

[H27-8]

## 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<sup>#,A)</sup>, 武田晋<sup>B)</sup>, 山形豊<sup>B)</sup>, 石田倫教<sup>C)</sup>, 大場洋次郎<sup>\*,D)</sup>, 藤原健<sup>E)</sup>

杉山正明<sup>D)</sup>, 大沼正人<sup>C)</sup>, 大村孝仁<sup>A)</sup>,

熊田高之<sup>F)</sup>, 山口大輔<sup>F)</sup>, 柴山充弘<sup>G)</sup>, 佐藤博隆<sup>C)</sup>, 古坂道弘<sup>C)</sup>,

Hiroaki Mamiya<sup>#,A)</sup>, Shin Takeda<sup>B)</sup>, Yutaka Yamagata<sup>B)</sup>, Toshinori Ishida<sup>C)</sup>, Yojiro Oba<sup>\*,D)</sup>, Takeshi Fujiwara<sup>E)</sup>, Masaaki Sugiyama<sup>D)</sup>, Masato Ohnuma<sup>C)</sup>, Takahito Ohmura<sup>A)</sup>, Takayuki Kumada<sup>F)</sup>, Daisuke Yamaguchi<sup>F)</sup>, Mitsuhiro Shibayama<sup>G)</sup>, Hiroataka Sato<sup>C)</sup>, Michihiro Furusaka<sup>C)\*</sup>

<sup>A)</sup> National Institute for Materials Science

<sup>B)</sup> RIKEN

<sup>C)</sup> Faculty of Engineering, Hokkaido University

<sup>D)</sup> KURRI, Kyoto University

<sup>E)</sup> National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

<sup>F)</sup> Japan Atomic Energy Agency

<sup>G)</sup> ISSP, Tokyo University

#### Abstract

Focusing SANS instruments have been developed mainly for measuring a very low-Q region, therefore very precise focusing devices have been developed and they are all aiming at realizing very small focusing spot. However, to measure conventional small-angle scattering Q-region, usually only modest beam size, typically 4-10 mm in diameter, is required. For medium-angle scattering, even larger beam size, for example 20mm in diameter, may be enough. In such a case, because the beam cross section accepted by a focusing device is rather small compared with the incident beam, the direct beam can go directly to the detector without reflected by the focusing device. Three dimensional analysis program has been developed to see the beam profiles, and it is found that if a second shielding plate is placed at an appropriate position, the stray beam can be eliminated without sacrificing the direct beam intensity. The proof of principle experiment is carried out at Hokkaido University neutron source, HUNS, and also small-angle neutron scattering experiment has been performed using a standard sample to demonstrate the effectiveness of such a big pinhole for focusing SANS instrument that utilizes an ellipsoidal focusing mirror.

**Keyword:** focusing SANS, large aperture, ellipsoidal focusing mirror

#### 1. はじめに

##### 1.1 このプロジェクトの概要

このプロジェクトは日本原子力研究開発機構 JRR-3 研究炉の冷中性子ビームラインに回転楕円体の集束ミラーを用いた小型集束型中性子小角散乱装置を製作することであった。2011 年の東日本大震災以前に装置は完成し、小角散乱装置として利用可能なことが実証されている。これを用いて金属材料中のナノ構造評価を行っていた。大震災により JRR-3 は停止したが、その後再立ち上げがあることを期待しながらこの連携重点の申請を出し続けてきた。しかし、再三 JRR-3 の運転再開のアナウンスがありながら、残念ながら平成 29 年度までに運転再開はできなかった。

その間、集束ミラーの性能向上を図るため、様々な研究開発を行ってきた。平成 29 年度は北海道大学大学院工学研究院に設置されている電子加速器を用

いた中性子源 (HUNS) 及び理化学研究所の小型陽子加速器中性子源 (RANS) を用いて、小角散乱装置の性能をチェックしている。

#### 2. 大口径集束ビーム型中性子小角散乱装置の実現

##### 2.1 大口径集束ビームの必要性

これまで提案されてきている集束型の中性子小角散乱装置は、通常の中性子小角散乱装置でアクセスできる最小の運動量変化  $Q_{\min}$  と比較し、できるだけ小さい領域を測定するために提案されてきている。通常の小角散乱装置の  $Q_{\min}$  が  $\sim 0.01 \text{ nm}^{-1}$  のオーダーであるのに対し、 $\sim 0.001 \text{ nm}^{-1}$  程度までの測定を目指して開発が進められてきている。

これに対し、我々の取り組みは全く異なっており、通常の Q 領域の測定をできるだけ全長の短い、小型の装置で実現することを目指している。これが実

[H27-8]

現すれば、試料から検出器までの距離は 1m 程度とすることができ、大面積の検出器を使用しないでも、上流側のピンホール径を変えるだけで小角散乱だけでなく、中角・高角領域の測定も実現が可能となる。

そのためには、集束ビームを  $0.1\text{mm}\phi$  といった非常に小さな径にすることを目標にするのではなく、逆に  $10\text{-}20\text{mm}\phi$  といった大口径・大発散角で大強度の中性子ビームを実現する必要がある。

試料サイズは数  $\text{mm}\times 20\text{mm}$  弱しかなく、集束ミラーとしても全長  $300\text{mm}$  程度、幅  $20\text{mm}$  弱程度しかないので、中性子ビームの集束というよりはビームの位相空間形状変化という方が正しい。そのようなビームの形状変化をさせながらその境界条件の下で検出器面上の各点でのビーム発散角を最大にするような最適化が必要とされる。

2.2 集束ビームの 3 次元計算

このようなビームを実現するために、Walfram 社の Mathematica プログラミング環境を用い、3 次元レイトレーシング計算システムを作成し、理想的なビーム整形条件を求めた。その計算例を図 1 に示した。

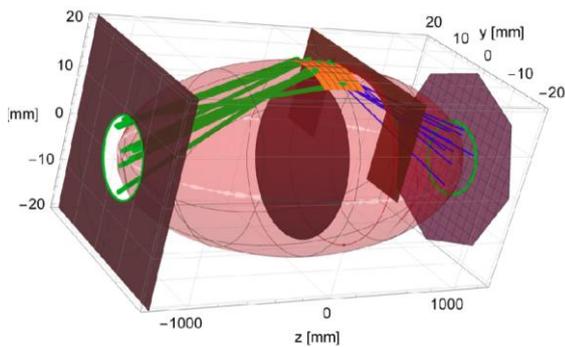


Figure 1. Focusing SANS calculation-geometry in 3-dimensional space. Several parts are shown in the figure; a 20 mm diameter aperture on the left; a focusing mirror in orange and virtual ellipsoidal surface is shown in pink; a circular first-shielding plate is shown in brown; an additional second shielding plate is shown also in brown; a detector on the right hand side with a focusing beam circle in green is shown; green and blue lines are several trajectory of neutrons reflected by the mirror.

この 2 番目の遮蔽板がある場合とない場合のビームの様子を示したのが図 2 である。これを見るとわかるように大口径入射ビームを有効利用するためには通常使われる円盤状の第 1 遮蔽板とともに円形に切り抜かれた第 2 遮蔽板を入れる必要がある。これまでは第 2 遮蔽板をミラーの直後に置いていたが、そのような条件ではビームのほとんどを遮蔽してしまうことになり、著しくビーム強度が落ちる結果となっている。第 2 遮蔽板を  $10\text{cm}$  程度下流側に設置することでこのようなロスを全くなしにビームを集束することができることが判明した。

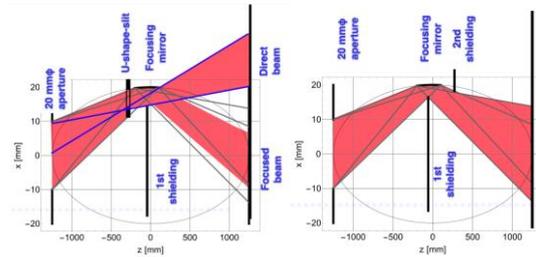


Figure 2. Beam trajectories are shown in red color, one without the second shielding plate and one with. When second shielding plate is missing, some part of the beam goes directly to the detector without reflected by the focusing mirror. With the addition of the second shielding plate, such beam is completely eliminated and all the necessary beam goes to the detector without any loss.

2.3 小型集束型中性子小角散乱装置を用いた大口径ビームでの原理検証実験

これを実験で確かめた結果を図 3 に示した。第 2 遮蔽板を正しい場所に置くことでダイレクトビームが正しく遮蔽されているのがわかる。さらに集束ビームの強度分布を見ると遮蔽板の位置に関わらず強度、その分布とも変化していないのがわかる。さらに集束ビームイメージはほぼ入射ビームピンホールに近い形に戻っている。これは集束ミラーのビーム断面が入射ビームピンホールに比較してかなり小さいにもかかわらず本来の機能を実現していることによる。

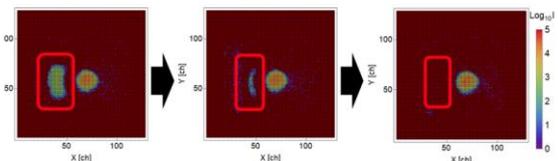


Figure 3. Results of beam focusing experiment with very large incident aperture,  $16\text{mm}\phi$ . When the second shielding plate is placed above the nominal position, the direct beam is detected as shown in the left hand side figure, but when it is at the nominal position, all the direct beam is eliminated as shown in the right hand side figure.

2.4 標準試料を用いた検証実験

実際に HUNS において  $4$  及び  $16\text{mm}\phi$  の入射ビームピンホールを用い、第 2 遮蔽板をおいた実験の結果を図 4 に示した。試料から検出器までの距離は  $700\text{mm}$  及び  $300\text{mm}$  であった。小角部分には RPMT と呼ばれる  $\text{ZnS}$  シンチレータと抵抗分割方式の二次元光電子増倍管を用いた検出器を用いた。  $100\text{mm}$  程度の有効面積、位置分解能  $1\text{mm}$  程度のものである。

[H27-8]

また、高角部分には1/2直径のHe-3ガス検出器(PSD)を置いているが、このデータ解析には使用していない。本来、この $Q$ 領域では、ビームサイズが検出器サイズに比較しかなり大きいので、RPMT だけでは角度分解能が非常に悪い領域のデータしか取れない。PSD を用いることで、角度分解能は数倍良くなり、検出できる立体角もその大きさに比例して大きくなるため計数率も大幅に上がるはずである。今後高角部分に置かれた検出器のデータも含めながら解析を行っていくことで統計精度は大幅に上がることが期待される。

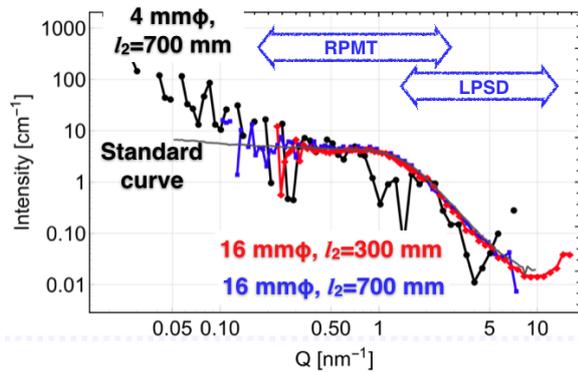


Figure 4. Small-angle neutron scattering in standard glassy carbon sample. Because of the very low intensity available by the measurement carried out by 4 mmφ beam aperture, it had very low statistics compared with the other two measurements made by a 16 mmφ beam aperture.

これを見るとわかるように上流ビームピンホールを 16 mmφ にした場合には  $Q_{\min} \approx 0.3 \text{ nm}^{-1}$  から Standard curve に非常に近い結果が得られている。今後高角部分に置かれた検出器のデータも含めながら解析を行っていく。

2.5 小口径ピンホールでの実験結果

通常の中性子小角散乱装置で測定可能な  $Q$  領域の測定に関しては入射ビームピンホールを小さくすれば良い。上に述べたような中角の測定を行ったのとはほとんど同じ配置でピンホール径だけを 4mmφ、6.2mmφ とし、そのような測定を行った結果を図 6 に示した。マーカーは HUNS に設置した小型集束型小角散乱装置で様々な実験条件で測定したもの、黒い曲線は J-PARC の iMATERIA で測定を行ったものである。通常の小角散乱装置での測定範囲、 $0.03 \text{ nm}^{-1}$  から  $1 \text{ nm}^{-1}$  を超える領域までかなり精度の高い測定ができていくことがわかる。

3. 結語

以上のように、回転楕円体型の集束ミラーを用いた小型集束型の中性子小角散乱装置は、全長が 2.5m とこれまでの装置に比べほぼ 1 桁小型化されている

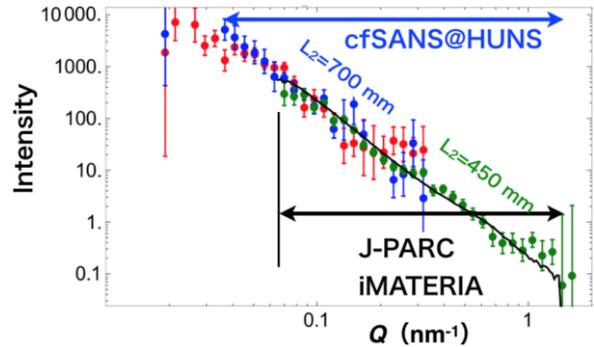


Figure 5. Small-angle scattering in nickel alloy measured by the mini-focusing small-angle neutron scattering instrument mfSANS at Hokkaido University neutron source (HUNS) and by the iMATERIA at J-PARC.

にもかかわらずこれまでの通常の小角散乱とほぼ同様の  $Q$  領域の測定が可能である。今回はそれに加えて、入射ビームピンホールを 20mmφ 近くと非常に大きなものとし、検出器面上でも同程度の集束ビームとすることが可能であること、その場合にはそのピンホール面積に比例して散乱ビーム強度が上がるということが証明された。