研究成果展開事業

研究成果最適展開支援プログラム(A-STEP)

産業ニーズ対応タイプ

技術テーマ

「コンパクト中性子源とその産業応用に向けた基盤技術の構築」

完了報告書(最終版)

研究課題名「複合材料の品質管理を目指した

小型中性子源小角散乱イメージング装置の開発」

令和2年5月31日 プロジェクトリーダー 機関名:国立大学法人 茨城大学 氏 名:小泉 智

I.研究計画の概要

1. 研究の目標

小型中性子源を利用した複合材料の品質管理を目指して、小角散乱とイメージングを融合 した構造評価装置(小角散乱イメージング装置と呼ぶ)を開発する(図1)。ナノスケールの構 造の評価の最適な小角散乱を複合材料の各部位で網羅的に計測して、その構造情報をマッ ピングする(図2)。その結果、産業界で取り扱う繊維強化プラスチック、タイヤ、鉄筋コンクリ ート、金属基材料などの複合材料の内部構造を定量的に材料の場所ごとに可視化できる非 破壊検査法が実現する。特に中性子が高い感度を有する水素(水)の検出も目指す。構造 情報として干渉性散乱として、(1)母材の結晶化度、結晶方位、結晶ひずみ(広角検出器)、 (2)分散粒子の形状因子からその密度や配向分布(小角検出器)、(3)母材と分散材のあい だの剥離、亀裂(小角検出器)などの情報をマッピングする。非干渉性散乱(広角および背面 検出器)から水分布を評価し可視化する。



図1 開発する小角散乱イメージング装置の概念図

小角散乱イメージング法の概念図

図2 小角散乱イメージング法の概念図. マクロサイ ズの試料の各場所にミクロな構造パラメータをマッ ピングして可視化する.

本開発装置を理研(和光)の陽子線ライナック小型中性子源(RANS、出力 7MeV)に設置し 計測を行う。小型中性子源のターゲットの直下にマルチピンホールを設置して、大面積に発 生する中性子ビームを効率よく利用する(図3左)。「飛行時間法」と「マルチピンホール」の組 み合わせによって、小型中性子源の「強度不足」を克服する。また、J-PARC 茨城県産業利 用構造解析装置(i-MATERIA)の小角散乱の測定性能との定量的な比較を行う。RANS にお ける実測をもとに本開発装置を利用するために最適なターゲット&モデレータの形状を、モン テカルロシミュレーション等を用いて評価し、最適化の指針を明示する。

本開発装置では、(1)マルチピンホールを利用した通常の中性子小角散乱測定(マルチピンホール小角散乱法、目標の波数範囲(q>0.01 A⁻¹))、(2)広角、背面検出器を結合した「小角散乱イメージング装置」、(3)完全結晶を利用した高分解能中性子小角散乱(マルチ結晶小角散乱法、目標の波数範囲(q<0.01 A⁻¹))(図3右)の機能を実現して、産業利用の要求に十分応える計測装置を完成させ、これの共同利用体制を構築する。さらに本開発装置は、茨城大学ベンチャー企業にて製作して市場販売を目指す。

本研究開発で掲げた「小型中性子源における小角散乱装置の開発」を以下の学術的な意 義は、「物質と中性子の相互作用の知識を用いて、ターゲットの真横、ダイレクトビームの軌 道上に、低ノイズな時空間を実現する。その結果、産業利用に供する小角散乱の測定が可 能となる。ここでノイズ源とは、ビームホールを徘徊する中性子線と、2次的なガンマ線であ る。



図 3「マルチピンホール小角散乱法」と「マルチ結晶小角散乱法」の概念図.

- 2. 研究実施予定表 非公開
- 3. 研究費 非公開

Ⅱ.研究成果の創出状況

4. マイルストーンの達成状況

中間評価のコメントを反映して「マルチピンホール小角散乱装置の開発」に集中するように全体計画を修正した。すなわち当初提案した「マルチ結晶小角散乱法の開発」(図3右)を保留にすることで RANS にける高分子材料のピンホール小角散乱計測を達成することを最終目標に設定した。また、効率の良い計測を達成するために、広角検出器、背面検出器を設置することを目指した。 この課題を達成するために、以下のスケジュールで理研 RANS にてビーム実験を実施した。

1回目: 2016 (5/30-6/1) RANS 調査、拡散ガラスの効果検証

2回目: 2017(1/31-2/2) 実空間表示プログラム 作製、イベントデータ実測

3回目: 2017(2/28-3/1) 実測、遮蔽効果の検証

4回目: 2017(6/30-7/1) 逆空間プログラム完成、検出器遮蔽の完成、小角散乱実測

- 5回目: 2017(10/10-10/12)小角散乱実測
- 6回目: 2017(11/27-29) 高分子試料の実測
- 7回目: 2017(12/18-19) 高分子試料の実測
- 8回目: 2018(7/9-13) 高分子試料の実測
- 9回目: 2018 (11/6-9) 広角検出器の利用
- 10回目: 2019 (5/13-17) 広角検出器の利用

実施課題の進捗を確認するために3点のチェックポイントを設定した。

(1)大面積2次元検出器で中性子ビームを検出(チェックポイントCP1.) 大面積2次元検出器の製作として位置分解能5mmを目標値とした。

達成状況: 達成度100%である。

平成27年度、28年度においてフラットパネル型2次元検出器(ホトマル)を試作した。検出位 置分解能を最適にするために、シンチレータと2次元検出器の間に光拡散ガラスを装填し効 果を確認した。非密着型のフラットパネル型2次元検出器を2台製作した。密着型のフラット パネル型2次元検出器を4台製作した。

(2)大面積2次元検出器で集光ビームを検出(チェックポイントCP2.) 多層グリッドマルチピンホールの製作し、小型中性子源のターゲットで面状に発生した中性子の内で小角散乱に利用できる角度成分を選別して検出器上に導くことを目指した。

達成状況: 達成度100%である。

理研RANSにおける実測の結果、ベリリウムターゲットより発生した熱中性子線のうちで、検 出器位置(1500mm)に集まる中性子線を選別し集光することができた。真空用のケースの内 部に多層グリッドマルチピンホールを挿入して空気による散乱の効果を抑制した。本技術をま とめて特許出願を行った。

(3)大面積2次元検出器で小角散乱を検出(チェックポイントCP3.) 高分子材料の試料の小角散乱を計測する目的で、小角散乱装置の製作を行う。小角散乱装 置は、(1)散乱真空槽の製作、(2)光学ベンチ架台の製作、(3)試料移動ゴニオの製作、 (4)小角散乱解析、試料位置制御プログラムソフトウエアの製作からなる。散乱真空槽は試 料から散乱検出器までの距離(約1m)を真空状態に保つ。光学ベンチ架台上の試料直前に ピンホール等のスリットを設置する。試料移動ゴニオを用いて複数の試料を順次入れ替えて 小角散乱を効率よく計測する。コンクリート等の大型の試料のスキャニングも可能である。試 料位置制御プログラムソフトウエアで、小角散乱の計測と試料の交換(位置換え)を連携して 自動制御する。

達成状況: 達成度100%である。

検出器の面積(立体角)を考慮して散乱真空槽を設計し製作完了した。内部には中性子等の ノイズを遮蔽するための水素入り遮蔽材/非水素遮蔽材の複層構造を考案した。試料移動ゴ ニオの上に設置を完了した。小角散乱解析ソフトウエアに試料位置制御プログラムを付加 し、自動測定制御を可能とした。高分子やコンクリート試料を封入する試料ホルダーを製作し た。フラットパネル型2次元検出器のスタート・ストップ、測定データの実空間表示が完成した。 以上の構成要素を組み合わせて小角散乱装置とした。

(4) CCD カメラによるラジオグラフィーの確立 (チェックポイント CP4)

当初の計画では、CCDカメラによるラジオグラフィー撮影装置を設置し、透視画としてのラジ オグラフィが観察できることを計画したが、計画を変更して、広角度の位置に8台のフラットパ ネル検出器を設置することとした。この結果、非干渉性散乱や結晶からの回折が同時計測で きる。

達成状況: 達成度100%である。

グラッシーカーボンの標準試料においてカーボンの層状構造の小角散乱、および回折を観察 した(図17)。

(5)シリコン完全結晶による高分解小角散乱の測定 (チェックポイント CP5) 当初の計画では、2枚のコリメータ結晶、アナライザ結晶で回折した中性子ビームを大面積 2 次元検出器で検出し、高分解能(最小波数が q <0.01A⁻¹)で計測できることを目指したが、 中間評価のコメントを反映して計画を変更した。すなわち、マルチピンホールの穴径をさらに 小さくすることでより低波数が計測できることを目指した。

達成状況: 達成度100%である。

(9x9)形式のマルチピンホールの穴径をさらに小さくすることと、冷中性子源(理研 山形グル ープ)の成果を組み合わせることで、最低観測波数を q=0.007 A⁻¹ へと拡張した。また大強度 陽子加速器 J-PARC における産業利用課題であるシャンプーの泡沫の構造解析の一部を RANS で実施しシャンプー用の界面活性剤のミセル構造の観察に成功した。 (6) ターゲット部の遮蔽を改造、設計 (チェックポイント CP6)

散乱用マルチピンポール、小角散乱イメージング用マルチピンポールが、RANS 装置の遮蔽 部に設置できるような改造する。

達成状況: 達成度100%である。

冷中性子源(理研 山形グループ)の成果や、マルチピンホールの成果を組み入れた新しい 遮蔽体構造を設計した。理研では新しい RANS 遮蔽体を建設中であり H31 年度 3 月に完成 の予定である。

5. 研究計画全体の進捗状況

「マルチピンホール小角散乱装置の開発」および「マルチピンホール小角散乱イメージング 法の開発」を設定したチェックポイントに従い進捗状況・成果を以下に述べる。

(1) 大面積2次元検出器で中性子ビームを検出(チェックポイントCP1)

ヘリウムガスの高騰に伴い代替検出器として、[®]Li/ZnSシンチ&フラットパネル型2次元ホトマルを採用して飛行時間法中性子小角散乱法への適用を試みた。特に小型中性子源ビームホールにおける特異なノイズ環境での動作条件を確立することを目的とした。この計画に従い大面積2次元検出器の製作を開始した。実施期間は、平成28年1月~平成29年3月である。大面積2次元検出器として、浜松ホトニクス社製の2次元検出器ホトマルを採用した。 本検出器は、フラットパネル型受光面光電子増倍管アレイ(50mm x 50mm)を4つ組み合わせることで構成されている(図4に1、2、3、4の部分)。個々の受光面は6mm サイズの検出エレメント(総数64エレメント(=8x8))で構成されている。抵抗分割法で相互の位置関係が読み出せるように、各エレメント間を抵抗で連結した。異なる受光面光電子増倍管アレイの間も同様に抵抗で連結し、ひとつの出力として一体の検出器なるように試みた。これまで受光面光電子増倍管アレイ(50mmx50mm)の接続の仕方に関して、非密着型、および密着型の2種を試作して有用性を検証した。



図4 浜松ホトニクス社製 フラットパネル光電子増倍管アレイの模式図

平成 27 年度においては、受光面光電子増倍管アレイの間に 10mm に空間ギャップを設け る非密着型の試作を行った。10mm に空間ギャップに対応する抵抗値を算出して受光面光電 子増倍管アレイの間を接続した。検出器の前面には ⁶LiF/ZnS(Ag)シンチレータを設置し、散 乱体としてポリエチレンを置き中性子線の実測を行った(図5)。図5の表示は「小角散乱解析 プログラム」(H28 年度実施計画)の実空間表示の例である。フラットパネルの4つの受光面 (図4の1、2、3、4の部分)での中性子の計測が示されている。図5の断面(黄色線)に沿っ て得られた強度プロファイルを図6に示した。フラットパネル間のギャップが 11mm, 受光エレ メント間の距離が 6mm と評価された。



図5 浜松ホトニクス社製 フラットパネル光電子増倍管アレイによる実測の例.



図6 浜松ホトニクス社製 分離型フラットパネル光電子増倍管アレイの実測例 (図5の黄色線に沿ったプロファイル)

H28 年度はさらにフラットパネル間のギャップが無い「密着型」のフラットパネル型2次元検 出器(4台)を試作した。中性子の受光位置を、受光エレメントの内部でさらに細かに決定す るためには、中性子検出に由来する光を周辺の受光エレメントにも波及させ、受光エレメント を繋ぐ抵抗分割ネットワーク回路による重心評価の演算を活用することが効果的である。そ のために光拡散ガラスをシンチレータと2次元検出器の間に装填する技術がある。光拡散ガ ラスの効果をガラスの厚みを 2~10mm へと変えながら実測した(図7)。ガラスが無い場合に は 6mm のピッチで独立していた検出ピークが、連続的になった。これは光拡散ガラスによっ てシンチレータ(発光体)とフォトマル検出エレメントの間にギャップが生じたのを受けて、発光 した光の一部が周辺の検出エレメントに拡散した(図8の右)。エレメントを網目につなぐ「抵抗 ネットワーク回路」による重心計算の結果として、ひとつのエレメントを細分化する効果が生じ たためである。光拡散ガラスが無い場合に 6mm であった分解能(・d)が 2mm に向上したこ とになる。同時に検出器の周辺のイベントが検出器の中心に移動をする「像の歪み」が顕著 になった。この歪みは光拡散ガラスが厚くなるほど顕著で、ガラスの厚みが 10mm の場合、 歪みは 10mm 程度と確認できた。







図8 光拡散ガラスの厚みgと 抵抗分割法の関係

光拡散ガラスの効果を概念的に図8にまとめた。検出器の性能を記述する分解能値として、 検出位置・dとその位置に置ける線幅・wがある。



図9 多層グリッドマルチピンホールの写真と、集光実験のイメージ

(2)大面積2次元検出器で集光ビームを検出(チェックポイントCP2.)

ターゲット線源の面光源から発生する発散角の小さな中性子線を選別してすべて取り込 み、短距離で効率よく整形(選別)する目的で、「小角散乱用マルチピンホール(多層グリッド マルチピンホール)」を製作した。製作したマルチピンホールを図9に示した。ターゲット側の入 りロの断面が140x140mm²である。その内部をB₄C 焼結板で25 分割した。下流側の出ロの 断面が70x70mm²である。製作した「小角散乱用マルチピンホール」をターゲット直後の遮蔽 部に挿入した。出口からの位置(Lmm)を変えながら中性子線の分布を計測した。マルチピン ホールの出口直後(L=0mm)では、出口のサイズの70mm²全体に広がり、中央部に対して周 辺部の強度が低い(11/4)。検出器を集光点L=1500mmの位置に移動すると直径が約 15mmの集光点になる。このようなターゲットで面状に発生した中性子の内で小角散乱に利 用できる角度成分を選別して検出器上に導くことが出来た。本成果を受けて特許出願を行っ た。

(3)大面積2次元検出器で小角散乱を検出(チェックポイントCP3.)

高分子材料の試料の小角散乱を計測する目的で、小型中性子源小角散乱装置(ib-SANS) の製作を行う。小角散乱装置は、(1)散乱真空槽の製作(実施期間:平成 28 年 4 月~平成 29 年 3 月)、(2)光学ベンチ架台の製作(平成 28 年 4 月~平成 29 年 3 月)、(3)試料移動 ゴニオの製作(平成 28 年 4 月~平成 29 年 3 月)、(4)小角散乱解析、試料位置制御プログ ラムソフトウエアの製作(平成 28 年 4 月~平成 29 年 3 月)からなる。

散乱真空槽は、試料位置から散乱検出器までの距離(約2m)を真空状態に保つ目的で、 検出器の面積(立体角)を考慮して散乱真空槽を設計・製作した。図10に散乱真空槽の断面



図10 散乱真空槽の断面写真 (装置上流から撮影、左 真空槽の窓を設置、右 窓無し)

を装置上流から撮影した写真を示した。散乱真空槽の内部は断面積を大きく取り、その内部 に中性子を遮蔽する B4C 入りポリエチレンやカドミウム板を複層化して設置した。

図11には検出器周辺の遮蔽体を示した。同様に内部は断面積を大きく取り、その内部に 中性子を遮蔽する B₄C 入りポリエチレンやカドミウム板を複層化して設置した。また遮蔽体の 内部には、密着型のフラットパネル光電子増倍管アレイを4台設置した。このとき中央部が空 洞となるようにし、ダイレクトビームは検出器に触れずに通過する(写真の赤部分)。4台のフ ラットパネル光電子増倍管アレイは、ダイレクトビームの周辺にある小角散乱だけを検出する。

フラットパネル光電子増倍管アレイの組み合わせで構成される「大面積 2 次元検出器」で、 小角散乱を計測するために「小角散乱解析ソフトウエア」を製作した。実施期間は、平成28年 4 月~平成29年3月である。検出器面上での小角散乱の強度分布が確認できるような実空 間表示を作製した。本検出器は各受光エレメントを背面の抵抗ネットワークで連結し周辺の4 端子より出力される電気信号(電流値)を解析することで受光位置を同定する仕組みである。



図11 配置された検出器と周辺の遮蔽体の写真

このためのアナログ&デジタル回路を図12(左)のように準備した。本解析ソフトウエアでは 電気信号の波高を判定して位置の算出を行う。併せて波高弁別、コーインシデンスの解析を 行い、ノイズの除去を行う。

このような解析演算の流れを図12(右)に示した。実空間の表示の例は図5に示した通り である。小型中性子源での小角散乱の実験は、複数の試料を順次入れ替えて小角散乱を効 率よく計測する。試料をビーム位置に対して上下左右に移動できる(可動範囲 500mm)自動 測定が可能となる計画である。コンクリート等の大型の試料のスキャニングにも用いることが できる設備である。このために試料の移動と小角散乱の測定が交互に同期する「試料位置制 御プログラム」を「小角散乱解析ソフトウエア」に付加した。

マルチピンホール小角散乱イメージング法の完成時には、4台のフラットパネル型2次元検 出器で小角散乱の計測が制御可能となる計画である。本解析ソフトウエアでは、ダイレクトビ ームモニターより得られる試料透過率を考慮してバックグランド散乱を引き取る補正を行う。 その後、ダイレクトビーム中心に小角散乱データを円環平均して、1次元の散乱プロファイ ルとする。



図12 回路構成(左)と小角散乱解析プログラムおよび試料移動プログラム(右).

高分子材料の小角散乱の実測

製作した各要素を組立てて小型中性子源小角散乱装置(ib-SANS)とし、小型中性子源 (RANS)に設置した(図16)。小型中性子源(RANS)を約100Hzの繰り返し周期運転し、パ ルス中性子を発生した。モデレータから検出器までの距離は3600mmであった。



図13



図14 小角検出器の積分強度を飛行時間依存性.

図13に小角検出器で計測されたダイレクトビームの波長依存性を示した。ダイレクトビーム を可視化するために検出器の左上をダイレクトビーム位置とした。短波長(λ <0.05Å)の中性 子においては、⁶LiF/ZnS(Ag)シンチレータは感度が無い。熱中性子(波長 λ >0.1Å)におい て検出が可能となる。波長 λ =1Åにおいて強度が最大となり、長波長において強度は減衰す る。これは RANS の設計仕様のとおりである。波長 λ >5Åでは、中性子が劇的に減少する。 図14 には、小角検出器で検出できた積分強度を飛行時間に対して表示した。図には連続 した3回のパルスを示した。各パルスは12ミリ秒まで計測され、これは波長に換算しすると λ =10Å である。 λ =10Å における計測強度は、 λ =1Å の10000分の1であることがわか る。この強度は、波長に依存しないバックグランドと一致する。また長波長(λ =10Å)の外挿 値は次のフレームに対するノイズとなる。この点を改善するためには、パルス数を減らすか、 またはテールカットを目的としたチョッパーの導入が必要となる。冷中性子源の開発が進むと 長波長領域の強度は、約10倍の強度増が期待できるため、次のフレームに対するノイズの 対策が重要になる。

(4) CCD カメラによるラジオグラフィーの確立 (チェックポイント CP4)

当初の計画では、CCD カメラによるラジオグラフィー撮影装置を設置し、透視画としてのラ ジオグラフィが観察できることを計画したが、計画を変更して、広角度の位置に8台のフラット パネル検出器を設置することとした。さらに試料の上流側に背面検出器を設置し試料からの 様々な反射を計測できるように配慮した。広角検出器を用いると図6の0.2 < q (A⁻¹) < 4 が 観測できる。図16に広角、背面検出器部を含めて完成した小型中性子源小角装置 ib-SAS の写真を示した。以下に装置の構成を説明する。装置全体は2台の台車に分割され、実験終 了後は簡単に移動できる。



図 15 広角検出器部および背面検出器部.

(1) 大面積 2 次元検出器、検出器配置、散乱真空槽

高騰するヘリウムガスの代替検出器として、フラットパネル型2次元ホトマル(浜松ホトニクス)を採用した。これと⁶Li/ZnSシンチレータを組み合わせることで、飛行時間型の中性子小角散乱の計測を行う。この検出器の受光位置分解能は6mmと評価された。小角検出器は、フラットパネル型2次元ホトマルを4台からなる。その下流に入射フラックスモニタを配置した。中央部に開ロスペースを確保しダイレクトビームを後方に導く。広角検出器は8台のフラットパネル型2次元ホトマルからなり中心が空洞である。背面検出器は2台のフラットパネル型2次元ホトマルが、ダイレクトビームを挟むように左右に配置した。小角検出器までに散乱パスは真空槽で覆われている。内部は100mmのホウ素入りポリエチレンで覆われてノイズとなる中性子の侵入を防ぐ構造である。

(2)自動試料交換機

マルチコリメータの出口のサイズに合わせて、大面積試料ホルダー(試料面積が 80x80mm²)を準備した。複数の大面積試料ホルダーを順次入れ替えて小角散乱を効率よく 計測する自動交換機を製作した。試料パネルに総数 20 個の試料を装填することができる。 試料をビーム位置に対して上下左右に移動できる(可動範囲 500mm)自動測定が可能であ



図 16 広角、背面検出器部を含めて完成した小型中性子源小角装置 ib-SAS.

る。また試料パネルを外して、コンクリート等の大型試料を固定して、大型試料の部分のスキャンができる設備である。

次に実測の例を報告する。小型中性子源(RANS)を100Hz の繰り返し周期で運転しパ ルス中性子を発生した。このとき小角検出器で検出できた2次元パターンと積分強度を飛行 時間に対して表示した(図13、14)。図には連続した3回のパルスを示した。モデレータから 検出器までの距離は3600mm であった。各パルスは12ミリ秒まで計測され、これは波長に 換算しすると λ =10Å である。 λ =10Å における計測強度は、 λ =1Å の10000分の1であ 理、この強度は波長に依存しないバックグランドと拮抗する。

小角散乱の実測ではモニター値による入社中性子強度の補正の後、ダイレクトビームモニ ターより得られる試料透過率を考慮してバックグランド散乱を引き取る。その後、ダイレクトビ ーム中心に小角散乱データを円環平均して、1次元の散乱プロファイル(微分散乱断面積)を 得る。図17 にグラッシーカーボンの実測例を示した。赤丸は *ib*-SAS 装置の小角検出器で 1時間計測した結果である。これに対して黄色丸は、広角検出器の結果である。大強度陽子 加速器 J-PARC の茨城県構造解析装置 iMATERIA(BL20)の計測結果を実線(測定時間は 30 分)で示した。両者はよく一致する。*ib*-SAS 装置で観測できる最小の波数はおよそ 0.01 A⁻¹であり、iMATERIA 装置の場合の 0.007A⁻¹とほぼ同等である。小角側のデータは長い波 長の小角散乱であり、冷中性子源の活用で強度が増幅すれば、より良い測定効率となる。



図 17 (5x5)マルチピンホールで計測したグラッシーカーボンの小角散乱. 小角検出器、および広角検出器を利用.

(5)シリコン完全結晶による高分解小角散乱の測定 (チェックポイント CP5) 当初の計画では、2枚のコリメータ結晶、アナライザ結晶で回折した中性子ビームを大面積 2 次元検出器で検出し、高分解能(最小波数が q <0.01A⁻¹)で計測できることを目指したが、 中間評価のコメントを反映して計画を変更した。すなわち、マルチピンホールの穴径をさらに 小さくすることでより低波数が計測できることを目指した。当初はその内部を B₄C 焼結板で 25 分割する(5x5)型を作成し波数範囲 q=0.01 < q (A⁻¹) < 4.0 の観測した。これをさらに改善 するためにマルチピンホール型コリメータの改良として(9x9)型を作成した。素材はカドミウム 板を採用し図 18 にその写真を示した。ターゲット側の入り口の断面が 140x140mm²、下流側



図 18 (9x9)マルチピンホール(左)とダイレクトビームモニターによる実測例

の出口の断面が 70x70mm²である。製作したマルチピンホール型コリメータをターゲット直後

の遮蔽部に挿入した。出口からの位 置(Lmm)を変えながら中性子線の 分布を計測した。図 18(右)は検出器 位置(L=2000mm)の位置の集光状態 である。集光ビームの半値全幅は約 10mmに改善した((5x5)の場合は 15mm)。マルチピンホールの出口の サイズをカドミ板で制限して変更しな がら集光ビームを観察した。集光ビー ムのサイズを変えずに強度が25倍 に増大することを確認した(図19)。



図 19 (9x9)マルチピンホールの出ロサイズを変えなが ら、集光ビームのサイズ(全値半幅)と積分強度を実測.



図 20 ib-SAS 装置による界面活性剤溶液の中性子小角散乱(左) と J-PARC iMATERIA 装置(BL20) との使い分けのポイント(右).

以上に述べた(9x9)マルチピンホールを用いて、また冷中性子源(理研 山形グループ)を 組み合わせることで界面活性剤溶液(従来のシャンプーの主成分 Sodium dodecyl sulfate SDS)の中性子小角散乱を観測した(図20左)。これは J-PARC iMATERIA 装置 (BL20) の産業利用課題の一部である。界面活性剤が水溶液中で形成するミセル構造に由来する散 乱ピークが確認できる。これよりミセルのサイズは 8nm と決定した。また(9x9)マルチピンホー ルを用いることで最低の観測波数は q=0.007 A⁻¹ へと改善した。大強度陽子加速器 J-PARC の小角散乱装置(iMATERIA)との使い分けのポイントを図20(右)に示した。起泡後の泡沫に ような非平衡状態の構造は時事刻々変化する。このようなプロセスにおける非平衡構造の観 察は強度に勝る大強度施設に委ねる。

(6) ターゲット部の遮蔽を改造、設計 (チェックポイント CP6)

冷中性子源(理研 山形グループ)の成果とマルチピンホールの成果を組み入れた新しい遮 蔽体構造を設計した。また小角散乱に適する 23°方向のビーム取り出し口を準備する計画 である。理研光量子領域では新しい RANS 遮蔽体を建設中であり H31 年度 3 月に完成の予 定であったがコロナ禍の影響で若干の遅れが生じた。

18

6. 研究実施状況

本研究の実施体制は、茨城大学と理化学研究所からなる(下図)。茨城大学工学部(すなわち理工学研究科のビームライン科学コース)が主体となり、「マルチピンホール小角散乱装置の開発」および「マルチピンホール小角散乱イメージング法の開発」を推進した。実施期間全体にわたりマルチピンホール小角散乱装置の開発に集中して研究費の配分を行った。装置の建設は茨城大学東海キャンパス(東海村)にて行い、ビーム実験ごとに装置を理研(和光市)へトラックで移送した。一方、理化学研究所光量子工学研究領域は小型中性子源(RANS)の整備、また小角散乱に最適なターゲット部の設計指針の取りまとめを担当した。理研に予算の一部を配分して、遮蔽材等の消耗品に使用した。



7. 産学の対話の活用状況

複数回の「産学共創の場」、またサイトビジットに参加することで、本研究課題に対する客観 的な評価を吉澤 PO、各アドバイザー委員、また産業界の得るとともに、他のプロジェクトチー ムの研究進捗についての報告聞き、相互理解を深めることに役立った。他のプロジェクトチー ムの成果をリンクさせることで、中性子発生から材料研究までのシステムの構築のイメージを 確立することが出来た。今後は完成した小型中性子源小角散乱装置に対して、これを利用し 高分子材料の観察を手がける企業から要望(ニーズ)を聞き入れることが重要と考える。産学 共創の場、およびサイトビジットの実施日を以下に示した。

<産学共創の場>

27年度:2016年2月17日 28年度:2016年11月28日 29年度:2017年8月8日 30年度:2018年8月20日 31年度:2019年12月16日

<サイトビジット> 27年度:なし 28年度:2016 年 11 月 22 日 29年度:2017 年 6 月 20 日 30年度:2018 年 9 月 7 日 31年度:2019 年 4 月 14 日 8. 創出された研究成果(企業との共同研究、特許、論文など)のリスト

①-1企業との共同研究等(共同研究、サンプル・ノウハウの提供など) 非公開

①-2企業との共同研究によって得られた研究開発成果 非公開

②-1論文·著書(査読付き)

(国内)

(海外)

②-2論文·著書(査読無し)

(国内)

- ・小泉 智(茨城大学)、月刊ソフトマター、No.015 2019 6 月、 研究提案 パルス中性子飛 行時間型小角散乱による泡沫の観察 - シャンプー泡の儚さの瞬間を捉える -
- ・大竹淑恵、小型中性子源によるインフラ非破壊検査、電気学会誌 vol.139 no.5 (2019)5 月
 号 296-299
- ・大竹淑恵、理研小型中性子源システムによる非破壊内部観察、パリティ Vol.34
 No.05 (2019)5 月号 42-52

(海外)

③学会発表(招待講演含む)

(国内)

- ・大竹淑恵(理研)、「使える!理研小型中性子源 RANS, RANS2」、平成 29 年度県内中性子 利用連絡協議会 総会、茨城県ひたちなか市、2017年7月27日、(招待講演)
- ・大竹淑恵(理研)、「ニーズから始まる理研加速器駆動小型中性子源 RANS、RANS2」、 日本電機工業会加速器特別委員会 東京都、2017年9月1日(口頭)
- ・大竹淑恵(理研)、「理研小型中性子源 RANS の陽子ビームラインおよびターゲットステーションの高度化報告」、日本中性子科学会 第17回年会 福岡市、福岡、2017年12月3日、 (口頭)
- ・小泉 智(茨城大学)、「小型中性子源小角散乱装置 ib-SAS の建設、J-PARC との連携」 理研シンポ 和光市、2019年12月19日、(口頭)

(海外)

[•]Y. Otake (RIKN), "RIKEN compact neutron systems with fast and slow neutron"

CLES/LANSA`17 (Conference on Laser Energy Science / Laser and Accelerator Neutron Sources and Applications 2017), Yokohama, Japan, 2017.18.Apr.

 Y.Otake, (RIKEN), "RANS facility at RIKEN " The 3rd International H.B.S Meeting, Unke, Germany, 2017.6.Oct.

- Y. Otake "RIKEN Accelerator-driven compact neutron sources and their applications" 2nd International Symposium on Advanced Measurement, Analysis and Control for nergy and Environment (AMACEE2019), "Xi'an, China Dec. 6th-9th, 2019.
- Y. Otake "RIKEN Accelerator-driven compact neutron systems RANS and their applications" AOCNS2019 Kenting, Taiwan Nov. 17th 2019.
- Y. Otake "RIKEN Accelerator-driven compact neutron system, RANS and its capabilities" colloquium at ILL,Institut Laue-Langevin, Grenoble/France, Nov. 8th 2019.
- S.Koizumi(Ibaraki Univ), "Material science investigated by SANS instrument at compact pulsed neutron source", Small Angle Scattering (SAS)2018, Michigan, US, 2018.10.7 – 2018.10.12
- S.Koizumi (Ibaraki Univ.) "A Variety of Small-angle Neutron Scattering Instruments Available in Tokyo Area, Japan — Complimentary Use of Accelerator and Reactor—" UCANS8, PARIS, July8-11 2019
- S.Koizumi(Ibaraki Univ.)"Time-of-flight Small-angle Neutron Scattering Using IBARAKI Spectrometer iMATERIA- Ambitious Attempt for Industrial Use - ", CANSAS XI, Freising, Germany, 08- 10 July 2019.

④知的財産(特許権、実用新案権など)

(i)特許出願

(国内)

・「中性子光学素子及び中性子源」、特願 2017-140192、2017 年7月 19 日、小泉智・能田洋 平、茨城大学

(海外)

なし

(ii)特許登録

(国内)

なし

(海外)

なし

⑤他制度への展開(予定も含めて記述可とします。その場合は、「採択研究者」を「申請研究者」と読み替えてください。)

なし

⑥その他(受賞、新聞報道、招待講演、展示会等の出展など)

- ・イノベーション・ジャパン 2017 JST 大学見本市出展(B1-06) 「中性子ビームで産業の未来を拓く」、2017 年 8 月 31 日~9 月1日
- 9. その他特記事項

なし

Ⅲ.今後の展開

10. 成果の今後の展開

まとめ: 本研究開発の意義

これまでの中性子利用は、原子炉や加速器の大型実験施設に限られてきた。特に東日本 大震災以降は、研究炉 JRR3 の運転が停止し、大強度陽子加速器 J-PARC が唯一の中性 子源である。J-PARC のような大型実験施設では、一つのビームラインを複数のユーザーが 入れ替わり立ち代わりに利用する共同利用の体制のため実験の機会は限られる。今回完成 した小型中性子源の小角散乱装置 ib-SAS を組み合わせることで、X 線のようなラボ X 線装 置と放射光施設の2段構えのピラミッド型の利用体制 (図21)が構築すれば効率の良い予 備実験が可能となる。また、大型施設にはない小型中性子源施設の自由度を活用すれば、 大強度施設では困難な中性子を補足するイオンビームや X 線等の複合ビームの同時計測 や、高温高圧等の暴露試験が可能になろう。また大学院の教育にも小型中性子源の併用が 望ましい。

理研 RANS は大強度加速器施設と比較して、小型中性子源は強度不足(1/1000)という 弱点があるが、これを補う試みとして、ターゲットの直下にマルチピンホールを設置して、大面 積に発生する中性子ビームを効率よく利用した(図 3)。また「飛行時間法」と組み合わせて、 広い波長域の熱冷中性子を同時に利用したことによって、小型中性子源の「強度不足」を克 服し、実用に耐えうる材料試験装置を建設できた。さらに実験の対象は、桁外れの大きさの 散乱断面積を有する水素関連物質に集中することで、小型中性子源においても実用に耐え る分析装置を実現する作戦である。今後、水素社会を迎えるにあたり、中性子を利用した材 料評価試験が活躍すると期待が高まる。水素製造、輸送貯蔵、FCV 等のエネルギー利用、 水素を取り扱う鉄鋼、高分子の材料分野において、安全と効率を確保する革新的材料・製品 開発に中性子を利用できるだろう。安全を担保するためにさまざまな材料の物性や劣化挙動 などを評価するために、水素雰囲気等の極限条件下の暴露試験(例えば高圧高温耐久試験 等 100MPa)が必要であるが、大強度陽子加速器 J-PARC では安全規制とビームタイムに





制限があり困難である。そこで小型中性子源に散乱計測の技術を構築して、これを民間の工 場等の手元で利用できれば材料開発、試験研究が加速すると期待できる。 今後の取り組み、小角散乱イメージングの実測に向けて.

最後に小角散乱イメージングへの取り組みについて述べる。図22にはコンクリートの板材 を水に浸漬し場所ごとの小角散乱を計測した事例を示した。iMATERIA 装置の予備実験(図2 2の左)を経て、RANS の ib-SAS 装置でコンクリートの板の非干渉性散乱を計測した。高さが 増すにつれてコンクリート中の水分量が減少している様子が捉えられている。現在、RANS で はマルチピンホールの成果を組み入れた新しい遮蔽体を建設中であり H31 年度 3 月に完成 の予定である。完成後に速やかにここで示したような小角散乱イメージングの実測を開始す る計画である。



図 22 コンクリートの板材(300x250mm²)の小角散乱イメージング. 板材の下部を水に浸漬し場所ごとの小 角散乱を計測した. 上は iMATERIA 装置による予備実験結果. 周辺のアルミ製フレーム、水、含水したコン クリートの小角散乱が高さを変えるごとに観察できる. ビームサイズは 10x10mm²である. RANS(下)においては 日干渉性散乱に注目して高さ方向の各点に散乱強度をプロットした. 水分量の可視化が可能である.