

[H27-08]

高性能中性子集束ミラーによる小型集束型小角散乱装置の性能向上と 金属材料のナノ構造評価

Improvement of Mini-Focusing Small-Angle Neutron Scattering Instrument By Using A High-Performance Neutron Focusing Mirror And Nano-Structure Characterization in Metals

間宮広明^{#,A)}, 武田晋^{B)}, 山形豊^{B)}, 石田倫教^{C)}, 大場洋次郎^{*,D)}, 藤原健^{E)}
杉山正明^{D)}, 大沼正人^{C)}, 大村孝仁^{A)},

熊田高之^{F)}, 山口大輔^{F)}, 柴山充弘^{G)}, 佐藤博隆^{C)}, 古坂道弘^{C)},

Hiroaki Mamiya^{#,A)}, Shin Takeda^{B)}, Yutaka Yamagata^{B)}, Toshinori Ishida^{C)}, Yojiro Oba^{*,D)}, Takeshi Fujiwara^{E)}, Masaaki Sugiyama^{D)}, Masato Ohnuma^{C)}, Takahito Ohmura^{A)}, Takayuki Kumada^{F)}, Daisuke Yamaguchi^{F)}, Mitsuhiro Shibayama^{G)}, Hirotaka Sato^{C)}, , Michihiro Furusaka^{C)}

^{A)} National Institute for Materials Science

^{B)} RIKEN

^{C)} Faculty of Engineering, Hokkaido University

^{D)} KURRI, Kyoto University

^{E)} National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

^{F)} Japan Atomic Energy Agency

^{F)} ISSP, Tokyo University

Abstract

A prototype of mini-focusing small-angle neutron scattering instrument (mfSANS) had been installed at JRR-3 of Japan Atomic Energy Agency, JAEA, just before the Great East Japan Earthquake. JRR-3 has been suspended operation since then and we are preparing for the restart. Before the earthquake, small-angle neutron scattering (SANS) in steel and other samples were measured by the instrument. Because of imperfection of the focusing mirror, the data quality was not satisfactory, therefore, we have been developing a focusing mirror based on metal substrate. The quality of the new focusing mirror has improved very much as was characterized at J-PARC/BL06. We also successfully measured SANS in polystyrene latex of the diameter of 75 nm in D₂O at Hokkaido University neutron source (HUNS) using the focusing SANS prototype with the ellipsoidal focusing mirror coated with 3 Q_c supermirror.

Keyword: neutron ellipsoidal focusing mirror, focusing small-angle neutron scattering instrument

1. はじめに

1.1 小型集束形中性子小角散乱装置の必要性

通常、中性子小角散乱装置 (SANS) は非常に大型のものになるため、大型の施設に 1-2 台だけ設置されることが多い。また、必然的に大きな予算を必要とする。これを解決できる可能性のあるのが集束型の SANS である。このプロジェクトでは回転楕円体の中性子集束ミラーを持ちいた小型集束型中性子小角散乱装置 (mfSANS) の原型機を日本原子力研究開発機構 (JAEA)、JRR-3 研究用原子炉のガイドホールに 2010 年に設置している (Fig. 1)。2011 年の東日本大震災で原子炉が停止状態であるため中性子を用いた測定はできないが、新しい高性能の集束ミラーの開発を続けており、原子炉の再開に合わせ再立ち上げをする予定である。

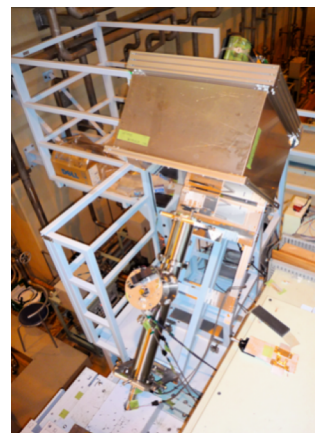


Figure 1. Mini-focusing small-angle scattering instrument (mfSANS) at the guide hall of the

[#] MAMIYA.Hiroaki@nims.go.jp, ^{*} Present affiliation: Japan Atomic Energy Agency

[課題番号]

通常の SANS 装置 (pin-hole SANS, PHSANS) が大型になるのは、最小の運動量変化 $Q_{\min} \approx \text{several} \times 0.01 \text{ nm}^{-1}$ を測定しようとする必然的にコリメータセクション、試料検出器間距離ともに 10m オーダーの飛行路が必要になるためである。一般的に前提として波長は 0.5~1 nm 程度、10mm 直径程度の大きさの試料を用いると考えているためである。装置が大きくなってしまいうことが中性子小角散乱装置に関し、実験室の場所の問題、コストの問題など普及を妨げる一つの要因となっている。

これに対し、小型の中性子集束ミラーを用いれば、装置の全長を 1/10 程度にすることが可能である。また、集束ミラーを用いることにより、試料位置では PHSANS と同程度の試料面積、10mm 直径と同程度、にすることが可能であるため、検出器での強度は通常の 小角散乱装置と同程度にすることが可能となる。

2. mfSANS 装置の概要

2.1 小角散乱装置の単色化装置

残る問題は単色化装置であるが、原子炉に設置する装置では速度弁別器を使えば $\Delta\lambda/\lambda \approx 10\%$ 程度であり、これは通常のものでも集束型のものでも共通である。ただし、この場合にはガイド管の最終端ごとに一台しか装置を置けないことになる。ガイド管から大きな角度でビームを取り出すことができればビームを分岐でき、1 本のガイド管に複数の装置を設置できることになる。このため、mfSANS では既存のモノクロメータハウジングの中に Si 単結晶モノクロメータを設置し、ビームの上側、ビーム方向に対して 135 度の方向にビームを回折させることで 0.58 nm の波長の中性子を取り出している。

一般に単結晶モノクロメータでは $\Delta\lambda/\lambda \leq 1\%$ となり、利用できる強度は $\Delta\lambda/\lambda$ に比例するため、大幅な強度減少となってしまふ。そこで強く湾曲させても割れないように 0.5mm 厚にした Si 単結晶を $R=0.75\text{m}$ で曲げた湾曲化単結晶 Si モノクロメータを開発し、使用している。

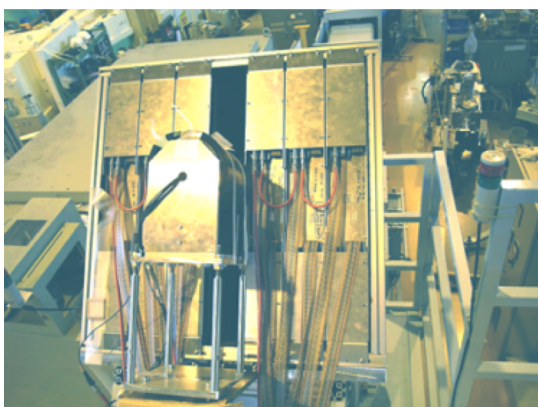


Figure 2. A small-angle scintillation detector at the center and a wide-angle detector bank consisting of position sensitive detector modules.

2.2 mfSANS の検出器

mfSANS の検出器バンクを Fig. 2. に示した。中心に約 1mm 分解能のシンチレーション検出器、広角部には 48 本の位置敏感型検出器 (LPSD) を設置している。

2.3 mfSANS の測定例

この装置で鉄鋼材料中の析出物の測定をしたデータを Fig. 3. に示した。広角側のデータはかなり統計良く、同じく JRR-3 に設置されている PHSANS である SANS-J の測定結果とも良く一致しているのがわかる。しかし、 $Q \leq 0.2 \text{ nm}^{-1}$ ではミラー反射面に平行な方向の散乱は綺麗に測定できているものの、ミラー面に垂直方向方向の散乱は若干ズレが見られる。これは集束ミラーの表面荒さによる散漫散乱の影響である。Fig. 4. に集束スポットの強度分布を示したが、スポットがぼけ、上下に伸びているのが分かる。この図からは明確ではないが、特に上側には散漫散乱によるバックグラウンドが広がっている。

2.4 新しい中性子集束ミラー

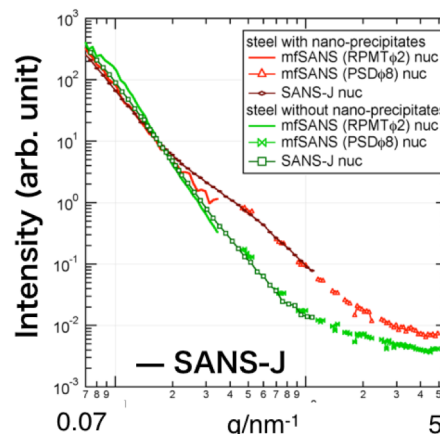


Figure 3. Small-angle neutron scattering in steel samples. The curves show those obtained by SANS-J and markers by mfSANS.

この集束ミラーはホウ珪酸ガラス基板を使用したため、非常に脆く、加工中に小さなひび割れを起こしたこと、研削に数ヶ月とあまりにも長時間を要したため途中で研削を止めざるを得なかったためなどである。

このためこれを解決する方法として金属基板でミラーを製作することとした^{[1],[2]}。基板としては Al を用い、超精密加工機でまず回転楕円体形状に加工し、これに NiP を 100 μm 厚にメッキした。さらにこの表面を超精密加工機で加工し、最後に機械研磨で表面荒さを 0.3 nm RMS 程度まで研磨した。これは中性子スーパーミラーを成膜するのに十分な表面荒さである。形状精度も非常に高いものができた。さらに中性子の反射角を大きくするため、 $3Q_c$ の中性子スーパーミラーを成膜した。

[課題番号]

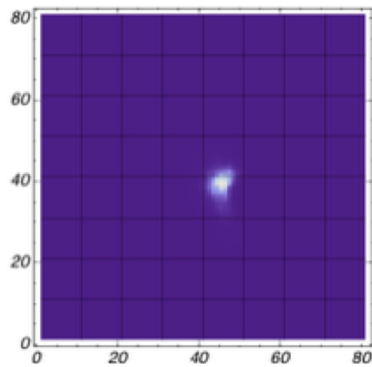


Figure 4. Focused beam spot measured with the old mfSANS instrument. Note that the beam spot is blurred especially in vertical direction.

2.5 新しい中性子集束ミラーの評価実験

この新しい集束ミラーに関し、大強度陽子加速器施設 (J-PARC/BL06) 及び北海道大学電子加速器中性子源 (HUNS) においてビーム集束の評価を行った。その結果、図 4 に示すように、1mm の上流側のピンホールに対応しコマ収差で若干広がり、1mm 強の非常に綺麗なビームスポットが得られている。これは集束ミラーの形状精度が非常に高いことを示している。散漫散乱に関してはミラーに垂直方向を除き、非常に低いレベルとなっていることが確認されている。垂直方向の散乱に散漫散乱に関してはスーパーミラーの成膜方法を変えることでこれを解決しようとしている。

2.6 HUNS での小型集束型中性子小角散乱装置評価

この集束ミラーを用い、HUNS において小角散乱の標準試料である重水に分散したポリスチレンラテックスの測定を行なった。その予備的測定結果を Fig. 3. に示した。分散を持った半径 75 nm のポリスチレンの球状粒子を仮定した時の散乱関数の絶対値を黒い曲線で、試料厚さ 2mm の時の散乱をマーカーで示した。1 kW しかない北海道大学の電子線形加速器で、

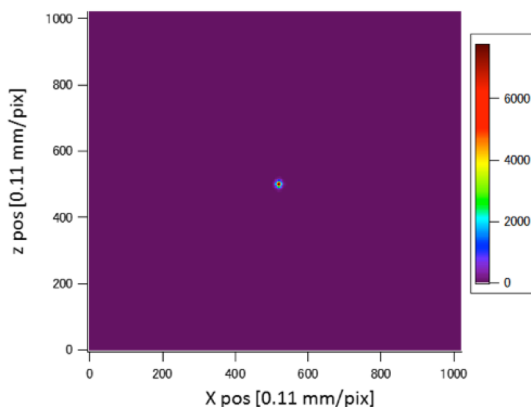


Figure 5. Beam spot measured by the new $3 Q_c$ focusing mirror. The beam definition pinhole was 1 mm ϕ .

J-PARC の数万分の 1 の中性子強度しかない HUNS であるが、絶対値を含め、かなり良い一致を示しているのが分かる。

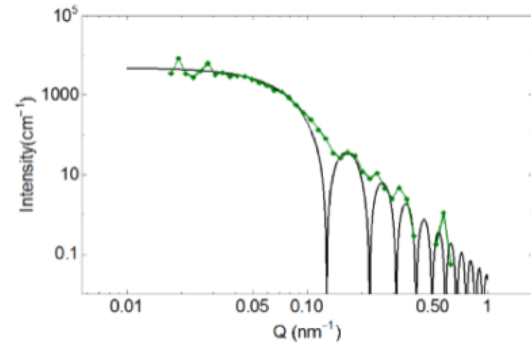


Figure 3. Small-angle neutron scattering in steel samples. The curves show those obtained by SANS-J and markers by mfSANS.

3. まとめ

以上のように JRR-3 は稼働していないものの、その再稼働に向けて中性子集束用のスーパーミラーの開発は進んでいる。小型加速器中性子源である HUNS においても強度の強い試料であれば通常の PHSANS 装置で測定可能な $Q_{\min} \approx 0.03 \text{ nm}^{-1}$ の測定が可能であることも確認できている。

参考文献

- [1] S. Takeda, Y. Yamagata, N. L. Yamada, M. Hino, T. Hosobata, J. Guo, S. Morita, T. Oda, M. Furusaka, "Development of a large plano-elliptical neutron-focusing supermirror with metallic substrates.", OPTICS EXPRESS **24(12)**, 11 (2016).
- [2] S. Takeda, J. Guo, S. Morita, H. Ono, T. Oda, J. Kato, H. Sato, M. Hino, Y. Yamagata, M. Furusaka, "Development of highly-mechanically polished metal-substrate for neutron supermirrors." Journal of Physics: Conference Series **528** 012011 (2014).