平成21年度

文部科学省 科学技術試験研究委託事業

「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)

成果報告書

平成22年3月

国立大学法人北海道大学

本報告書は、文部科学省の平成21年度科学技術 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21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21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) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
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 イメージインテンシファイア発光記録用
高速度カメラ測定体系・・・・・2
2.2.1.2 高速度カメラによる撮影結果と評価・・・・・・・・・4
2.2.1.3 まとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・9
2.2.2 中性子集光技術の開発と応用 ・・・・・・・・・・・・・9
2.2.2.1 塑性変形湾曲化完全結晶の回折角の
入射位置依存性の測定・・・・12
2. 2. 2. 2 Si と Ge を混合した単結晶による単色化装置の検討・・・19
2.2.2.3 まとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・21
2.3 成果の外部への発表 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・22
2.4 活動(運営委員会等の活動等) ・・・・・・・・・・・・・・・・・22
2.5 実施体制 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・22

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. 高速度かめら測定体系模式図・・・・・・・・・・・・・・・ 3
図 1-3. 高速度カメラ測定体系設置状況。・・・・・・・・・・・・・・ 3
図 1-4. 加速器トリガー信号とシャッタータイミングの関係・・・・・・・・ 4
図 1-5.測定試料配置(PE はポリエチレンを示す)・・・・・・・・・ 4
図 1-6. 高速度カメラの連続画像(飛行時間毎積算処理後)・・・・・・・・・5
図 1-7. 高速度カメラの輝度値変化スペクトルと
³ He 検出器によるスペクトルの比較・・・・ 6
図 1-8. 試料有りの場合の場所による輝度値変化スペクトル・・・・・・・・6
図 1-9. 飛行時間チャンネル1チャンネル目(~5000meV)の画像と輝度・・・・ 7
図 1-10. 飛行時間チャンネル2チャンネル目(~500meV)の画像と輝度・・・ 7
図 1-11. 飛行時間チャンネル6チャンネル目(~40meV)の画像と輝度・・・ 7
図 1-12. 飛行時間チャンネル7チャンネル目(~30meV)の画像と輝度・・・ 8
図 1-13. 飛行時間チャンネル 10 チャンネル目(~10meV)の画像と輝度(1)・・・ 8
図 1-14. 飛行時間チャンネル 10 チャンネル目(~10meV)の画像と輝度(2)・・・ 8
図 1-15. 飛行時間チャンネル 30 チャンネル目(~1meV)の画像と輝度・・・・ 9
図 2-1. ロッキングカーブ実験体系・・・・・・・・・・・・・・12
図 2-2. Cd 製マルチスリット・・・・・・・・・・・・・・13
図 2-3. 実験体系の写真・・・・・・・・・・・・・・・・・・13
図 2-4. 結晶をその円筒の軸方向を縦向きに置いた場合のビームスポット変化・14
図 2-5. 検出器上のスポット位置における中性子回折強度と波長の関係・・・14
図 2-6. Ikeda-Carpenter function によるピークフィッティング結果・・・15
図 2-7. 塑性変形 Si 結晶上の位置と到達時間との関係・・・・・・・・15
図 2-8. PG と Si の強度比較実験体系・・・・・・・・・・・・・・・・16
図 2-9. RPMT で測定された中性子スペクトル・・・・・・・・・・・・16
図 2-10. PG および塑性変形 Si によって回折された中性子の
検出器上でのイメージ・・・・17
図 2-11. x 軸方向に射影したスポットに対する Gauss 関数フィッティング・・・・17
図 2-12. PG および塑性変形 Si によって回折された中性子強度と波長の関係・・・18
図 2-13. 厚さ 0.5mm、0.3mm、0.5mm+0.3mm の塑性変形 Si を
用いた場合の検出器上のスポット・・・・18
図 2-14. 回折された中性子強度と飛行時間との関係・・・・・・・・・・・19
図 2-15. 実験装置に必要な位相空間内でのビーム分布の概念図・・・・・・20
図 2-16. 結晶モノクロメータの概念図・・・・・・・・・・・・・・・・21

1. 委託業務の目的

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ミ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と共同で業務を行う。

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21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。そのために時間分割測定システムを整備し、20年 度購入したカラーI.I. 管球を用いて時間分割測定を行う。

②中性子集光技術の開発と応用

広い波長領域幅を持ち、高い強度をもたらす単色化素子は、湾曲した完全結晶 に対し、結晶面の角度に合わせて中性子を入射することで実現可能と考えられる。 高温でプレスし湾曲させたSiの単結晶を用い、新方式の単色化素子の基礎実験に 着手する。また、SiとGeを混合した単結晶ではその組成により格子定数を4%程度 変化させることが出来る。この結晶が単色化素子として利用可能かどうか評価を 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次元空間の中性子検出と同時に、パルス中性子の特長を生かした 中性子飛行時間によるエネルギー分析ができるように高速の動作が可能な検出器シス テムが必要とされる。例えば、我が国の新しい大型加速器中性子源であるJSNSでは 25Hzで繰り返し中性子パルスを出すので、25Hzでの繰り返し動作ができること、中性 子飛行時間によるエネルギー測定の精度を十分にとるために、早い場合にはマイクロ 秒オーダーのシャッター開放の繰り返しを連続して行う必要がある。もちろんこの繰 り返しとられるデータは、時間チャンネルに分けて積算する必要がある。このような 測定には、高い検出レートと適度の検出効率、さらに飛行時間法に適用可能であると いう条件下で透過画像を2次元空間で取得することができる検出器が必要である。これ までいくつかの種類の検出器がテストされてきたが、検出効率や検出レートを比較的 満足し、飛行時間法にも適用可能な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fLi ガラスシンチレータ直結型検出器しかない。この検出器は現在8×8もしくは16×16ピ クセルの2次元位置を検出でき、これまでにJSNSにおけるパルス中性子イメージングで 実績を積んでいる。しかし、問題なのは空間分解能で、1ピクセルが2×2mm程度の分解

能になってしまう。現在中性子の利用が期待される工業分野ではサブ㎜の空間分解能 はもちろん、場合によっては1 um領域の空間分解能を要求されることから、パルス中 性子イメージングでも数10~数100μmの空間分解能で飛行時間分析できる検出器であ ることが望ましい。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、高速度カメラ が作動を開始し、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。本事業で昨年度 導入した中性子イメージインテンシファイアは検出器径が4インチ、シンチレータには Gdを利用した(n, y)タイプの中性子カラーI.I.[™](Ultimage[™]-n y-04)である。これは、 空間分解能が約40µm程度であり、パルス中性子イメージングには適当な検出器システ ムと考えられる。平成21年度は、時間分割測定の基礎的検討を行った。

2.2.1.1 イメージインテンシファイア発光記録用高速度カメラ測定体系 平成21年度に導入した高速度カメラは、導入時点で最新のCMOSセンサーを用い



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。

たMikrotoron社のMC1362である。このカメラは最大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14µm角、Camera Link Full規格 のケーブル2本で3Gbit/s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2ms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。今年度は撮影エリアを128×100ピクセルとし、カメラ の連続撮影速度を1900fps、即ちチャンネル幅約530µsという条件にして測定を行っ た。なお、この撮影速度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。 このシステムの性能評価では、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を用いているが、線源と してはJSNSの1/10000以下の強度しかないため、500 µ s強の露光時間では画像が非常に 暗くなってし

まい撮影イ メージの判別 が不可能に なってしまう。 そのため、イ メージインテ ンシファイア として、本事 業で導入した カラーI.I.に 加えて、その 蛍光出力をさ らに増幅して カメラに入射 させるマイク ロチャンネル プレート (MCP) 型のイ メージインテ ンシファイア を接続した。 これは、北大 の設備である 浜松ホトニク ス C9016-02 と

いうMCPが2段



で可視領域光の増幅が可能なタイプである。これらの接続模式図を図1-2に、実際のカ メラ設置状況を図1-3に示す。冷中性子源から発生した中性子ビームは、試料スペース を通過した後カラーI.I.に入射し、光に変換されミラーで90度進行方向を曲げられた 上、レンズを通してMCPに入り、再度イメージが増幅された後高速度カメラに入射する。 この間、中性子ビームの発生を時間原点として記録しておき、カラーI.I.に中性子が 入射した時間から飛行時間法により中性子エネルギーの計算を行う。今回、線源から カラーI.I.までの飛行距離は3.8mである。

画像の記録システムは、本高速度カメラ評価用のレコーディングシステムである NorPix社製StreamPix Station 625というものを使用した。これは4Gバイトの物理メモ リを持つ1種のコンピュータで、ホットスワップ可能な6台の1Tバイトハードディスク に1280×1024ピクセル・500fpsの画像を150分間分記録することができる。本事業で目 標とする記録システムでは、繰り返し測定のデータを積算して記録することにより、 長時間記録を行えることが必要であるが、今回は高速度カメラ評価の測定であるので、 加速器トリガーに同期した中性子測定を1トリガー毎にファイルとして記録しておき、 同じ飛行時間チャンネルの積算処理は全測定終了後に別の解析用計算機にて行った。 これによって時間分割測定の可能性を検証した。 高速度カメラのシャッター動作と加速器トリガーの関係を図1.4に示す。今回は、記録システムの制限から加速器トリガーは1.9Hzとなっており、そのトリガー信号を受けて高速度カメラは1900Hzのデータ転送周波数に合わせてシャッターを連続して切る。 このシャッター枚数は先に指定しておき、指定枚数分シャッターが切られた後、高速度カメラは休止して次の加速器トリガーに備えるという動作を連続させる。今回の記録枚数は、中性子の飛行時間スペクトルが充分に測定できる450枚の連続記録とした。 得られた連続画像は飛行時間チャンネル毎に5000枚前後積算処理を行い、中性子のエネルギーに対応した最終的な積分画像を得た。

測定評価用の試料配置は図1-5に示す。測定ではこれらの試料の他に、試料未装着の 測定も行い、得られた中性子スペクトルについて検討した。







図 1-5. 測定試料配置(PE はポリエチレンを示す)。

2.2.1.2 高速度カメラによる撮影結果と評価

図1-6に試料無し及び試料有りの場合の積算後の連続画像を示す。画像内の円形の部 分がカラーI.I.の出力蛍光面イメージにあたる。いずれも暗い状態から4枚目付近で急 激に明るくなり、その後次第に暗くなっていく状況を示している。さらに、試料有り の場合には次第に暗くなっていく部分の画像に試料の影が写っていることがわかる。

本事業で開発している中性子を光に変換して記録する形式の検出器としては、この ような中性子1パルス内における画像の変化から、従来の検出器と比較可能な情報を読 み取る必要がある。このために、これらの画像のうちの一定領域から輝度値を各飛行 時間チャンネル毎に積分して、その時間変化を中性子検出でよく使われる³He検出器の スペクトルと比較した(図1-7)。なお、この測定ではMCPイメージインテンシファイア を使用しておらず、また³He検出器のスペクトルにはカラーI.I.の出力蛍光体の減衰特 性を畳み込んである。図1-7では短飛行時間部(~0.0002s付近)、即ち高エネルギー中 性子部に大きなピークと0.002s付近(冷中性子領域)で幅広いピークを持っている。こ れに対し、高速度カメラの輝度値変化から得たスペクトルでもやはり0.0004s付近に鋭 いピーク、さらに0.002s付近で瘤上の構造があり、明らかに[®]He検出器によるスペクト ルと対応関係が見られることがわかった。このことから、本事業で導入したカラーI.I. と高速度カメラの組み合わせにより、パルス中性子スペクトルを得ることができると 結論される。但し、冷中性子領域のピークに対する高エネルギー中性子の強度比は高 速度カメラが非常に大きい。北大冷中性子源の特性上、中性子ターゲットを電子線が 叩いた時のy線発生が多いため、このy線をカラーI.I.I.が捉えている可能性が高い。 ³Heでは波高分別によりγ線を分離することが可能であり、このGdタイプのカラーI.I. は v 線感度が比較的高いと考えられる。



図 1-6. 高速度カメラの連続画像(飛行時間毎積算処理後)。

試料有りの測定について、 場所(即ち、その場所に存在 する試料)に依存した輝度値 の変化を記録したスペクト ルを図1-8に示す。この場合 にはMCPのイメージインテン シファイアを使用した。そ のため、短飛行時間部のチャ ンネル3~5)の輝度値が飽和 してしまった。しかしなが ら、料による違いを拡大する ためには必要であった。図



図 1-7. 高速度カメラの輝度値変化スペクトルと ³He 検出器 によるスペクトルの比較。

1-8にある通り、飛行時間チャンネル、即ち中性子エネルギーにより材料毎の輝度値の 変化に明らかな差が認められる。冷中性子領域の違いは大きく2つの材料グループに大 別されている。一つはB₄C,Cd,ポリエチレン(PE)といった中性子を吸収・散乱する材 料で、14チャンネル付近で輝度が大きく減少している。一方、Pb,テフロン(Teflon) といった材料はほぼ何もない位置(Blank)の輝度に沿っている。これらは中性子を透過 する材料であるため、本検出器システムが明らかに中性子を記録していることがわか る。以下、いくつかの飛行時間チャンネルについて、材料毎の輝度値と得られた画像 を示す。なお、画像は輝度値のゲインとオフセットを調整して表示してある。

図1-9は、加速器トリガーが入射した直後の結果で、カラーI.I. 蛍光面領域内の輝度 値変化は極く小さく、ほぼ一様なノイズとなっており、放射線が入射する前のCMOSノ イズに対応していると考えられる。図1-10は飛行時間チャンネルが2チャンネル目の結 果で、輝度値のグラフでPb部分がいくらか少なくなっていることがわかる。これは画 像にPb部分の影(赤色円内)として現れており、この飛行時間帯ではγ線の影響が強く 現れていることがわかる。図1-11は検出器が飽和した3~5チャンネル目の次のチャン ネルの結果である。輝度値のグラフを見ると、CdやB4Cといった中性子吸収材の輝度値



図 1-8. 試料有りの場合の場所による輝度値変化スペクトル。



図 1-9. 飛行時間チャンネル 1 チャンネル目(~5000meV)の画像と輝度。



図 1-10. 飛行時間チャンネル 2 チャンネル目(~500meV)の画像と輝度。



図 1-11. 飛行時間チャンネル 6 チャンネル目(~40meV)の画像と輝度。



図 1-12. 飛行時間チャンネル 7 チャンネル目(~30meV)の画像と輝度。



図 1-13. 飛行時間チャンネル 10 チャンネル目(~10meV)の画像と輝度(1)。 (輝度値オフセット 2000)。



図 1-14. 飛行時間チャンネル 10 チャンネル目(~10meV)の画像と輝度(2)。 (輝度値オフセット 5000)

は下がっており、中性子を捉えた画像となっていることがわかる。一方で、Pb位置の 輝度も下がっており、画像にはうっすらとPbの影が写っている。したがって、ここで はまだγ線の影響も大きく、中性子/γ線の混合ビームによる画像となっていると考え られる。図1-12は7チャンネル目の結果で、PE. Cd. B.Cの輝度が下がっているのに対 し、Pb, Teflonはほぼ何もないBlank部分と変わらなくなっている。従って、この飛行 時間帯からy線の影響が大きく下がっていることがわかる。図1-13及び1-14は10チャ ンネル目の結果について、画像を表示する時の輝度値オフセットとゲインを変えて表 示したものである。輝度値のグラフを見ると、このチャンネルでも大きくBlank, Teflon, Pbの輝度値が高いグループと、B₄C, PE, Cdの輝度値が低いグループに分かれ ているが、さらにそれぞれ輝度値の高低によりBlank, Pb対Teflon、PE, Cd対B₄Cに分 けることが可能である。これを利用し、輝度値のオフセットとゲインを調整して、 Teflon部分に影をつけた画像が図1-13(赤色円内がTeflon)、B₄C部分に影をつけたのが 図1-14(赤色円内がB,C)である。このように、加速器中性子源からのパルス中性子スペ クトルを利用することで、材料毎の透過スペクトルの差から、画像上の材料を識別す ることが可能であることが示された。図1-15は30チャンネル目の結果である。全体的 な輝度値はかなり下がっているものの、画像上ではB₄CやPE, Cdといった材料部分が明 らかに識別できる。この領域の中性子強度はかなり小さいため、これは本事業で導入 した真空管型のカラーI.I.が高感度であること、さらに飛行時間毎の積算が有効であ ることを示す結果と考えられる。



図 1-15. 飛行時間チャンネル 30 チャンネル目(~1meV)の画像と輝度。

2. 2. 1. 3 まとめ

以上の結果から、今回評価した高速度カメラをカラーI.I.と組み合わせた検出器 システムによる時間分割測定では、電子線ライナック付置の冷中性子源を用い、電 子線ライナックのトリガー信号を使って時間分割測定用の高速度カメラの撮影をス タートさせることにより、中性子パルスと同期してその1パルス内を時間分割測定 することに成功した。得られた画像の時間依存性は、材料の中性子断面積の特徴に 応じた変化をしており、測定の妥当性が確かめられた。

2.2.2 中性子集光技術の開発と応用

一般にビームを集束すれば強度があがるという思い込みがあるが、それは必ずしも 正しくない。測定に必要な分解能はそれほど要求されないのに、実際には分解能が高 すぎるためそれを下げることが出来る場合、または、角度分散、あるいは波長分散が 特別な集束条件を満たす場合にのみそれが満たされる。分解能を一定にして装置を最 適化すると、集光デバイスを使用したものとそうでないものの性能は、基本的に同じ になる。集光デバイスを使用して強度の増加につながった印象をうけるのは、それま で例えば角度分解能が高すぎたものを最適化することで強度が増えるためである。結 局測定に必要な分解能を位相空間の中で規定し、それを最大限満足するように中性子 光学素子を設計することが大切であるということになる。以下にもう少し詳しく述べ る。

中性子は電荷を持たないため制御することが困難で、結果的に4πに分散するビームの中から、位相空間の中からコリメータ等を用いて必要な大きさ、角度分散を持つ ビームを選択する事になる。このため、この過程で大幅な中性子束の低下が起きるこ とになる。分解能を確保するため、通常1~10mrad程度のビーム発散とするため、それ だけで中性子束は10⁻⁶-10⁻⁷程度に減少してしまうことになる。そもそも指向性を持って 出てくる放射光の場合とは大きな違いである。

ビームの単色化においても、原子炉では多色(Polychromatic)ビームの中から、必要な波長のバンド幅を持つ擬似単色ビームだけを取り出し、その他の中性子を捨てる ことになるため、それだけで数十分の1の中性子束の減少を招いてしまう。

そこで中性子集束鏡、レンズなどを用いて集束することで中性子束強度を上げよう とするのが普通の考え方である。しかし、リウビユルの定理があり、小さい場所に ビームを集束し、中性子束を上げようとすると、ビームの角度分散は必然的に大きく なってしまい、角度分解能が悪くなってしまう。

中性子の実験装置が必要としているのは運動量空間での分解能の向上と、その分解 能を保ったまま、いかに中性子束を上げるかということであるが、ただ単に収束した だけではこの要求を満たすことはできない。

中性子散乱装置として実効的強度を上げる際に何が行われているかというと、実は ビームの当たる試料の体積、つまりはビームの当たる原子核の数をなるべく多くして いるのであり、通常1-数cmの程度の試料の大きさにすることで中性子強度を確保す る。このような大きな試料を用いるため、必要な角度分解能を上げるためには長いコ リメータを使うことになり、結果的に通常の中性子散乱装置は巨大になってしまう。

集束をすることで小さな試料での測定を効率良く出来るというのも本当ではない。 試料が小さい場合には角度分散を大きくして、試料にあたる中性子強度を上げること になる。集束に使われるデバイスとしては、物質レンズ、磁気レンズ、集束ミラーな どがあるが、レンズで実現できる実効的な最大の角度分散はNiミラーの臨界角程度で あり、レンズを使用しても、Ni ガイド管以上の角度分散を得ることはできない。した がって、Ni ガイド管からのビームと試料の大きさのピンホールの組み合わせで集束素 子を使ったのと同等の強度、分解能を実現出来ることになる。集束ミラーでは4-6 Qc という高い臨界角度をもったスーパーミラーを利用することでより角度分散の大きな ビームを作りだすことができる。これも原理的には、スーパーミラーを使ったガイド 管とピンホールの組み合わせとまったく同じである。

では集束をする利点はどこにあるのか?実は、成功している、現実的に使われてい る集束素子を使った装置では、幾何学的に集束するのとは別の集束条件が満足されて いるため、運動量空間での分解能が上がっているのである。小角散乱が良い例で、検 出器上に正確に集束するビームを作ることが出来たとすると、その中にある試料で散 乱された中性子は、運動量変化Qが同じであれば検出器上の同じ場所、あるいは中心 からの距離が同じところに集束するという、いわゆる集束条件がある。このような集 束で結果的に何が利点になるかというと、実験装置の全長が短くなることである。 まとめると、試料の大きさが同じであれば、ビームを集束しても、ピンホールを 使ってビーム成形をしても、両方が最適化されている限りにおいて、実効強度は全く 同じになる。

このような理論基盤の上で、集束素子を利用して、実際に使える中性子散乱装置を 建設しようとすれば、集束素子そのものも大切であるが、別の集束条件なり、実験に 必要なビーム発散角、ビームの形状の組み合わせをどう最適化するかというのが与え られた問題となる。

このプロジェクトの範疇ではないが、回転楕円体ミラーを用いた小型集束型中性子 小角散乱装置の開発も行っているが、この場合には装置の小型化が様々な利点をうむ ことが明らかになっている。

さて、単色化素子になると事情は複雑になる。この場合には角度分散が波長の関数 になり、単色化素子から離れた場所では、場所によって波長分布がことなるという、 いわゆる角度-波長の相関が大事になる。三軸分光器などのような場合には角度と分 解能の関係は非常に良く理解されていて、結晶のモザイク度などのパラメータと逆格 子空間での中性子強度分布は予測可能である。しかし、反射率計、小角散乱装置のよ うに、波長のバンド幅を広げ、強度を稼ぐ必要がある場合にはその強度を上げるのに 制約が出てくる。位相空間の中である場所にくる中性子の強度は、その位置での運動 量空間、つまりは波長の広がりに依存するが、その広がりが入射ビームの角度分散で 規定されてしまうため、バンド幅を広げることが困難になるのである。すべての場所 の平均を見れば波長のバンド幅は広いのだが、一つの場所では狭いという状態になっ ていて、結果的に強度を上げることが出来ないのである。

これが、入射ビームの角度分散を絞らなければならない反射率計、小角散乱装置など に関し、単結晶モノクロメータがあまり有効でない原因になっている。この事態を打 開するためには、そのビームを使用する装置が必要とする位相空間を先に規定し、与 えられた入射中性子の入射ビーム発散角、波長のバンド幅の中から、条件に合った中 性子をすべて選び出し、出射するような素子を設計しなければならない。

このような素子として最適なのは、Si、Geなどの完全結晶を用い、これを湾曲化することで単色化する素子である。高分解能の、つまり、波長の分解能が1%を割るようなモノクロメータとしては実用化されているが、これを数%まで広げることはかなり困難であった。これは一つには湾曲半径を1m程度に小さくすると結晶が割れてしまうということがある。

最近、この限界を超える方法が東北大の金属材料研究所で開発されている。これは 単結晶を金型の中で融点直下の高温高圧でプレスすることにより、それを円筒状ある いは球殻状に塑性変形してしまうことが出来るようになったのである。X線では特別 の形状に整形した結晶を、球殻状の塑性変形した結晶を用いることでビームを収束さ せる型の小角散乱装置が開発されている。しかし、X線では結晶の表面で回折を起こ すのに対し、中性子では結晶の中にまで中性子が入り込むため、その性能は違ったも のになる。特に力学的に弾性変形させた単結晶と、このように塑性変形させたものと で反射強度がどう変化するのかは未知数である。

いずれにしろ、入射した中性子の結晶での回折角が予測できないモザイク結晶とは 違い、弾性あるいは塑性変形した結晶は、結晶のある位置に入射した中性子が正確に どこに回折されるかが予測可能である。このため、精密な中性子制御をするために最 適な素子となっている。特に塑性変形した結晶は、幾何学的な集束条件を利用した中 性子実験装置の素子、例えば反射率計として使える可能性が有る。また、これらの素 子を使って、モノクロメータの強度を上げられる可能性が高い。一つは入射中性子の ビーム発散角を数10mradから0.1rad程度まで大きくすることで、出射側の波長のバンド 幅を上げることである。もう一つはSiとGeの格子定数が約4%異なることを利用し、それを出射側の波長のバンド幅に変換することである。前者についてはすでに中性子スーパーミラーを用いた高強度モノクロメータを北海道大学電子ライナック中性子源において開発し、日本原子力研究開発機構三号炉の小型集束型中性子小角散乱装置のものとして設置される予定である。

このようなわけで、まずは塑性変形湾曲化完全結晶の中性子ビームに対する応答、 反射率、位置に依存したロッキングカーブ等、塑性変形湾曲化完全結晶の中性子ビー ムに対する応答、反射率、位置に依存したロッキングカーブ等、及びそれを用いて集 束が出来るのかに関して調べることにした。

2.2.2.1 塑性変形湾曲化完全結晶の回折角の入射位置依存性の測定

塑性変形湾曲化完全結晶Si(以下、塑性変形Si)を用いて塑性変形完全結晶の中性 子ビームに対する回折角の入射位置依存性を測定した。これは、色々な入射位置で ロッキングカーブを測定するのと等価であるが、TOF法を用いることで、角度スキャ ンをしないでも多数の入射位置に対し、この量が一挙に求まる。また、積分反射率も もとめるとともに、最終的に集束が出来るのかに関して調べることにした。

反射率を測定するために弾性変形Si完全結晶、モザイク結晶パイロリティック・グ ラファイト(PG)との強度比較も行うことにした。このため、北海道大学電子ライ ナック中性子源において飛行時間法(TOF)を用い、波長弁別が可能な実験を行った。

最初に一部が欠けた円板状の塑性変形Siのロッキングカーブの測定を行った。この 結晶は東北大学金属材料研究所の中嶋一雄等が制作したものを使用した。変形はほぼ 円筒の一部をなすような形になっている。円筒の軸方向には、わずかではあるが、周 方向とは逆の変形が認められた。

図2-1に実験体系を示す。減速材は固体メタン約17Kで、結合型減速材である。減速 材-試料間距離は7,871 mmとし、試料-検出器間距離は100-400 mmとした。試料の 140 mm前方に、図2-2に示すマルチスリットを設置した。マルチスリットはCd製で、1 辺5mmの正方形ビーム孔が5mm間隔で3×3個設置されたものである。検出器は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。位置の測定は128×128分割で、時間 チャンネル幅は256ch、時間チャンネル幅 Δ t=80µsecとした。

マルチスリットと二次元位置敏感型検出器によって、塑性変形Siで中性子が回折された位置と波長との関係を一度に測定することが可能となる。図2-3に実験体系の写真を示す。





図 2-2. Cd 製マルチスリット。スリットは 5×5mm のもの 9 個で、スリット間も 5mm である。



図 2-3. 実験体系の写真。左はじにビーム孔があり、その出口のマルチス リットだけが見えている。左下に円板状に見えるのが湾曲結晶 Si である。 レーザーが中央に照射されているため、中央が赤く光っている。検出器は上 部中央の黒い遮蔽体に入れられた灰色の円形状の部分である。

図2-4に塑性変形Siを縦向きに置いた場合のデータを示す。図2-4の左からそれぞれ 試料 - 検出器間距離を100、200、300、400 mmとした時の様子である。塑性変形Siから 回折された中性子が、x軸方向に集光することが分かる。検出器上のスポットの位置が 図によって上下に変化しているのは、検出器を動かすごとに高さを調節したためであ る。図2-4より、試料 - 検出器間距離が200 mmのときが最も集光することがわかる。こ れは、塑性変形した結晶の湾曲半径R = 600とした時に集束されると予想される距離に 近い。



図 2-4. 結晶をその円筒の軸方向を縦向きに置いた場合のビームスポット変化。 左から試料-検出器間距離をそれぞれ 100、200、300、400 mm とした時。

次にロッキングカーブに対応する、塑性変形Si上の位置と回折される波長との関係 を調べるため、試料-検出器間距離を400mmで固定し、マルチスリットの位置を水平方 向に5 mm動かして測定を行なった。得られた5つのスポットをそれぞれ独立に解析し、 検出器に到達する中性子の飛行時間を求めた。図2-5にそれぞれのスポットから得られ た回折中性子強度と波長との関係を示す。図2-5の赤、橙、青、紫、緑の線は検出器上 で左側から順にスポットを解析していった結果である。図2-5より、検出器上のスポッ トの位置によって回折される波長が異なることが分かる。これは、塑性変形Siの結晶 面が曲率に沿って変化するため、Bragg条件を満たす波長が変わるためである。

図2-5のそれぞれの結果をIkeda-Carpenter functionを用いて解析し、回折された中性 子の到達時間と塑性変形Si上の位置との関係を求めた。図2-6にIkeda-Carpenter function による解析結果を示す。図2-7に塑性変形Si上の位置と到達時間(検出器の時間チャンネ ル)との関係を示す。図2-7の結果に対して一次関数でフィッティングをするとy = 105.1 + 1.26xとなった。フィッティングの結果も図2-7に合わせて示す。



図 2-5. 検出器上のスポット位置における中性子回折強度と 波長との関係。



図 2-6. Ikeda-Carpenter function によるピークフィッティング結果。



図 2-7. 塑性変形 Si 結晶上の位置と到達時間との関係。

図 2-7.より、湾曲変形 Si 上の位置と到達時間の関係は y = 105.1 + 1.26x となるこ とが分かった。これは、湾曲変形 Si 上で 5 mm ずれたところから回折される中性子の 到達時間が、1.26×80 μ sec=100.8 μ sec だけ変化することを意味する。湾曲変形 Si は中性 子入射方向に対して $\pi/4$ 傾いて設置されているため、5mm を湾曲変形 Si の円周上の距 離に直すと 5 $\sqrt{2}$ mm である。Bragg の式より Δ t と $\Delta\theta$ の関係は、

$$\Delta \theta = \frac{h}{2mLd\cos\theta} \Delta t$$

で与えられる。ここで、h は Planck 定数、m は中性子の質量、L は減速材から検出器 までの距離である。これより湾曲変形 Si の円周方向における結晶面の角度変化率は、 1.53×10^{-3} rad/mm と求まる。これはロッキングカーブから得られる情報と本質的に同じ 量である。湾曲半径 R は R=l/0 であるから角度変化率の逆数となり、655mm と求める ことができた。

次に、モザイク結晶であるパイロリティックグラファイト (Pyrolytic Graphite、

PG)と塑性変形 Si 結晶の強度比較を行った。

図 2-8 に実験体系を示す。減速材 - 試料間距離は 7492mm である。試料はゴニオ メータ上に設置される。試料前には φ 4mm のピンホールを設置した。ピンホール - 試 料間距離は 97mm であった。試料は θ =60deg の方向に回折が起こるように設置した (入射中性子の Al のブラッグカットオフとかぶるのを防ぐため)。検出器は RPMT を 用い、試料から 250mm の位置に設置した。RPMT の測定モードは、128×256 であり、 チャンネル幅は 80µsec とした。図 2-2 に実際の写真を示す。

測定に用いた PG は、Panasonic Graphite 製のもので、サイズは 12×12×2mm³、 角度分散は 0.3deg である。表面が(002)面である

また、最後に検出器をゴニオメータの後方 250mm のところに設置し、ビームプ ロファイルを測定した。



図 2-8. PG と Si の強度比較実験体系。

図 2-9 に中性子スペクトル測定の結果を示す。λ=4Å 付近に Al のブラッグカットオフ が現れる。θ=60 deg では回折される波長は PG、塑性変形 Si とも 5Å 以上の波長なので、 Al のブラッグカットオフの影響は無視できる。以下で強度の比較を行なう場合は、こ のスペクトル強度で規格化した。



図 2-9. RPMT で測定された中性子スペクトル。約 0.2-0.3 nm 以下では数え落 としがある。

図 2-10 に PG および塑性変形 Si より回折された中性子の検出器上での分布を示す。 図 2-10 の左図が PG の結果であり、図 2-10 の右図が塑性変形 Si の結果である。塑性 変形 Si による集束の効果が表れ、PG のビームサイズと比較して、塑性変形 Si のそれ は小さい。得られたイメージを x 軸方向に射影した後、Gauss 関数を用いてフィッ ティングを行いその半値全幅からスポットサイズを評価した。図 2-11 に Gauss 関数に よるフィッティングの結果を示す。この結果より得られたスポットの FWHM は、PG の場合 6.5ch(6mm)、塑性変形 Si の場合 3.0ch (2.7mm) であった。



図 2-10. PG および塑性変形 Si によって回折された中性子の検出器上でのイメージ。左図: PG の結果、右図: 塑性変形 Si の結果。



図 2-11. x 軸方向に射影したスポットに対する Gauss 関数フィッティング。左 図: PG に対する結果、右図: 塑性変形 Si に対する結果。

次に PG と塑性変形 Si の回折強度の比較を行った。図 2-12 に PG および塑性変形 Si によって回折された中性子強度と波長との関係を示す。赤線が PG からの強度であ り、青線が塑性変形 Si のものである。どちらも試料厚さおよび入射中性子スペクトル 強度で規格化されている。図 2-6 より、同じ照射面積で比較した場合、PG の方が結晶 厚さあたりの積分反射強度が高いことが分かる。ピーク強度で比較したところ、PG の 回折強度は塑性変形 Si の 10.5 倍であった。



明らかに Si 結晶の場合にはより厚い結晶でなければ積分反射率を上げることは出来ない。このため、次に Si 結晶を積層した時の効果を見ることにした。厚さ 0.5mm、0.3mm の 2 つの塑性変形 Si を重ねた場合の中性子回折強度を測定し、それぞれ一枚のみの場合の回折強度と比較した。試料検出器間距離は 250mm とし、 θ =45deg で測定を行なった。図 2-13 に、検出器上のスポットを示す。図 2-13 は左から順に、厚さ 0.5mm、0.3 mm、0.5mm と 0.3 mm を重ねた場合の結果である。これより、塑性変形 Si を 2 枚重ねてもきれいに集束することが確かめられた。



図 2-13. 厚さ 0.5 mm、0.3 mm、0.5mm+0.3 mm の塑性変形 Si を用いた場合の検出 器上のスポット。左から順に 0.5 mm、0.3 mm、0.5mm と 0.3 mm を重ねた場合の結 果である。

次に回折強度の比較を行なった。図 2-14 に回折された中性子強度と飛行時間との 関係を示す。図 2-14 の青、緑、赤の実線はそれぞれ厚さ 0.5 mm、0.3 mm、0.5mm と 0.3 mm を重ねた場合の結果である。また、図 2-14 に二枚重ねて測定した場合と、1 枚 ずつ独立に測定した場合の和との比較を示す。図 2-14 の赤、青線はそれぞれ二枚重ね て測定した場合、一枚ずつ独立に測定した場合の結果である。これより、塑性変形 Si を重ねると、このような少ない枚数の場合にはまだ線形に中性子回折強度が増加する ことがわかる。しかし、多数を重ねた場合にどのぐらいで飽和することになるのかは 今後の課題である。また 2 枚程度を重ねた場合には集束特性はほとんど悪化しないこ とが確かめられた。

このように、結晶の数カ所の点で回折した中性子ビームの波長分布の入射位置変

化を測定することにより、出射ビームの位相空間での各出射ビーム位置での波長分布 が測定できた。このような結晶を多数重ね得る際にどのような湾曲半径、結晶格子面 の角度に設定すれば必要な位相空間を埋め尽くせるかの設計をする基本的条件がこの 実験により明らかになった。0.5mm 厚の結晶では積分反射強度は低いものの、これを 2 枚重ねることにより、ほぼ厚さに比例して強度を上げられた。ただし、最終的にど こまで強度を上げられるかについては今後の検討が必要である。



図 2-14. 回折された中性子強度と飛行時間との関係。(a)青:厚さ 0.5mm の場合、緑:厚さ 0.3mm の場合、赤:厚さ 0.5mm と 0.3mm とを重ねた場合。(b)赤:厚さ 0.5mm と 0.3 mm の塑性変形 Si を重ねて測定した場合、青:厚さ 0.5mm と 0.3mm の塑性変形 Si を独立に 測定し和をとった場合。

2. 2. 2. 2 Si と Ge を混合した単結晶による単色化装置の検討

反射率計では、モノクロメータの直後にコリメータを置き、i) ビームをスリット 状に細くし、ビーム発散角も 1mrad~5mrad 程度とかなり小さくしなければならない、 ii) なおかつ、その状態で波長のバンド幅をなるべく広くして、中性子の強度を稼がな ければならない、という条件がある。PG のようなモザイク結晶の場合、必然的にビー ム発散角度が大きくなってしまう。その一部のビーム発散角が小さい領域だけを取り 出してみると波長のバンド幅は非常に小さくなってしまう。そのため、このような結 晶からの強度はかなり低くなってしまい、理想的な波長分解能 2~5%に比べ1 桁程度低 いものになってしまう。

湾曲化結晶を用いることで、この事態を解決する方法を検討した。まずは入射 ビームがある発散角で結晶のある場所に入射し、回折してコリメータに出射されるよ うな配置を考える。この場合、湾曲結晶の結晶格子面と入射ビームとがなす角度によ りどの方向にビームが出射されるかが決まる。格子面の角度は座標系が決まれば計算 できるため、最終的にどの場所、どの方向にどういう波長の中性子が出ていくかは計 算できる。これをすべての入射中性子の角度、結晶の場所について積分すれば出射中 性子すべての振る舞いが分かる。しかし、実際にはそのうち 1~5mrad の発散角をもち、 コリメータを通過するビームだけが必要な中性子である。

この考え方を逆にたどり、ある出射場所、方向に出る中性子がどの場所のどの角 度の格子面で回折され、波長は幾らであったかを逆算することができる。このほうが 計算するうえでの見通しがよくなる。

さて、では Si と Ge の合金ではその組成変化により格子定数を最大で 4%程度変化 させることが出来る。そのような合金を湾曲化させ、複数組み合わせることで、湾曲 化 Si 結晶では達成出来ない 4%以上の波長のバンド幅を持ったモノクロメータを作成 できる可能性がある。このような結晶が単色化素子として利用可能かどうか評価を 行った。Si-Ge 合金の組成と結晶面の角度とを制御することで、出射ビームに関して発 散角が少なく、高強度の単色化素子を作る可能性があるかどうかについて検討を行っ た。

まず、実験装置に必要な位相空間内でのビーム分布の概念図を図 2-15 に示した。 赤、黄、緑、青はそれぞれの出射ビームの波数の領域を表す。縦軸は任意単位で表示 してあるが、ほぼ 1nm-1 の程度を想定した。



図 2-15. 実験装置に必要な位相空間内でのビーム分布の概念図。赤、 黄、緑、青はそれぞれの出射ビームの波数の領域を表す。縦軸は任意 単位で表示してあるが、ほぼ 1nm⁻¹の程度を想定した。

図 2-16 に結晶モノクロメータの概念図を示した。結晶の外形状は今の場合意味を 持たない。前提条件は赤〜青で示された領域それぞれにおいて、出射ビームが直上方 向に出て行き、入射ビームはこの図で水平方向からビーム発散角の分だけ分散がある という条件である。例えば赤い線のようにビームが出ていくためには、結晶の赤の領 域で、入射ビーム発散角の中に波長、回折角を満たすことが出来るような格子面が存 在すればよい。

結晶の d-spacing が一つ決まればこのような条件を満たす格子面はユニークに決 まる。今、塑性変形あるいは弾性変形させた湾曲結晶をこの領域に持ってくれば、湾 曲中心から見た結晶のこの領域の長さを h、湾曲半径を R として、実効モザイクは θ eff=h/R とかける。出射ビームにそって結晶のこの領域中を移動してみると、格子面は、 湾曲中心と出射ビームのなす角 ϕ を使って、 $\Delta \theta = \theta_{eff} \times \sin \phi = h \sin \phi / R$ と書ける。 入射ビームの発散角の全幅が丁度この $\Delta \theta$ と等しく、その発散角の中心が結晶の中心 に入射したときに赤の線に沿って出射するような条件を満たしているとする。この条 件では、赤の領域の赤い線にそった場所では必ず入射ビームが赤い線にそった方向に 回折を起こす点がある。また、回折角は $\Delta \theta$ だけ変化するため、その波長もその分だ け変化する。したがって、赤い線に沿って中性子が出射していく場所では図のように 必要な位相空間の一部を丁度満足するビームが形成できたことになる。



図 2-16. 結晶モノクロメータの概念図。結晶の外形状は今の場合意味を 持たない。前提条件は赤〜青で示された領域それぞれにおいて、出射ビームが 直上方向に出て行き、入射ビームはこの図で水平方向からビーム発散角の分だ け分散があるという条件である。例えば赤い線のようにビームが出ていくため には、結晶の赤の領域で、入射ビーム発散角の中に波長、回折角を満たすこと が出来るような格子面が存在すればよい。

同じ領域で、出射ビームの位置が図の水平方向にずれたとすると、そこでも同じ 条件が満足される。水平方向に移動すると格子面の角度もわずかずつ変化するため、 消衰効果でビーム強度が減ることはない。

Si 結晶でこのような条件をみたすようにモノクロメータを設計すると、入射ビームのビーム発散角で規定されてしまう波長領域のビームしか出てこない事になる。しかし、Ge の単結晶を用いれば、d スペーシングが約 4%異なっているため、回折角が同じでも、波長が 4%変化することになる。

入射ビームの発散角が±10mrad だとすると、波長の変化は一つの結晶の領域では 最大で約 1% しか起こせない。入射ビームの発散角が±30mrad あれば、Si の単結晶が 受け持つ波長領域と Ge の波長領域がほぼ連続となり、最大で 6%程度の波長領域を持 つ単結晶モノクロメータが出来ることになる。しかし、例えば 4A の中性子の場合、そ のようなビーム発散を確保するためには 4.5Qc のガイド管が必要となる。逆に Ni のガ イド管を利用して同様な設計をしようとすれば、格子定数が 0,1,2,3,4%と変化する Si_{1-x}Ge_xの単結晶を用意し、湾曲化させ、ビームの出射方向に積み上げたような構造の モノクロメータを作れば良いことになる。

これが実用化されれば、反射率計などのように入射ビーム発散角が小さくなくて はならないが、波長のバンド幅が数%許され、強度が必要な装置のモノクロメータと して、これまで例の無かった高強度のモノクロメータとして使えることになる。現在、 Si と Ge の湾曲化結晶を用いるタイプの原理検証実験を行う準備をしているところで ある。

2. 2. 2. 3 まとめ

塑性変形した Si の単結晶の実験により、Si 単結晶が想定どおり円筒形に変形して いて、その結晶格子面の角度がその変形に対応して各場所で順次変化していくとする と波長の分解能 $\Delta \lambda / \lambda$ は約 3%あることになる。しかし、1 枚の結晶ではモノクロ メータとしては反射強度が弱く、厚さで規格化すると PG の約 10.5 分の 1 の積分反射 強度しか得られていない。塑性変形した Si 結晶を 2 枚重ねる実験により、ほぼ厚さに 比例して積分強度が増えていくことは確認出来た。しかし、この線形性が、最終的に どのあたりで飽和するかはまだ分かっていない。

同じ実験により、このような単結晶でビームを集束することが出来、5mm のかな り発散角の大きな入射ビームでも 2.7mm 程度まで集束することが出来た。

- 2.3 成果の外部への発表
- 1. 解説

鬼柳善明、加美山隆、「中性子カラーI.I.とパルス中性子飛行時間法を組み合わせたエネルギー選別型イメージング」、非破壊検査第58巻、12号 pp. 533-537 (2009)

2. 口頭発表

加美山隆、佐藤博隆、古坂道弘、鬼柳善明「パルス中性子源を用いた中性子イメージ インテンシファイアによるイメージング」日本原子力学会 2009 年秋の大会、茨城大 学(仙台) 2009 年 9 月 17 日

3. ポスター発表

佐藤他加志、加美山隆、富岡智、佐藤博隆、平賀富士夫、古坂道弘、鬼柳善明「イ メージインテンシファイアと高速度カメラを用いた高分解能検出器の開発」日本中性 子科学会第9回年会、いばらき量子ビーム研究センター(茨城)2009年12月9-日

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。

業務項目 担当機関等	研究担当者
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 なたりますが、対応にの開発し中国	◎鬼柳 善明
 1) 甲性子イメーシンク技術の開発と応用 北海道大学大学院 工学研 究院 2) 中性子集光技術の開発と応用 	○加美山 隆 平賀 富士夫 佐藤 他加志
北海道大学大学院 工学研究院	 〇古坂 道弘 藤田 文行 本間 彰 佐藤 他加志
究院	

2.5 実施体制