

英国パルス中性子施設 ISIS での 中性子回折実験体験記

京都大学原子炉実験所

小野寺 陽平

Experiences of neutron diffraction experiments at ISIS pulsed neutron source

Yohei Onodera

Research Reactor Institute, Kyoto University

はじめに

筆者は2012年10月に京都大学原子炉実験所に助教として着任し、酸化物ガラス、カルコゲナイドガラスを中心とした非晶質材料の構造と物性に関する研究を行なっている。ガラスの構造研究を行う上で、中性子は放射光と並んで非常に重要なプローブであり、筆者も学生時代より中性子と放射光を相補利用してガラスの研究に取り組んできた。

筆者が中性子と出会ったのは研究活動を始めてすぐ、修士課程に在籍していた時である。当時、山形大学理工学研究科の臼杵毅教授の下でAgイオン伝導性のカルコゲナイドガラスの研究に取り組んでいた筆者は、高エネルギー加速器研究機構の中性子科学研究施設 KENS に設置されている中性子全散乱装置 HIT-II において初めての中性子回折実験を行った。そして、そのときの縁で HIT-II の装置責任者をされていた京都大学原子炉実験所の福永俊晴教授の研究室に進学し、硫化物ガラスをベースとしたり

チウムイオン伝導体の構造研究で博士課程の研究を行うこととなった。筆者が博士課程に在籍していた当時は前述の KENS がシャットダウンし J-PARC の建設が始まった時期で、日本のパルス中性子実験施設は大きな転換期にあった。国内で中性子を用いた実験を行うことができない状況に置かれた筆者であったが、幸運にも海外のパルス中性子施設で実験をする機会をいただくことができた。その施設が英国のパルス中性子施設 ISIS である。博士課程1年のときに初めて訪問して以来、ISIS にはこれまでに計4回中性子回折実験をするために訪れ、たくさんの貴重な経験をすることができた。本稿では、筆者のこれまでの ISIS への訪問で得た経験を基に、今後、中性子を利用したガラスの構造研究を検討されている方々に役立つと思われる情報を体験談とともに記したいと思う。

1. パルス中性子回折実験によるガラスの構造解析

中性子は陽子とともに原子核を構成する中性の素粒子で、電荷を持たないために透過力が高く、物質中の原子核と相互作用することから、中性子ビームを用いた散乱・回折実験は物質の構造研究に広く利用されてきた。ガラスの構造

解析の分野では、中性子回折強度は散乱ベクトル Q の絶対値 $Q = 4\pi \sin\theta / \lambda$ の関数として測定される。ここで、 θ は試料から散乱されてきた中性子の散乱角 2θ から計算され、 λ は試料に入射した中性子の波長である。測定された中性子回折強度は種々の補正を行った後に原子1個あたりの絶対強度に規格化された構造因子 $S(Q)$ として導出される。この $S(Q)$ がフーリエ変換によって実空間上の原子の二体相関関数と結びつけられるため、ガラスの構造研究は古くからこの実験的に得られる二体相関関数を用いて行われてきた。 $S(Q)$ から二体相関関数へのフーリエ変換は数学的には $0 \leq Q \leq \infty$ の Q 範囲を必要とするが、散乱角や中性子の波長といった実験条件の都合上、実際には測定範囲が Q の最小値 $Q_{\min}$ と最大値 $Q_{\max}$ の間の有限範囲に制限されてしまう。有限範囲のフーリエ変換による打ち切り誤差をなるべく小さくするためには、なるべく広い Q 範囲で $S(Q)$ を得る必要があるといえる。特に、 $Q_{\max}$ の値は得られる二体相関関数の実空間上での分解能に大きく影響を与えるため、複数の成分元素を含んだ複雑な組成のガラスの構造解析を行う上では、高い $Q_{\max}$ までの回折強度を測定することは非常に重要となってくる。

現在利用されている中性子源としては、原子炉内の核反応によって中性子を発生させる原子炉中性子源と、加速した陽子を重原子ターゲットに入射しターゲット原子の核破砕によって中性子を発生させるスポレーション・パルス中性子源の2種類がある。この2種類の中性子源では発生する中性子のエネルギー分布が異なり、パルス中性子源の方がエネルギーの高い、すなわち短波長領域の中性子が多く得られる。ゆえに、短い波長の中性子を利用できるパルス中性子源を用いることで、波長の逆数で得られる散乱ベクトルの絶対値 Q を非常に高い $Q_{\max}$ まで測定することが可能となる。また、パルス中性子源では瞬間的に発生する大強度の中性子を試料に入射できるため、ガラス試料の非常に弱い

回折強度を高い統計精度で測定できるというアドバンテージも非常に大きい。

2. 英国ラザフォードアップルトン研究所のパルス中性子施設 ISIS

ISIS (アイシス) は、英国のラザフォードアップルトン研究所 (Rutherford Appleton Laboratory, RAL) の構内に建設されたパルス中性子施設である。名称は古代エジプトの豊穡の女神イシス (Isis) に由来するとのことである。重原子ターゲットとしてはタングステンを使用し、0.8 GeV のエネルギーに加速した陽子をターゲットに衝突させることにより、160 kW の出力で中性子を発生させている。パルス中性子源としては、J-PARC (設計中性子源出力 1 MW) や米国 SNS (設計中性子源出力 1.4 MW) といった次世代中性子源が建設されるまでは世界最高強度を有する実験施設であった。さらに、2007 年にはこれまでの実験施設 (第1ターゲットステーション) に加えて第2ターゲットステーションが運転を開始している。こちらは中性子源の出力としては 48 kW とそれほど高くはないが、発生するパルス中性子を間引くことで1パルスあたりの中性子強度を高めており、長い波長の中性子を利用したソフトマターや生体物質、ナノ材料の研究に適した施設となっている。

ISIS で実験を行うには申請書を書いて課題申請を行い、それが採択される必要がある。課題申請は年に2回、4月と10月に行われる。申請書は A4 用紙2ページ以内で、「Background and Context (研究背景と準備状況)」、「Proposed experiment (申請する実験内容)」、「Justification of beamtime request (ビームタイム算出の根拠)」を記す必要がある。他にも課題申請のページで申請課題の要約 (900 字以内) を書く必要があるので注意する。ISIS の web サイトでも勧められているが、申請に際しては事前に課題申請を検討している中性子ビームラインの担当者にコンタクトをとり、申

請について相談しておくことが望ましい。

3. ガラスの構造解析が可能なビームライン：SANDALS, NIMROD, GEM

ISISには現在、第1ターゲットステーションに23本、第2ターゲットステーションに10本の計33本の中性子ビームラインが設置され、共同利用実験に供されている。その中でガラスの構造研究に利用できる（構造因子 $S(Q)$ を測定できる）ビームラインは、第1ターゲットステーションに設置されているSANDALSとGEM、第2ターゲットステーションに設置されているNIMRODの3本である。

SANDALS (Small Angle Neutron Diffractometer for Amorphous and Liquid Samples) は液体・非晶質物質用の回折装置である。平板型の測定セルに試料を入れて試料面を入射中性子に垂直となるように設置し、低い散乱角に並べた数多くの中性子検出器によって試料で散乱されてきた中性子を検出する。低い散乱角に検出器を並べているのは中性子と軽元素の非弾性散乱によって生じる反跳効果を軽減するためで、水素や重水素といった軽い元素を含む液体試料の $S(Q)$ を精度良く測定できる設計となっている。尚、検出器が低い散乱角に並んでいるが、高エネルギーの中性子を利用することで高い $Q_{\max}$ ($\sim 50 \text{ \AA}^{-1}$) まで $S(Q)$ が測定可能である。NIMROD (Near and Intermediate Range Order Diffractometer) はSANDALSの発展型の装置としてより広いスケールの構造を研究対象として設計された中性子回折装置である。第2ターゲットステーションの特徴である長い波長の中性子を有効に利用することで、測定できる $Q_{\min}$ が $0.02 \text{ \AA}^{-1}$ とSANDALSよりも一桁小さくなっており、より Q の小さい領域まで広くデータを測定することで、 $300 \text{ \AA}$ ($=30 \text{ nm}$) までの大きなスケールでの構造解析が可能な装置となっている。

GEM (GEneral Materials diffractometer) は高強度の入射中性子を利用した高効率の測定

が可能な汎用中性子回折装置である。前述のSANDALS, NIMRODとは異なり、中性子検出器が試料を囲むように配置されており、 1.1° から 169.3° までの広い散乱角をカバーする検出器によって広い Q 範囲の $S(Q)$ を効率良く測定することが可能である。また、高い散乱角に設置された検出器群で測定された高い Q 分解能のデータを使用することで結晶試料の構造解析も可能である。GEMは非晶質と結晶の両方を測定することが可能な非常に人気のある装置であるが、筆者は幸運にもこれまでにGEMに計4回ものビームタイムが採択され、実験を実施している。筆者がこれまでに最もたくさん実験を行った海外の実験装置であり、博士の学位取得がかかったデータもGEMを利用して測定したこともあり、筆者としても非常に思い入れがある装置である。GEMでの実験についても少し詳細に触れたい。

GEMの測定セルはバナジウム金属製の円筒状セルである。バナジウムは中性子に対する干渉性散乱能が非常に小さく (Bragg ピークを生じる散乱がほとんど起こらないため)、「中性子に対して透明な金属」と考えることができるので、中性子を利用した実験では試料セルとしてよく用いられる。GEMのバナジウムセルは直径5 mm, 6 mm, 8 mm 等いくつかのサイズのもので用意されており、準備できる試料量に応じて選択できるようになっている。GEMの試料位置での中性子ビームのサイズは高さ40 mm, 幅15 mm となっており、試料をビームの高さまで充填することが可能なサイズのセルを使うことによって、入射する中性子を有効に利用して実験をすることができる。1 試料の測定時間としては、試料の組成や密度に依存するが、例えば SiO_2 ガラスの粉末試料であれば4時間程度の測定で十分な統計精度の構造因子 $S(Q)$ が測定可能である。試料環境としては、最大10個まで試料を設置可能なオートサンプルチェンジャーが利用できる他、高温・低温・磁場印可など様々な条件下での測定も可能であ

り、必要の場合は実験前に装置担当者に相談して使用を検討していただきたい。

GEMでは試料を取り囲むように設置された数多くの中性子検出器で測定したデータを取り扱うため、得られるデータファイルは1測定あたり数十メガバイトの容量となる。筆者の学生時代にはハードディスクを持って行ってデータを持ち帰ったりしたものであるが、現在では市販のUSBメモリを持参すれば問題なくデータを持ち帰ることができるだろう。また、課題申請時に取得したIDを用いて、(通信は非常に遅いが)ネット経由でデータをダウンロードすることも可能である。データ解析については、ISISのDisordered Materials Groupのメンバーが開発したGudrun, Gemsqrawといったソフトウェアが無料で配布されており、これらを用いることでGEMの測定データから $S(Q)$ を導出することができる。ソフトウェアについてはDisordered Materials GroupのWebサイトを参照していただきたい。

4. ISIS 滞在について

ISISがあるRALはイングランド・オックスフォードシャー州のチルトンにある。RALへのアクセスはロンドン・ヒースロー空港からは鉄道でPaddington駅を経由してDidcot Parkway駅へ向かい、Didcot Parkway駅からはX32番のバスに乗ってHarwell campusというバス停で下車する。所要時間は2時間程度である。ちなみに筆者の場合、テムズ川の増水に伴う電車の遅延に巻き込まれたり、Didcot Parkway駅に止まらない電車にうっかり乗ってしまい50kmほど先のSwindon駅まで乗り過ぎてしまうなど、なかなかすんなりISISまでたどり着けたことがない。

Harwell campusに到着したら、まずはRALの入り口にある建物(R75)内のISISのユーザーズオフィスにてRALへの入構の手続きを行う。バス停からはRALの放射光施設であるDiamond Light Sourceの大きなリングが見え



図1 ISISの入り口に掲げられている各国の国旗(日本の国旗もある)

るため、Diamond Light Sourceに向かっていけば迷わずに入り口にたどり着けるだろう。来所前の手続きが済んでいれば、ユーザーズオフィスにてRALに入構するためのパスカードと、フィルムバッジ等を受け取るための書類を渡してもらえ。その後はパスカードを使ってRALの構内へ入り、ISIS(R55)を目指す。RAL構内の最初の交差点を右に曲がり、後はひたすら真っ直ぐ進む。フェンスがある突き当たりを左に折れてしばらく進むと、各国の国旗が並んだISISの入り口(図1)が見えてくるはずである。ISISに到着したら、メインコントロールルーム(MCR)の隣にある保健物理のオフィスにてユーザーズオフィスで受け取った書類を提出し、フィルムバッジを受け取る。さらに、MCRでパスカードを提出し、ISISの放射線管理区域に入れるようにパスカードの設定を変更してもらうことで、ようやくISISでの実験が可能となる。

宿泊施設としては、RALの入り口の向かい側にRidgeway Houseという宿舎があり、課題採択後の来所前手続きで予約することができる。宿泊料金は朝食込で1泊75ポンドである。Ridgeway Houseの客室は新しく清潔で、ISIS



図2 初めて ISIS を訪れた博士課程 1 年時の筆者 (ISIS の近くの National Trail “The Ridgeway” にて)

にも徒歩で通える距離にあるため、非常に快適な気持ちで実験に臨めるであろう。ただし、部屋には冷蔵庫が設置されていないのでその点には注意していただきたい (筆者も冷えたビールを買い置きできずに大変苦勞した)。食事に関しては Ridgeway House でも昼食、夕食をとることはできるが、RAL の構内にあるカフェテリアも利用可能である。昼食の時間帯は非常に混み合うが、「いかにもイギリス」といった料理が並んでいるので、機会があれば是非チャレンジしていただきたい。

おわりに

J-PARC や米国 SNS といった次世代のパルス中性子源が運転を開始し、放射光や構造モデリング、大規模理論計算との融合により、現在、中性子を利用したガラスの構造研究は新しいステージに到達しつつある。このような状況の中、ISIS は利用できる中性子強度は一世代前のものではあるが、コンパクトなビームライン設計による装置へのアクセスのしやすさ (= 実験のしやすさ)、これまでに蓄積された実験・解析技術などを存分に活用することで、まだまだ世界トップレベルの中性子利用実験を実施できる実力を備えている施設であると筆者は感じている。

本稿では、英国のパルス中性子施設 ISIS を利用した中性子回折実験について、筆者のこれまでの経験からくる雑感を添えて書かせていただいた。少し細かいところまで書いてしまっている節はあるが、大型施設を利用した中性子回折実験の大まかな流れは世界中で基本的に共通のものであるので、本稿の内容はとても初歩的な中性子実験の手引き書として読んでいただければ幸いである。