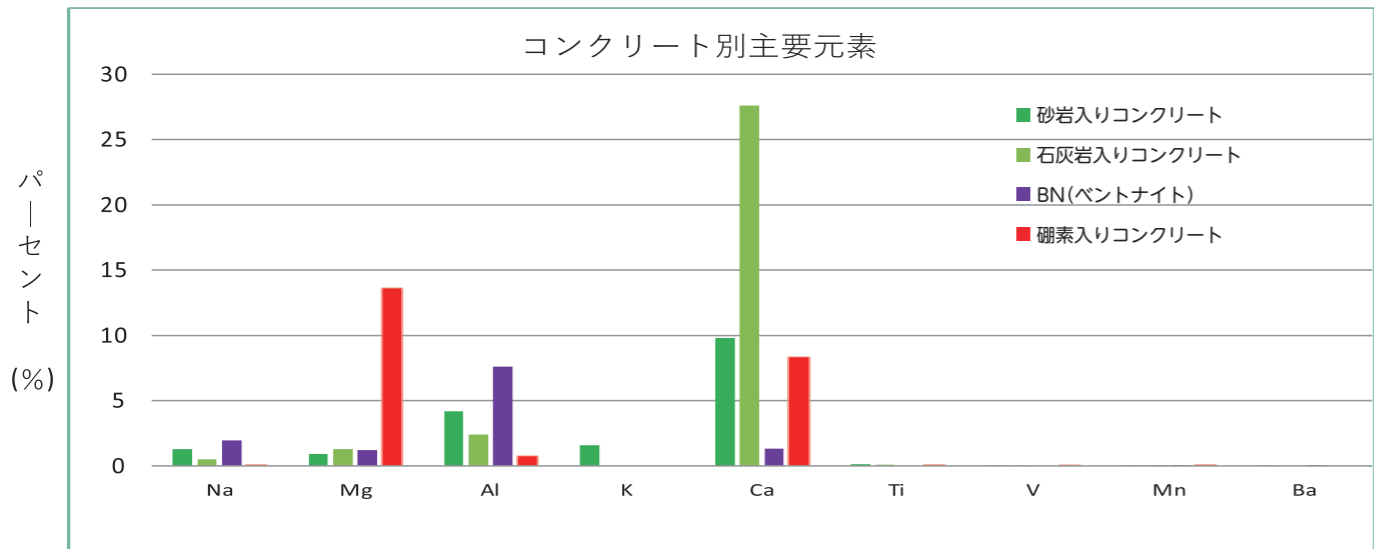
飛来する黄砂の粒子に含まれる主要元素



4 中性子遮蔽材用コンクリートの元素分析

中性子遮蔽用のコンクリートをはじめ、普通コンクリート(砂岩、および石灰岩)、ベントナイト、ホウ素入りコンクリートについてそれぞれ、100mg重量の試料に 4×10^{14} (n/cm²/s)の中性子量を照射し元素分析を行った結果を下図に示します。

コンクリート別主要元素



日本原子力研究開発機構、研究用原子炉JRR-3中性子利用による施設供用促進 平成22年度成果報告集を加工

おわりに

本ガイドブックは、もんじゅ敷地内に建設予定の新たな試験研究炉の利用促進に向けた企業の皆様への情報提供を目的に、新試験研究炉で利用可能な技術・装置や活用事例について、既存の試験研究炉(KUR:京都大学複合原子力科学研究所およびJRR-3:日本原子力研究開発機構)の実績をもとに取りまとめたものです。

産業分野における技術・製品イノベーションにはX線や電子線なども多方面で活用されていますが、ここで紹介した中性子の特長も製品開発の大きなツールとして活用いただけるものと考えております。

福井県では、本ガイドブックの作成に加え、試験研究炉に関する講習会や見学ツアー等も実施しており、運転中の研究炉の試験的な利用の支援も準備してまいりますので、ご活用いただければ幸いです。

北陸新幹線が敦賀まで開業し、大阪までの延伸も予定されております。交通の利便性が大きく高まる中、新たな試験研究炉を利用される皆様が本県を訪れ、新たなビジネスを生み出されることを期待しております。

なお、本ガイドブックの取りまとめについて多くのご示唆や、資料のご提供をいただいた京都大学複合原子力科学研究所の先生方および日本原子力研究開発機構の研究者の方々に、この欄をお借りして謝意を表します。

令和6年3月

詳しくはホームページをご確認ください。



福井県



JAEA
ユーザーズオフィス



日本原子力
研究開発機構



京都大学複合
原子力科学研究所



発行者 福井県エネルギー環境部エネルギー課
嶺南Eコースト計画室
作成者 公益財団法人 原子力安全研究協会

