

原研の固体物理研究
40年の歩み

平成12年4月

日本原子力研究所
物質科学研究部 極限物性研究グループ
(旧固体物理研究室)

日本の中性子散乱研究の最初の30年

－ JRR-2からJRR-3の改造まで －

中性子散乱研究は、原研の研究の中でも最も基礎的な研究、従って原子力とはもっとも縁遠い研究であるが、原研の発足と同時に始められ、営々と続けられて今日の発展に到った。その歴史は3期に分けられる。JRR-2の初期の利用の時期、JRR-2とJRR-3を利用して発展した時期、JRR-3の改造及びJRR-2の停止以後である。1990年JRR-3改造炉が完成した時、JRR-2の利用開始からJRR-3の改造までの最初の30年間に原研を舞台として日本の中性子散乱研究が発展してきた歴史の主な出来事を、大学等の関連する活動も一部に交えて、まとめた。今回それにいくらか手を加えたが、不完全なところがあることはお許し願いたい。

1. 黎明

日本の固体物理研究としての本格的な中性子散乱実験はJRR-2とともに始まった^{注1)}。JRR-2の建設計画が始まると、かねてから中性子散乱研究の必要性を痛感していた固体物理の研究者たちは、中性子回折装置建設委員会を組織し、ただちに装置建設の計画を進め、昭和33年度末には水平実験孔HT-10に設置する中性子回折装置の製作を発注した。大学でも、時を同じくして学会の中性子回折委員会の審議を経て東京大学物性研究所(東大物性研)のグループがHT-8に中性子回折装置を建設する計画を進めた。また、日本電電公社電気通信研究所(通研)も同じビームを分かちあって装置を建設することになった。原研の回折装置は35年度末に完成し、昭和36年には原子炉の低出力試験運転を待ちかねるようにして実験を開始した(第1図)。大学及び通研の装置も相次いで完成した。おりしも、昭和36年9月には京都で国際磁気学結晶学会議が開催され、ここで初めて日本における中性子散乱の研究活動の論文が3編発表されるはこびとなった。これらのうち、1編は UFe_2 の磁気回折を室温及び液体窒素温度で0.7Tまで磁場をかけて測定し磁気構造を決定した研究で、日本最初の本格的な中性子回折の研究成果の報告であった(第2図)。他の2編は、原研及び東大物性研の装置に関する報告であった。第二次大戦終了の年、米国オークリッジ国立研究所でグラファイトリアクターを利用して固体物理研究としての中性子回折が始められた時から15年余り遅れての出発であった。

注1: 故橋口隆吉東大名誉教授が、第5回原子力先端研究国際シンポジウム(平成5年3月)で話されたところによると、1940年代の初期にラドン-ベリリウムの中性子源により、故木村一治東大名誉教授とともに合金の規則・不規則転移などの中性子回折を写真法で測定し学会の欧文誌に発表されたとのことである。これが、おそらく歴史的な意味で日本最初の中性子回折実験であったであろう。(JAERI-M 93-228 Vol.1(JAERI-CONF 2)60-61('93): Proc. 5th Int'l Conf. Adv. Nucl. Energ. Res. - Neutrons as Microscopic Probes-, March 9-11, 1993, Mito)

2. 発展

中性子散乱研究の重要な点はいくつもあるが、磁気構造と結晶構造の問題は黎明期から今日まで一貫して中心的課題である。とくにマイクロな磁気構造解析は他の手段ではほとんど不可能なため期待されるところが大きく、JRR-2でも真っ先に取り上げた課題である。また結晶構造では、X線の不得意な重元素と軽元素の共存系であるウラン化合物や金属水素化物をとりあげた。昭和38年にグルノーブルで開かれた中性子回折シンポジウムに原研は2編の論文を発表した。モザイク結晶の反射率、 UF_4 の結晶構造、 Ti-H の振動、 Mn-Cr 合金の磁気構造をまとめて原研の活動を紹介した論文と、 MnTe の磁気構造を粉末中性子回折によって決定した論文とである。

この頃になると、格子振動や磁性体のスピン波励起など散乱強度が低くより困難な中性子非弾性散乱に歩を進め、高度な研究をしようという気運が成長した。このため、昭和40年には、それまでの二軸型の回折装置をエネルギー解析のできる三軸型分光器に改造し、今日の中性子散乱の主流となる装置の基礎を据えることになった。この三軸分光器を使用した初めての本格的な非弾性散乱の実験は Cu-Ni 合金のフォノン分散関係の測定であった。一部には、JRR-2の中性子束による非弾性散乱の実現をあやぶむ悲観論もあったが、この結果によって十分測定できることが実証された。次いで行った CaF_2 のフォノン測定では、分散関係だけでなく散乱強度も解析するという方法を取り格子力学研究を発展させた。さらに、先に粉末回折によって磁気構造を決定した MnTe について行った非弾性散乱実験は、わが国最初のスピン波分散関係の測定となった。この三軸分光器は、原研の主力装置として引き続き強磁性－反強磁性転移の研究、金属の形状記憶現象と関連の深いマルテンサイト相変態の研究、金属の析出の初期過程の研究などに使用し成果をあげた。また昭和39年には、窓のついた3枚の円盤を高速回転して単色のパルス状中性子ビームを発生し、飛行時間法によって非弾性散乱を測定する中性子分光器をHT-14に設置した。

大学では、誘電体やイオン結晶、クロムおよび合金の磁性に関する研究が盛んに行われるようになった。中性子散乱が当時最も際立った形で有効性を現したのものの一つは、原子配列の周期性と直接関係を持たない周期の非整合磁気構造の研究である。ヘリカル構造で代表されるこの種の構造の研究は、**Erickson** が行った $\beta\text{-MnO}_2$ の中性子回折に見られた不明の回折線に吉森が解釈を与えたのに端を発するが、クロムの非整合構造は遍歴電子のスピン密度波として、当時の磁性研究の最重要課題であった。原研でもクロムに関して数かずの研究を行い、上記のパルス中性子分光器を利用した研究も行った。機械的にパルス中性子を発生する方法は、3体の高速回転体の精密な位相制御を必要とするので維持に熟練と大きな労力を要する上に、加速器による核破砕で発生されるパルス中性子の利用が実用化したので、一般的な用途には使われなくなっているが、この時期には散漫散乱の測定法として $\beta\text{-MnO}_2$ の交換相互作用を決定する試みや、多検出器化を行って KMnF_3 の常磁性散乱を詳しく測る実験、金属に吸着した水素の非弾性散乱の測定などに利用した。

通研の回折装置では、Mn-As 化合物の磁気構造などの研究が行われたが、残念なことに昭和40年代の後半には通研の方針として利用が中止されてしまった。しかしこれにより、HT-8実験孔のビームを共用していた東大物性研の分光器側では、モノクロメーターに関する制約がなくなり、昭和48年にはダブルモノクロメーター型への改造が行われた。この装置を使用しては、誘電体やイオン結晶、超イオン伝導、低次元磁性体の相転移、磁気異方性の異なるイオンの混合系などの研究が盛んに行われ成果があげられた。

JRR-3では、昭和41年H-7に東北大学金属材料研究所・大阪大学理学部・原研の共同で、二軸回折装置が作られ、それぞれの頭文字をとって TOG と呼ばれ中性子回折への利用が開始された。これは、原研がもとJRR-1で全断面積測定に使用していたモノクロメーターを移設し、それに東北大と阪大がいくらかの付属機器を持ち寄ったものであった。原研はこの装置を使用して U_4O_9 の構造研究などを行った。東北大金研は金属中の軽元素の構造や磁性体の構造を、また阪大は α -Mn の磁気構造をはじめとする種々の磁性体の研究を行った。また昭和42年には、東大物性研によりH-3実験孔に偏極中性子回折装置と4サークル回折装置が設置された。

この頃までのいわば草創期に日本の中性子散乱研究を築きあげてきたのは、原研では国富、濱口、大学では星埜、故石川など金属や磁性の研究者と誘電体研究者が中心であり、その後の研究の発展を強く方向づけることとなった。

3. 躍 進

最初の中性子回折装置の設置から約10年経った昭和45年、JRR-2のHT-1水平実験孔に新しく三軸中性子分光器が東北大学理学部によって設置された。この装置は原研の装置とほぼ同じタイプの標準的三軸型中性子分光器で、磁性電子の局在性の強いものから遍歴磁性電子系まで系統的に金属の磁気励起が研究され、金属磁性の解明に大きく寄与する成果があげられた。

同じ頃、JRR-3ではH-8実験孔に偏極中性子回折装置が東北大学金研によって設置された。この装置には、これより前にJRR-2の原研の三軸分光器の遮蔽の強化が行われ、そのため不要になっていた古い遮蔽体が利用された。種々の磁性体の中のスピン分布の研究や磁性カルコゲナイドなどの磁気構造研究が始められ、同じくJRR-3に設置されていた東大物性研の偏極回折装置での金属の磁気形状因子の測定とならんで本格的な偏極中性子回折の研究が進められるようになった。

偏極中性子に関するやや異色の実験は、原研、高エネルギー物理学研究所(高エ研)、東北大金研の合同実験として行われたエチレングリコールの陽子偏極実験である。原子炉を利用する単色の連続中性子ビームの偏極には、Fe-Co 合金やホイスラー合金の磁気回折を利用するのが通常の方法であり、非常に偏極率のよいビームが得られるが、加速器のパルス状の白色中性子の偏極にはエネルギー選択性のある磁気

回折を利用できない。この実験は、そういう場合にも利用できる偏極法を開発する試みとして、適当な物質中の水素原子の核スピンを極低温で磁気共鳴により動的に整列し、ここを透過する中性子の陽子による散乱のスピンの依存性を利用して偏極フィルターとする可能性をたためすものであった。高エ研から特殊ヘリウム3クライオスタット、ポンプ、電磁石、マイクロ波装置などをJRR-3に運び込み、高エネルギー研究の陽子偏極標的として開発されていたエチレングリコールの水素の核スピンの整列を行い、東北大金研の偏極中性子回折装置のビームを利用して実験し、約 80%の中性子偏極率を得て実用の可能性を示した。この方法による偏極中性子は、現在高エネルギー加速器研究機構の中性子散乱施設で実用化されている。

昭和46年、JRR-2のHT-11に中性子トポグラフィ装置を設置した。この装置は他と少し性格が異なり、回折ビームの写真撮影をして試料中の局所的な回折強度分布を調べ、結晶の乱れなどを研究するものである。ブリッジマン法によって製作した銅単結晶中に、成長過程を反映した約 1mm 間隔の規則的な結晶の乱れを見出すなどしている。この装置では、中性子干渉計としての基礎研究や1秒以下の極小角散乱のような精密実験も行った。

昭和45年頃になると小型計算機が普及しはじめ、三軸中性子分光器の制御が完全に自動化された。それまでは何日も前から予め種々の結果を想定し、複雑な手順によっていくつもの測定プロセスを準備して置かなければならなかったが、この自動化により、一つ一つの測定結果を見ながら最適の測定が進められるようになって効率が格段に向上し、三軸分光器の隆盛時代に入った。

昭和50年には、JRR-2のHT-2にダブルモノクロメーター型の三軸中性子分光器を建設した。この装置では、日本ではじめて空気浮上方式を採用した。三軸分光器は、モノクロメーターを中心にして試料テーブルが回転し、試料テーブルを中心にアナライザーが回転し、アナライザーを中心に検出器が回転する構造である。しかも、非弾性散乱は非常に強度が微弱であるので検出器やアナライザーには重厚な遮蔽を施す必要がある。これら回転軸について、すべてそれぞれの軸で荷重を支えるそれまでの多重軸方式では、繊細な角度制御を行うのに、モノクロメーター角や散乱角に関する機械的な腕を強大にし動力も大きくしなければならない。これに対して空気浮上方式を利用すると、各部の重量を独立に床から支え自由に回転できる利点があり、ヨーロッパで開発され普及しはじめていたものである。この三軸分光器はダブルモノクロメーターを使用したため、比較的低エネルギーでの高分解能の測定に適しており、誘電体の相転移、黒鉛インターカレーション物質のフォノン測定、合金の相転移などの研究を行った。この装置の主要部は、JRR-3の中性子導管に移設して現在も稼働している。

これに続いて昭和51年、JRR-2のHT-6に偏極中性子回折装置が東大物性研によって設置された。この装置は中性子スペクトル変調法という独創的なアイデアの実現を図るもので、この方法の原理を実証するなどの基本的実験が行われた。

昭和58年旧JRR-3の利用が終わる頃、JRR-2ではHT-15に二軸回折装置が東北大金研によって設置された。この装置は種々の金属間化合物やウラン化合物の磁気構造、金属水素化物の構造などの研究に使用し成果があげられている。またこれは改造JRR-3以前に設置された最後の中性子散乱装置である。

4. 成熟

昭和50年代からはJRR-2の稼働が非常に安定し、中性子散乱の実験が効率よく行えるようになった。経験の蓄積も進み多数のすぐれた実験が行われてきた。それらを一つ一つ取り上げるいとまはないが、昭和62年春の高温超電導の研究競争はJRR-2の中性子散乱実験にも大きな影響を与えずにはおこななかった。折悪しく、この年は5月から秋まで燃料ウランの低濃縮化のために炉を停止することになっていた。3月末に名古屋工業大学で開かれた物理学会年会の特別セッションにはすでに一部のデータの報告がなされ、秋までの停止前に残された1サイクルには、ほとんどすべての装置で高温超電導の試料が測定されるという状況になり、5月初めにはいくつかの論文が雑誌に投稿された。そしてこれは、改めて中性子散乱の重要性が広く認識される機会でもあった。

この頃になると、研究者も日本の中性子散乱を草創期から築き上げてきた世代から次第に新しい世代に移ってきた。原研では濱口から飯泉を経て船橋に担当室長が代わり、東大物性研では平川、星埜が相次いで引退し山田、伊藤、吉澤が引継ぎ、東北大理学部の石川の急逝の後には遠藤が引継ぎ、阪大は国富が引退して中井が代わり、東北大金研は山口が主役となりそれぞれが新しいJRR-3に期待をかけて活躍した。

JRR-2を中心とするこれまでの実験は、何といても三軸中性子分光器による実験が中心であり、磁性体、誘電体、金属、イオン結晶、酸化物の研究で大きな成果をあげてきた。これらの問題は固体物理の基本的な重要課題であり、また中性子散乱以外の手段では解明しがたい問題として研究炉が最も有効に利用された面の一つである。ただし、限られた中性子ビームと装置でそれ以外の重要な分野にまで研究を発展させる余裕はあまりなかった。この間にヨーロッパではILLを中心として、高分子や生体物質などの研究も行われるようになり、1980年代に本格化し長足の進歩を遂げてきた高エネルギー加速器によるパルス中性子施設でも、これらを含む研究が発展してきた。また、これに関連し世界的に普及した中性子散乱技術のひとつに中性子小角散乱がある。本格的なものをJRR-2で実現するには到らなかったが、小角散乱用2次元位置検出器を試作するなど基礎的な実験を試みた。

5. 飛躍

昭和50年代の後半になると、JRR-2での経験を踏まえて、日米協力が原研・オークリッジ、大学・ブルックヘブン・オークリッジで実施され、また、このころから、JRR-3の改造

に向けて活発に準備が進められ、日本の中性子散乱研究は著しく活気をおびてきた。

平成2年末には待望のJRR-3の改造が完了し、日本の中性子散乱は新しい歩みを踏み出した。また、インドネシアとの国際協力が昭和63年から発足し、インドネシアの若い研究者がJRR-2で中性子散乱の経験を積む姿が見かけられるようになった。研究者では中井が阪大から去り、東大物性研では平成4年になると加倉井が加わり、山田がJRR-3Mの完成を見届けて引退した後にかつてJRR-2で活躍した藤井が就任した。平成5年には、森井が中性子散乱研究室長として原研の中性子散乱の中心となった。

JRR-3改造炉では、実験孔の配置、導管ホール、炉室床面などあらゆる面で、当初から中性子散乱の利用に大きな注意を払って設計しており、実験条件は画期的に向上している。小角散乱に不可欠な冷中性子源、中性子導管を設置し、本格的な中性子小角散乱装置を設置した。中性子導管の利用によってビームポート数がそれまでの約3倍になり、上述のような新しい時代の要請に対応できる装置も建設した。中性子束の倍増、運転時間の飛躍的増加によって、微弱な散乱や繊細な分解能を必要とする測定も可能になった。これら質的及び量的向上により、JRR-3での中性子散乱実験は、それまでの30年間とは比較を越える躍進を遂げ、文字通り世界の第一線でとどまることなく発展を続けている。

図の説明

第1図 JRR-2の完成を待ち兼ねるようにして、水平実験孔HT-10に建設した最初の中性子回折装置(昭和35年、JRR-2臨界前)。

第2図 昭和36年9月京都で開催された国際磁気学結晶学会議に発表した日本最初の中性子回折の研究成果の論文の一部。JRR-2のHT-10に設置した回折装置による UFe_2 多結晶の室温、液体窒素温度、及び磁場中の回折パターンが掲載されている。国際会議プロシーディングスより (J.Phys.Soc.Jpn.17,Suppl.B-III(1962)46)。

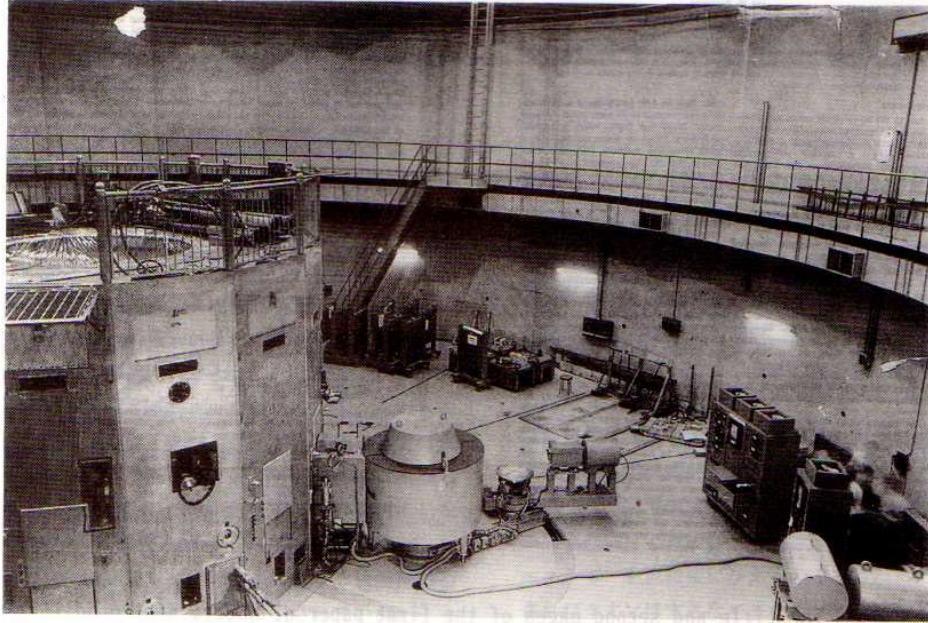


Fig. 3.2.1 The first neutron diffractometer in Japan installed at the horizontal beam tube HT-10 at JRR-2. It was installed and used no sooner than the reactor was completed .

第1図