

成果報告書

「中性子ビーム利用高度化技術の開発」
(中性子イメージング・集光技術の
開発と応用に関する研究)

平成23年3月

国立大学法人北海道大学

本報告書は、文部科学省の科学技術試験研究委託事業による委託業務として、国立大学法人北海道大学が実施した平成22年度「中性子ビーム利用高度化技術の開発」（中性子イメージング・集光技術の開発と応用に関する研究）の成果を取りまとめたものです。

目次

1. 委託業務の目的	1
2. 平成22年度（報告年度）の実施内容	1
2. 1 実施計画	1
2. 2 実施内容(成果)	1
2. 2. 1 中性子イメージング技術の開発と応用	1
2. 2. 1. 1 カラーI.I.管球発光記録用高速度カメラ記録システムの開発	3
2. 2. 1. 2 高速度カメラによる撮影結果と評価	6
2. 2. 1. 3 まとめ	9
2. 2. 2 中性子集光技術の開発と応用	10
2. 2. 2. 1 Kirkpatrick-Baez ミラー集束による 中性子小角散乱装置の原理検証実験	10
2. 2. 2. 2 塑性変形、あるいは弾性変形した Si 及び Ge の単結晶を用いた 中性子の単色化・集束化素子の開発	16
2. 2. 2. 3 マルチピンホール小角散乱装置の試験研究	20
2. 2. 2. 4 まとめ	23
2. 3 成果の外部への発表	24
2. 4 活動（運営委員会等の活動等）	24
2. 5 実施体制	24

図一覧

図 1-1.	高速度カメラを用いる加速器パルス中性子イメージング	2
図 1-2.	高速度カメラ記録システムの構成図	3
図 1-3.	同期パルス発生器	4
図 1-4.	トリガー動作タイミング図	4
図 1-5.	高速度カメラ記録システム ADS-325 型	5
図 1-6.	評価試験測定体系模式図	6
図 1-7.	評価試験測定体系設置状況	6
図 1-8.	加速器トリガーとカメラシャッタータイミングの関係	7
図 1-9.	透過試料の配置図	7
図 1-10.	高速度カメラによる撮影結果	8
図 1-11.	各透過試料に対する輝度値の変化	8
図 1-12.	画像解像度毎の露光時間と最大積算画像枚数の関係	9
図 2-1.	楕円弧形ミラーによる反射経路計算結果	11
図 2-2.	入射ビーム広がりミラー位置に対する反射ビーム広がり	12
図 2-3.	KB ミラー実験装置の中性子集束機構	12
図 2-4.	KB ミラー実験セットアップ模式図	13
図 2-5.	スーパーミラーとスリットの実験セットアップ写真	14
図 2-6.	垂直ミラーによるビーム集束の二次元イメージ	14
図 2-7.	垂直ミラーによるビーム集束	14
図 2-8.	集束ビームの波長依存性	15
図 2-9.	KB ミラー配置での集束ビーム	15
図 2-10.	KB ミラー配置での集束ビームの波長依存性	15
図 2-11.	鉄の微粉末の小角散乱を測定した結果	16
図 2-12.	小角散乱の実験と計算の比較	16
図 2-13.	塑性変形 Ge 単結晶からの Bragg 反射像	17
図 2-14.	塑性変形 Ge 単結晶 5 枚のときの(111)Bragg peak の波長依存性	18
図 2-15.	塑性変形 Ge 単結晶からの積分反射強度の結晶枚数依存性	18
図 2-16.	塑性変形 Ge 単結晶積分反射強度の入射中性子バンド幅による違い	18
図 2-17.	塑性変形 Ge 単結晶からの積分反射強度の結晶枚数依存性の Fitting 結果	19
図 2-18.	塑性変形 Ge 単結晶からの積分反射強度の結晶枚数依存性の予想	19
図 2-19.	2 次元検出器による PG からの Bragg 反射像	19
図 2-20.	弾性変形 Si 結晶板を 30 枚重ね、半径 700mm まで変形させた モノクロメータ	20
図 2-21.	一般的なピンホール型小角散乱装置の模式図	21
図 2-22.	試料直前マルチピンホール型走査型小角散乱装置	21
図 2-23.	上流側マルチピンホール型走査型小角散乱装置	21
図 2-24.	試料直前マルチピンホール型走査型小角散乱装置による実験結果	22
図 2-25.	小角散乱の円環平均解析した Q 依存性の予備的な結果	22
図 2-26.	14 個のピンホールに対応したダイレクトビームのパターン (試料無し)	23
図 2-27.	試料を置いたときの小角散乱パターン	23

表一覧

表 1-1.	画像解像度による出力ファイルサイズの違い	9
表 2-1.	各スリットの幅	13

1. 委託業務の目的

「中性子ビーム利用高度化技術の開発」

(中性子イメージング・集光技術の開発と応用に関する研究)

中性子偏極・集光・検出及びイメージングなどの中性子ビーム基盤技術研究を発展させ、その基盤技術をJ-PARC及びJRR-3の中性子科学研究施設の高角散乱、小角散乱、イメージングの実験装置に導入し、中性子ビームの高品質化、高輝度化、高精度化を実現することで、これまで出来なかったナノ領域からマイクロ領域の階層的な磁性、軽元素、構造歪み、ダイナミックスなどの高精度の中性子計測を可能にすることを目的とする。

このため、独立行政法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人北海道大学、国立大学法人東北大学、大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構、国立大学法人東京大学、国立大学法人京都大学は共同で業務を行う。

国立大学法人北海道大学では、中性子イメージング・集光技術の開発と応用に関する研究を実施する。

2. 平成22年度（報告年度）の実施内容

2. 1 実施計画

①中性子イメージング技術の開発と応用

パルス中性子イメージングでは、時間分割イメージングによってエネルギー選別されたイメージを取得できる。平成22年度は、平成20年度に購入したカラーI.I.管球および平成21年度に購入した高速度カメラによる時間分割測定システムを用いて高速度なイメージ記録システムを整備し、多数回のパルスにわたる時間分割測定を行う。

②中性子集光技術の開発と応用

中性子の集光技術により、装置を小型化、あるいは高強度化を図ることが出来る。そのため、中性子スーパーミラーを湾曲させることで中性子の集光素子を作ること、及び、塑性変形、あるいは弾性変形したSiもしくはGeの単結晶を用いて中性子を単色化・集束化する技術基盤の開発を行う。さらに、多数のピンホールを用いることで、集束と同様の効果を得ることができる可能性があるため、その可能性を探る評価実験を行う。

2. 2 実施内容(成果)

2. 2. 1 中性子イメージング技術の開発と応用

加速器を利用したパルス中性子源を用いるパルス中性子イメージングでは、イメージングのための高空間分解能の2次元中性子検出と同時に、中性子パルスの時間構造を利用できるように高速動作が可能な検出器システムが必要とされる。特に後者は加速器中性子源の特長を余すことなく活かすものであり、この機能を持つシステムの開発はパルス中性子イメージングに必須といえる。例えばJ-PARCの新しい大型加速器中性子源であるJSNSは25Hzで繰り返し中性子パルスを出すことから、この場合には加速器のトリガーに同期させた25Hzでの繰り返し動作とパルス毎に時間分割測定される時間チャンネル毎の測定画像の長時間積算が必要である。中性子飛行時間測定では、場合によりマイクロ秒オーダーのシャッター開放の繰り返しを連続して数1000チャンネル分動作させ、時間チャンネルに分けて積算することになる。このような厳しい時間条件下で中性子のエネルギー依存透過画像を取得するという測定のため、これまでいくつかの種類の検出器がテストされてきた。しかしながら、中性子の検出効率、さらにはダイレクトビーム位置で必要な高い検出レートといった要因が影響するため、現在のところ検出効率や検出レートを比較的満足

し、飛行時間法にも耐えられる速い動作速度を持つ 2 次元位置敏感型の検出器としては、シンチレータをアレイ型のマルチ光電子増倍ユニットに直接装着した形式の ^6Li ガラスシンチレータ直結型検出器かマルチチャンネルプレート (MCP) を光読み出しセンサーに直結した MCP 型検出器しかない。前者は現在 8×8 もしくは 16×16 ピクセルでカウンティング型の 2 次元検出が可能であるが、空間分解能に問題があり 1 ピクセルが $2\times 2\text{mm}$ 程度の分解能になってしまう。後者は飛行時間法 (TOF) に対応した 1 MHz 程度的高速動作が可能で、空間分解能も $55\mu\text{m}$ と比較的良いが、検出面積が約 $14\times 14\text{mm}$ 程度と小さく、広い範囲の情報分布を一覧可能というイメージングの特長を活かせるまでには至っていない。現在中性子の利用が期待される工業分野では A4 サイズの領域に対してサブ mm の空間分解能はもちろん、場合によっては $1\mu\text{m}$ 領域の空間分解能を要求されていることから、パルス中性子イメージングでも少なくとも数 $10\sim$ 数 $100\mu\text{m}$ の空間分解能で数センチ角の領域に対して飛行時間分析できる検出器が必要である。そこでここではシンチレータ面に受けた放射線の発光をイメージインテンシファイア (以下、I.I.) にて増幅してスクリーンに投影し、その投影像を光学的にカメラでイメージとして記録する形式の検出器システムを導入することとした。この場合、時間に依存する因子としてはシンチレータ光の減衰時間と記録カメラの速度になる。図 1-1 にその動作概念を示す。加速器からのトリガー信号を受けてから、高速時間分割カメラ (以下、高速度カメラと呼ぶ) が動作を開始し、次の加速器トリガーが来る前に一連の画像を撮影する。次の加速器トリガーが入ると、高速度カメラは再度連続撮影を開始する。各加速器トリガー連動連続撮影で同じ撮影番号の画像は積算されていき、最終的に一連の積算画像が中性子飛行時間法により中性子のエネルギーに対応した画像データとなる。本事業で平成 20 年度導入した中性子カラー I.I. 管球 (以下、カラー I.I. 管球と呼ぶ) は検出器径が 4 インチ、シンチレータには Gd を利用した (n,γ) タイプの中性子カラー I.I.™ (Ultimage™- $n\gamma$ -04) である。これは、空間分解能的にも X 線で試験した場合で $10\mu\text{m}$ を切る能力があるため、パルス中性子イメージングには適当な検出器システムとなることが期待できる。また、高速度カメラとしては、平成 21 年度の導入時点で最新の CMOS センサーを用いた Mikrotrotron 社の MC1362 である。このカメラはカタログスペックとして最大 1280×1024 ピクセルを 500fps で記録できる能力を持っており、センサー上の画素は $14\mu\text{m}$ 角、Camera Link Full 規格のケーブル 2 本で 3Gbit/sec 以上のデータ転送能力を持つ。500fps では 1 枚の撮影時間、即ち飛行時間法の飛行時間チャンネル幅にあたる時間は 2msec となり、中性子スペクトル測定では相当幅広くなってしまうが、撮影エリアを小さくすることでこの時間を短くすることが可能である。撮影速度に関しては、カメラがデータ記録メモリを 1 撮影分しか持たないため、それを外部記録装置に転送するためのデータ転送周波数に等しくなっている。

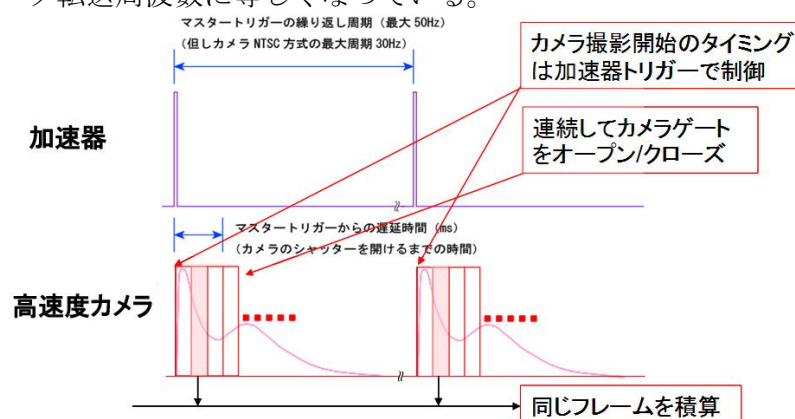


図 1-1. 高速度カメラを用いる加速器パルス中性子イメージング。

2. 2. 1. 1 カラーI.I.管球発光記録用高速度カメラ記録システムの開発

本事業では、平成21年度まで中性子の透過像を光像に変換するカラーI.I.管球と光像の時間変化を記録する高速度カメラについて整備し、加速器トリガーに同期させた高速度カメラ撮影開始信号から後の画像をカメラ自身の持つデータ転送周波数に合わせて受け側コンピュータに記録、後で画像を見ながら積算する解析を行ってきた。この方式の問題点は特にデータ量が莫大になるというところにある。測定中に発生する全ての中性子パルスの時間分割画像を8bit/ピクセルで全て記録しているため、例えば300×300ピクセルでは1画像あたり90kbyte/時間チャンネル、100チャンネル記録して9Mbyte/pulse、25Hzで225Mbyte/secというデータ量を記録し続けることになる。これではデータを保存する場所の問題やデータ取得後の解析の問題が生ずるため、平成22年度は高速度カメラを動作させ続けながら、データ転送と時間チャンネル毎の積算を同時に行い、積算画像を長時間記録する高速度カメラ記録システムの開発を実施した。

図1-2に開発したシステムの構成図を示す。本システムは、積算演算と記録を行うデスクトップPCおよび高速度カメラ用の同期信号を生成する同期パルス発生器という2つの構成要素から成る。加速器からのトリガー信号は、中性子パルスの発生時間原点を同期パルス発生器(図1-3)に与える。同期パルス発生器では加速器トリガーを起点として高速度カメラのシャッター動作繰り返しパルスの発生を開始する。この信号はデスクトップPCに積載された高速度カメラデータのキャプチャーボードを経由して高速度カメラに送られて、この信号にあわせてカメラのシャッター開閉を行うとともにそれに伴う画像データ転送を行う。あわせて加速器からのトリガー信号は同期パルス発生器で波形整形された後、デスクトップPCに送られて、中性子パルス数のカウントやそのパルス数による記録ソフトウェアの制御などに使われる。このトリガー信号の動作タイミングを図1-4に示

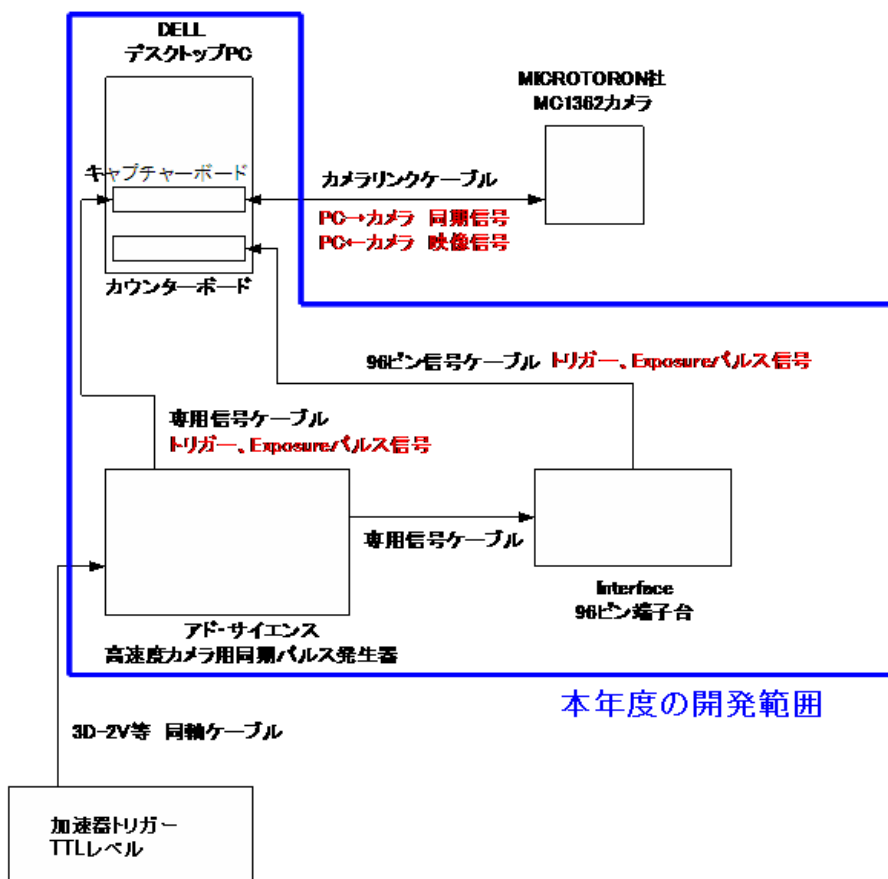


図1-2. 高速度カメラ記録システムの構成図。

す。同期パルス発生器では、加速器トリガーからの高速度カメラシャッター動作開始遅延時間やシャッターオープン時間、カメラシャッター繰り返し回数、テストパルス発生を設定することが可能である。

一方、デスクトップPCでは記録ソフトウェアにより、高速度カメラのスタート/ストップ等の制御、画像記録のスタート/ストップ、中性子パルスの繰り返し回数の記録が

行われる(図1-5)。高速度カメラMC1362の画素毎の記録サイズは8bitであり、本システムでは一画像の記録サイズを1000×1000、500×500、300×300、250×250ピクセルから選択する。この8×(1000~250)×(1000~250)bitのデータは、オンボードエラーをなくすため、ピクセル毎に一端PC上の画像キャプチャーボード内のメモリ上に蓄積されていき、その後1枚分の画像が溜まったところでPC上のメモリに転送した後積算処理される。デスクトップPCでは、マルチコアのCPUを用いて積算部分をマルチスレッド化することで、短時間で積算処理を行わなければならない状況でもPCの負荷による画像の取りこぼしがおきにくくなっている。このマルチスレッド化はOpenMPライブラリを使用している。積算だけの処理の場合は、メモリから取り出してメモリへ格納するのに処理が近いため、I/O時間が主な消費時間であり、マルチコア・マルチスレッド化による負荷の分散により積算は安定して行えることが確認された。

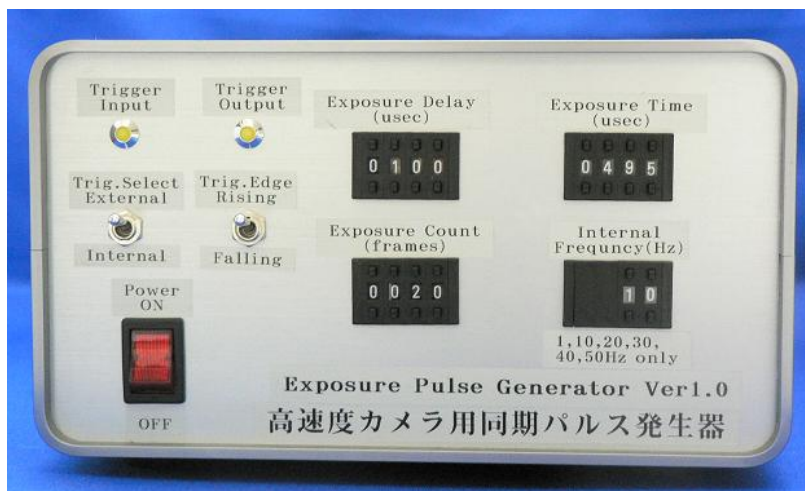


図 1-3. 同期パルス発生器。
(高速度カメラ記録システム構成品)

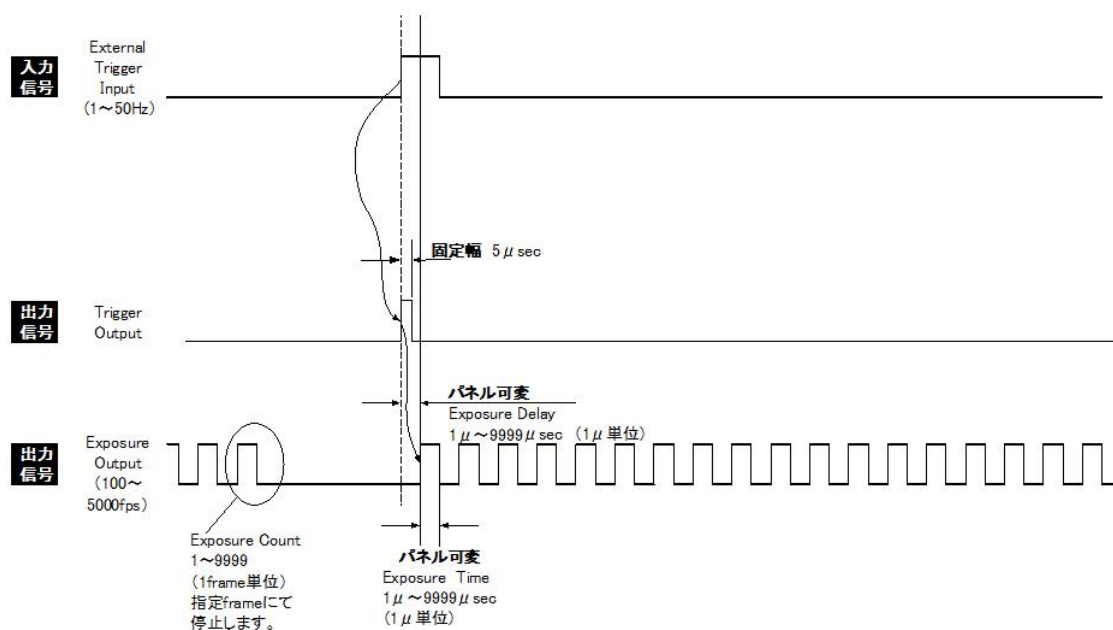


図1-4. トリガー動作タイミング図。

本高速度カメラ記録システムでは1画素あたりの記録に32bitを用いる。画像の濃淡は8bitで出力されるので、残りの24bit部分が加算可能枚数を決定することになる。つまり、本システムではそのままで 2^{24} 回=16777216回の積算が可能であり、25Hz周期では約186時間～約8日分の積算記録が可能になる。この値は、通常の測定条件下では事実上限界が無い長時間であると考えられる。また、画像ファイルの大きさは32bit/ピクセルが何ピクセル分記録される画像サイズかで決まってくることになり、例えば1000×1000ピクセルの画像では1枚あたり32bit×1000×1000=約4MByteなので、飛行時間チャンネルを100チャンネルで記録したとしても、全体で400MByteの固定値となり、積算処理をしない場合に比べて圧倒的に記録容量が小さくデータハンドリングがし易くなっている。

本システムの開発では特に高速度カメラとキャプチャーボードの調整が難しく、相当の試行錯誤が必要であった。新しいCMOSセンサーを使ったカメラであるため、メモリの転送速度が画素数およびシャッター繰り返し速度の最適値への調整で充分間に合うようにする必要があり、当初は400μsecのシャッター繰り返し時間のうち、300μsecをシャッタークローズにしてデータ転送に用い、残りの100μsecのみシャッターオープンにせざるを得なかったが、最終的にはこのシャッタークローズ時間を7μsecまで下げることができた。現在設定可能なピクセルサイズとフレームレートはトリガー周期25Hzの場合、以下となる。

- ・ピクセルサイズ1000×1000
目標最大フレームレート：500fps
目標最大露出時間：2000μsec
目標最大画像枚数：500/25=20枚
- ・ピクセルサイズ500×500
目標最大フレームレート：2000fps
目標最大露出時間：500μsec
目標最大画像枚数：2000/25=80枚
- ・ピクセルサイズ300×300
目標最大フレームレート：4500fps
目標最大露出時間：220μsec
目標最大画像枚数：4500/25=180枚
- ・ピクセルサイズ250×250
目標最大フレームレート：5000fps
目標最大露出時間：200μsec
目標最大画像枚数：5000/25=200枚

但し、これらの値は理想値であり、最大フレームレートに近く設定すればするほどデータ転送時にパルス毎の記録抜け落ちが発生することが生ずるため、測定をスタートさせて記録抜け落ちが殆ど生じない条件で測定する必要がある。このパルス記録抜け落ちは本システムでは監視しており、測定表示画面にその数の積算数を表示させている。また、最大露出時間は各目標値から先のシャッタークローズ時間7μsecを引いたものとなる。さらに最大画像枚数は、次の加速器トリガーに備えるため、目標値の90%程度に抑えて設定する必要がある。本システムはエイジングのため3日ほどの長時間積算運転テストを実施しており、問題なく長時間の積算記録処理できることが確認された。



図 1-5. 高速度カメラ記録システム。
ADS-325 型

2. 2. 1. 2 高速度カメラによる撮影結果と評価

北海道大学工学部瞬間強力パルス状放射線発生装置研究室の 45MeV 電子線ライナックに付置されている冷中性子源から発生する中性子線を使い、カラーI.I.管球と高速度カメラによるシステムと接続した高速度カメラ記録システムによって中性子飛行時間毎の試料透過画像を連続撮影し、平成22年度に開発した高速度カメラ記録システムの動作試験と性能評価を行なった。評価試験に用いた測定体系は高速度カメラ記録システムを除けば平成21年度の性能評価試験と同様であり、試料を透過した中性子はカラーI.I.管球（Toshiba Ultimage™-ny-04）により増幅、可視光変換され、マイクロチャンネルプレート型 I.I.（Hamamatsu C9016-02）により再度イメージが増幅され、最終段の CMOS 型高速度カメラ（Mikrotron MC1362）により画像を連続撮影する構成である。今回の測定では、冷中性子源から試料までの距離は 3.7m であった。図 1-6 に測定体系の模式図を、図 1-7 に測定での設置状況をそれぞれ示す。

評価試験の際、高速度カメラ記録システムには加速器のトリガー信号 50pps（20msec/pulse）を入力してパルス状の中性子ビームとの同期を取り、フレームレート 2500fps（400μsec/frame）のシャッタートリガー信号を高速度カメラに送り、中性子透過画像の連続撮影を行なった。1 フレームに当たる 400μsec は、300μsec の delay（タイミング遅延）と 100μsec の露光時間となっている。露光時間に比して delay 時間が長いのは、評価試験当時の高速度カメラ記録システムの仕様としてのデータ転送時間であり、これに関しては後に delay 時間が 10μsec に仕様が変更された。delay 時間変更後の性能に関しては、時間分解能評価結果として後述する。また、画像解像度（空間分解能）は 300×300 ピクセルにて測定し、1 パルス当たりの積算画像枚数は 40frames/pulse とした。図 1-8 に測定時の加速器トリガーとカメラシャッタータイミングとの関係を図示する。

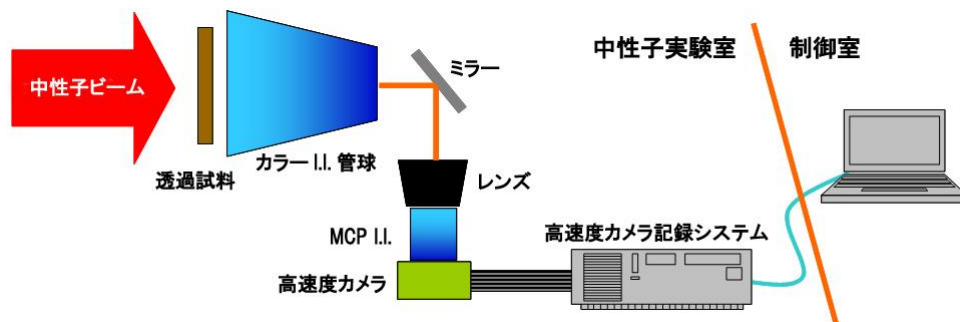


図 1-6. 評価試験測定体系模式図。

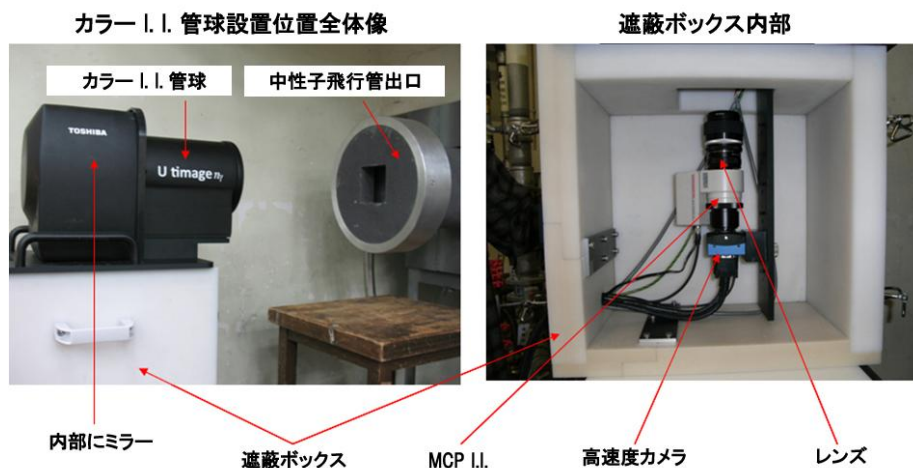


図 1-7. 評価試験測定体系設置状況。

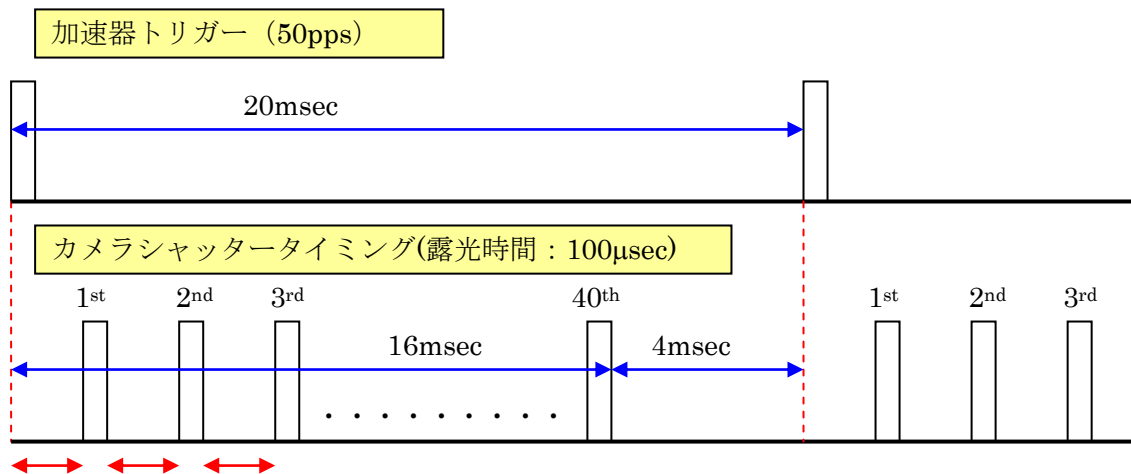


図 1-8. 加速器トリガーとカメラシャッタータイミングの関係。

評価試験測定に使用した透過試料は、図 1-9 の模式図に示した様に、鉛 (Pb ; 5mm 厚)、炭化ホウ素焼結体 (B_4C ; 10mm 厚)、ポリエチレン (PE ; 5mm 厚)、カドミウム (Cd ; 1.25mm 厚) をカラー I.I. 管球入力窓上に配した。図 1-9 中の水色で示した円の領域はカラー I.I. 管球入力窓を示している。また、冷中性子源からのガンマ線を減衰させる為に、これらの試料の上流側(冷中性子源側)に 1mm 厚の鉛シートを設置している。

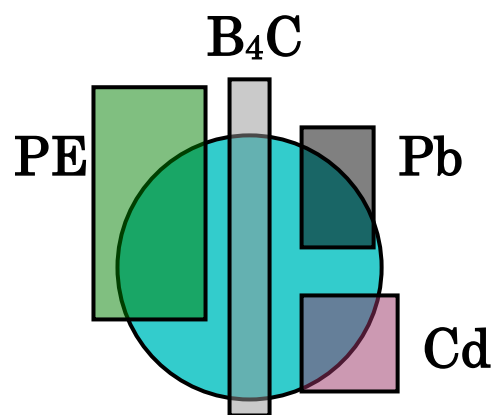


図 1-9. 透過試料の配置図。

これらの試料を透過した中性子を連続撮影し、フレーム毎に自動積算した画像を図 1-10 に示す。各図中左上の番号はフレームナンバーを示しており、フレームナンバー 6 以降の画像は試料判別を容易にする為に、輝度値のゲインを調節した上で示している。測定時間は 33 分 35 秒、加速器トリガー積算回数は 100502 回、取りこぼし回数は 147 回であった。

これらの撮影画像から各透過試料に当たる領域の平均輝度値をフレーム毎にプロットしたグラフを図 1-11 に示す。横軸は測定した中性子飛行時間を元に中性子波長に換算しており、各フレームの輝度値は全測定時間に渡ってデータ記録システムが自動的に積算した値である。また、Blank は透過サンプルを配していない領域を示している。ガンマ線量が高くなる冷中性子源からの到達時間の早い領域(図 1-11 の横軸の値が小さい領域)ではガンマ線に感度の高い Pb による遮蔽効果が確認され、それ以降のガンマ線による影響が減り中性子ビームが主体となる領域では、中性子とその遮蔽材である B_4C 、PE、Cd に遮蔽された効果が明確に確認できる。また、それら中性子遮蔽材の判別も可能である事が図 1-11 のグラフより読み取れる。この事から、高速度カメラ記録システムによるフレーム毎の自動画像積算が正常に機能している事が分かる。

平成 22 年度開発した高速度カメラ記録システムは、同フレームの画像を自動積算した画像データファイルを測定終了後に出力するという特徴がある為、記録ファイル上の制約である 93 時間(加速器トリガー 50pps の場合)を越えなければ出力されるファイルサイズは同一となる筈であり、今回の評価試験において、数分間の測定と、1 時間以上の測定

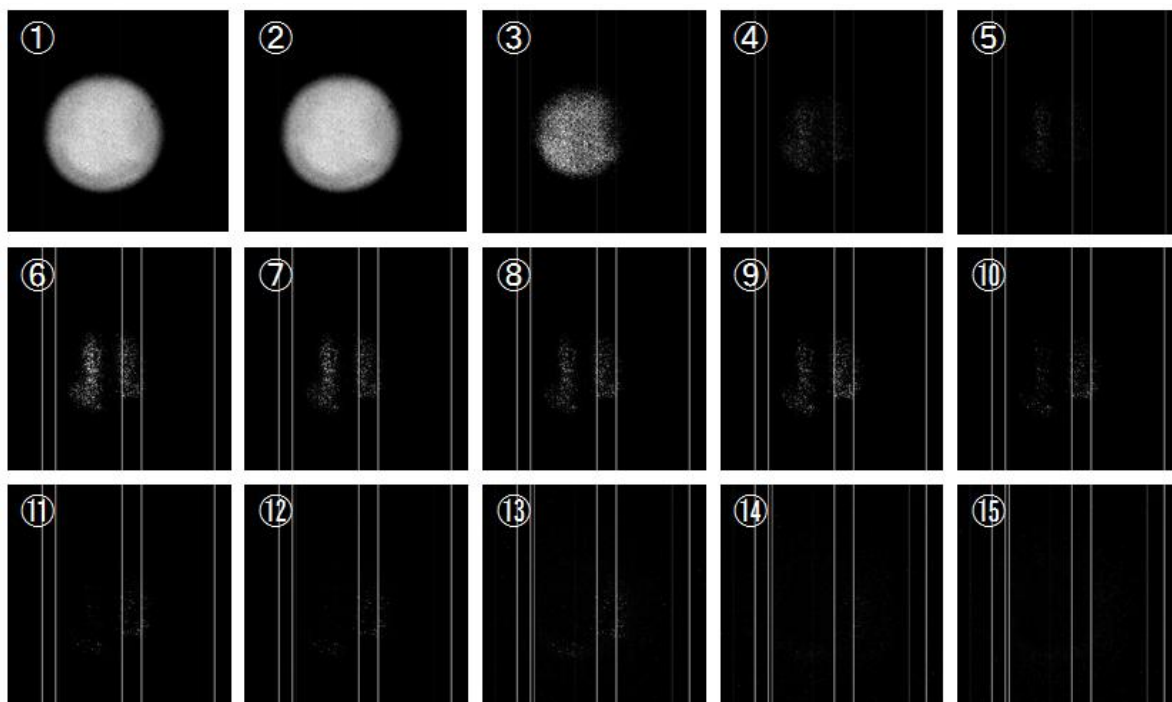


図 1-10. 高速度カメラによる撮影結果。

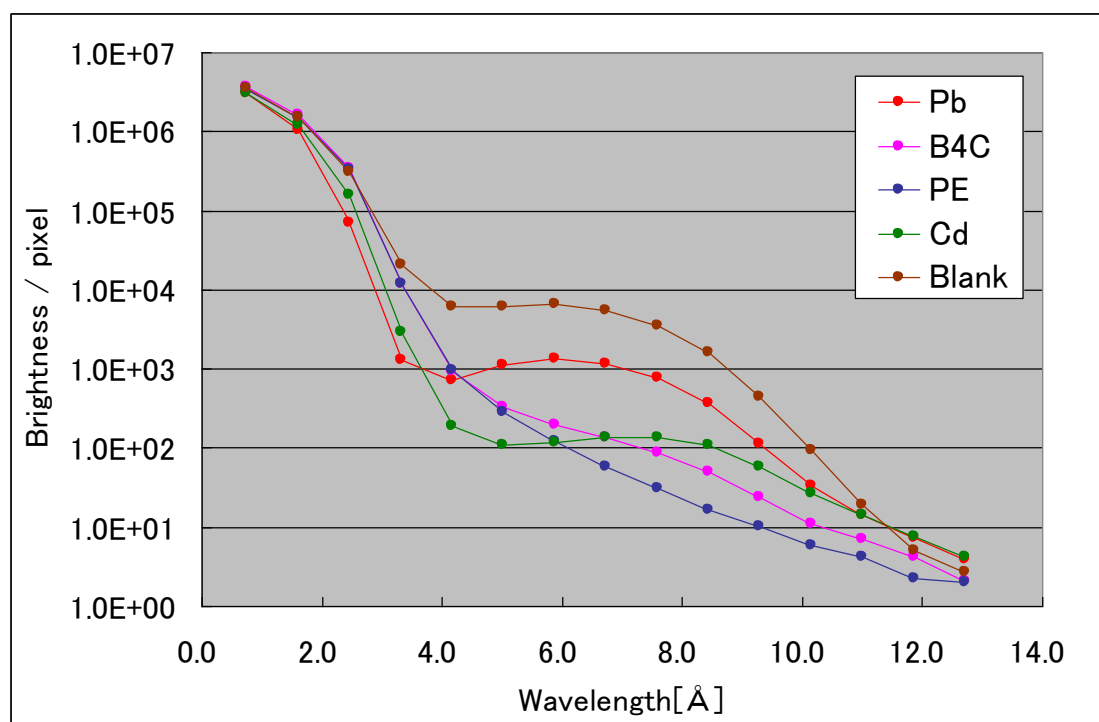


図 1-11. 各透過試料に対する輝度値の変化。

において、出力されるファイルサイズが同一となる事を確認した。また、測定で出力されたファイルの画像解像度によるサイズの違いは表 1-1 の通りであり、設計値と一致している。これにより、測定中にコンピュータ上の記憶領域が枯渇する事なく、長時間の測定が可能である事が確認された。

表 1-1. 画像解像度による出力ファイルサイズの違い。

画像解像度 [pixel×pixel]	出力ファイルサイズ [KByte]
250 × 250	245
300 × 300	352
500 × 500	977
1000 × 1000	3907

次に、図 1-12 に加速器トリガー信号が 50pps (20msec/pulse) の場合の各画像解像度における露光時間と最大積算画像枚数の関係を示す。このデータは各フレーム間の delay 時間を 300μsec から 10μsec に変更した後のデータであり、解像度 1000×1000 は露光時間 100μsec ステップによる測定、それ以外の解像度では 10μsec ステップによる測定結果である。積算画像枚数は中性子ビーム 1 パルス内の画像フレーム数を示している。また、最大積算画像枚数は、設定した露光時間に対してデータの取りこぼしが全体の 1%未満となる積算画像枚数の最大値として定義している。これにより、実験を計画するに当たって必要となる空間分解能と時間分解能の関係を表す基礎データが得られた。

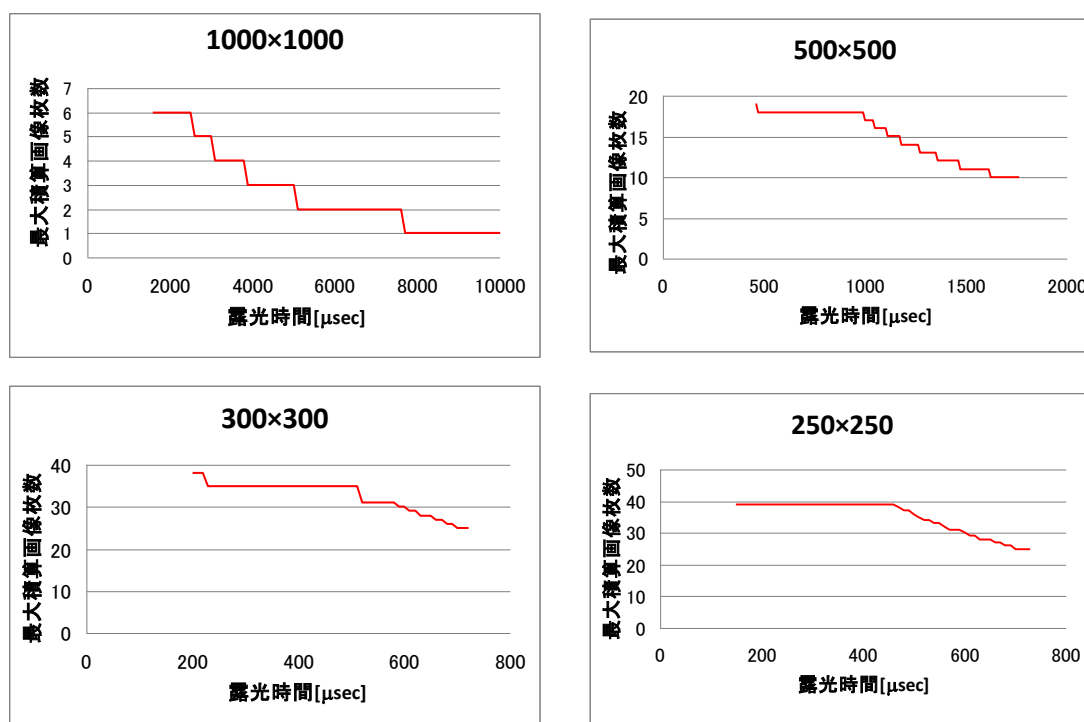


図 1-12. 画像解像度毎の露光時間と最大積算画像枚数の関係。
加速器トリガー信号が 50pps(20msec/pulse)の場合。

2. 2. 1. 3 まとめ

以上の結果より、平成 22 年度開発した高速度カメラ記録システムは、北海道大学工学部瞬間強力パルス状放射線発生装置研究室の 45MeV 電子線ライナックに付置されている冷中性子源から発生する中性子ビームを使った評価試験により、入射中性子のエネルギー弁別型の高解像度イメージングに対して画像データ自動積算機能が有効である事が確かめられた。これにより、高速度カメラとカラー I.I. 管球により構成される測定システムを使ったより長時間の測定が可能となり、データ取得後の解析作業においてもより正確なデータ取り扱いが可能となった。

2. 2. 2 中性子集光技術の開発と応用

2. 2. 2. 1 Kirkpatrick-Baez ミラー集束による中性子小角散乱装置の原理検証実験 Kirkpatrick-Baezミラー (KBミラー) とは

我々は回転楕円体の一部を切り取った形の中性子集束ミラーを用いることにより、従来型のコリメータを用いた中性子小角散乱 (SANS) 装置に比較し、約一桁小さいサイズの SANS 装置が実現可能であることを実証している。しかし、散乱強度を上げるために試料の大きさを 10mm 径程度まで大きくする必要があるが、また、スーパーミラーを用いても全反射角は 10 mrad 程度とそれ程大きく取れないため、必然的に長さが 1m、幅が 20mm 程度の大型のミラーが必要になる。そのような回転楕円型のスーパーミラーを製作することは可能であることが我々の実験で示されているが、どうしても高価になり、曲面であるためスーパーミラー成膜が難しく、乱反射を押さえることもそれほど易しくはない。

そこで、通常使用されている平面型の高品位のスーパーミラーを、楕円筒状に精密に変形出来れば、いわゆる Kirkpatrick-Baez (KB) 型の集束デバイスとして SANS 装置の入射中性子光学系として利用できるのではないかと考えている。

KB 型の光学系とは垂直と水平に置かれた楕円筒形状の二組の集束ミラーでビームを集束するものである。X 線天文学でのレンズに利用されている他、X 線をサブミクロンに集束し、イメージングするのに広く用いられている。更に、この方式を用いた集束型の X 線小角散乱 (SAXS) にも使われている。中性子の分野では結晶構造解析装置として KB ミラー型の実験装置が開発されているが、中性子小角散乱装置の入射ビーム系として使われている例はない。

KB 型では、中性子反射ミラーを多層にすることで、試料位置でのビームサイズを大きく出来、入射中性子強度を上げられる可能性がある。また、平面のミラーを用いることが出来るため、スーパーミラー成膜がやり易いこと、市販されているスーパーミラーを利用出来ることなど様々な利点が出て来る。そのため、中性子小角散乱装置として利用出来る KB ミラー型の光学系を製作し、原理検証実験を行うことにした。

KBミラー型小角散乱装置の設計

運動量変化 Q の測定範囲としては $Q_{\min} \leq 0.07 \text{ nm}^{-1}$ の測定が出来ることを目指す。 $Q_{\max}$ に関しては最終的には 5 nm^{-1} を目指すが、これは 0.3 nm の中性子が使えれば、有効長 600 mm 、 $1/2 \text{ inch}$ 径のチューブ型位置敏感検出器 (LPSD) を平面状に並べたものを配置できれば問題なく測定可能な領域である。 $Q_{\min}$ 、 $Q_{\max}$ の具体的な計算をしてみると、以下の計算によりそれぞれ、 $Q_{\min} \approx 0.06 \text{ nm}^{-1}$ 、 $Q_{\max} \approx 9 \text{ nm}^{-1}$ を満たすことが分かる。ただし、 $Q_{\min}$ に関しては ΔQ の約 2 倍とした。

$$Q_{\min} = 2 \frac{4\pi}{\lambda_{\max}} \sin\left(\frac{A_d}{2L_{sd}}\right)$$

$$Q_{\max} = \frac{4\pi}{\lambda_{\min}} \sin \theta_{\max}$$

ただし、 L_{sd} は試料と検出器間の距離で 0.7 m を仮定、 A_d は検出器面上でのビームスポットサイズで 4 mm を仮定した、 $\lambda_{\min}$ 、 $\lambda_{\max}$ はそれぞれ 0.3 、 1.2 nm を仮定し、 $\theta_{\max}$ としては LPSD の半分の長さ、 0.3 m を仮定して計算を行った。

$$\begin{aligned}
L_{sd} &= 0.7 \\
A_d &= 0.004 \\
\lambda_{\min} &= 0.3 \\
\lambda_{\max} &= 1.2 \\
\theta_{\max} &= \frac{0.3}{2L_{sd}}
\end{aligned}$$

試料の大きさとしてはミラーが単層の時に5mm×5mmを目標とする。このためには、ミラー長を L_m として、 $L_m \cdot \sin\theta$ を5mm以上にしなければならない。2 Q_c のスーパーミラーを使用し、 $\lambda_{\min}=0.3\text{nm}$ を使えば $\theta=11\text{mrad}$ となり、 $L_m=0.5\text{m}$ でほぼ設計条件からの要請を満たすことが出来る。

散乱強度は試料の大きさに比例するので、この値をなるべく大きくしたい。そのためには L_m を長くする、 $\lambda_{\min}$ を大きくする、 Q_c を大きくするなどの方法が考えられるが、それぞれトレードオフがある。 L_m を長くするとミラー湾曲装置の製作が難しくなり、集束ミラーを楕円形状に保つのが困難になる、また、試料-検出器間の距離が短くなり、 $Q_{\min}$ を確保しにくくなる。 $\lambda_{\min}$ を大きくすると $Q_{\max}$ がそれに反比例して小さくなってしまう。 Q_c を大きくするのが一番好ましいが、スーパーミラーの層数が多くなり、表面のラフネスが増え、散漫散乱が増え、反射率が減るなど様々な影響がある。これに関しては今後の試験が必要であり、現在の2 Q_c を4 Q_c に出来れば、試料サイズを10mm程度まで大きく出来、その二乗で強度を上げることが可能になる。一方で反射率は60-70%まで下がるので実際には3倍程度の強度増になる。なお、スーパーミラーを多層にする可能性もあり、現在の設計では楕円の短径の違う2枚のスーパーミラーを使える構成にしている。

検出器面上でのビームスポットサイズについては現在の技術で1mm程度まで集束できることが分かっているが、目標とする $Q_{\min}$ を測定するのに実際に必要なのは4mm程度のビームサイズであり、必ずしも1-2mmまでビームを絞る必要はない。

KBミラーの場合には、垂直、水平それぞれの中性子反射ミラーを上下流の中のどの位置に配置するかという問題がある。ミラーを中心より上流側にずらしたほうが試料と検出器の間の距離 L_2 を長く出来、より小角を測定するのに適しているが、中性子反射の場所が中心からずれた分だけその反射角が大きくなり、そのため θ をより大きく取らなければならない。これにより散漫散乱のバックグラウンドが増えるという問題がある。そこで、なるべく楕円の中心にミラーを置くことにした。

この検討のために、ミラーが中心にないときの検出器上でのスリットのイメージの大きさがどう変化するかを計算した。楕円弧型に湾曲したミラーによる二次元での反射軌道計算をWolfram Research社のMathematica 7.0を用いて行なった。図2-1にその計算結果の一例を示す。計算条件は、楕円の長径方向をz軸、短径方向をx軸とすると、 $z = -1600\text{mm}$ 、 $x = 0\text{mm}$ の位置を中心としてx軸方向に5mmの広がりを持ったビームが長径1600mm、短径30mmの楕円弧型ミラー(長さ500mmで、中心は $z = -200\text{mm}$ 、 $x > 0$)で反射すると言うものである。図

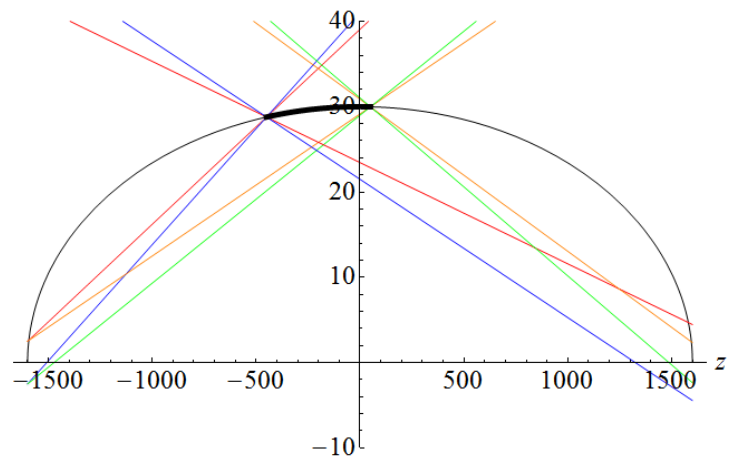


図 2-1. 楕円弧型ミラーによる反射経路計算結果。

オレンジ、青、緑で各々2本ずつ示した直線は、入射ビーム広がり、の両端からミラーの両端に向かうビーム経路とその反射ビーム経路のセットを示している。

計算結果としては、 $z = 1600\text{mm}$ の位置での反射ビームの x 軸方向の広がり求めた。入力パラメータとして入射ビーム広がり (beamsize)、ミラー中心位置の z 座標 (mirrorcenter) に対する計算結果の3次元プロットを図2-2に示す。

さらに、水平と垂直のミラーの配置の問題がある。楕円の中心にミラーを置くと、垂直と水平とでミラーを置く位置を変えなければならない。このため、スリットを置く分の空間を確保した上で、垂直方向の楕円の長径を 1700mm 、水平方向のそれを 1050mm とすることにした。

この幾何学的配置にあわせ、上流側の焦点の位置2ヶ所にそれぞれ垂直、水平のスリットを置いた。また、ミラーの直上流、直下流にミラーで反射されず、直接検出器に向かう中性子を遮蔽するためのスリットを置くこととした。

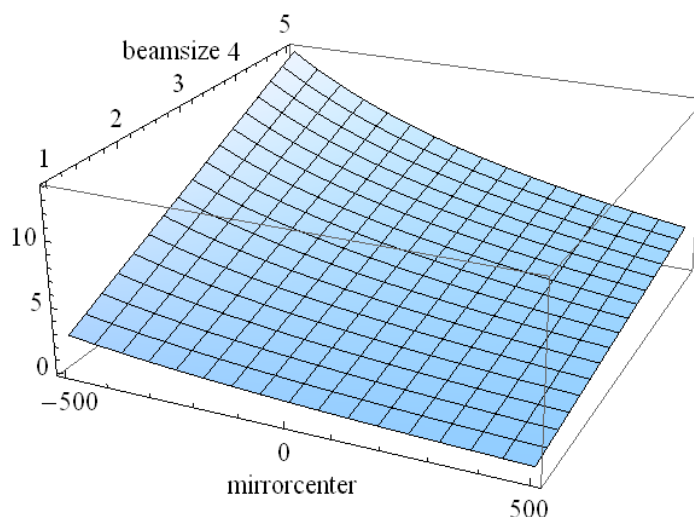


図 2-2. 入射ビーム広がり、とミラー位置に対する反射ビーム広がり。

KB ミラー実験条件

平成 22 年度に製作した KB ミラー実験装置による中性子ビーム集束実験および集束ビームを使った小角散乱実験を行なった。実験は、北海道大学工学部瞬間強力パルス状放射線発生装置研究室の 45MeV 電子線ライナックに付置されている冷中性子源から発生するパルス中性子ビームによる飛行時間法 (TOF) を使った測定により、中性子波長弁別が可能な実験を行なった。図2-3に示されているのは、実験装置の一部である中性子集束機構 (スーパーミラー設置用ホルダー (長尺 500mm)) である。図示されているスーパーミラー設置面は楕円弧状の曲面に加工されており、この曲面にスーパーミラーを設置し、対面側よりスポンジで均一に軽く押さえる事でスーパーミラーを楕円弧状に湾曲させる事ができる。このホルダーには上下段で2枚のスーパーミラーが設置できる構造となっているが、今回



図 2-3. KB ミラー実験装置の中性子集束機構。

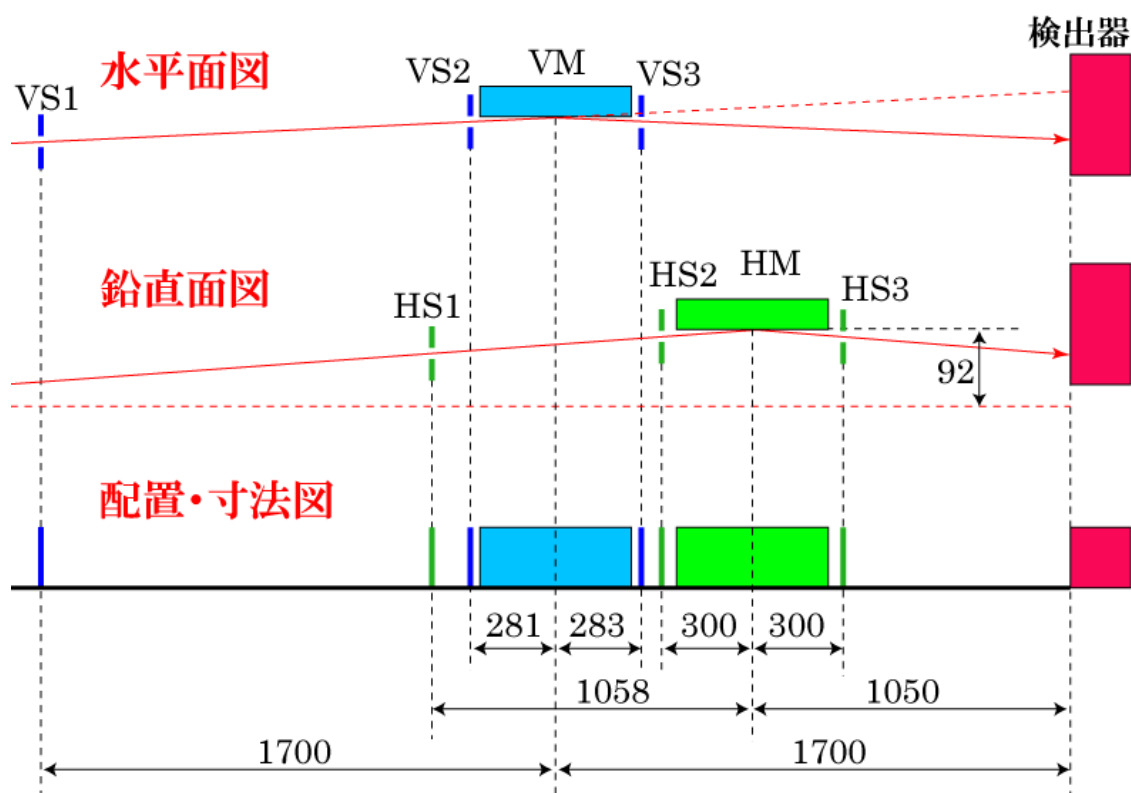


図 2-4. KB ミラー実験セットアップ模式図。
上段より水平面図、鉛直面図、配置・寸法図(単位：mm)。

の実験では上段の設置面のみ使用し、1枚のスーパーミラーを設置した。この様なミラーホルダーを2種類用意し、それぞれの上段設置面は、長径 1700mm、短径 20mmの楕円弧状曲面と、長径 1050mm、短径 20mmの楕円弧状曲面に加工されている。尚、ミラーホルダー上の設置曲面の中心と、楕円長径の中心とは合致している。これらのミラーホルダーに Ni/Ti 積層型スーパーミラー(500mm×100mm×2mm、2.5Q_c)をそれぞれ設置し、測定では前者のホルダーを水平成分集束用(後述の VM)に、後者のホルダーを垂直成分集束用(後述の HM)に使用している。これらは中性子ビーム集束機構取り付け金具を利用して取り付けられている。図 2-4 に実験セットアップの模式図と各実験装置の位置関係を示す。図中の記号はそれぞれ VS : Vertical Slit、HS : Horizontal Slit、VM : Vertical Mirror、HM : Horizontal Mirror を表し、赤破線は冷中性子源からの中性子ビーム中心軸を、赤矢印はミラーの中心で反射されて検出器で測定される中性子の飛行経路をそれぞれ示している。ここで、Vertical (Horizontal) Mirror とは鏡面が垂直(水平)方向に置かれたミラーを意味し、Vertical (Horizontal) Slit は、それぞれのミラーに対応したスリットと定義している。また、各スリットの幅は表 2-1 に示した通りであ

表 2-1 各スリットの幅

スリット	幅 [mm]
VS1	2
VS2	6
VS3	10
HS1	2
HS2	10
HS3	10

り、スリットには中性子遮蔽材であるカドミウム板が取り付けられている。冷中性子源から VS1 までは 5010mm である。検出器には 2 次元の ZnS(Ag) シンチレータを浜松フォトニクス社製の有効径 5inch 直径の抵抗分割型光電子増倍管に取り付けたもの(RPMT)を用いた。空間分解能は 256ch×256ch 分割で、時間分解能は 64ch 分割、時間チャンネル幅 $\Delta t = 0.3 \text{ msec}$ とした。

図 2-5 にスーパーミラーを取り付けたミラーホルダーと、

その周辺に位置する各スリットの実験セットアップ写真を示す。実験装置を組み上げた後、VS1 上流部から RPMT 検出器までの中性子飛行経路、及び検出器の周囲を、酸化ホウ素を添加したポリエチレン樹脂製の板で覆い、中性子バックグラウンド・ノイズの低減を図っている。



図 2-5. スーパーミラーとスリットの実験セットアップ写真。左の図は横向きに置かれた中性子集束ミラー（VM）を下流側から撮影したもの、右の図は下向きに設置された集束ミラー（HM）を上流側から撮影したものである。

実験結果

まずは垂直ミラーによる集束を確かめた。上流側のスリットを2mmにしたときの二次元検出器上でのイメージを図2-6に示した。 $x=45\text{mm}$ 付近にあるものがミラーで反射、集束されたビームで、80-90mmに有るものはミラーを抜けてきたダイレクトビームである。両者の間隔は約40mmで、楕円体の短径20mmの2倍になるようにスリット位置を調整したものである。ミラーの角度を微調整する必要はなく、反射角が正しい値になるようにスリットを調整すればアライメントは終了である。全反射する波長領域について、高さ方向に積

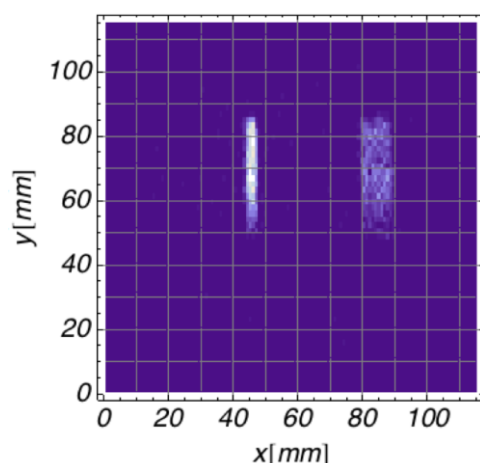


図 2-6. 垂直ミラーによるビームの集束の二次元イメージ。上流側のスリットは2mm。 $x=45\text{mm}$ 付近にあるものがミラーで反射、集束されたビーム、80-90mm に有るものはミラーを抜けてきたダイレクトビーム。

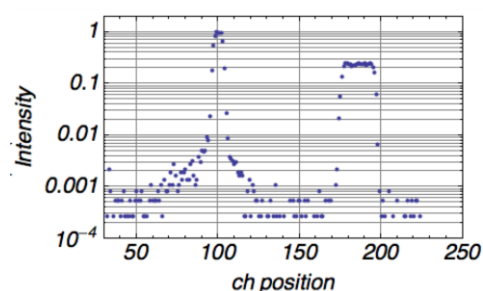


図 2-7. 垂直ミラーによるビームの集束。全反射する波長領域について、高さ方向に積分したもの。1chは0.45mmである。

分したものを図2-7に示した。ピークで規格化してあるが、2.5桁下のところで散漫散乱に

よるビームの広がりが見られている。また、検出器自身の問題で、計数の多い部分の上下方向、左右方向にストリークが走る傾向があり、それもこのようなバックグラウンドの原因となっているように見える。

図2-7から分かるように、集束ビームのピーク付近は平坦になっていて、ほぼ3mmのビーム広がりとなっている。本来であれば2mm程度になるはずで、この原因はまだ分かっていない。集束ビームの立ち上がり、立ち下がり部分のビームの広がりから評価すると半値幅で1mm程度のビームの広がりがあることが分かる。両者のたたみ込み積分でピークの形状が決まっているように見える。このことから、ミラーの楕円形状自身は良い精度で出来ていることが推測される。

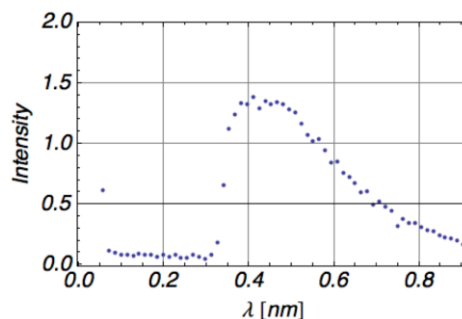


図 2-8. 集束ビームの波長依存性。

また、図2-8に集束したビームの波長依存性を示した。0.35nm付近にカットオフ波長がみられる。また、本来はそれ以下の波長ではほとんど強度が0になるはずであるが、0.1程度のバックグラウンドが観測されている。

垂直、水平両方のミラーを入れて、KBミラー配置にしたときの集束ビームのイメージを図2-9に示した。入射ビームのスリットは縦横それぞれ2mmであった。検出器上では、縦横ほぼ同じような広がり、それぞれ2.5mm程度に広がっている。本来2mm程度になるべきイメージに1mmの半値幅のビーム広がりが見えたと考えることが出来る。この時の波長依存性を図2-10に示した。

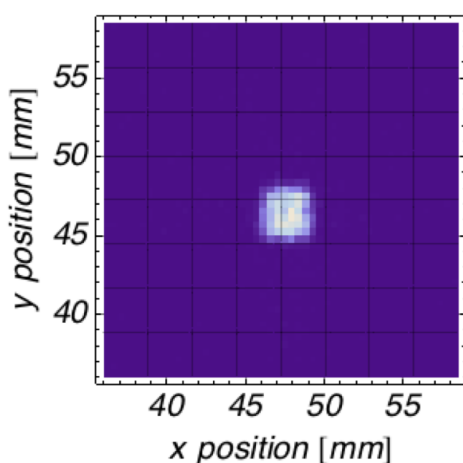


図 2-9. KB ミラー配置での集束ビーム。

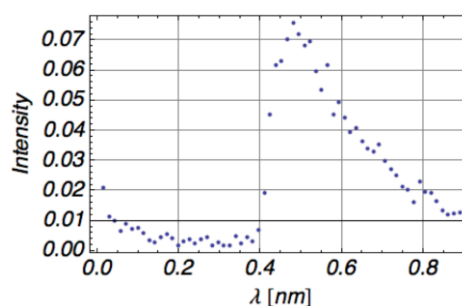


図 2-10. KB ミラー配置での集束ビームの波長依存性。

図2-11に粒径20mmの鉄の微粉末の小角散乱を測定した結果の二次元イメージを示した。左側は試料無しのダイレクトビームで、右側が試料有りの散乱である。見やすくするために、縦横4×4チャンネル分を積分して表示しているため、一見ダイレクトビームが広がっているように見える。右の図では小角散乱が見えているのが分かる。残念ながらこの実験時にはバックグラウンドが高く、左の図でも広い範囲に散乱があるのがわかる。角度

の大きなところでは、試料無しの方が試料有りよりもバックグラウンドが高く、再実験の必要はあるが、角度の小さいところでは小角散乱が十分に測定できている。

平均の波長が0.5nmと仮定して円環平均をとった予備的解析の結果と、それをGuinier関数でフィッティングした結果を図2-12に示す。これはQの小さいところではほぼGuinier関数に乗っており、得られたパラメータは $R_G=20\text{nm}$ であった。統計精度が荒いことと、フィッティングしているQ領域が大きすぎるため、精度の高い測定にはなっていないが、ほぼ正しい値が得られている。

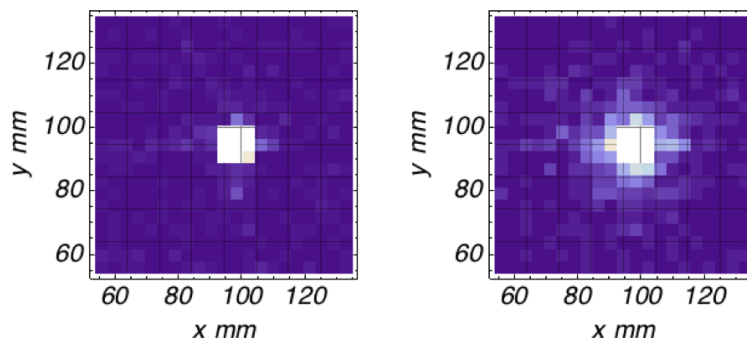


図 2-11. 鉄の微粉末の小角散乱を測定した結果。左側は試料無しのダイレクトビームで、右側が試料有りの散乱である。見やすくするために、縦横4×4チャンネル分を積分して表示している。

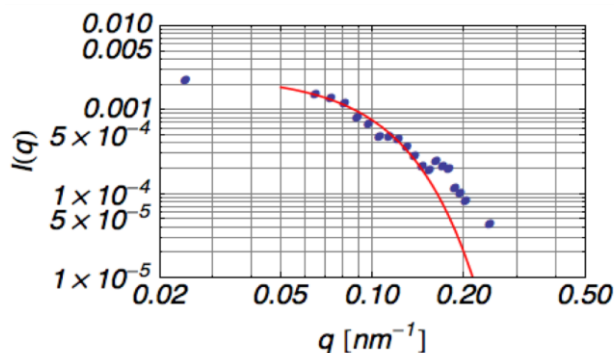


図 2-12. 小角散乱の実験と計算の比較。平均の波長を0.5nmと仮定して円環平均をとった予備的解析の結果と、そのGuinier近似によるフィッティング。Qの大きなところでは通常Guinier近似からずれる。予備的に得られたGuinier半径 R_G は約20nmであった。

2. 2. 2. 2 塑性変形、あ

るいは弾性変形したSi及びGeの単結晶を用いた中性子の単色化・集束化素子の開発

はじめに

中性子モノクロメータに関してはモザイク結晶であるパイロリティック・グラフアイト(PG)が広く用いられていて、0.2nmの中性子に対して70-80%程度の高い積分反射率が得られる。モザイク度を選択することにより入射／反射ビーム広がり制御し、強度と分解能の最適化を行うことができるとともに、大面積の結晶を用い、集束させることで大強度化を図れる。しかし、PGはモザイク結晶であるため、ビームの発散角とビームの集束を制御することは難しい。

これに対し、高いエネルギー分解能が必要な場合には完全結晶Siを湾曲したものが用いられる。湾曲半径を制御することにより 10^{-5} - 10^{-4} 程度の高いエネルギー分解能が得られ、反射率も高い。湾曲することにより空間的な集束も同時に制御することもできる。しかし、分解能が悪くてもよい場合には、曲げ半径を10m以下にすることが容易ではないため強度が犠牲になってしまう。

京都大学大学院エネルギー科学研究科の中嶋グループは、高温高压でSiあるいはGeの単結晶を塑性変形させることにより曲げ半径 $R=1\text{m}$ 以下にすることが出来る技術を開発して

いる。このような結晶を用いることにより、実効モザイク度 ($\theta_{\text{eff}} = w/R$ 、ただし、 w はビームで照射される結晶の幅) を1%あるいはそれ以上にすることが出来る。このようなモノクロメータは、エネルギー分解能はそれ程必要がないが、三軸分光器、あるいは小角散乱、反射率のような高強度が必要な装置にこれを用いることが出来る。

しかし、塑性変形結晶のモノクロメータとしての性能がどのようなものか、結晶格子面がどのように配列しているか、欠陥がどのように結晶中に入っているのかなど、基本的に結晶がどのようなになっているのかについてはまだ不明なことが多い。残念ながら欠陥については中性子では強度が弱いため測定は困難であるが、モノクロメータとしての基本性能をチェックすることで、このようなモノクロメータについてどのような性能が期待されるかを評価することにした。

最終的にはこのようなSiあるいはGeの塑性変形結晶を使うことで、より狭い空間領域に高い中性子束を集中させることの出来る、性能の高いモノクロメータ素子を作り出せると考えている。「中性子モノクロメータ結晶はPG」という“常識”を覆すことが出来れば、国内外に大きな影響を与えることが出来る。

実験

湾曲半径600mmに塑性変形した35mm径、0.5mm厚のGeについて、白色中性子を用いて、ブラッグ反射積分強度の結晶枚数依存性を測定し、PG結晶との比較を行った。白色中性子としては北海道大学電子線形加速器によるパルス中性子源 (HUNS) を用い、日本原子力研究開発機構の三号炉 (JRR-3) に設置されたPGによる単色中性子ビームを入射した時との比較を行った。

HUNSにおいて、Ge単結晶の (111) 面に19.2度の入射角で白色中性子を入射したときのブラッグ反射像を図2-13に示した。検出器はZnSシンチレータを抵抗分割型の2次元光電子増倍管に取り付けたものを用いた。位置分解能は1mm弱であるが、ピクセルサイズは1.8mm/pixelである。

このデータについて飛行時間法 (TOF) で測定した波長の関数としてプロットしたものを図2-14に示した。20K前後の結合型固体メタンモデレータを使用しているため、その放出時間形状を反映し、パルス幅が大きく、立ち上がりがすどく、立ち下がりが尾を引く形状となっている。

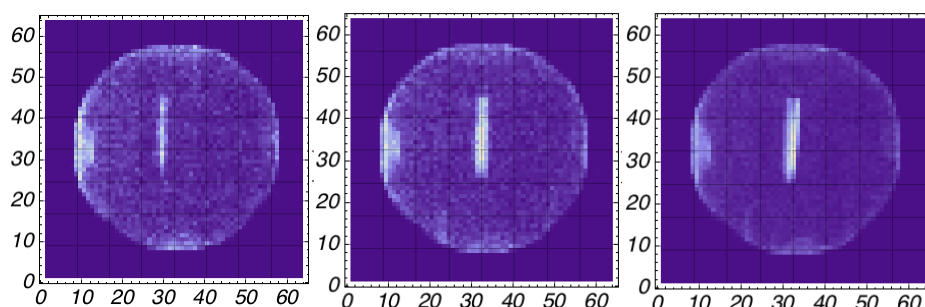


図 2-13. 塑性変形 Ge 単結晶からの Bragg 反射像。左から単結晶 1 枚、3 枚、5 枚の時の像。入射ビーム幅 11mm、検出器のピクセル寸法は 1.8mm/pixel。

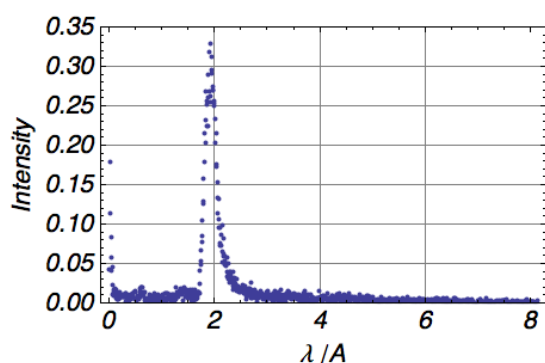


図 2-14. 塑性変形 Ge 単結晶 5 枚のときの(111)Bragg peak の波長依存性。入射角が 19 度からずれているため、ピーク波長は 2Å弱となっている。

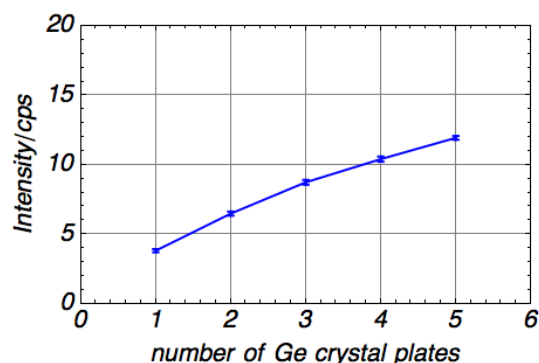


図 2-15. 塑性変形 Ge 単結晶からの積分反射強度の結晶枚数依存性。Ge 単結晶は厚さ 0.5mm、直径 35mm、111 面による反射。

このピークの積分強度を Ge 単結晶の枚数を横軸にとってプロットしたものを図 2-15 に示した。結晶の枚数は 1 枚から 5 枚までであった。

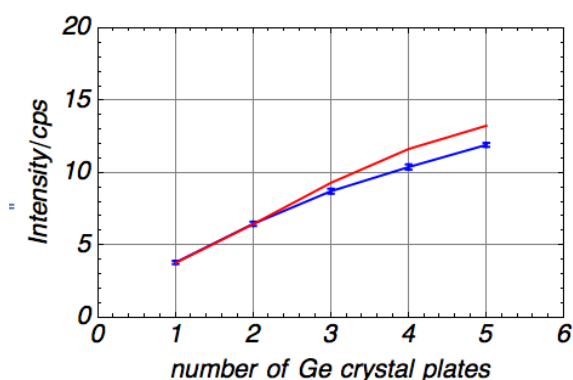


図 2-16. 塑性変形 Ge 単結晶積分反射強度の入射中性子バンド幅による違い。Ge 単結晶 JRR-3 AKANE 分光器において PG モノクロメータからの単色入射中性子を用いた場合（赤の曲線）と北海道電子 LINAC 中性子源（HUNS）における白色中性子を用いた場合（エラーバー付き曲線）の比較。

また、JRR-3 の AKANE 分光器において PG モノクロメータからの単色入射中性子を用いた場合（赤の曲線）と北海道電子 LINAC 中性子源（HUNS）における白色中性子を用いた場合（エラーバー付き曲線）の比較を行ったものを図 2-16 に示した。エラーバーが小さいため、ほとんどマーカー記号のように見えている。AKANE の結果は結晶 1 枚の実験の値と同じになるように規格化してある。白色入射中性子を使用したときのほうが結晶の枚数を増やしたときに若干増加率が下がる傾向が見えている。

HUNS での結果を Ge の吸収を考慮に入れた以下の関数で fit を行った。

$$R_0 \sum_{i=1}^n \exp(-l(i-0.5)/\mu_{\text{eff}})$$

ただし、各パラメータは以下のとおりである。

R_0 : Attenuation free reflected intensity

n : number of crystal plates

$l = d / \sin \theta$: average neutron path length in a crystal plate of thickness d ,
when incident and reflected neutron angle is θ

μ_{eff} : effective attenuation coefficient

Ge attenuation coefficient : 2.07 cm

る。

これは中性子強度が入射側のGeの結晶板で吸収される効果を考慮した関数となっている。ただし、 μ_{eff} はGeの吸収係数そのもの(2.07cm)ではなく、fitting parameterとしている。Fittingの結果を実験結果と比較したグラフを図2-17に示した。実験結果とfittingは非常に良い一致を示している。

このfittingの結果を見ると μ_{eff} は0.62cmとなっており、単なるGeの中性子吸収よりもかなり強い吸収となっている。これは浅い場所にある結晶板によりBragg条件が満たされる回折が一度起きてしまうと、同様の条件を持つ深い場所にある格子面での反射が起きなくなるということを意味していると思われる。我々は自己遮蔽効果の一つと考えている。

このfittingの結果からGe単結晶の枚数を増やしたときの予想を行ったのが図2-18の曲線である。しかし、この予想は5枚という少ない枚数のデータからの推測であり、その信頼度は今後確認する必要がある。

また、2次元検出器によるPGからのBragg反射像を図2-19に示した。集束効果がないため、Geの結果に比べ横幅がかなり広いことが分かる。また、PGの測定結果を検出器位置での面積で規格化したものを、図2-18の左上のデータ点として示した。この自己遮蔽効果によりここで行ったfittingを信用する限りにおいてGe単結晶の枚数を増やしていってもそのままではPGの反射強度の7割にしか到達できないことが予想される。

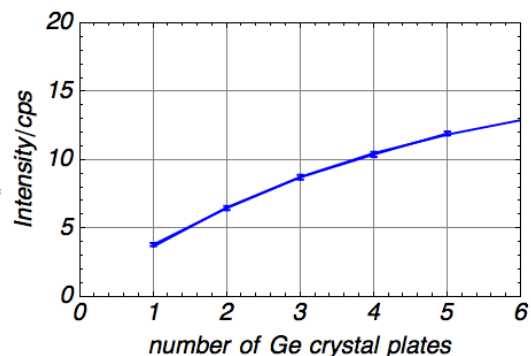


図 2-17. 塑性変形 Ge 単結晶からの積分反射強度の結晶枚数依存性の Fitting 結果。実験結果 (エラーバー) と Fitting の結果 (曲線) の比較。

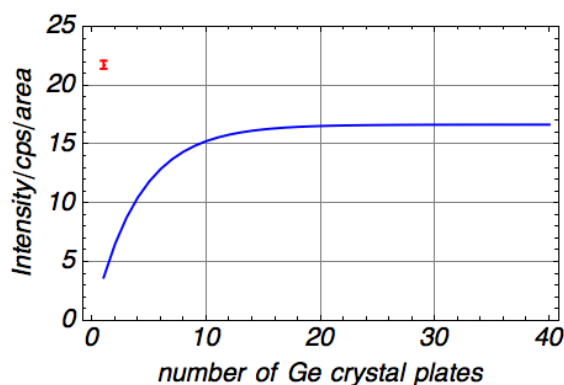


図 2-18. 塑性変形 Ge 単結晶からの積分反射強度の結晶枚数依存性の予想。PG の検出器面上でのビーム面積で規格化した反射強度実測 (強度が 22 付近のエラーバー) も示してある。強度予測に関しては Fitting 関数と Fitting で得られたパラメータを基に推測した。

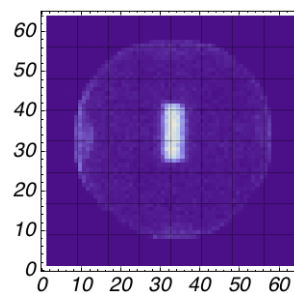


図 2-19. 2 次元検出器による PG からの Bragg 反射像。

さらに、図2-20に示すような弾性変形Si結晶板を30枚重ねたモノクロメータを作成し、非常に高性能のものができると確認した。通常であれば、多数の0.5mm厚のSi基板を重ねたこのようなものを、半径700mmというような極端な変形までさせることは困難である。機械的に破壊すること無く、均一にSi結晶板を変形させる手法を開発し、このようなモノクロメータを作成することが出来た。さらに、中性子強度はビーム広がり非常に大きく、PGに匹敵するような強度が得られた。

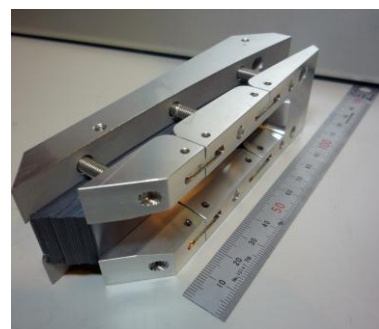


図 2-20. 弾性変形 Si 結晶板を30枚重ね、半径700mmまで変形させたモノクロメータ。

まとめ

塑性変形Ge単結晶を用い、HUNSの白色中性子源において積分Bragg反射強度の測定を行った。その結果、1枚から5枚まで枚数を増やすことにより積分強度が増加していくことが判明した。しかし、線形に強度が増加するわけではなく、徐々に強度が飽和する傾向が見られた。これを自己遮蔽効果まで考えた関数でfittingし、得られたデータと良い一致を示すことを示した。この結果を基に非常に粗い評価ではあるが、PGの測定結果と比較した。検出器位置での単位面積当たりの強度では、Geの単結晶を15枚程度重ねることでPGの約7割の強度が得られる。しかし、単純な面積積分強度ではPGの方が広がり大きいいため、約2倍の強度となっている。

今後塑性変形の半径を変えた結晶での評価を行うとともに、Si結晶との複合化で更に高い強度を持つモノクロメータの開発を目指す予定である。

2. 2. 2. 3 マルチピンホール小角散乱装置の試験研究

はじめに

例えば溶接された金属のように、材料中にナノスケール～サブナノスケール構造の場所依存性がある場合、その試料の微小領域を小角散乱で走査できれば、その場所依存性を中性子小角散乱の変化として観察することができる。これまでスリットによる微小領域での走査による測定は行われたことがあるが、小さなピンホールでの走査は中性子ビームの強度が落ちてしまうと思われていたため行われていない。これに関しては、1~2 mm径程度の小さなピンホールからの散乱でも、それを多数開けることで複数個所の測定が同時に出来、測定時間を大幅に短縮できるはずである。ただし、小角散乱は検出器上で重なってしまう部分が出てきてしまうのでこれを解決する必要がある。検出器上での散乱の重なりを分離するのは、単色中性子を用いた場合は困難である。しかし、飛行時間法(TOF)を用いた小角散乱装置では、波長が短ければほとんど重なりあい無しに Q の大きな部分の測定をすることが可能である。これをもとに、順に波長の長い散乱に適応し、補正をすることで、この重なり合いを分離することが可能になる。

このような装置では、ビーム発散角を決めている上流、試料直前の2つのピンホールの径が1-2mmと小さく出来るため、短い距離で発散角を絞ることができる。同じ発散角のビームを用いた同様の装置と比べ、上流側のピンホールから検出器に至るまでの装置の長さを一桁程度短くできる。

平成21年度は北海道大学電子ライナック中性子源において、実際に全長3.0 mの小角散乱装置で2.0mmφのマルチピンホールを用いた装置を製作し、鉄鋼材料SS400(JIS)の溶接部と非溶接部における小角散乱の違いが約6時間の測定で観察できた。平成22年度はこのマルチピンホール小角散乱について円環平均を取って、散乱関数 $I(Q)$ を求める解析手法

の開発をすすめるとともに、1mmφのマルチピンホールの小角散乱装置を製作し、鉄鋼材料の溶接部、非溶接部およびその境界部分にある、1mm程度の幅の熱影響部に関し、小角散乱の測定を行った。

さらにJ-PARCのような強力な中性子源を用いることにより0.1~0.2 mmφのピンホールを用いることが出来る。このための準備研究として、実際に0.2mmφの穴を多数開けたピンホール素子試作を行い、このようなマルチピンホールが作成可能であることを確認した。

マルチピンホール小角散乱装置の原理

一般的なピンホール型小角散乱装置の模式図を図2-21に示した。通常、試料直前のピンホールは径10mm、上流側のピンホールは径20 mm程度が用いられ、全長は最長で20m程度が用いられる。これに対し、試料直前のピンホールを2mmとすれば、全長が1/5となり、4m程度で同じQ領域の測定ができることになる。平成21年度は全長を3mとして実験を行った。

10mm径と2mm径とでは面積が $5^2=25$ 倍違う。そこで上流側のピンホールを25個同時に利用出来れば強度もほぼ同様にできる。これを模式的に描いたのが図2-22である。逆に上流側にマルチピンホールを置けば、ピンホールの数の分だけ強度を増強することができる。これを模式的に描いたのが図2-23である。

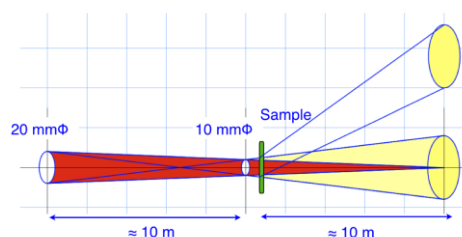


図 2-21. 一般的なピンホール型小角散乱装置の模式図。通常試料直前のピンホールは径10mm、上流側のピンホールは20 mm 程度が用いられ、全長は最長で 20m 程度が用いられる。

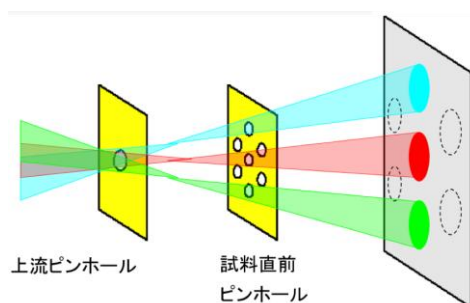


図 2-22. 試料直前マルチピンホール型走査型小角散乱装置。

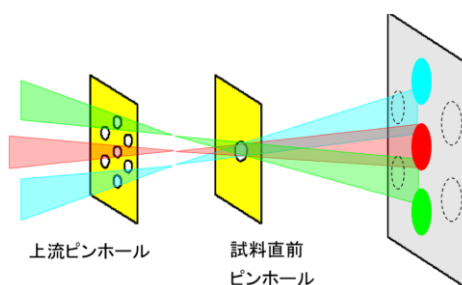


図 2-23. 上流側マルチピンホール型走査型小角散乱装置。

実験結果と解析

このようにして平成21年度測定した結果を図2-24に示した。これは17個のピンホールを開けた物を試料直前に置いたものである。図の左側が検出器全体を見たもので、17個のピンホールに対応してダイレクトビーム（下側の図）と小角散乱パターン（上側の図）に沢山のピークが見えている。右側の二つの図はそれぞれの部分を拡大したものである。ダイレクトビームは試料が無い測定であるため、通常でいうバックグラウンドの測定になっている。試料が有る場合にはそうでないものに比較し、明らかに小角散乱が観測されているのが分かる。

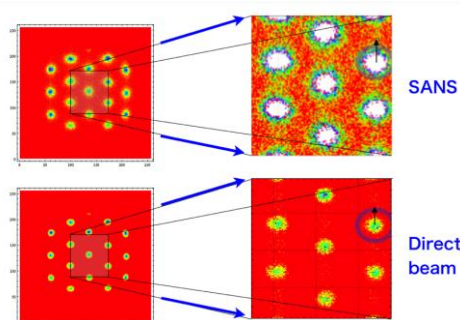


図 2-24. 試料直前マルチピンホール型走査型小角散乱装置による実験結果。上の二つの図は試料有りの散乱、下は試料無しの時の散乱である。右側の二つの図は左の図の部分拡大図となっている。

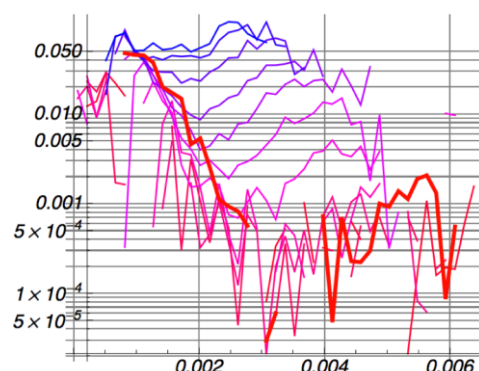


図 2-25. 小角散乱の円環平均解析した Q 依存性の予備的な結果。右下は波長の短いものからの散乱、上に向かって波長が長いものに対応している。赤の太い曲線はそれぞれの波長領域で信頼の高いものを繋ぎあわせたものである。

これらのそれぞれのデータをダイレクトビームのピークを中心として円環平均をとり、試料有りの散乱から試料なしの散乱を引いた予備的解析の結果が、図2-25で、横軸は $\text{\AA}$ 単位の Q である。細い曲線は幾つかの波長領域に分けて解析をしたもので、右下は波長の短いものからの散乱、上に向かって波長が長いものに対応している。隣のピンホールがあるため、ピークは Q の小さい側と大きい側に二つ見えている。赤の太い曲線は後に述べるが、再構成した小角散乱である。また、ダイレクトビームの強度で規格化してから引き算をしているため、透過率の補正も同時に行われている。

波長の短い領域からの散乱は隣のピンホールからの影響をほとんど受けないため、 $0.002 \text{ \AA}^{-1}$ 前後の領域は正しい値に近いものが得られているはずである。これを基に、順番に長波長側の散乱を求め、信頼できる領域のものだけを集めて足しあわせたのが赤の太い曲線である。 $Q=0.0025 \text{ \AA}^{-1}$ 程度までは信頼できるデータとなっている。このような解析で $0.001 \text{ \AA}^{-1} \leq Q \leq 0.0025 \text{ \AA}^{-1}$ という非常に小さい Q 領域の小角散乱が測定出来ているように見える。現在解析方法のさらなる検討を行うとともに、それぞれのピンホールでどのような違いが見えるかの解析を行なっている。

更に平成22年度は $1\text{mm}\phi$ のマルチピンホールの小角散乱装置を製作し、鉄鋼材料の溶接部、非溶接部、及びその境界部分にある、 1mm 程度の幅の熱影響部に関し、小角散乱の測定を行った。これは上流側に7個のピンホールを2セット、合計14個開け、更に試料直前では2つのピンホールを開けた測定である。これにより、二ヶ所からの小角散乱についてそれぞれ7倍の強度で測定することが可能になる配置である。図2-22と図2-23にあるマルチピンホールの配置を更に組み合わせたものとなっている。

図2-26 にダイレクトビーム（試料無し）の時のパターンを示した。14個のピンホールに対応したピークが見えている。更に、図2-27に溶接試料を置いたときの小角散乱パターンを示した。左側の7つは熱影響部からの散乱、右側は非溶接部からの散乱である。明らかに小角散乱は見えているが、熱影響部からの散乱と非溶接部からの散乱に違いがあるかどうかは現時点では判断できない。今後円環平均を取って解析を行い、その変化を調べる予定である。

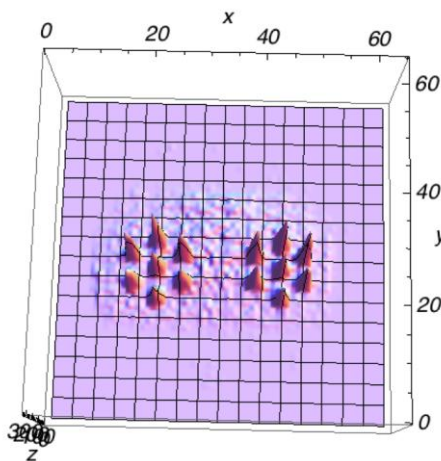


図 2-26. 14 個のピンホールに対応したダイレクトビームのパターン（試料無し）。

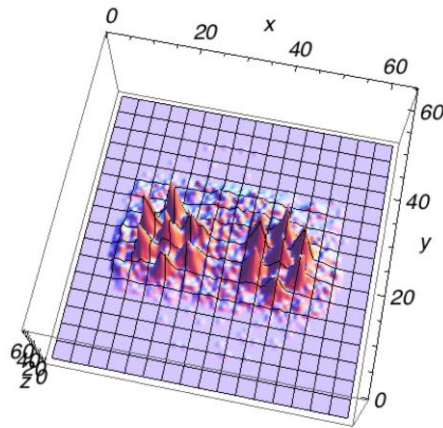


図 2-27. 試料を置いたときの小角散乱パターン。左側の 7 つは熱影響部からの散乱、右側は非溶接部からの散乱である。

まとめ

以上示したように、従来のような10mm径程度のピンホールを1-2mmにすることにより、全長で3m程度の小角散乱装置を作成できることが分かる。ピンホールからの散乱が非常に少ないため、かなり Q の小さい領域まで測定が可能である。実際、強度が強い試料であれば、2mm径のピンホールの場合で $Q_{\min} \approx 0.002 \text{ \AA}^{-1}$ まで測定が可能であった。波長依存性のある小角散乱の変化を積極的に用いて、重なりあった小角散乱を解析する手法の開発が進んでおり、もっともらしい小角散乱が得られるところまで来ている。今後、この解析で正しい結果が得られているか、それぞれのピンホールからの散乱にどのような違いがあるかの解析を進める予定である。

2. 2. 2. 4 まとめ

中性子の集光技術により、装置を小型化、あるいは高強度化を図ることが出来る。そのため、まず中性子スーパーミラーを湾曲させることで中性子を集光させる素子を作成した。この素子で集束を確認することが出来た。これを水平、垂直に組み合わせるKB配置型の中性子小角散乱装置を作成し、世界ではじめてその原理検証実験に成功した。また、実際に3.4mの小型の装置で $Q_{\min} \approx 0.07 \text{ nm}^{-1}$ 程度の測定が出来ることを実証した。

また、塑性変形、あるいは弾性変形したSi及びGeの単結晶を用いて中性子を単色化・集束化する技術基盤の開発を行った。これらを用いて、中性子の集束を確認することができた。また、単色化した中性子の強度に関し、塑性変形したGeの方が塑性変形したSiよりも中性子反射強度は高いことを確認した。しかし、Geは中性子吸収が高く、結晶を重ねたときに強度は増加するが、強度はその枚数に比例よりも少なくなることを確認した。さらに弾性変形Si結晶板を30枚重ねた単色化素子を作成し、非常に高性能の単色化素子ができることを確認した。

さらに、多数のピンホールを用いることで、集束と同様の効果を得ることが出来る可能性があるため、その可能性を探る評価実験を行った。これにより、3m以下の装置で中性子小角散乱を測定することに成功した。さらに、飛行時間法により、様々な波長のデータの測定ができるため、それらの Q 依存性の違いから多数のピンホールで重なった小角散乱

のデータを解析する手法の開発を行い、ある程度の目処がたった。今後も更に詳細な解析手法の開発を続ける。

2. 3 成果の外部への発表

1. 解説

無し

2. 口頭発表

①S. Goko, T. Kamiyama, T. Sato, M. Furusaka, Y. Kiyanagi “Time-of-flight measurement using CMOS camera coupled with image intensifier” NEUWAVE-3, Hokkaido Univ. (Sapporo), June 6-9, 2010

②後神進史、加美山隆、佐藤他加志、古坂道弘、鬼柳善明「高速度カメラを用いたパルス中性子の飛行時間スペクトル測定」日本原子力学会 2010 年 秋の大会、北海道大学（札幌） 2010 年 9 月 15－17 日

③後神進史、加美山隆、古坂道弘、鬼柳善明「カラーI.I.と高速度カメラを用いたパルス中性子 TOF スペクトル記録システムの開発」日本原子力学会 2011 年 春の年会、福井大学（福井） 2011 年 3 月 28－30 日

3. ポスター発表

無し

2. 4 活動（運営委員会等の活動等）

本年度は、特に分担機関としての各種会合開催は無い。

2. 5 実施体制

業 務 項 目	担当機関等	研究担当者
1. 中性子イメージング・集光技術の開発と応用に関する研究	北海道大学大学院 工学研究院	◎鬼柳 善明
(1) 中性子イメージング技術の開発と応用	北海道大学大学院 工学研究院	○加美山 隆 平賀 富士夫 後神 進史
(2) 中性子集光技術の開発と応用	北海道大学大学院 工学研究院	○古坂 道弘 藤田 文行 本間 彰 後神 進史