

## 高分解能パルス冷中性子分光器 AGNES の改造

山室 修, 稲村 泰弘\*

(東京大学物性研究所附属中性子科学研究施設, \*日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門)

## Improvement of a High-resolution Pulse Cold Neutron Spectrometer AGNES

O. Yamamuro and Y. Inamura\*

Neutron Science Laboratory, Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,

\*Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

### ABSTRACT

AGNES is a chopper spectrometer installed at the top of the C3 cold guide of JRR-3 (JAERI, Tokai). In 2004-2006, this spectrometer was greatly improved by installing (1) 208 new detectors to make the detector bank complete, (2) new radiation shields composed of Fe (14 mm), polyethylene (50 mm), B<sub>4</sub>C rubber (10 mm), and Cd (0.5 mm) sheets, (3) a new control system for the anti-frame-overlap chopper rotating simultaneously with the Fermi chopper, (4) a monitor counter at the space between the chopper and monochromator, (5) a neutron guide tube (50 cm) before the monochromator, (6) a new instrument control (monochromators, choppers, beam narrowers, etc.) and measurement control (real-time data monitoring, sample temperature control, etc.) systems, (7) a top-loading type cryostat workable at a wide temperature range of 6–480 K. As the results of these improvements, the signal intensity has been increased by 3.3 and the background has been reduced by 1/10 both compared with the data before the improvements. The present AGNES is applicable to dynamic studies on various nano porous materials, gels, protein solutions, etc. and various in situ and special environments experiments.

**Keywords:** *pulse neutron spectrometer, inelastic scattering, quasielastic scattering, high resolution, high efficiency, low background, top-loading cryostat*

### 1. はじめに

AGNES (Angle-focusing Neutron Spectrometer) は東京大学物性研究所が所有する高分解能パルス冷中性子分光器であり, 日本原子力研究開発機構 JRR-3 のガイドホール C3 冷中性子導管の最上流に設置されている (図 1 に外観の写真を示す). この装置は 1994 年頃に梶谷剛教授 (東北大院工) と柴田薫博士 (原子力機構) を中心としたグループによって建設されたが [1], 資金的な問題もあって, 長年十分な性能を発揮することが出来なかった. そして, 2002 年には心臓部であるフェルミチョッパーの故障から, ついに完全停止するに至った (2003 年度は運転休止).

著者 (山室) が物性研に赴任したこと, および中性子科学研究施設の更新に伴う特別設備費が措置されたこともあって, 2004 年度から大規模な AGNES の改修・改造計画が始まった. 大がかりな工事は原子炉停止期間中に行い, 原子炉運転中に共同利用実験と並行してテストと調整を繰り返すという過程を約 2 年間続け, 2006 年度によ

く大部分の改修・改造作業が終了した. この波紋の紙面を借りて, この期間に行ったことを簡単に説明し, 新しく生まれ変わった AGNES の性能について示したい.

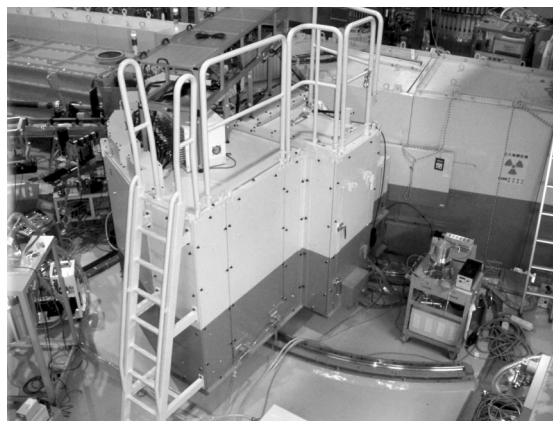


Fig.1 Overview of new AGNES.

## 2. AGNES 分光器の構造と測定原理

AGNES はフェルミチョッパーを用いた直接配置飛行時間型の非弾性散乱分光器である。図2にAGNESの構造模式図を示す。まず、C3導管(高さ20cm,幅2cm)の下部5cmからの冷中性子(20K水素で減速)を5連のピロティックグラフアイト(PG)の(002)面を用いて単色化する。モノクロメーターと装置全体を回転させることにより、2種類の取り出し角度( $2\theta_M=78^\circ$  および  $110^\circ$ )を選択できる。対応する中性子の波長は  $4.22 \text{ \AA}$  ( $4.58\text{meV}$ ) と  $5.50 \text{ \AA}$  ( $2.71\text{meV}$ ) となる。実際には5枚のモノクロの  $2\theta_M$  は少しずつずらされており、1枚1枚が少しずつ異なる波長の中性子を試料方向に反射する。上流側ほど  $2\theta_M$  が大きく(中性子の波長が短いことに対応)、下流側ほど小さい。その角度分布( $\Delta\theta_M$ )は  $1.5^\circ$  程度であり、 $\Delta\lambda/\lambda$  は2-3%である。この単色化された中性子が約1mのコリメータパスを通り、2連のチョッパーによりパルス化される。パルス幅を決めているのは下流側の高速チョッパー(フェルミチョッパー)のスリット幅(0.2mm)、曲率半径(700mm)、回転周波数  $f$  である。 $f$  は  $2\theta_M=78^\circ$  のときは  $106.7\text{Hz}$ 、 $2\theta_M=110^\circ$  のときは  $146.2\text{Hz}$  に調整される。上流側の低速チョッパーは、高速チョッパーの半分の速度で位相を合わせて回転し、高速チョッパーへの中性子入射を片側から制限している。パルス中性子は試料により散乱され、コリメーターとアルゴン気体で満たされた飛行槽を通過し、試料から1.8m離れた検出器群により観測される。

以上に述べた  $\theta_M$ 、 $f$  およびチョッパー・検出器間距離  $L_{CD}$  には

$$2\pi f = h/m_n L_{CD} d_M \cos \theta_M \quad (1)$$

の関係がある。ここで、 $h$  はプランク定数、 $m_n$  は中性子質量、 $d_M$  はモノクロメーター結晶の面間隔である。この関係が満たされていると、最も遅い中性子が最初、最も速い中性子が最後にチョッパーを通り抜け、試料に散乱された中性子は同時に検出器に入る。このように、5枚のモノクロメーターからの中性子が角度的にも時間的にもフォーカスされるのがAGNES分光器の特長であり、このことによって分解能を落とすことなく、高効率の測定が可能になっている。なお、この測定原理はラウエ・ランジュバン研究所(ILL)のIN6分光器で最初に用いられたものである。

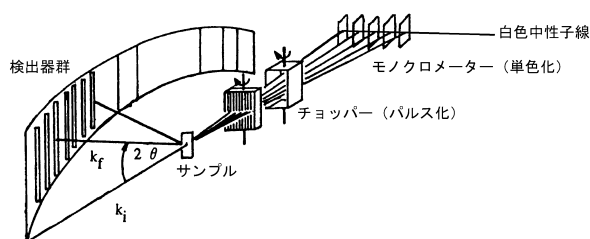


Fig.2 Schematic structure of AGNES.

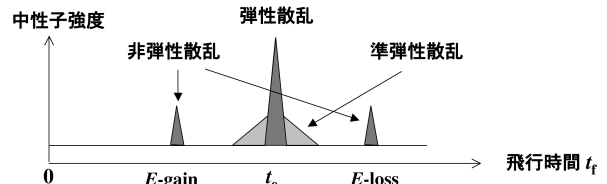


Fig.3 Schematic of tof data by AGNES.

図3にAGNES分光器で測定される中性子強度を飛行時間  $t_f$  の関数として模式的に示す。試料から全ての検出器までの距離  $L$  (1.8m) は不変であるので、試料が弾性散乱を起こす場合は、全ての検出器で時刻  $t_e$  でシャープな単一ピークが観測される。試料中の原子に振動励起などが存在する場合は、中性子と試料がエネルギー交換を起こし、 $t_e$  からはずれた時刻にピークが現れる(非弾性散乱)。また、試料中の原子が拡散運動をしている場合は、弾性散乱ピークが広がりをもつ(準弾性散乱)。試料に入射する中性子の運動量  $k_i$  (固定) と出射する中性子の運動量  $k_f$  は次式で表される。

$$k_i = (2m_n E_i)^{1/2} / \hbar \quad (2)$$

$$k_f = m_n L / \hbar (\Delta t_i + t_f - t_e) \quad (3)$$

ここで、 $\Delta t_i$  は弾性散乱した中性子が距離  $L$  飛行するのに要する時間である。 $k_i$  と  $k_f$  が決まれば、エネルギー遷移  $E$  と運動量遷移  $Q$  は次式で計算される。

$$E = \hbar^2 / 2m_n (k_f^2 - k_i^2) \quad (4)$$

$$Q^2 = k_i^2 + k_f^2 - 2k_i k_f \cos 2\theta \quad (5)$$

このようにして、中性子強度は  $E$  と  $Q$  の関数として求められ、最終的に動的構造因子  $S(Q, E)$  が得られる。表1に2つのモードにおけるAGNESの性能をまとめておく。

Table 1 Performance of New AGNES.

| $2\theta_M$<br>( $^\circ$ ) | $\lambda$<br>( $\text{\AA}$ ) | $Q$ 分<br>解能<br>( $\text{\AA}^{-1}$ ) | $Q$ 範囲<br>( $\text{\AA}^{-1}$ ) | $E$ 分<br>解能<br>( $\mu\text{eV}$ ) | $E$ 範囲<br>( $\text{meV}$ ) |
|-----------------------------|-------------------------------|--------------------------------------|---------------------------------|-----------------------------------|----------------------------|
| 78                          | 4.22                          | 0.015                                | 0.2~2.7                         | 120                               | -4~20                      |
| 110                         | 5.50                          | 0.01                                 | 0.15~2.1                        | 49                                | -2~6                       |

## 3. AGNES の改造

### 3.1. 検出器の増設と調整

AGNESの検出器は直径1インチ、有効長10インチ、内部圧力10気圧の $^3\text{He}$ 気体検出器で、 $1^\circ$ おきに赤道面に120本( $2\theta=10\text{-}130^\circ$ )、上下面に104本( $2\theta=20\text{-}123^\circ$ )ずつ設置可能である。 $^3\text{He}$ 検出器は高価であるため、また後で容易に追加できるため、多数の $^3\text{He}$ 検出器を用いる装置では検出器の設置が後回しになるケースが少なくない。AGNESでも、検出器は30本からスタートし、徐々

に増えていったが、2003年に停止した段階では、赤道面がフルインストールされている以外は、長さや圧力が異なる検出器が上段に50本程度設置されているだけであった。

今回の改造では、まず上段および下段に全ての検出器を設置した。多検出器の装置においては、全ての検出器の検出効率を規格化し、分解能を落とすことなく足しあわせることが重要な作業である。現在のAGNESでは、DetMapファイルと呼んでいる検出器ごとの生死とピーク位置を示すファイルと標準試料（バナジウム棒）の強度ファイルにより、測定しながら短時間で規格化・足しあわせることが可能になっている。

### 3.2. チョッパーの制御

2002年にAGNESが停止した理由は、チョッパーの磁気ベアリングが制御不能になったためである。今回の改造では、磁気ベアリングのコントローラーをこれまでのSEIKO社製のものからフランスS2M社製のものに更新した。このコントローラーにより、上部XY、下部XY、Zの5軸に対し、全て1 $\mu$ mの精度で磁気浮上制御できる。この精度はチョッパーの最高回転数（400Hz）においてもほとんど変化しない。

また今回の改造で、これまで機能していなかった低速チョッパーの位相同期制御を、テクノエピー社製の制御システムにより可能にした。このことにより、これまでではフレームオーバーラップのため実施できなかった高分解能モードの測定が初めて可能になった。

### 3.3. 遮蔽体の改造

中性子強度が弱くても、バックグラウンドさえ低ければ、長時間をかけることで、原理的には弱い強度の励起も観測できるはずである。しかし、これまでのAGNESは、遮蔽体が脆弱でバックグラウンドが非常に高かったため、測定できる対象が限られていた。

AGNESの新しい遮蔽体は、外側から鉄12mm、ポリエチレン50mm、B<sub>4</sub>Cゴム10mm、鉄2.3mm、カドミウム1mmを貼り合わせた構造をしている。これが基本的に、飛行槽、検出器、チョッパーを完全に覆い尽くすように設置されている。また、モノクロメーター周りにも、B<sub>4</sub>Cゴム10mmの遮蔽体を新たに設置した。

### 3.4. 各種制御系の高度化

これまでのAGNESは、タイムアナライザーからのデータをCAMACという旧式のインタフェースとGPIBを通して旧式のVAXのワークステーションで収録していた。測定制御もVAXで行うため、全ての操作においてキーボードによるコマンド入力が必要で、S(Q,E)表示のデータを見るまでにはかなりの長時間を要した。

図4に改造後の制御ブロック図を示す。CPU、HD、およびインターフェースが一体化したPXI

と呼ばれるNational Instruments社製のコントローラーがタイムアナライザー、チョッパー、モノクロメーター、ビームナローを集中的に管理する。PXIはWindows PC上のLabVIEWで制御され、Windows PCには解析用のMacintosh PCが接続されている。PXIはタッチパネルによっても操作できる。

この制御系により、リアルタイムの強度データをディスプレイ上で見ることができる。また、Macintosh PC上で動くIGOR Proのマクロプログラムにより、データのS(Q,E)への変換や簡単な準弾性散乱の解析なども測定と同時に行うことができる。もちろん、パソコンで温度や測定時間などの条件を設定し、完全に自動で測定することも可能になっている。以上のシステムが完成したことにより、無駄も徹夜も精神的ストレスもないデータ収録が可能になった。

### 3.5. トップローディング式汎用クライオスタット

現在のAGNESのほとんどの研究対象は非磁性の分子性固体、液体、高分子、誘電体などであるため、測定温度は10Kから470K程度で十分なものが多い。また、組成変化などで試料を頻繁に交換する実験が多い。今回の改造に合わせて、広い温度範囲で測定可能であり、簡便に試料交換ができるトップローディング式クライオスタット(TLC)を導入した。

このTLCは低温モード(6-370K)および高温モード(250-480K)と呼ばれる2つの運転モードをもつが、モードの変更は、室温において10分程度で行うことができる。試料のセッティングは全ての温度において5分程度で行える。また、TLCの外筒をAGNESの試料室とぴったり同じ大きさにしてあるため、後述するように、空気散乱によるバックグラウンドを大幅に減ずることができた。

トップローディング式の大きな利点はセンタースティック(CS)を替えれば、様々な特殊環境実験が容易に可能になることである。現在、標準のCS以外に、チューブを通して試料雰囲気をコントロールできるCS、200MPaまでの気体高圧下で測定ができるCSが用意されている。

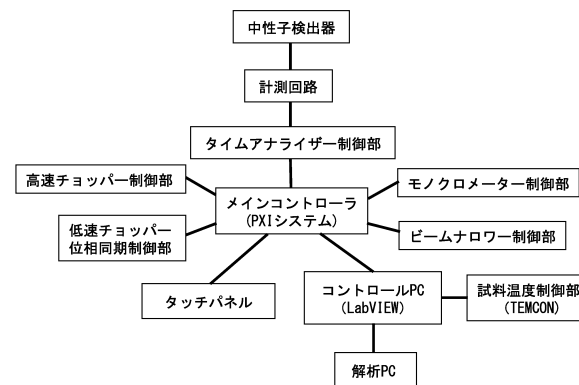


Fig.4 Block diagram of AGNES control system.

階段やはしごを昇降をすることなく試料セットをできるように、AGNES 遮蔽体の天井部と同じ高さ (2.1m) の試料セット用ステージ (2階屋) を製作した。ステージ上には CS の架台以外に作業機が置かれており、試料容器への試料充填作業なども行うこともできる。

### 3.6. その他

以上の改造に加え、これまで設置されていなかった。ビームモニターを設置した。また、モノクロメーター前のシャッターを除去し、代わりにガイド管を設置した。これは、AGNES 下流に装置をもつ NOP グループによるものである。このことにより、ビーム強度が約 1.2 倍増加した。さらに、空気散乱によるバックグラウンドを減らすため、試料下流にビームトンネルを設置するとともに、ビームストッパーを強化した。

## 4. 改造後の AGNES のデータ

### 4.1. バックグラウンド測定

図 5 に改造の前後で行ったバックグラウンド測定の結果を示す。改造前のバックグラウンドは非常に高く、空気散乱による複雑な構造 (2000 $\mu$ sec と 6700 $\mu$ sec を頂点とした 2 つのピーク) が見られる。改造後でかつトップローディング式クライオスタット (TLC) を導入した後のバックグラウンドは、改造前の 10 分の 1 以下であり、構造もほとんど無くなっている。

### 4.2. シグナル強度とエネルギー分解能

図 6 は標準モードにおける標準試料 (12 $\phi$  のバナジウム棒) の測定データを改造前と改造後で比較したものである。20° から 120° の全ての検出器のデータを足しあわせてある。縦軸は TOF 1 $\mu$ s あたりの中性子を 1h 積算した強度である。測定前に比べて、ピーク位置で約 3.3 倍の強度増加が見られる。この主な原因は、検出器数の増加と、モノクロメーターの上流に導入したガイド管による。図に改造前のデータを 3.3 倍したのもプロットしてあるが、改造後のデータとほぼ完全に一致し

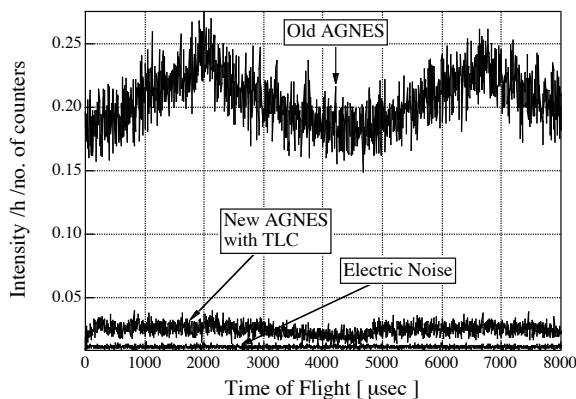


Fig.5 Background data by AGNES.

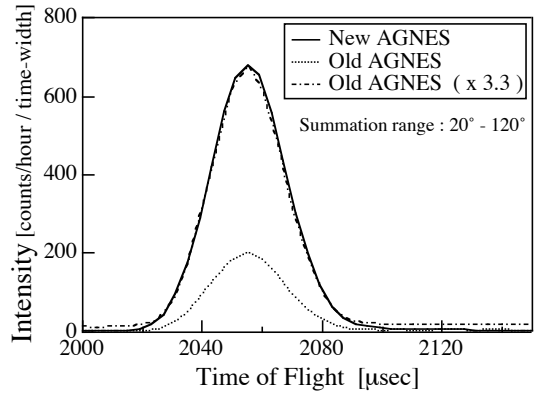


Fig.6 Vanadium data by new and old AGNES.

ており、分解能が低下していないことが示されている。

図 7 は改造後に標準モード (低分解能モード) と高分解能モードにおける標準試料のデータを比較したものである。高分解能モードにすると、ピーク面積にして、約 30% の強度減少が見られる。これは高分可能モードではチョッパーの回転数が増加し、スリットの開口時間が短くなっているためである。ピークの半値半幅は 50meV 程度であり、期待される分解能が得られている。

### 4.3. 測定例

図 8 は我々のグループが測定したイオン液体 1-butyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethane sulfonyl)imide (bmimTFSI) の準弾性散乱データである。AGNES 標準の 2 重円筒式 Al セル (外筒内径 14mm $\phi$ , 内筒外径 13.4mm $\phi$ , 試料厚 0.5mm) に試料を入れ、中性子透過率が約 90% になるように調整してある。非常に運動性が高い高温のデータであるため、高 Q 側で大きな強度減少が見られるが、このようなデータでも、4h 程度で統計精度的に十分なデータをとることができた。準弾性散乱を 1 つのローレンツ関数でフィッティングできるような単純な試料なら、測定時間は 2h 程度で十分である。

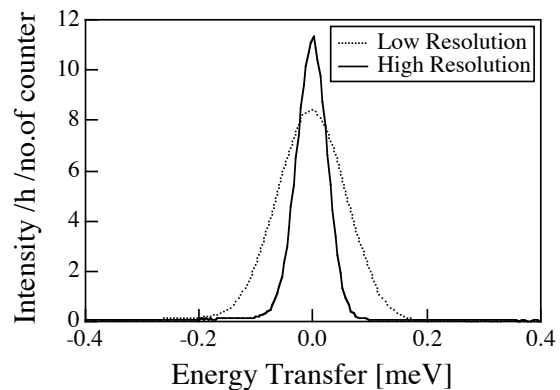


Fig.7 Vanadium data by high and low resolution modes of AGNES.

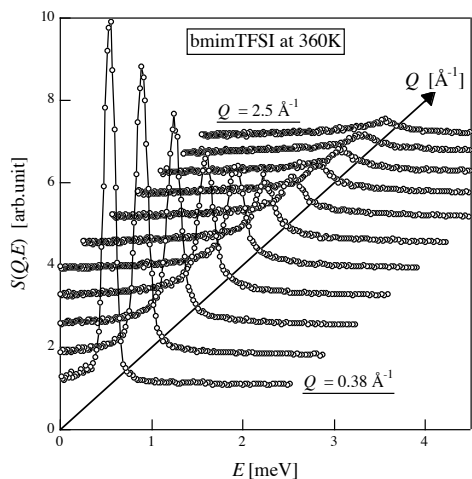


Fig.8 Dynamic structure factor of ionic liquid bmimTFSI.

図9はIRTメンバーの筑紫格氏(千葉工大)が測定したポリスチレン3量体のガラス状態の非弾性散乱データである(全検出器のデータの和). 改造後の7hの測定では, 1.8meV付近に極大をもつボソンピーク(アモルファス物質特有の弱くブロードな励起)がはっきりと現れている. それに対して, 改造前の9hの測定では, S/N比が悪いためデータは大きくばらついている. ピークがあることは何となく分かるが, 前述した構造のあるバックグラウンドのため, ピーク強度が異常に大きく, ピークの形もゆがんでいる. バックグラウンドを減らすことが如何に重要であるかを示す良い例であろう.

## 5. おわりに

以上に述べてきたように, この2年間の改造でAGNESは性能は大きく改善された. シグナル強度が3.3倍, バックグラウンドが10分の1になると, これまでは全く対象にならなかった系に対してアプローチができる. 現在のAGNESの研究課題は, 改造以前のバルクの水溶液や高分子固体のダイナミクスに代わって, 多孔性物質中の液体, ゲル, 蛋白質溶液など, 試料中の特定部分に注目したダイナミクス研究が中心になりつつある. また, イオン液体, プロトン伝導体など, 産業利用

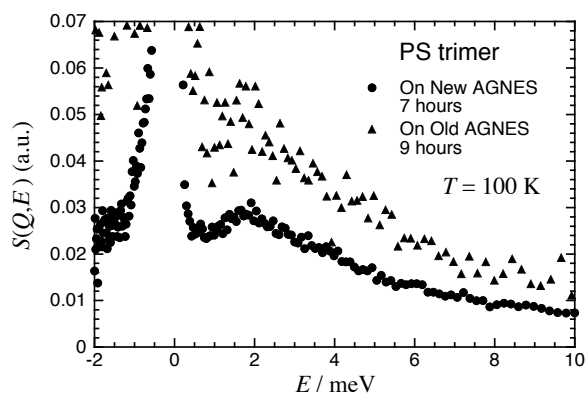


Fig.9 Dynamic structure factor of glassy PS trimer.

も視野に入れた機能性物質の研究も盛んである. 先に述べたように, TLCの特長を活かした in situ や気体高圧下の実験も始まっている.

原子力機構では減速材とガイド管の改造によりJRR-3の冷中性子強度を10倍化することが計画されている. そうなれば, AGNESの測定時間は10-20分に短縮されるだろう. これからJ-PARCの大強度分光器が動き出す時代になるが, 通常量の試料の研究に対しては, まだまだAGNESの活躍の場はあると確信している.

## 謝辞

AGNESの改造の機会を与えて頂いた東大物性研中性子科学研究施設の吉沢英樹施設長, 技術的な支援を頂いた同施設技術職員の川村義久氏, 渡辺聡氏, 浅見俊夫氏に心から感謝します. また, 有益なアドバイスを頂いた梶谷剛教授(東北大院工)と柴田薫博士(原子力機構)に感謝します. さらに, 本改造に直接的に関わって頂いた仁木工芸, テクノエービー, 日建化工, コメット, 日立電機, 日本S2M, 各社の皆様に心から御礼申し上げます.

## 参考文献

[1] T. Kajitani, K. Shibata, S. Ikeda, M. Kohgi, H. Yoshizawa, K. Nemoto and K. Suzuki, Physica B, 213&214 (1995) 872.

山室 修 (やまむろ おさむ)  
東京大学物性研究所附属中性子科学研究施設・助教授

yamamuro@issp.u-tokyo.ac.jp

略歴 1987年 大阪大学大学院理学研究科博士課程修了(理学博士) 同学理学部助手, 講師を経て2004年より現職

専門 物性化学物理

趣味 愛猫(ケン)と遊ぶこと



稲村 泰弘 (いなむら やすひろ)

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門パルス中性子装置開発研究グループ・特定課題推進員

inamura.yasuhiro@jaea.go.jp

略歴 2000年 総合研究大学院大学数

物科学研究科博士課程修了(理学博士) 日本原子力研究所博士研究員, 東大物性研学術研究支援員を経て2006年より現職

専門 物性物理

趣味 歴史・民俗学を齎ること, インラインスケート

