

「何ができる?どこがすごい?」～各装置の紹介～

## 高強度全散乱装置 NOVA

大友 季 哉\*

## 1. NOVA で何ができる?

本装置は、パルス中性子源の特長である幅広い波長の中性子を利用し、幅広い  $Q$  領域を同時に観測する全散乱装置である。全散乱装置とは、主に熱外中性子領域 ( $0.5 \sim 10$  eV,  $0.009 \sim 0.04$  nm) 迄の比較的高エネルギーの短い波長の中性子を利用することによって、物質の静的構造因子  $S(Q)$  を可能な限り大きな  $Q = |\mathbf{Q}| = (4\pi/\lambda) \sin \theta$  まで正確に測定することを目的とする回折装置である。 $\mathbf{Q}$  は逆格子空間における波数ベクトル  $\mathbf{k}$  の変化(運動量遷移)を表し、散乱ベクトルと呼ばれる。結晶の格子面間隔  $d$  と  $Q$  は、 $Q = 2\pi/d$  の関係がある。測定された  $S(Q)$  をフーリエ変換することにより、実空間二体分布関数(Pair Distribution Function, PDF)を得られる。PDF における実空間分解能は、最大  $Q$  値に逆比例するため、短い波長の中性子による高い  $Q$  値での精度の高い  $S(Q)$  測定が必要となる<sup>(1)(2)</sup>。全散乱法は、もともとはブラッグ回折を生じないガラス、液体等の不規則系の構造研究に適用されてきたが、近年では結晶におけるナノメートル程度の相関の導出にも用いられている<sup>(3)</sup>。

NOVA は、広い  $Q$  領域 ( $0.1 \text{ nm}^{-1} \sim 1000 \text{ nm}^{-1}$ ) にわたる  $S(Q)$  が取得可能である。小角領域を含む観測が可能であるので、数十 nm 程度の相関まで観測できる。また、最高分解能は約 0.3% と設計されており、汎用的な粉末回折装置としても使用可能である。中性子全散乱装置としては世界最高中性子測定強度を実現することになる<sup>(4)</sup>。

最大ビームサイズは  $20 \times 20 \text{ mm}^2$  である。最小ビームサイズは、 $5 \times 5 \text{ mm}^2$  を予定している。微小試料での実験は、装置のノイズが小さいことが重要であり、遮蔽体の真空槽内への設置や空気層の削減等の対策を施している。試料形状は、試料環境や測定目的に対応して重要とする観測  $Q$  領域に応じて最適化される。NOVA は幅広い波長の中性子を使うために、限られた散乱角度による測定でも  $S(Q)$  測定が可能となる。例えば、最も短い波長として  $0.012 \text{ nm}$  の中性子が利用可能であるために、散乱角が  $30^\circ$  までの観測により  $Q = 250 \text{ nm}^{-1}$  までの測定が可能である。また、散乱角が  $90^\circ$  付近の検出器バンクだけでも、 $10 \text{ nm}^{-1}$  から  $800 \text{ nm}^{-1}$  の領域

の  $S(Q)$  測定が可能である。つまり、広い散乱角の確保が難しい特殊試料環境の場合でも、 $S(Q)$  測定を行う事が可能である。

## 2. NOVA はどこがすごい?

図 1 に示すのは、高エネルギー加速器研究機構で稼働していたパルス中性子源(KENS)に設置されていた、全散乱装置(HIT-II)と小角・広角散乱装置(SWAN)の 2 台によるデータにより作成したものである。両装置の測定領域は  $3 \text{ nm}^{-1} \sim 30 \text{ nm}^{-1}$  において重複しているが、図中には便宜的に両装置の境界を示している。試料は、メソポーラスシリカ(FSM)である。小角領域(SWAN)には、約  $4.3 \text{ nm}$  の間隔で hexagonal に配置するポアによるブラッグピークが観測され、高角領域(HIT)では、骨格構造を形成するシリカガラスの構造因子が観測されている。NOVA では、この 2 台の装置分の  $Q$  領域を測定可能にした。中性子全散乱装置の世界的な傾向としても、小角領域に拡張が進んでいる。測定時間

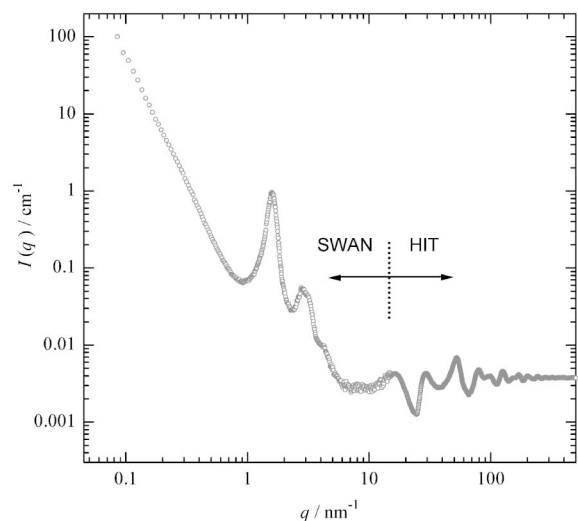


図 1 NOVA の測定領域のイメージ。全散乱装置(KENS-HIT)と小角・広角散乱装置(KENS-SWAN)の 2 台の装置によるメソポーラスシリカ(FSM)の測定データより作成。

\* 高エネルギー加速器研究機構; 教授(〒305-0801 つくば市大穂 1-1)

High Intensity Total Diffractometer NOVA; Toshiya Otomo (High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Tsukuba)

Keywords: neutron, total diffraction, Pair Distribution Function, nano structure

2009年3月16日受理

表1 NOVA 何ができる？ どこがすごい？

	ISIS GEM(英国ラザフォード・アップルトン研究所)	J-PARC NOVA
測定対象 測定領域	弾性散乱 $0.4 \text{ nm}^{-1} < Q < 550 \text{ nm}^{-1}$	弾性散乱 $0.1 \text{ nm}^{-1} < Q < 1000 \text{ nm}^{-1}$
中性子波長(またはエネルギー)およびフラックス	0.4 nm 以下	0.012 nm~0.83 nm $5 \times 10^8 \text{ neutron/sec}$
得られる情報	二体分布関数	同左
対象研究分野	ガラス, 液体, 結晶等, 多様な物質の構造解析	ガラス, 液体, 結晶等, 多様な物質の構造解析
試料サイズ	最大 40 mm×20 mm(可変)	最小 5 mm×5 mm 最大 20 mm×20 mm
特殊環境	低温(最低 4 K), 高温(1000 K)等多数	in-situ 水素貯蔵過程観測
測定時間	S(Q)測定の標準的時間: 5-7 時間	標準15分 最大約1時間 最短1秒以下
装置特徴	高強度	高強度, 広いQ領域測定
装置運用状況	年間200日	2009年4月より装置調整を開始. 2012年3月までNEDO委託研究.
J-PARC 関連装置		iMATERIA, 大観

は, 試料サイズや試料による中性子散乱強度, 必要とされる統計精度に依存する. とくに高いQ領域は, 試料の散乱強度が小さいため, J-PARCにおいても統計精度を上げるのは容易ではない. 高エネルギー機構のパルス中性子源(KENS)に設置され, ガラスや液体の実験において多くの成果を上げてきた中性子全散乱装置 HIT-II(2006年3月に稼働停止)の測定時間を, J-PARCの中性子フラックス(J-PARC加速器の定格1 MW 運転を仮定)で規格化すれば, NOVAにおいて HIT-IIと同程度の統計精度を得るには5分程度と見積もられる. 対称性の高い結晶粉末のブラッグピーク位置の観測であれば, 1秒以下の測定も可能と考えている. このように, 汎用的な粉末回折装置としても十分な分解能を有しながら, 広いQ領域を数分程度で測定可能であるのがNOVAの特長である. このような強度利得を, イベント処理型のデータ集積システムの採用により, 外場の印可による過渡現象の測定に生かしていく. つまり, 過渡現象におけるナノメートル以下のスケールの構造変化を網羅的に観測したいと考えている.

現在稼働している代表的な中性子全散乱装置は, 英国ラザフォード・アップルトン研究所 ISIS 中性子施設に設置されている GEM である<sup>(5)</sup>. GEM との簡単な性能比較を表1に示す. NOVA は, GEM と比較して小角領域の測定, より高い中性子フラックスが特長となる. 測定時間の定量的比較は容易ではないが, NOVA は GEM の 1/6 程度と予想される. パルス中性子源以外では, 第3世代放射光源を利用した高エネルギーX線回折装置, たとえば SPring-8 の BL04B2 により, 高いQ領域まで高精度の S(Q)測定が可能になっている. 中性子とX線の全散乱実験データ(S(Q)と

$g(r)$ )に基づき, 計算機上で構築するリバースモンテカルロ法(RMC法)<sup>(6)</sup>などの3次元構造モデリング法の発展とともに, 中性子-X線の相補的利用による詳細な構造解明が可能になりつつある<sup>(7)</sup>.

### 3. NOVA を活用するために

高強度全散乱装置の建設は, NEDO「水素貯蔵材料先端基盤研究事業」(プロジェクトリーダー:産総研・秋葉悦男氏)として進められている. 2011年までの同事業期間中は, 水素貯蔵材料の構造研究が展開される. 本装置は, 2009年4月より, データ解析ソフトウェアを含む装置調整を開始する. 全散乱法の基礎については文献(1)~(3)を, NOVAの全体像については文献(4)をご覧ください.

### 文 献

- (1) J. M. Carpenter: J. Non-Cryst. Solids, **76**(1985), 1.
- (2) K. Suzuki: Methods of Experimental Physics, **23B**(1987), 243.
- (3) T. Egami and S. J. L. Billinge: Underneath the Bragg Peaks-Structural Analysis of Complex Materials, Pergamon, (2003).
- (4) 大友季哉, 鈴谷賢太郎: 日本結晶学会誌, **50**(2008), 29-34: NOVAの全体像について, より詳細に紹介している.
- (5) A. C. Hannon: Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A, **551**(2005), 88: ISIS-GEMの紹介論文.
- (6) R. L. McGreevy and L. Pusztai: Mol. Simul. **1**(1988), 359: リバースモンテカルロ法.
- (7) S. Kohara and K. Suzuya: J. Phys.: Cond. Matter, **17**(2005), S77: 高エネルギーX線回折装置の紹介とX線-中性子線の相補的利用.