

原子炉型中性子小角散乱分光器群の先鋭的高度化に関する研究

(受託者) 国立大学法人 東京大学

(研究代表者) 柴山充弘 東京大学物性研究所

(再委託先) 独立行政法人 物質・材料研究機構

(研究開発期間) 平成20年度～22年度

1. 研究開発の背景とねらい

中性子散乱は日・米・欧の先進国における大型中性子散乱施設を中心とした本格的利用が開始された20世紀後半以降、固体物理、ソフトマター、生体高分子などの広範囲な研究分野において多大な貢献を果たしてきた。近年、様々な研究分野からの測定要求は年々増加しており、その要求に応えるべく、米・欧では新たな大強度中性子発生源の建設、および中性子散乱装置の新設・高度化が精力的に行われている。

一方、日本においては日本原子力研究開発機構（東海村）に新たな中性子源として大強度陽子加速器研究施設（J-PARC）のスパレーション中性子源が建設され、数台の分光器が稼働している。しかしながら、中性子スピネコー（NSE）法を含む中性子小角散乱（SANS）法においては、スパレーション中性子源から得られる白色中性子を飛行時間分析法で測定する方法よりも、定常炉で得られた中性子を単色化して用いた測定のほうが測定原理上有利であるため、原子炉型 SANS 分光器の高度化は今後も極めて重要である。

以上の背景を踏まえて、本事業では日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3 に設置されている東京大学物性研究所所有の SANS 分光器3台（SANS-U、iNSE、および mf-SANS）において、日本国内において精力的に開発された中性子集光技術の活用により、ビーム強度の倍増、高分解能化、および小型化（世界最小）などの世界最高水準の高性能分光器を実現することを目的とする。さらにこの分光器の高度化を通じて、「高分子科学・コロイド科学・化学工学等、広範囲な分野における物質科学研究への貢献を図る」ことを目的とする。

2. 研究開発成果

(1) SANS-Uの高度化に関する研究（東大物性研）

SANS-U分光器の装置性能の向上（試料を通過する中性子入射強度の倍増および観測限界 Q_{\min} の向上）を目的とし、①コリメーターの高度化に関する研究および②高分解能検出器の研究開発をそれぞれ実施した。以下に実施内容の詳細を示す。

①コリメーターの高度化に関する研究

ピンホール光学系を採用したSANS-Uでは、中性子ビームをソースアパーチャーと試料アパーチャーのピンホールを通過させることで平行度の高いビームに整形して試料に照射している。平成21年度までに、従来のものと比較してビーム整形を精密に行うことが可能なソースアパーチャーと試料アパーチャーの設計および導入を行なった。さらに、それに伴い試料アパーチャーの直径（ A_S ）を7mmから10mmへと拡大した。ついで平成22年度はその実証試験を行った。

実証試験として、試料照射エリアの拡大による効果について検証するために、ポリスチレンラテックス水溶液（粒子径：50nm）について、コリメーション長（ L_1 ）と試料-検出器間距離（ L_2 ）が等しいという条件のもと（ $L_1=L_2$ ）、 L_1 および L_2 を12mから4mまで変えながら測定を行った。図1

に $L_1=L_2=12\text{m}$ 、 8m 、および 4m での測定結果をそれぞれ示す。なお縦軸は測定時間で規格化した散乱強度である。いずれの結果において、 $A_S=10\text{mm}$ とした時の散乱強度は $A_S=7\text{mm}$ のものとは比べて高かった。また、その強度比は 12m では 1.93 倍、 8m では 1.89 倍、および 4m では 1.99 倍とほぼ理想的なゲイン値 (2.04 倍) となった。この結果は所期の目標であった「中性子ビーム強度を倍増する」ことを達成したことを示している。さらに、今回導入した試料アパーチャーと既設の集光レンズを活用することで、分解能を維持しつつ、試料を通過する中性子強度を約 3.16 倍に増大できる可能性も示された。

②高分解能検出器に関する研究

既存の検出器 (空間分解能: 5mm) と比較して空間分解能が一桁高い高分解能検出器を開発することで、従来の Q_{\min} を一桁向上することを目指した。平成21年度までに抵抗分割型光電子倍增管 (RPMT) と ZnS^6/LiF シンチレータを組み合わせた高分解能検出器を開発し、さらにノイズ低減を行なった上でSANS-Uに導入した。平成22年度は高分解能検出器の実証試験を行った。

実証試験として、ポリスチレンラテックス水溶液 (粒子径: 596nm) について、既設の中性子集光レンズと本研究で開発した高分解能検出器を活用した集光型 SANS (FSANS) 測定および従来のピンホール型 SANS (PSANS) 測定をそれぞれ行った。図2に測定結果を示す。高度化前の最高分解能を実現するピンホール光学系 (ソースアパーチャー直径 (A_0) = 20mm 、 $A_S=7\text{mm}$ 、および $L_2=12\text{m}$) で測定した結果も示した。FSANSとPSANSの Q_{\min} を比較してみると、本研究開始前では $Q_{\min}=2.5\times 10^{-3}\text{\AA}^{-1}$ であるのに対して、高分解能検出器を活用したFSANSでは $Q_{\min}=3.8\times 10^{-4}\text{\AA}^{-1}$ を達成し、 Q_{\min} は 10^{-4}\AA^{-1} オーダーに到達した。この結果は、高分解能検出器を活用したFSANS測定により、目標であった装置分解能を従来よりも一桁高くすることに成功したことを示している¹⁾。

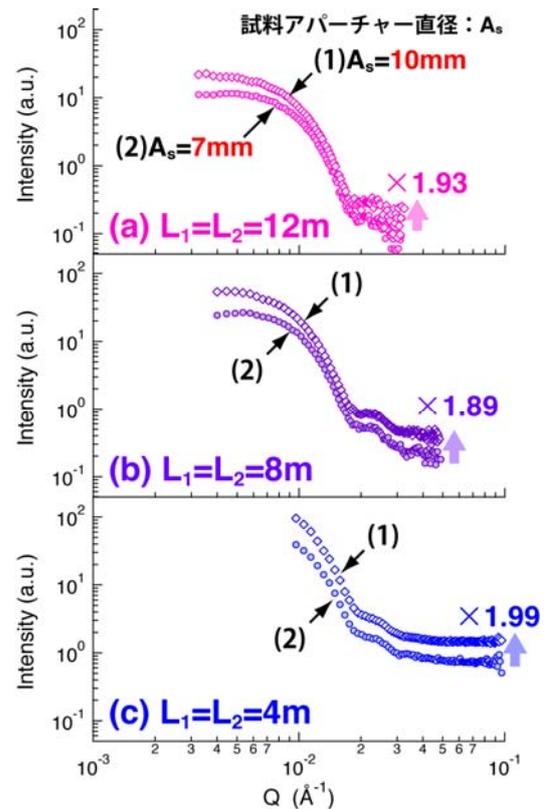


図1. ポリスチレンラテックスの散乱プロファイルの試料アパーチャーのピンホール直径依存性。縦軸は測定時間で規格化した散乱強度。コリメーション長 (L_1) および試料-検出器間距離 (L_2) を、 $L_1=L_2$ 条件において、変えながら測定した。(a) $L_1=L_2=12\text{m}$; (b) 8m ; (c) 4m 。

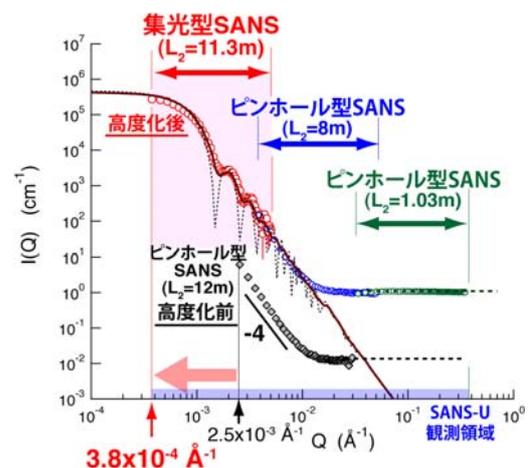


図2. ポリスチレンラテックス (粒子径 596nm) の集光型 SANS (FSANS) およびピンホール型 SANS (PSANS) の測定結果。破線: 多分散球 (直径 596nm) を仮定して計算した理論散乱曲線、実線; さらに装置分解能を考慮して計算した多分散球の理論散乱曲線。

(2) iNSE の高度化に関する研究 (東大物性研)

中性子スピネコー (NSE) 法は偏極中性子の磁場中での歳差運動を尺度として中性子の速度変化を評価する手法で、中性子非弾性散乱法としては最大の分解能を達成できる。東京大学物性研究所が所有している iNSE は、世界に 8 台現存する NSE 分光器のうちの 1 台で、環太平洋地域においては唯一の NSE 分光器である。本研究では白色フリッパーの開発および集光レンズの活用により試料に照射する中性子入射強度を増加しつつ、iNSE のエネルギー分解能を向上し、測定可能な最大フーリエ時間を 100 ナノ秒以上にするを目標とした。

具体的には、エネルギー分解能に影響を及ぼす歳差磁場の不均一を精密に補正することで、分解能向上を試みた。平成 21 年度までにスパイラルコイルの精密位置制御を実現する駆動装置、および非磁性体を用いて製作したビームナローをそれぞれ導入した。その結果、本研究開始前と比較して、歳差磁場不均一補正を精密に行なうことが可能となった。

以上の分光器の高度化を踏まえて、平成 22 年度は長波長 ($\lambda=15.8\text{\AA}$) を用いてエコーシグナル検出に

よる実証実験を行った。中性子波長 λ が 15.8\AA の時、最大フーリエ時間は 141 ナノ秒である。図 3 に最大歳差磁場 (0.22Tm) において観測されたエコーシグナルおよび Visibility をそれぞれ示す。141 ナノ秒までの Visibility は平均で 0.6 に到達していることが確認された。これは 141 ナノ秒までの測定が可能になったことを意味しており、当初の目標である最大フーリエ時間 100 ナノ秒以上の高分解能化を達成したことを明らかに示している。

(3) mf-SANS の高度化に関する研究 (物材機構)

試料位置から検出器までの距離が 2m ならずの小型 SANS 分光器である mf-SANS の実用化実証研究を行なった。本研究において、広い Q 領域を測定するために 2 台の検出器群 (小角検出器および高角検出器) の整備を進めた。小角検出器については平成 20 年度に動作確認および計測試験を行なった。平成 21 年度以降、高角検出器の整備とその性能評価試験を行ない、平成 22 年度は本格的に mf-SANS の実証試験を実施した。

図 4 に実証試験として測定した Ti 合金の結果を示す。また、同一試料の SAXS 実験結果および汎用の SANS 分光器で測定した SANS プロファイルも示した。従来の SANS 分光器の高 Q 側の観測限界 (Q_{max}) は 0.2\AA^{-1} 程度であった。この場合、高 Q 領域における Ti 合金の散乱曲線は一見すると Q 依存性のないバックグラウンド散乱のように見えた。しかしながら、mf-SANS の測定により、 $Q > 0.2\text{\AA}^{-1}$ の Q 領域において、 Q の増加に伴う強度減少が観測され、SAXS と同様にナノサイ

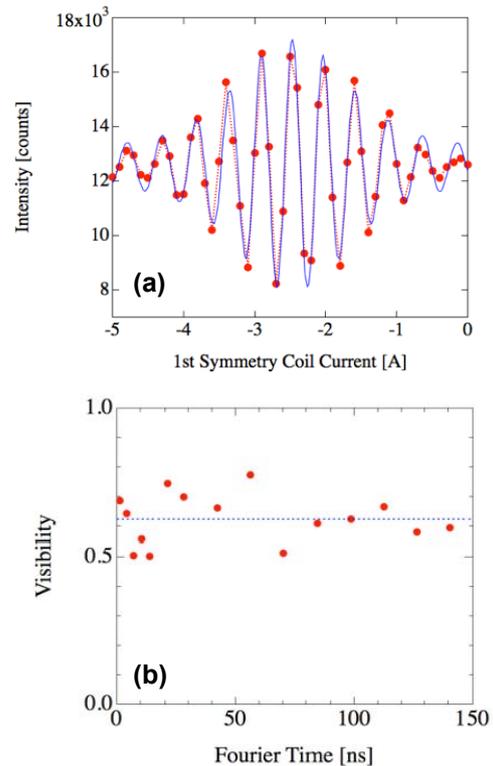


図 3. (a)長波長($\lambda=15.8\text{\AA}$)を用いた最大歳差磁場時(0.22Tm)のダイレクトビームの(a)エコーシグナルおよび(b)各歳差磁場におけるエコーシグナルの Visibility. (a)に示したエコーシグナルはフーリエ時間 141 ナノ秒に対応する。

ズの構造を反映する散乱を観測することができた。SANS と SAXS の強度比は、低 Q 側では約 1200、高 Q 側では約 6 と大きく異なった。これは散乱長密度が X 線と中性子で異なることに起因する。同一試料の SANS と SAXS の強度比は散乱長密度の比と関係しているため、それぞれの散乱長密度を計算することで、構造の組成を定量的に見積もることができる。低 Q 領域の SANS と SAXS の強度比(図 4 中の実線)はこの試料の標準組成から計算した散乱長密度比と一致しており、約十 nm オーダーの構造を反映する低 Q 領域の散乱は粒界等の原子密度差に起因すると考えられる。一方、高 Q 領域(数 nm に相当)における強度比(図 4 中の破線)は Ti 濃度の大きな変調を考えなければ説明できないことを示している。すなわち、今回測定した Ti 合金で組成差を伴う不均質構造を形成することを示唆する。この結果は、SAXS および汎用の SANS のみならず、mf-SANS で測定を行なったことで初めて明らかになった。また、他の試料(バナジウム添加改質鋼および酸化分散強型フェライト鋼)についても測定を行い、いずれも SAXS や汎用の SANS での測定と組み合わせることで、mf-SANS での測定は実用材料の構造解析に極めて有効であることが確認できた。

(4) 総括

本事業で行った 3 台の小角散乱分光器の高度化と展開された物質科学について、2 日間にわたって研究会(東京大学物性研究所 ISSP ワークショップ小角・反射率・高分解能装置研究会、2011 年 2 月 7 日-8 日、東京大学物性研究所、柏)を主催して、本事業の評価・総括を行なうとともに、今後の展望についても議論を行なった。

3. 今後の展望

平成 20 年度から平成 22 年度まで、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3 ガイドホール内に設置されている 3 台の原子炉型中性子小角散乱分光器(SANS-U、iNSE、および mf-SANS)の高度化に関する研究を推進してきた。最新の中性子光学技術を駆使し、精度の高い中性子ビーム制御を行うことで、ビーム強度の強化、高分解能の一桁向上、小型小角散乱装置の実証試験などを行ない、世界最高水準の高性能分光器群を実現することに成功した。これにより 3 年間の業務項目を実施し所期の目標を達成した。今後、これら 3 つの小角散乱分光器群のさらなる高度化研究を推進し、研究用原子炉の利用価値をさらに高めていくとともに、一般共同利用にマシンタイムを供給することで「高分子科学・コロイド科学・化学工学等、広範な分野における物質科学研究への貢献を図る」という目標を達成する予定である。

4. 参考文献

- 1) H. Iwase, H. Endo, M. Katagiri, M. Shibayama, *J. Appl. Cryst.* **44**, 558-568 (2011); 岩瀬裕希、柴山充弘; 3 号炉における小角散乱研究、*日本中性子学会会誌「波紋」*、**21**、23-28 (2011).

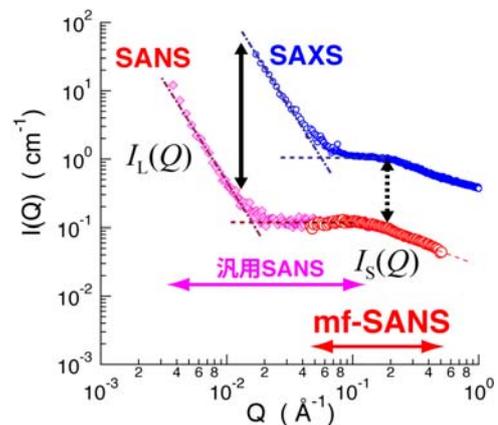


図 4: チタン(Ti)合金の X 線および中性子小角散乱プロファイル。

$I_L(Q)$ および $I_S(Q)$ は Ti 合金内に存在する large-scale 構造および small-scale 由来の散乱を反映。矢印は散乱強度比を示しており、散乱長密度の二乗の比に対応する。