



Title	パルス中性子透過分光法による複数物質定量イメージング手法の開発
Author(s)	石川, 裕卓
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第13647号
Issue Date	2019-03-25
DOI	<a href="https://doi.org/10.14943/doctoral.k13647">https://doi.org/10.14943/doctoral.k13647</a>
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/84651">https://hdl.handle.net/2115/84651</a>
Type	doctoral thesis
File Information	HirotaKu_Ishikawa.pdf



博 士 論 文

パルス中性子透過分光法による  
複数物質定量イメージング手法の開発

Development of quantification imaging method  
for multiple substances  
by pulsed neutron transmission spectroscopy

北海道大学大学院工学院  
量子理工学専攻

石 川 裕 卓



# 要旨

中性子ラジオグラフィは、バルク試料内部に存在する物質の空間分布を非破壊、in-situ で測定可能であるという大きな特長を持っている。そのため、火工品の検査や原子力材料内の水素分布の定量評価、コンクリート・燃料電池内の水分分布の定量評価など、バルク内軽元素の空間分布の定量評価に多く用いられてきている。しかし、中性子ラジオグラフィでは、中性子透過率と物質量の検量線が取得可能な被写体や、流体のように試料内部からの出し入れが可能な被写体の場合にのみ、物質量の定量が可能である。そのため、例えば、試料内部から被写体の出し入れが不可能な実験中のリチウムイオン電池におけるリチウムの空間分布の定量評価や、検量線の取得がそもそも困難な燃料デブリ内におけるホウ素の空間分布の定量評価等には適用できていなかった。本研究では、パルス中性子透過分光法に着目し、中性子ラジオグラフィでは定量が困難だった被写体に対して定量イメージングを行うことができる新たな手法の開発を行った。

本研究で開発した手法は、全断面積のエネルギー依存性が物質に固有であることを利用し、評価済み核データから得られる複数物質それぞれの全断面積を用いてスペクトル解析を行うことにより、各物質の定量を可能とするものである。また、本手法で用いるエネルギー領域として、パルス中性子透過分光法において従来用いられていなかったブラッグエッジ領域と中性子共鳴領域以外のエネルギー領域を選択した。ブラッグエッジ領域より上のエネルギー領域では、測定される透過率スペクトルが原子核一個の全断面積をよく反映するようになる。そのため、評価済み核データを用いたスペクトル解析により物質の量を評価可能となる。また本手法は、中性子共鳴の有無に関わらず定量評価が行える。従って、本手法では共鳴の測定が難しい軽元素の評価も行えることが特長となる。この手法を確立するためには、評価済み核データを用いた複数物質の定量解析手法や、スペクトル解析に使用するエネルギー領域などの検討を行う必要がある。そのため、これらの課題についての検討を行い、パルス中性子透過分光法による軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージング手法の確立を目的として、研究を行った。

第1章では、中性子や他の量子ビームを用いたバルク内部の物質定量手法について述べ、中性子透過型イメージング手法の利点を説明する。そして、従来の中性子透過型イメージング手法の原理と課題について述べ、本研究で開発する手法の必要性、及び概要を説明する。

第2章では、開発した手法の原理、及び原理実証のために行った実験について述べる。まず開発した手法が、ブラッグエッジや共鳴のないエネルギー領域を使用する理由について、中性子と物質の相互作用の観点から検討した。また、評価済み核データを用いて、中性子透過率スペクトルから複数物質を定量評価する解析方法について検討した。そして、実験で測定された鉄試料と炭素試料及びそれらの積層試料の透過率スペクトルに対し手法を適用した結果より、開発した手法は、軽元素を含めた複数物質の定量評価を行えることを実証した。

第3章では、開発した手法に適した実験体系の構築方法について、北海道大学加速器中性子源 (HUNS) の熱中性子源ポートを例として述べる。開発した手法により適切な定量評

価を行うためには、透過率スペクトルと評価済み核データから計算した透過率スペクトルが一致している必要がある。そのため、中性子減速材の温度変化や環境中性子の混入等、測定される透過率スペクトルの系統誤差原因となり得る項目を列挙し、HUNSにおけるそれらの影響を調べた。そして、系統誤差の原因となる項目に対し、対策方法を検討し、開発した手法に適した実験体系について述べている。また、構築した実験体系を用いてHUNSにおいて実験を行い、系統誤差の低減を確認した。

第4章では、開発した手法において、評価可能な複数物質の組み合わせに関する検討を行ったことについて述べる。開発した手法では、物質により全断面積のエネルギー依存性が異なることを利用して複数物質の評価を行う。しかし、全断面積のエネルギー依存性が似ている物質もあるため、評価が行いにくい物質の組み合わせが存在する。そこで、種々の全断面積エネルギー依存性を持つ物質を用意し、それらを組み合わせで作成した2物質の試料に対して本手法を適用し、その定量性を評価した。また、物質間の全断面積エネルギー依存性の異なり度合いを、「全断面積形状差度」という指標を導入して表現した。様々な2物質試料の評価値と形状差度との関係を調べることで、開発した手法が評価可能な物質の組み合わせに関する知見を得た。また、ENTAXにより2種類以上の物質を評価可能であるかを調べるため、3物質で構成される試料の中性子透過率スペクトルをシミュレーションにより計算し、ENTAXを適用した。そして、ENTAXにより、2種類以上の物質を評価可能であることを示した。

第5章では、開発した手法による定量イメージングの適用結果について述べる。従来の中性子透過型イメージング手法による2物質の定量評価が難しい組み合わせとして、アルミニウムとリチウムの合金を選定し、厚さの異なる階段状試料や同じ厚さで組成の異なる複数の試料を作成した。これらの試料に対し、J-PARC MLF BL10 NOBORUにおいて、平行度の高い中性子ビームを用いることにより、アルミニウムとリチウムの定量イメージング実験を行った。2次元検出器の各ピクセルにおいて得られた透過率スペクトルに対し、本手法を適用することにより、アルミニウムとリチウムのそれぞれの定量イメージング画像を得た。また、解析により得られた値と実際の値を比較することにより、定量精度の評価を行った。その結果、リチウム、アルミニウム共に10%以内の誤差で定量評価が行えることを確認し、本手法により、従来の中性子透過型イメージング手法では困難であった軽元素を構成物質の1つとする2種類の物質の定量イメージングが行えることを実証した。

第6章では、各章のまとめを行い、本研究の結論を述べる。

本研究では、従来の中性子透過型イメージング手法では困難であった、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージング手法を開発し、その実証を行った。さらに、高精度化のための実験体系や解析方法に関する様々な指針を得た。この研究により、中性子透過型イメージングによるリチウムイオン電池内のリチウム空間分布や燃料デブリ内のホウ素空間分布の定量・可視化等へ資することが期待される。

# 目次

第1章 序論	1
1.1. はじめに	1
1.2. X線・電子線を用いた物質定量手法の原理的な課題と中性子を用いた物質定量手法の特長	2
1.2.1. X線・電子線を用いた物質定量手法の原理的な課題	2
1.2.2. 中性子を用いた物質定量手法の特長	2
1.3. 中性子を用いた物質定量手法とイメージングへの拡張	4
1.3.1. 中性子を用いた物質定量手法	4
1.3.1.1. 中性子放射化分析 (Neutron Activation Analysis, NAA)	4
1.3.1.2. 即発 $\gamma$ 線分析 (Prompt Gamma-ray Analysis, PGA)	4
1.3.1.3. 中性子ラジオグラフィ (Neutron Radiography, NR)	5
1.3.1.4. 高速中性子を用いた手法 (Fast Neutron Method, FNM)	5
1.3.1.5. 中性子共鳴吸収分光法 (Neutron Resonance Absorption Spectroscopy, N-RAS)	6
1.3.2. イメージングへの拡張	7
1.4. 中性子透過型イメージングの利点	7
1.5. 従来の物質定量手法による中性子透過型イメージングの課題	8
1.5.1. NRによる物質定量の課題	8
1.5.1.1. NRによる物質定量の原理	8
1.5.1.2. NRによる物質定量の課題	10
1.5.2. 透過型N-RASによる物質定量の課題	11
1.5.2.1. パルス中性子透過分光法	11
1.5.2.2. 透過型N-RASによる核種(物質)定量手法の原理	12
1.5.2.3. 透過型N-RASによる核種(物質)定量手法の課題	13
1.6. 本研究で開発した手法の概要	13
1.7. 研究目的と研究方法及び本論文の構成	15
1.7.1. 研究目的	15
1.7.2. 研究方法	15
1.7.3. 本論文の構成	16
第2章 熱外中性子透過率スペクトルの全断面積解析による物質定量手法 (ENTAX)	18
2.1. ENTAXの原理	18
2.1.1. ENTAXの概要	18

2.1.2.	中性子全断面積	20
2.1.2.1.	中性子と物質の相互作用の種類	20
2.1.2.1.1.	1/v 則に起因する中性子吸収	20
2.1.2.1.2.	原子核ポテンシャルによるポテンシャル散乱（非干渉性散乱）	21
2.1.2.1.3.	中性子共鳴	21
2.1.2.1.4.	粒子放出反応	22
2.1.2.1.5.	ブラッグ散乱（干渉性弾性散乱）	22
2.1.2.1.6.	非弾性散乱	23
2.1.2.1.7.	磁気散乱	23
2.1.2.1.8.	小角散乱	23
2.1.2.2.	それぞれの相互作用が生じるエネルギー領域	24
2.1.2.3.	ENTAX で主に用いる熱外中性子エネルギー領域における全断面積	24
2.1.3.	ENTAX で使用するエネルギー領域	26
2.1.4.	ENTAX における物質の面密度評価方法	26
2.1.5.	ENTAX の原理のまとめ	28
2.2.	ENTAX の原理実証実験	29
2.2.1.	HUNS 熱中性子源ポート	29
2.2.1.1.	中性子源アセンブリ	29
2.2.1.2.	基本的な実験体系	30
2.2.2.	原理実証実験の測定試料及び実験体系	30
2.2.3.	中性子透過率スペクトルの測定結果	33
2.2.4.	ENTAX による解析	34
2.2.4.1.	フィッティング解析を行うエネルギー範囲の決定	34
2.2.4.2.	ENTAX による解析結果	35
2.2.5.	ENTAX の原理実証実験のまとめ	37
2.3.	2章のまとめ	37
<b>第3章</b>	<b>ENTAX のための実験体系の構築</b>	<b>39</b>
3.1.	中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差の要因とその調査	39
3.1.1.	ポリエチレンモデレータの温度変化による系統誤差の調査	40
3.1.1.1.	モデレータ温度・中性子スペクトル同時測定実験の体系・条件	40
3.1.1.2.	ポリエチレンモデレータの温度測定結果	42
3.1.1.3.	中性子実効温度の導出	43
3.1.1.4.	中性子実効温度のモデレータ温度に対する依存性	45
3.1.1.5.	モデレータ温度の変化が透過率スペクトルに及ぼす影響	46
3.1.1.6.	モデレータ温度の変化が ENTAX による解析に及ぼす影響	48

3.1.1.7.	モデレータ温度の変化に対する対応策	50
3.1.1.8.	モデレータ温度の変化による中性子透過率スペクトルへの系統誤差のまとめ	51
3.1.2.	環境中性子の混入による系統誤差の調査	52
3.1.2.1.	HUNS における基本的な回り込み中性子遮蔽体系	53
3.1.2.2.	実験室環境における回り込み中性子による系統誤差の調査	54
3.1.2.2.1.	回り込み中性子の混入量測定実験	54
3.1.2.2.2.	回り込み中性子の測定結果と回り込み中性子による系統誤差の評価	57
3.1.2.2.3.	回り込み中性子による系統誤差の調査のまとめ	61
3.1.2.3.	検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子による系統誤差の調査	61
3.1.2.3.1.	検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子測定実験	61
3.1.2.3.2.	検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子測定結果とその影響	62
3.1.2.3.3.	検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子による系統誤差の調査のまとめ	64
3.1.2.4.	フレームオーバーラップ中性子による系統誤差の調査	64
3.1.2.4.1.	フレームオーバーラップ中性子	64
3.1.2.4.2.	フレームオーバーラップ中性子測定実験	65
3.1.2.4.3.	フレームオーバーラップ中性子の測定結果	65
3.1.2.4.4.	フレームオーバーラップ中性子による系統誤差の調査のまとめ	67
3.1.3.	GEM 検出器の検出強度の時間変化による系統誤差の調査	67
3.1.3.1.	GEM 検出器における検出強度の時間変化の測定	67
3.1.3.2.	GEM 検出器の検出強度の時間変化が透過率スペクトルに及ぼす影響	69
3.1.3.3.	GEM 検出器の検出強度の時間変化による系統誤差の調査のまとめ	70
3.1.4.	中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差の調査のまとめ	70
3.2.	HUNS 熱中性子源ポートでの ENTAX のための実験体系の構築	72
3.2.1.	HUNS 熱中性子源ポートにおける系統誤差を低減する実験体系の考案	72
3.2.2.	考案した実験体系における系統誤差の低減の確認	73
3.2.2.1.	構築した実験体系と測定試料	73
3.2.2.1.1.	構築した実験体系	73
3.2.2.1.2.	測定試料	75
3.2.2.2.	モニター部の中性子スペクトルを用いた透過率スペクトルの補正方法	75
3.2.2.3.	構築した実験体系における系統誤差の低減の確認結果	76
3.2.2.3.1.	原理実証実験時に測定した鉄単体試料の測定結果	76
3.2.2.3.2.	構築した体系で測定される透過率スペクトルの再現性の確認結果	78
3.2.2.4.	構築した実験体系における系統誤差の低減の確認のまとめ	79

3.2.3.	HUNS 熱中性子源ポートでの ENTAX のための実験体系の構築のまとめ	80
3.3.	構築した体系における ENTAX の定量確度の確認	81
3.3.1.	実験体系と測定試料	81
3.3.2.	実験結果	83
3.3.2.1.	厚さが異なる鉄試料の測定・解析結果	83
3.3.2.2.	酸化チタン試料の測定・解析結果	85
3.3.3.	構築した体系における ENTAX の定量確度の確認のまとめ	89
3.4.	3章のまとめ	89
<b>第4章</b>	<b>ENTAX による複数物質の定量評価に関する検討</b>	<b>91</b>
4.1.	全断面積形状差度の導入	91
4.1.1.	ENTAX による複数物質の定量評価における原理的な課題	91
4.1.2.	全断面積形状差度の定義	92
4.2.	2種類の元素・物質を組み合わせた試料への ENTAX の適用実験	94
4.2.1.	測定試料	94
4.2.1.1.	試料の選定基準	94
4.2.1.2.	用意した単一元素・物質とそれらを組み合わせた2物質試料	95
4.2.2.	実験体系および実験条件	96
4.2.3.	中性子透過率スペクトル測定及び ENTAX によるフィッティング結果	98
4.3.	全断面積形状差度 (DCS) と ENTAX の定量確度との関係	101
4.4.	透過率スペクトル形状差度の検討	105
4.4.1.	透過率スペクトル形状差度 (DTS) の定義	106
4.4.2.	DTS と ENTAX の定量確度との関係	108
4.4.3.	DCS と DTS の使い分け	109
4.5.	3種類の物質から成る試料の ENTAX による定量可能性の検討	109
4.5.1.	粒子輸送シミュレーションによる透過率スペクトルの計算	109
4.5.2.	計算した透過率スペクトルに対する ENTAX によるフィッティング結果	111
4.5.3.	3種類の物質から成る試料の ENTAX による定量可能性の検討のまとめ	112
4.6.	4章のまとめ	113
<b>第5章</b>	<b>ENTAX による定量イメージング (ENTAXI)</b>	<b>115</b>
5.1.	アルミリチウム合金への ENTAXI の適用	115
5.1.1.	実験体系と測定試料	115
5.1.1.1.	実験体系	115
5.1.1.2.	測定試料	116
5.1.1.2.1.	階段状試料	116

5.1.1.2.2.	短冊積層試料	118
5.1.2.	アルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムの ENTAX による定量確度の評価	120
5.1.2.1.	測定試料の中性子透過率像と透過率スペクトル取得のための積算範囲	120
5.1.2.2.	領域毎に積算した透過率スペクトルと ENTAX によるフィッティング結果	121
5.1.2.3.	様々な厚さや組成を持つアルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムの定量確度評価結果	125
5.1.2.4.	階段状試料における不純物の影響の補正による定量確度の向上	127
5.1.2.5.	透過率スペクトルの絶対値に対する系統誤差の影響の考察	130
5.1.2.6.	アルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムの定量確度の評価のまとめ	131
5.1.3.	ENTAXI によるアルミリチウム合金の定量イメージング	131
5.1.3.1.	アルミリチウム合金の定量イメージング結果	131
5.1.3.2.	定量イメージング結果における定量確度と定量精度の評価	133
5.1.3.3.	階段状試料の定量イメージング結果における定量確度・定量精度の低下原因	135
5.1.3.4.	フィッティング範囲の拡大による定量確度・定量精度の改善	137
5.1.3.5.	高統計スペクトルにおいてフィッティング解析範囲を拡大した場合の定量確度	139
5.1.3.6.	ENTAXI によるアルミリチウム合金の定量イメージングのまとめ	140
5.2.	5章のまとめ	141
<b>第6章 結論</b>		<b>143</b>
付録 A 様々な物質定量手法の概要		<b>148</b>
A.1.	破壊分析法と非破壊分析法	148
A.1.1.	破壊分析法	148
A.1.1.1.	熱重量測定 (Thermogravimetry, TG)	148
A.1.1.2.	クロマトグラフィー	149
A.1.1.3.	キャプラリー電気泳動 (Capillary Electrophoresis, CE)	151
A.1.1.4.	湿式化学分析	152
A.1.1.5.	質量分析法	152
A.1.1.5.1.	質量分析法における物質のイオン化手法	152
A.1.1.5.1.1.	電子イオン化法	152
A.1.1.5.1.2.	化学イオン化法	152

A.1.1.5.1.3.	電解脱離法	152
A.1.1.5.1.4.	レーザー脱離イオン化法	153
A.1.1.5.1.5.	マトリックス支援レーザー脱離イオン化法	153
A.1.1.5.1.6.	エレクトロスプレーイオン化法	153
A.1.1.5.1.7.	イオンビーム照射	153
A.1.1.5.1.8.	グロー放電	153
A.1.1.5.1.9.	誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma, ICP)	153
A.1.1.5.2.	質量分析法におけるイオン分析手法	154
A.1.1.5.2.1.	四重極型質量分析	154
A.1.1.5.2.2.	二重収束型質量分析	154
A.1.1.5.2.3.	飛行時間型質量分析	155
A.1.1.5.2.4.	イオントラップ型質量分析	155
A.1.1.5.2.5.	サイクロトロン共鳴型質量分析	156
A.1.1.6.	誘導結合プラズマ原子発光 (蛍光) 分析法 (ICP-Atomic Emission Spectroscopy, ICP-AES or ICP-Optical Emission Spectroscopy, ICP-OES)	156
A.1.1.7.	原子吸光分析法 (Atomic Absorption Spectroscopy, AAS)	156
A.1.2.	非破壊分析法	158
A.1.2.1.	赤外線・可視光・紫外線を用いた分析手法	158
A.1.2.1.1.	近赤外・可視光・紫外線を用いた吸光光度法	158
A.1.2.1.2.	赤外分光法	159
A.1.2.1.3.	ラマン分光法	159
A.1.2.2.	赤外線よりも長い波長の電磁波を用いた分析手法	161
A.1.2.2.1.	核磁気共鳴分光法 ( Nuclear Magnetic Resonance, NMR, spectroscopy)	161
A.1.2.2.2.	電子スピン共鳴法 (Electron Spin Resonance)	161
A.1.2.3.	X線を用いた分析手法	162
A.1.2.3.1.	蛍光X線分析 (X-Ray Fluorescence analysis, XRF)	162
A.1.2.3.1.1.	エネルギー分散型蛍光X線分析 (Energy Dispersive X-Ray Fluorescence analysis, ED-XRF)	162
A.1.2.3.1.2.	波長分散型蛍光X線分析 (Wavelength Dispersive X-Ray Fluorescence analysis, WD-XRF)	163
A.1.2.3.2.	X線光電子分光 (X-Ray Photoelectron spectroscopy, XPS)	163
A.1.2.3.3.	X線吸収分光法 (X-ray Absorption Spectroscopy, XAS)	164
A.1.2.3.4.	X線ラマン分光法 (X-ray Raman Spectroscopy, XRS)	164
A.1.2.3.5.	X線回折法 (X-Ray Diffraction, XRD)	165

A.1.2.3.6. X線反射率測定法 (X-Ray Reflectivity, XRR)	165
A.1.2.4. 電子線を用いた分析手法	166
A.1.2.4.1. 電子線照射による特性X線分析	166
A.1.2.4.1.1. 走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X線分析装置 (Scanning Electron Microscope and Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy, SEM-EDX)	167
A.1.2.4.1.2. 電子線マイクロアナライザ (Electron Probe Micro Analyzer, EPMA)	167
A.1.2.4.2. 電子エネルギー損失分光法 (Electron Energy-Loss Spectroscopy, EELS)	167
A.1.2.4.3. オージェ電子分光法 (Auger Electron Spectroscopy, AES)	168
A.1.2.4.4. 電子線回折法 (Electron Diffraction, ED)	168
A.1.2.4.5. 電子後方散乱回折法 (Electron Backscatter Diffraction, EBSD)	169
A.1.2.5. 粒子線を用いた分析手法	169
A.1.2.5.1. 粒子線励起 X線分析法 (Particle Induced X-ray Emission, PIXE)	169
A.1.2.5.2. ラザフォード後方散乱分光法 (Rutherford Backscattering Spectroscopy, RBS)	170
A.1.2.5.3. イオン散乱分光法 (Ion Scattering Spectroscopy, ISS)	170
A.1.2.6. 散乱・反射中性子を用いた分析手法	170
A.1.2.6.1. 中性子回折法	170
A.1.2.6.2. パルス中性子ブラッグエッジ解析法	171
A.1.2.6.3. 中性子反射率測定法	171
A.1.2.6.4. 中性子小角散乱法	171
付録 B ENTAX の応用方法についての検討	<b>173</b>
B.1. ENTAX による目的物質のみの抽出評価	173
B.1.1. 目的物質の抽出評価を行う目的	173
B.1.2. 抽出評価を行う解析法	173
B.1.3. 抽出評価を行う解析法の適用	174
B.1.4. 抽出評価を行う解析法のまとめ	176
B.2. 化合物の組成分析	176
B.3. ENTAX の応用法の最後に	177
B.3.1. 実際の試料に ENTAX を応用する際の検討事項	177
B.3.2. 小型中性子源において ENTAXI を行うための検討事項	178
参考文献	180





# 第 1 章 序論

## 1.1. はじめに

バルク内部に存在する物質の空間分布を可視化・定量評価することは、鉄筋コンクリートなどの複合材料や鉄鋼材料の健全性評価に必要であり、材料工学等の様々な分野に望まれる重要な課題である。また、特にバルク内部の軽元素・軽物質を可視化・定量評価することは、燃料電池やリチウムイオン電池等の実用製品の改良を行う上で重要な情報となるため、産業界においても望まれている重要な課題である。中性子透過型イメージングは、バルク内部に存在する物質の空間分布を非破壊、in-situ で測定可能な手法であり、中性子が持つ軽元素への反応性の高さを利用し、特にバルク内部の軽元素・軽物質の可視化・定量イメージングを行う手法として用いられている。そして、例えば、コンクリートや燃料電池内の水の動き、原子炉材料中の水素分布等、他の量子ビームでは測定・評価が困難な物質の評価に用いられてきている。

近年、ホウ素添加鋼やリチウムイオン電池などの普及に伴い、試料中の軽元素を特に定量的にイメージングすることが求められてきている。しかし、従来の中性子透過型イメージング手法である中性子ラジオグラフィは、限定的な物質、例えば水のように出し入れ可能なものや物体の量と中性子透過率の検量線の取得が可能なものにしか適用できておらず、充放電中のリチウムイオン電池中のリチウム分布の評価や、燃料デブリ内のホウ素分布の評価等を行えていなかった。

本研究は、従来の中性子透過型イメージング手法では適用が難しかった試料にも、定量イメージングが行える中性子透過型イメージング手法を開発するものである。本章では、まず X 線・電子線を用いた物質定量手法の原理的な課題について触れ、中性子を用いた物質定量評価手法の利点を述べる。そして、中性子を用いた物質定量手法について述べ、透過型イメージング手法の利点について説明する。また、従来の中性子透過型イメージング手法の現状と課題についてまとめ、本研究で開発した手法の概要を述べる。最後に、本研究の目的と内容、本論文の構成を述べる。

## 1.2. X線・電子線を用いた物質定量手法の原理的な課題と中性子を用いた物質定量手法の特長

物質定量手法には、質量分析法[1-1]やクロマトグラフィー[1-2]等の破壊的な手法から量子ビームを用いた非破壊的な手法まで、多数の手法が存在する（付録 A 参照）。破壊的な物質定量手法は、定量確度（本論文では、手法により定量評価した値と実際の値との一致度を確度と表現する。）が高いという特長があるものの、試料を破壊する必要があるため、例えばバルク内部に存在する物質の空間分布やその変化を評価することは困難である。それに対し、量子ビームを用いた物質定量手法は、物質を非破壊に評価可能であるため、物質の空間分布やその経時変化を評価可能であるという特長を持っている。

量子ビームを用いた物質定量手法として、赤外線や可視光、超音波、X線、電子線、中性子線等、様々なプローブを用いた手法が存在しているが、以下本節では、量子ビームの中でも特によく用いられている X線・電子線を用いた物質定量手法の原理的な課題について触れる。そして、中性子線を用いた物質定量手法の特長について述べる。

### 1.2.1. X線・電子線を用いた物質定量手法の原理的な課題

X線や電子線を用いた物質定量手法には、蛍光 X線分析[1-3]や X線吸収分光法[1-4]、電子線マイクロアナライザ[1-5]や電子エネルギー損失分光法[1-6]等、様々な手法が存在する（付録 A 参照）。これらの手法は、ビームサイズを絞ることや、平行度の非常に高いビームを用いることで、nm オーダーの空間分解能で物質の空間分布を評価可能である。しかし、照射試料によるものの、一般的に使用される数 10 keV 程度のエネルギーの電子線や X線の透過力はあまり強くなく、例えば金属に対しては、電子線では数  $\mu\text{m}$  程度、X線では数 10  $\mu\text{m}$  程度の厚さしか透過できない。そのため、X線や電子線による物質の定量評価は、試料の表面やその近傍の評価に限られている。

また、X線・電子線と物質の相互作用は、主に原子を構成する電子との相互作用であり、原子番号の大きい物質であるほど、反応断面積が大きくなる。そのため、軽元素に対する反応断面積が小さく、軽元素の評価は得意ではない。

以上のことから、X線・電子線を用いる場合、基本的には試料表面やその近傍の評価に限られ、また X線や電子線のエネルギーを大きくすることにより透過力を上げても、透過力が強いほど軽元素との反応断面積も小さくなり、バルク内部に存在する軽元素の評価は難しい。従って、X線や電子線を用いた物質定量手法には、バルク内部の軽元素を定量評価することが原理的に困難であるという課題がある。

### 1.2.2. 中性子を用いた物質定量手法の特長

中性子は、X線や電子線とは異なり、主に原子核と相互作用する。そのため、それらに比べて透過力が強く、cm オーダーの厚さを透過することが可能である。従って、X線や電子

線を用いた手法では、試料を薄く削るといった前処理を行う場合がほとんどであるのに対し、中性子を用いた手法では、試料を前処理なしで測定可能な場合が多く、例えば製品等をそのままの状態でも測定可能である。

また、X線や電子線に比べて軽元素への反応性が高く、またリチウムやボロンといった特定の軽元素に対しては、非常に大きな反応性を示す。そのため、バルク内部に存在する物質が軽元素・軽物質でも、その評価を行うことが可能である。例として、図1-1に金属容器内の紙を中性子とX線で観察した例を示す[1-7]。X線の透過像では見えていない、紙が丸まっている様子が中性子透過像では見えているのがわかる。

従って、中性子を用いた物質定量手法は、X線や電子線等では困難な、バルク内部の軽元素を非破壊で評価可能であるという特長を持つ。この特長から、中性子を用いた物質評価手法は、例えば、鉱物内部の軽元素の評価[1-8]や水分計としての利用[1-9]、核融合炉材料におけるLiの評価[1-10]、ホウケイ酸ガラス中のホウ素濃度の評価[1-11]、貨物内の爆破物(H, C, N, O, F)の検知[1-12]等に用いられてきている。

経筒

X線透過画像

中性子透過画像

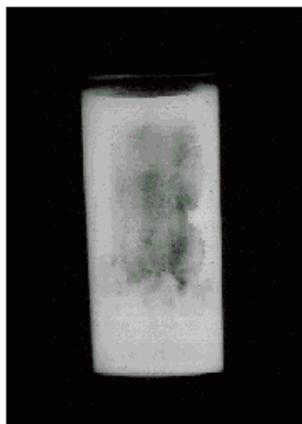


図1-1. 経筒に対するX線と中性子の透過画像[1-7]。

### 1.3. 中性子を用いた物質定量手法とイメージングへの拡張

中性子を用いた物質定量手法において、中性子照射により発生する  $\gamma$  線を利用する手法と透過中性子を利用する手法について説明する。また、中性子を用いた物質定量手法をイメージングへ拡張する方式が二つ存在するため、それについて説明し、イメージングへの拡張が可能な手法を述べる。

#### 1.3.1. 中性子を用いた物質定量手法

中性子を用いた物質定量手法は、中性子照射により発生する  $\gamma$  線を利用する手法と透過中性子を利用する手法が主である。ただし、それら以外にも、物質から散乱・反射された中性子を利用して物質の定量を行うことも可能であり、中性子回折法[1-13]や中性子反射率測定法[1-14]、中性子小角散乱法[1-15]等の手法が存在する（付録 A 参照）。しかし、これらは通常、材料特性の評価手法として用いられ、物質の定量手法としては用いられないため、ここでは触れないこととした。

以下本節では、中性子を用いた物質定量手法として、中性子照射により発生する  $\gamma$  線を利用する手法及び、透過中性子を利用する手法について説明する。

##### 1.3.1.1. 中性子放射化分析（Neutron Activation Analysis, NAA） [1-16]

NAA は、試料に中性子を照射し、試料内の核種から放出される  $\gamma$  線のエネルギースペクトルや時間スペクトルを測定することにより、試料内に存在する核種や元素、物質の同定・定量を行う手法である。

ある安定な原子核が中性子を吸収すると、不安定な放射性核種に変換される。このことを放射化といい、放射性核種は、放射壊変により再び安定核種になろうとする。この時、 $\gamma$  線（壊変  $\gamma$  線）が放出され、放出される  $\gamma$  線のエネルギー及び半減期（放出される  $\gamma$  線の量が半分になるまでの時間）は核種に固有であるため、核種の同定が可能である。また、中性子の照射量により、生成される放射性核種の量が決まっているため、放出される  $\gamma$  線の量もそれにより決まる。よって、標準試料により検量線を作成しておけば、測定される  $\gamma$  線の量から、定量評価が行える。

NAA は検出感度が高く、微量分析が可能である。また、測定試料から放出される  $\gamma$  線のエネルギーを分析し、複数の核種から放出される  $\gamma$  線を同時に捉えることが可能なため、多核種の同時測定が行える。また、中性子と原子核の反応を利用するため、同位体レベルでの評価が可能であり、化学的に類似する元素が共存しても問題にならない。ただし、放射化によって長寿命核種が生成される場合、NAA の適用は難しい。

##### 1.3.1.2. 即発 $\gamma$ 線分析（Prompt Gamma-ray Analysis, PGA） [1-17]

PGA は、試料に中性子を照射した際に、試料内の核種から放出される即発  $\gamma$  線のエネルギースペクトルを測定し、試料内の核種や元素、物質の同定・定量評価を行う手法である。

原子核が中性子を吸収した際に生じる (n,  $\gamma$ ) 反応では、 $\gamma$  線が即座に ( $10^{-14}$  秒以内) 放出される。この時に放出される  $\gamma$  線は、壊変  $\gamma$  線と区別され、特に即発  $\gamma$  線と呼ばれる。即発  $\gamma$  線のエネルギーは、核種により固有であるため、即発  $\gamma$  線のエネルギーを分析することにより、核種や元素、物質の同定が可能である。また、標準試料を用いて検量線を作成しておくことで、即発  $\gamma$  線の検出量から、定量評価を行うことが出来る。

PGA は、NAA に比べ分析感度が低い場合があるものの、中性子照射により放射性核種が生成されない核種や、半減期が短すぎる核種への適用が可能である。例えば B, N, Si, S, Cd 等は NAA による評価が難しいが、PGA による評価は可能である。

### 1.3.1.3. 中性子ラジオグラフィ (Neutron Radiography, NR)

NR は、試料に大面積の中性子ビームを照射し、カメラ等の二次元検出器を用いて、中性子透過画像を得る手法である。

試料内部の様子や試料内部に存在する物質の時間変化 (動き) の定性的な評価 (可視化・観察) に用いられることも多いが、試料内部に存在する物質の定量手法としても用いられている。物質の定量評価を行う場合は、物質がある場合の中性子透過量と、物質がない場合の中性子量を測定することにより得られる中性子透過率を測定する。そして、標準試料を用いて予め作成した、透過率と物質量の検量線を用いて評価を行う。

NR による定量評価では、予め検量線を作成する必要があるため、評価したい物質が既知である必要がある。また、試料内部にある物質を評価するためには、試料内部から物質を出し入れする必要があるため、定量評価が適用可能な試料が限られている。しかし、適用可能な試料に関しては、試料内部の軽元素を *in-situ* で定量イメージングすることが可能であるという利点を持っている。

### 1.3.1.4. 高速中性子を用いた手法 (Fast Neutron Method, FNM) [1-18]

MeV 程度のエネルギーを持つ高速中性子を利用し、物質の観察・定量評価を行う手法 (本論文では、FNM と呼ぶ) について説明する。高速中性子は、冷・熱、熱外中性子に比べても、非常に優れた透過力を有し、数 m の物体を透過可能であるという特長を持っている。そのため高速中性子は、例えば、空港での貨物検査 (爆破物検知・核物質検知) [1-12] など、数 m オーダーの物体内部を観察するのに用いられている。

FNM により物質の定量評価を行う場合、高速中性子のエネルギー領域 (MeV オーダー) に現れる中性子共鳴を利用する手法や、検量線を作成して NR と同様に定量評価を行う手法もあり、多数の手法が研究されている。例えば、中性子の共鳴を利用する手法では、高速中性子のエネルギー領域では軽い核種の共鳴が生じるため、水素や酸素といった軽元素等の同定と定量評価を行うことが可能であるという特長を持つ。

しかし、高エネルギー中性子の測定は容易でないため、FNM による物質定量手法には、その実用にあたり多くの課題を有している。例えば、FNM 用の検出器は厚いシンチレータ

を利用しているが、それでも検出効率が低いため、測定に長い時間を要することや、厚いシンチレータを使用するため、定量イメージングを行う場合には空間分解能や定量確度の低下が避けられないといった課題がある。そのため、FNM による物質定量手法は、現在も実用に向けて研究が進められている段階にある。

#### 1.3.1.5. 中性子共鳴吸収分光法 (Neutron Resonance Absorption Spectroscopy, N-RAS)

中性子を試料に照射すると、ある特定のエネルギーを持つ中性子がよく吸収・散乱される共鳴現象が生じる。N-RAS は、この共鳴現象を測定・解析することにより、試料内の核種や元素、物質の同定・定量を行う手法である。

原子核の励起準位に相当するエネルギーの中性子は、その原子核によく吸収・散乱される。この現象は、中性子共鳴と呼ばれる。パルス中性子と飛行時間法を用いて、中性子透過率もしくは  $\gamma$  線強度の中性子エネルギーに対するスペクトルを測定すると、共鳴により生じたディップやピークが観測される。このディップ (ピーク) のエネルギーは核種により固有であり、また、このディップ (ピーク) の深さ (高さ) は、試料中に存在する核種の量を反映する。N-RAS では、このディップ (ピーク) を解析し、核種の同定・定量を行うことが可能である。

核種一個あたりの共鳴断面積は既にデータベース化されているため、定量評価を行う際に、標準試料を用いて検量線を作成する必要はない。また、N-RAS では、複数の共鳴吸収ディップ (ピーク) を同時に測定可能であるため、多核種・多元素の分析を非破壊で行えるという特長を持つ。また、このディップ (ピーク) には、試料の熱振動の情報が含まれており、核種の温度の解析を行えることも N-RAS の特長である。

N-RAS には中性子透過率スペクトルを測定する方式と、 $\gamma$  線強度スペクトルを測定する方式の二種類があり、前者を透過型 N-RAS、後者を即発  $\gamma$  線型 N-RAS と呼ぶ。

透過型 N-RAS では、測定した透過率スペクトルにおいて、共鳴が生じるエネルギーにディップが観測される。この共鳴ディップを解析することにより、核種や元素、物質の同定・定量を行う。透過型 N-RAS は、二次元検出器と組み合わせることで定量イメージングを行うことが可能である。

即発  $\gamma$  線型 N-RAS では、測定した中性子エネルギーに対する  $\gamma$  線の強度スペクトルにおいて、共鳴吸収が生じるエネルギーにピークが観測される。これは、共鳴吸収が生じると吸収された中性子と同量の即発  $\gamma$  線が放出されるためである。この共鳴吸収ピークを解析することで、核種・元素の定性・定量評価を行う。即発  $\gamma$  線型 N-RAS は、透過型 N-RAS に比べ、即発  $\gamma$  線のエネルギー分析も併用することにより、同定・定量評価の確度を向上させることが可能である。また、ビームを絞って試料を走査して測定を行うことにより、イメージングを行うことが可能である。

### 1.3.2. イメージングへの拡張

1.3.1.節で挙げた物質定量手法によりイメージングを行う方式として、走査型イメージングと透過型イメージングの二つが存在している。走査型イメージングは、スリットなどで細く絞った中性子ビームを用いることにより、試料の一点一点を走査しつつ測定を行い、二次元にマッピングを行う方式である。そして、透過型イメージングは、中性子二次元検出器を用いることにより、試料を透過してきた中性子を位置毎に測定し、二次元のイメージを得る手法である。

1.3.1.節で述べた手法において、中性子イメージングに拡張可能な手法は、NAA 以外の全ての手法であり、PGA、NR、FNM、N-RAS は定量イメージングを行うことが可能である。PGA や即発 $\gamma$ 線型 N-RAS は、試料を透過した中性子ではなく、試料から放出される $\gamma$ 線を測定する手法のため、イメージングを行う場合は、走査型イメージングとなる。それに対し、NR や FNM、透過型 N-RAS は、試料を透過した中性子を測定するため、イメージングを行う場合は、透過型イメージングとなる。

## 1.4. 中性子透過型イメージングの利点

走査型イメージングは、試料に吸収された中性子のみのデータが得られるため、解析が比較的容易であるという利点がある。しかし、スリットで絞ったビームを試料に一点一点照射して測定を行う必要があるため、長い測定時間を必要とし、中性子ビームの利用効率も低い。また、一点ずつしか測定出来ないため、物質の空間分布の変化等を捉えることは難しい。それに対し、透過型イメージングは、試料を透過した中性子をそのまま二次元検出器で測定するため、大面積のビームをそのまま利用可能であり、中性子ビームを効率的に利用可能である。また、大面積を同時に測定可能であるため、物質の空間分布の変化等を捉えることも可能となる。さらに、近年の中性子二次元検出器の発達により、空間分解能も走査方式に比べて高いという利点も存在する。

従って、透過型イメージングの利点は、大面積のビームをそのまま利用し、二次元のマッピングを効率的に行える点にある。その特長から、中性子透過型イメージングは、燃料電池やコンクリート中の水[1-19, 1-20]、エンジン中のオイル[1-21]、金属容器内の低温ヘリウム[1-22]等の動きの可視化・定量イメージングに用いられていった。このように、実用製品や構造材料等が実際に使われる状態において、内部の軽元素分布を可視化できる点が、中性子透過型イメージングの大きな特長である。

またその他の利点として、 $\gamma$ 線環境下においてイメージングが可能であるといった点が挙げられる。例えば、燃料デブリの周囲は $\gamma$ 線環境となるため、 $\gamma$ 線測定を行う走査型イメージングは難しいが、透過型イメージングは可能である。

## 1.5. 従来の物質定量手法による中性子透過型イメージングの課題

近年、ホウ素添加鋼やリチウムイオン電池等のような軽元素が重要な役割を果たす材料や製品の普及に伴い、金属容器や構造物の内部に存在する軽元素・軽物質の空間分布やその経時変化を定量的に評価することが求められている。しかし、従来の物質定量手法による中性子透過型イメージングでは、評価可能な試料に制限があり、定量イメージングが可能な対象は限られていた。そのため、構造材や実用製品中に存在する軽元素の定量イメージングが行えず、ホウ素添加鋼で作られた構造材中のホウ素やリチウムイオン電池中のリチウムの空間分布の評価等は行えていなかった。

中性子透過型イメージングが可能な従来の物質定量手法として、NR、FNM、透過型 N-RAS が挙げられる。ただし、FNM は空間分解能の点で、NR・透過型 N-RAS に大きく劣り、また定量イメージング手法としては研究途上にある。そのため、本節では、NR 及び透過型 N-RAS による定量イメージングの原理に触れ、その課題を説明する。

### 1.5.1. NR による物質定量の課題

#### 1.5.1.1. NR による物質定量の原理[1-23, 1-24]

NR は、物質の中性子透過率と量の検量線を作成することにより、物質の定量評価を行うことが可能である。例えば、図 1-2 は、階段状の容器に水を入れることにより作成された、様々な厚みを持つ水試料の中性子透過率画像である。水の厚さの違いにより透過率にコントラストがついていることがわかる。NR では、このような中性子透過率像を、予め取得しておいた検量線を用いて水の量（厚み）に変換することにより、定量イメージングを行うことが可能である。

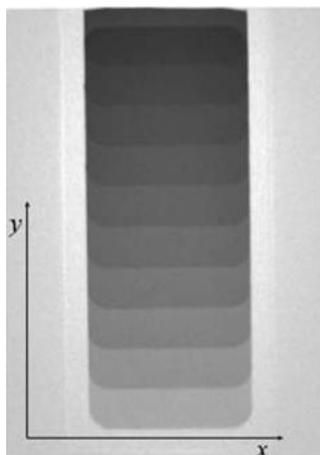


図 1-2. 水の階段状試料における中性子透過率画像[1-25]。

NR で用いる検量線の取得方法について説明する。NR では、中性子のエネルギー分析を行わないため、全エネルギーの中性子が積算された状態の中性子強度が測定される。そのため、NR で得られる中性子透過率は、原理的には式 1.1 により表現される。

$$\frac{I^{tot}}{I_0^{tot}} = \frac{\int \phi(E) \exp(-\Sigma(E)t) dE}{\int \phi(E) dE} \quad (1.1)$$

ここで、 $I^{tot}$  は試料がある場合の中性子強度、 $I_0^{tot}$  はダイレクトビーム（試料がない場合）の中性子強度、 $\phi(E)$  は中性子のエネルギースペクトル、 $\Sigma(E)$  は各中性子エネルギーにおける試料の巨視的断面積（原子数密度 [1/cm<sup>3</sup>] × 微視的断面積 [cm<sup>2</sup>])、 $t$  は試料の厚さ [cm] を示す。しかし、式 1.1 を解析的に解くことは出来ないため、このままでは試料厚さ  $t$  を求めることは出来ない。そこで、NR では、式 1.1 を実効断面積  $\Sigma_{eff}$  という定数を用いて式 1.2 のように近似的に表現可能であることを利用する。

$$\frac{I^{tot}}{I_0^{tot}} \approx \exp(-\Sigma_{eff} \cdot t) \quad (1.2)$$

式 1.2 より、NR で測定した中性子透過率から  $\Sigma_{eff}$  と  $t$  の積が得られる。厚さ  $t$  が既知の複数の試料の中性子透過率を測定し、厚さ  $t$  に対して  $\Sigma_{eff} \cdot t$  をプロットする。すると、図 1-3 のように、 $\Sigma_{eff} \cdot t$  は  $t$  に対して線形近似可能であることが知られている。この直線の傾きが  $\Sigma_{eff}$  であり、NR では、このようにして求めた  $\Sigma_{eff}$  を用いて検量線を作成する。ただし、試料からの散乱線等の影響により線形近似が難しい場合も存在し、そのような場合は、様々な関数を用いた近似が行われ、検量線が作成されている。

従って、NR では以上のように、定量評価したい物質の検量線を予め作成することにより、測定される中性子透過率から厚さを評価することが可能となる。

また、この検量線は、横軸に厚さではなく、評価したい物質の濃度などを取っても、同様に線形近似可能であることが知られている。例えば、鉄中のボロンの濃度を横軸に取り、同様に検量線を作成して、硼濃度を評価した例もある[1-26]。NR による物質の定量確度は、評価したい物質や厚さによって異なるが、文献値[1-25, 1-26, 1-27, 1-28]を参照すると、およそ数%~20%程度となっている。

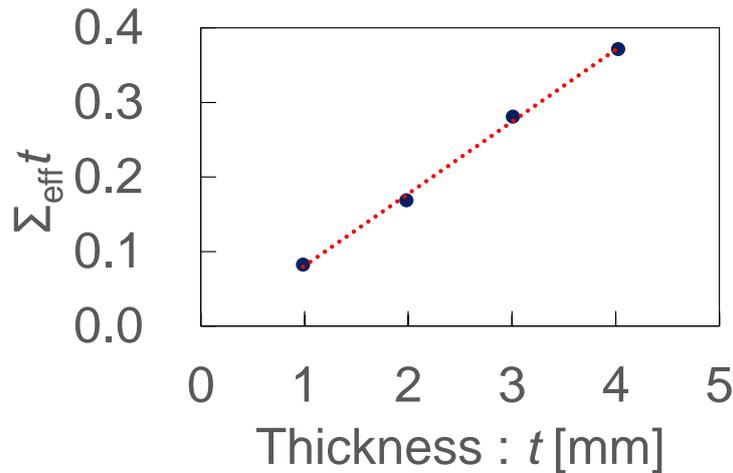


図 1-3. NR で取得される検量線の例。

### 1.5.1.2. NR による物質定量の課題

NR では、定量評価を行う際、検量線を作成することが前提となる。そのため、標準試料の作成が困難な物質は、そもそも定量評価を行うことが出来ない。また、検量線を取得した物質のみの中性子透過率を測定する必要がある、それが可能な試料にしか適用できない。例えば、金属容器等の内部に存在する物質を定量評価する場合には、その容器から評価対象となる物質を出し入れし、その物質だけの中性子透過率を測定する必要がある。そのため、容器内から評価したい物質の出し入れが難しい場合、定量評価を行うことが出来ない。また、評価したい物質の組成が変化する場合や評価したい物質以外のものが混入する場合にも、検量線が成り立たなくなるため、NR による定量評価は難しくなってしまう。例えば、物質の空間分布の経時変化を評価したい場合には、経時変化により、物質組成の変化や異なる物質の混入は十分に想定され、このような場合には、NR による評価が適用できなくなる。

さらに、NR では、複数物質の評価が原理的に行えない。式 1.2 では中性子透過率が、一変数（厚さ  $t$ ）のみで表現されていたが、例えば、試料が 2 物質で構成される場合には、式 1.3 のように 2 変数で表現されることになる。

$$\frac{I^{tot}}{I_0^{tot}} \simeq \exp(-\Sigma_{\text{eff},1}(E)t_1 - \Sigma_{\text{eff},2}(E)t_2) \quad (1.3)$$

ここで、 $\Sigma_{\text{eff}}$  と  $t$  の添え字は、物質の種類を示す。

この場合、左辺は中性子透過率という一つの値であるため、それぞれの  $\Sigma_{\text{eff}}$  が予め得られていたとしても、式 1.3 を解いて、 $t_1$ 、 $t_2$  を決定することはできない。従って、NR では、複数の物質を評価することが原理的に難しい。

また、評価したい物質の量が多くなる（例えば厚さが厚くなる）とビームハードニング[1-29]の影響により、定量確度が低下するといった課題もある。

以上のような課題があるため、NRによる物質の定量イメージングは、以下に示す条件を満たした限定的な場合にしか適用できていない。

1. そもそも検量線が取得可能な物質の場合
2. 水等のように試料からの出し入れが可能で、評価したい物質のみの中性子透過率が測定可能な場合
3. 評価したい物質の組成が変化せず、また、他の物質の混入もない場合
4. 検量線を取得した一変数のみを評価する場合（例えば、厚さで検量線を取得した場合は、濃度が増加すると  $\Sigma_{\text{eff}}$  が変化して評価が行えない。また、濃度で検量線を取得した場合は、厚さが増加すると  $\Sigma_{\text{eff}}$  が変化して評価が行えない。）
5. 評価したい物質の量が極端に多くない場合

NRによる定量イメージングは、以上の条件を満たす試料である、燃料電池やコンクリート内部の水の空間分布[1-19, 1-20]や金属容器内の低温ヘリウム[1-22]の定量評価等に用いられてきている。しかし、中性子に期待されているイメージング、例えば、使用状態の Li イオン電池内部における Li 分布の評価や複雑な形状を持つホウ素添加鋼のホウ素分布、燃料デブリ中のホウ素の定量イメージング等を行うことは出来ていなかった。

従って、NRによる物質定量の課題は、検量線を使用し、かつ一変数の評価しか行えないことにより、適用可能な試料が限られてしまう点にある。

## 1.5.2. 透過型 N-RAS による物質定量の課題

### 1.5.2.1. パルス中性子透過分光法

透過型 N-RAS は、パルス中性子透過分光法を利用した手法である。そのため、まずはこれについて説明する。

パルス中性子透過分光法は、パルス中性子と飛行時間法を用いて、中性子をそのエネルギー毎に測定する手法である。パルス中性子は、主に加速器中性子源で生成され、原子炉等の連続中性子源と異なり、中性子の発生タイミングを知ることができる。また、中性子の持つエネルギーにより、中性子の速度は異なるため、中性子の発生タイミングから検出器に到達するまでの時間が中性子の持つエネルギーにより異なる。従って、中性子の飛行距離と中性子発生タイミングからの時間を計測しながら中性子を測定することにより、中性子のエネルギースペクトルを測定することが可能である。これが、パルス中性子透過分光法である。

パルス中性子透過分光法においては、式 1.4 により、測定時間から中性子エネルギーを求めることが可能である。

$$E [\text{eV}] = \left( \frac{72.3 \times L [\text{m}]}{t [\mu\text{s}]} \right)^2 \quad (1.4)$$

ここで、 $E$  は中性子のエネルギー、 $L$  は中性子の飛行距離、 $t$  は中性子の飛行時間を示す。

パルス中性子透過分光法では、試料の中性子透過率スペクトルを測定し、それを解析することにより、試料の情報（物質の量や温度、結晶構造、磁気等）を得る。中性子透過率スペクトル  $Tr(E)$  は、中性子と原子核の相互作用の大きさとそのエネルギー依存性（中性子微視的全断面積  $\sigma(E)$ ）により表すことができ、式 1.5 のように記述できる。

$$Tr(E) = \frac{I(E)}{I_0(E)} = \exp(-n\sigma(E)t) \quad (1.5)$$

ここで、 $I(E)$  は試料がある場合の中性子スペクトル、 $I_0(E)$  はダイレクトビーム（試料がない場合）の中性子スペクトル、 $n$  は試料の原子数密度、 $t$  は試料の厚さを示す。図 1-4 に実測した中性子透過率スペクトルの一例を示す。ブラッグエッジと呼ばれるノコギリ刃状の構造や共鳴吸収によって生じるディップがスペクトル中に存在していることがわかる。パルス中性子透過分光法では、これらの特徴的な構造を解析することにより、試料の結晶構造や試料密度等の定量評価が行われている[1-30, 1-31]。

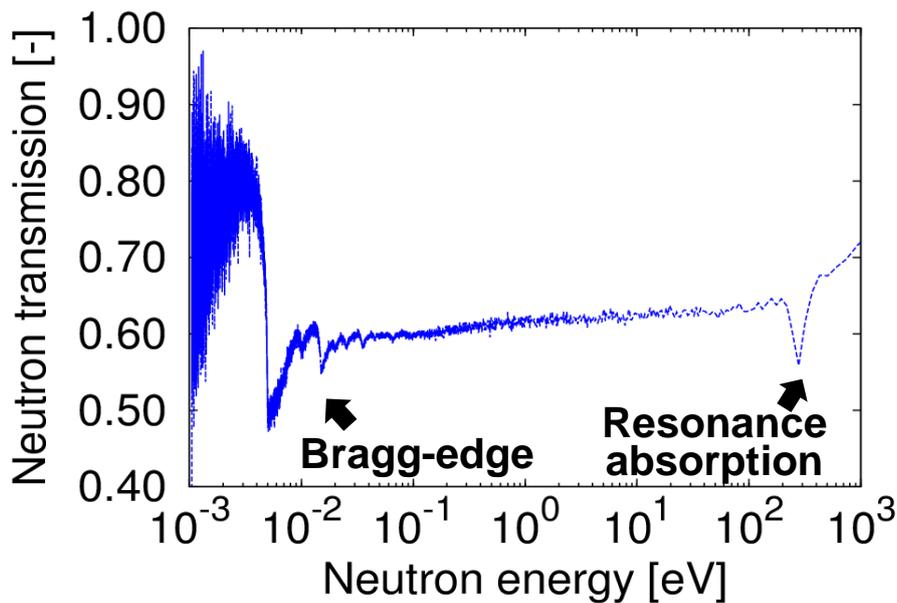


図 1-4. 中性子透過率スペクトルの一例。

#### 1.5.2.2. 透過型 N-RAS による核種（物質）定量手法の原理[1-32]

中性子共鳴吸収は、原子核の励起準位に相当するエネルギーを持った中性子が原子核によく吸収される現象である。この結果、図 1-4 に見られる共鳴吸収によるディップが出現する。このディップの大きさは共鳴吸収量  $Y(E)$  で表現され、 $Y(E)$  は全断面積  $\sigma(E)$  と捕獲断面積  $\sigma_\gamma(E)$  を用いて、式 1.6 のように表現される。

$$Y(E) = [1 - \exp(-n\sigma(E)t)] \frac{\sigma_{\gamma}(E)}{\sigma(E)} \quad (1.6)$$

$\sigma(E)$ と  $\sigma_{\gamma}(E)$ はデータベースにまとめられているため、共鳴吸収エネルギーにおける中性子透過率を測定すれば、この式を用いて、面密度  $nt$  [ $\text{cm}^2$ ] (原子数密度 [ $\text{cm}^3$ ]×厚さ [ $\text{cm}$ ]) を求めることが可能である。実際には、中性子源の分解能関数等の補正を考慮した形が用いられているが、その詳細に関しては参考文献[1-32]を参照されたい。

中性子共鳴吸収ディップの出現エネルギーは核種によって異なるため、試料内の核種・元素の同定も可能である。また、透過率スペクトル中に複数のディップが観測可能であるため、一度の測定で複数の核種・元素の評価を行うことが可能である。

透過型 N-RAS による核種（物質）の定量精度は、評価対象となる核種や使用する共鳴ディップ等にもよるが、数%～10%程度である[1-32]。

### 1.5.2.3. 透過型 N-RAS による核種（物質）定量手法の課題

N-RAS では、原子核の励起準位に相当するエネルギーを持つ中性子が吸収されるが、軽い核種においては、原子核の励起準位が高いため、MeV オーダーのエネルギーを持つ中性子で共鳴が生じる。そのため、N-RAS により軽い核種を評価するためには、MeV オーダーのエネルギーを持つ中性子を測定する必要がある。しかし、現在稼働中の中性子イメージング施設において測定可能な共鳴吸収は、最大でおよそ数十 keV 程度のエネルギーである[1-33]。そのため、現行のイメージング装置において、透過型 N-RAS による軽い核種（物質）のイメージングを行うことは難しい。

従って、透過型 N-RAS による物質定量の課題は、軽元素への適用が難しい点にある。

## 1.6. 本研究で開発した手法の概要

本研究では、NR と透過型 N-RAS による物質定量の課題を克服するような物質定量手法を開発した。すなわち、NR のように検量線が必要かつ一変数の評価しか行えないといった制約を持たず、また、透過型 N-RAS では難しい軽元素の定量イメージングを行うことが可能な手法を開発した。

開発した手法は、パルス中性子透過分光法により得られる中性子透過率スペクトルを、従来の解析手法とは異なる方法で解析する手法である。具体的には、熱外中性子領域における中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性が、原子核 1 個の全断面積を反映することに着目し、熱外中性子領域において、透過率スペクトルを評価済み核データを用いてフィッティング解析する手法である。そして、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量評価が可能な手法となっている。

複数物質から成る試料の中性子透過率スペクトルは、複数物質の全断面積エネルギー依

存性とその量を反映したものである。そして、中性子全断面積のエネルギー依存性は物質毎に固有であるため、物質それぞれの全断面積を用いて透過率スペクトルを解析することにより、それぞれの量を評価できると着想した。また、熱外中性子領域における中性子全断面積は、物質と原子核 1 個の相互作用により形成され、評価済み核データとしてデータベースにまとめられている。そのため、熱外中性子領域における透過率スペクトルの解析には、評価済み核データが利用可能であると着想した。本手法は、パルス中性子透過分光を用いた手法であり、中性子二次元検出器を用いて、二次元的に中性子透過率スペクトルを測定することで、定量イメージングが可能である。手法の原理については、2 章で詳しく述べる。

本手法は、熱外中性子領域の中性子透過率スペクトルを評価済み核データの全断面積を用いて解析することから、Epithermal Neutron Transmission spectrum Analysis with total Cross-section of evaluated nuclear data, ENTAX と呼称し、また ENTAX による定量イメージングを ENTAX Imaging, ENTAXI と呼称する。

ENTAX は、中性子のエネルギー分析を行い、エネルギー毎の中性子透過率を取得する。そのため、NR とは異なり、原理的に多変数の解析が可能である。また、データベースとしてまとめられている評価済み核データを使用するため、検量線を取得する必要もない。さらに、共鳴ディップを用いなくとも物質の量を評価可能であるため、軽元素にも適用可能であるという特長を持っている。従って、ENTAX は、NR と透過型 N-RAS の課題を克服可能な手法となっており、従来の中性子透過型イメージング手法では適用が難しかった試料にも、定量イメージングが行える手法となり得る。

ENTAX による複数物質の定量確度として、NR や透過型 N-RAS と同程度の定量確度であるおよそ 10% を目標として設定した。また、中性子透過型定量イメージング手法のメリット・デメリットの比較を表 1 にまとめる。従来手法に対する ENTAXI のメリットは、上述した通り、軽物質を含む複数の物質を定量イメージング可能なことである。

表 1-1. 中性子透過型定量イメージング手法のメリット・デメリット。

	NR	N-RAS imaging	ENTAXI
Light-material	○	×	○
w/o Calibration curve	×	○	○
Multi-material	×	○	○

## 1.7. 研究目的と研究方法及び本論文の構成

### 1.7.1. 研究目的

本研究の目的は、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージングが行える手法である ENTAX の開発を行い、ENTAX 及び ENTAXI の実証を行うことである。

従来の中性子を用いた物質定量手法により軽元素の定量イメージングを行う場合、検量線が取得可能な試料である必要や一自由度の定量評価しか行えない等の制約があり、定量イメージング可能な試料は限られていた。しかし、ENTAXI を用いれば、上記の制約を受けずに、軽元素の定量イメージングが行えるようになると考えられる。従って、中生子による定量イメージングの適用範囲を広げ、より多くの試料における軽元素の定量イメージングが可能になるように、ENTAXI の開発を行った。

ENTAXI の開発により、例えば、使用状態の Li イオン電池内部における Li 分布や複雑な形状や偏析が予想される合金中のホウ素分布、燃料デブリ中のホウ素分布等の従来手法では定量イメージングが行えていなかった試料に対し、定量イメージングが行えるようになると考えられる。

### 1.7.2. 研究方法

本研究では、まず中生子透過率スペクトルから複数の物質を評価するための中生子透過率スペクトル解析コードの開発を行った。具体的には、測定された中生子透過率スペクトルに対して Lambert-beer の法則をモデル関数とした非線形最小二乗法によるフィッティングプログラムを作成した。また、実験で測定される透過率スペクトルは横軸が飛行時間なのに対し、評価済み核データは横軸が中生子のエネルギーでまとめられている。そのため、フィッティングに使用する中生子全断面積を評価済み核データから計算するプログラムも作成した。そして、作成した解析コードにより試料内の複数物質を軽元素も含めて評価出来るかの原理実証実験を行った。原理実証実験は、北海道大学中生子源 (HUNS) の熱中生子源ポートにて行い、軽元素である炭素と軽元素でない鉄を組み合わせた試料の中生子透過率スペクトルを測定した。測定された透過率スペクトルに対して、解析コードを適用し、鉄と炭素の面密度が ENTAX により妥当に評価されるかを確認した。

また、ENTAX に適した実験体系の構築のため、パルス中生子源施設において生じる系統誤差の要因を、HUNS 熱中生子源ポートを例として列挙し、その影響の大きさを調査した。そして、系統誤差を低減する実験体系を、HUNS 熱中生子源ポートにおいて構築した。

次に、ENTAX が評価可能な複数物質の組み合わせを明らかにするため、2 種類の元素や物質において、全断面積のエネルギー依存性がどの程度異なるかを示す「全断面積形状差度」という指標を導入した。そして、2 種類の元素・物質を組み合わせた様々な試料を用意し、中生子透過率スペクトルの測定実験を行った。用意した試料の ENTAX による評価結果と導入した指標の関係から、ENTAX で区別して評価可能な 2 種類の元素・物質についての知見

を得た。また、ENTAX による 3 種類の元素・物質の評価の可能性について、粒子輸送シミュレーションを用いて検討した。

最後に、ENTAXI による複数の物質の定量イメージングを実証するため、アルミリチウム合金試料に対して、ENTAXI を適用した。そして、様々な組成、厚さを持つアルミリチウム合金試料の定量イメージング結果から、ENTAXI の定量精度や定量確度を評価した。

### 1.7.3. 本論文の構成

本章では、量子ビームを用いた物質定量手法において、X 線・電子線の原理的な課題に触れ、中性子を用いた手法の利点について述べた。また、中性子を用いた物質定量手法と中性子イメージングについて述べ、中性子透過型イメージングの利点について説明した。そして、従来の物質定量手法による中性子透過型イメージングの原理と課題を述べ、ENTAX の概要を説明した。最後に、研究目的、研究内容、本論文の構成について述べている。

第 2 章では、ENTAX の原理と原理実証のために行った実験について述べる。まず、中性子と物質の相互作用について述べ、ENTAX で用いるエネルギー範囲における中性子全断面積の成り立ちについて説明する。また、ENTAX で使用するエネルギー範囲の定義や、複数物質の定量が行える原理について説明する。次に、ENTAX の原理実証実験を行った施設や体系について述べ、鉄と軽元素である炭素を組み合わせた試料を測定し、ENTAX は軽元素も含めて複数の元素が定量評価可能であることを示す。

第 3 章では、ENTAX に適した実験体系の構築を行った結果について述べる。HUNS 熱中性子源ポートを例として、パルス中性子源施設において系統誤差となる要因、モデレータ温度の変化や、実験体系中の環境中性子の混入、検出器の検出強度の測定強度の変動について調査した結果を説明する。また、ENTAX に適した実験体系を、HUNS 熱中性子源ポートにおいて構築し、その体系において系統誤差が低減されているかの確認を行った結果を述べる。また、構築された体系における ENTAX の適用結果についても説明する。

第 4 章では、ENTAX による複数物質の定量評価に関する検討について述べる。評価可能な 2 物質を判断するための指標として、2 物質の全断面積のエネルギー依存性がどの程度異なるかを示す「全断面積形状差度」を導入したことについて説明する。そして、様々な二種類の元素・物質を組み合わせた試料を用意し、中性子スペクトルの測定実験を行ったことを述べる。2 物質試料に対する ENTAX の評価結果と導入した指標の関係から、ENTAX で区別して評価可能な二種類の元素・物質についての知見を述べる。また、粒子輸送シミュレーションにより検討した、ENTAX による 3 物質の評価の可能性について述べる。

第 5 章では、アルミリチウム合金に対する ENTAXI による定量イメージング結果について述べる。様々な組成・厚みを持つアルミリチウム合金試料に対して ENTAXI を適用した結果を説明し、リチウムとアルミニウムに対する ENTAXI の定量精度と定量確度の評価結果も述べる。そして、ENTAXI は、複数物質の定量イメージングが可能であることを述べる。

第 6 章では、本研究のまとめを行い、目的に対する結論を述べる。



## 第2章 熱外中性子透過率スペクトルの全断面積解析による物質定量手法 (ENTAX)

1章で説明したように、従来の中性子透過型イメージング手法では、定量イメージング可能な試料が限られており、特に軽元素・軽物質に関しては、定量イメージングを行えない試料が存在していた。従来手法による定量イメージングが困難な試料に対しても、定量イメージングが行える手法を開発するため、本研究では、パルス中性子透過分光法による新たな解析手法を考案した。従来のパルス中性子透過分光法においては、透過率スペクトルに現れるブラッグエッジや共鳴吸収ディップといった特徴的な形状に着目した解析しか行われていなかったが、本研究では、原子核1個の全断面積を反映した透過率スペクトルの、全体的な形状に着目した。透過率スペクトルの形状は、物質が持つ中性子全断面積のエネルギー依存性を反映したものであり、特に熱外中性子領域においては、評価済み核データで解析可能であることを見出した。そして、新たな解析手法、“Epithermal Neutron Transmission spectrum Analysis with total Cross-section of evaluated nuclear data, ENTAX”を開発した。本章では、まず開発した手法の原理について、中性子と物質の相互作用及び、複数物質から構成される試料の中性子透過率スペクトルの成り立ちから説明する。そして、北海道大学の中性子源で行った、ENTAXの原理実証実験について説明する。

### 2.1. ENTAXの原理

#### 2.1.1. ENTAXの概要

ENTAXは、中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性、特に熱外中性子領域におけるエネルギー依存性に着目した手法である。図2-1にENTAXで使用するエネルギー領域を示す。ENTAXは、特徴的な形状を持つブラッグエッジや共鳴吸収ではなく、それ以外の滑らかな変化を利用する。中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性は、中性子と物質の相互作用のエネルギー依存性、すなわち中性子全断面積のエネルギー依存性により生じるものである。特に図2-1で示したエネルギー領域では、中性子は、主に原子核1個1個と相互作用し、試料を構成する原子核の全断面積に従って、中性子透過率スペクトルが形成される。

中性子透過率スペクトルには、試料を構成する全ての核種の全断面積とその量の情報が含まれている。そして、中性子全断面積の大きさやそのエネルギー依存性は核種に対し固有である。そのため、実測された中性子透過率スペクトルを、試料を構成するそれぞれの核種の全断面積を用いて解析することにより、それらの量が評価可能であると考えた。

核種の中性子全断面積は、評価済み核データとしてデータベース化されている。ゆえにENTAXでは、評価済み核データを用いれば、NRのように検量線を作成する必要はない。また、ENTAXは、試料を構成する核種が既知である必要はあるが、中性子のエネルギー分

析を行うことにより、核種固有の全断面積エネルギー依存性を解析する。そのため、試料を構成する複数核種の量を評価することが可能である。また共鳴吸収を用いる必要がないため、軽元素の評価も行えるという特長も持っている。従って、ENTAXは、検量線の取得が不要なく、また軽元素を含めて複数の評価を行えるという二つの特長から、従来手法による定量イメージングが困難な試料に対しても、定量イメージングが行える手法となり得る。

ENTAXで用いる評価済み核データは、核種の全断面積データベースである。しかし、同位体比が既知であれば、元素の全断面積を計算することが可能である。また同様に、物質の全断面積も、物質を構成する元素の構成比が既知であれば、計算可能である。従って、ENTAXでは、原子量表[2-1]に記載の自然同位体比や物質の構成比を用いて、核種だけでなく元素や物質の定量評価手法として用いることが可能である。

ENTAXでは、試料を構成する核種や元素、物質の全断面積エネルギー依存性の違いを利用して複数の量を評価するため、例えば、全断面積エネルギー依存性が同様のものが試料に含まれる場合、それらを分離して評価することは難しい。特に、核種における中性子全断面積のエネルギー依存性は、似通ったものが多く、ENTAXにより分離して評価することが難しいケースが多い。そのため、ENTAXでは、元素や物質のように多くの核種が混ざったものの方が、全断面積のエネルギー依存性に差が表れやすくなるため、原理的に解析が行いやすい。よって、ENTAXは原理的に核種の定量評価が行えるが、本研究の範囲においては、元素・物質の定量手法として取り扱う。

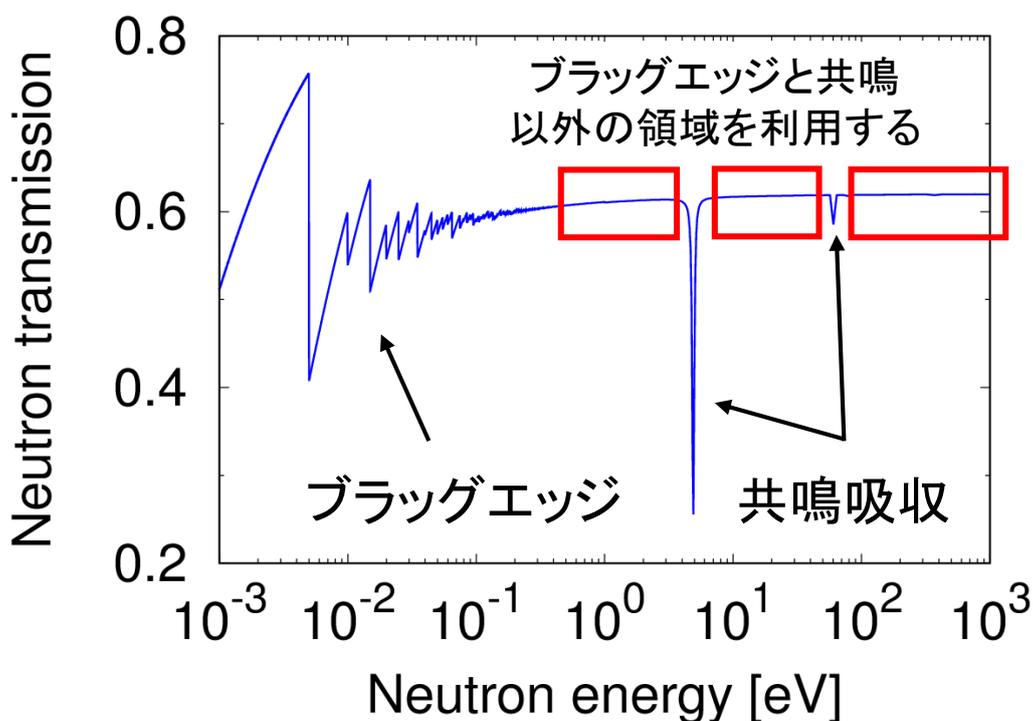


図 2-1. ENTAX で使用するエネルギー領域。

## 2.1.2. 中性子全断面積

中性子と物質の相互作用には様々な種類が存在しており、それぞれの相互作用が生じる確率（いわゆる、相互作用断面積）は中性子のエネルギーと物質に依存して異なっている。中性子—物質相互作用の全ての確率を足し合わせたものを中性子全断面積といい、中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性は、試料の中性子全断面積のエネルギー依存性が反映されたものである。本節では、中性子全断面積のエネルギー依存性がどのように形成されるかについて、中性子と物質の相互作用の観点から述べる。

また、中性子断面積には、微視的断面積と巨視的断面積という二つの考え方が存在する。微視的断面積は原子核 1 個の断面積を表し、巨視的断面積は微視的断面積に物質の密度を掛けたものであり、我々が実際に扱うスケールに変換した断面積を表す。本節では、単に断面積といった場合には、原子核 1 個の断面積である微視的断面積を示す。

### 2.1.2.1. 中性子と物質の相互作用の種類

中性子と物質の相互作用には様々な種類が存在しており、以下に代表的な相互作用について説明する。

#### 2.1.2.1.1. $1/v$ 則に起因する中性子吸収

中性子は原子核の近くを通る時、一定の確率で吸収される。そのため、中性子が原子核に吸収される確率は、中性子が原子核の近くに存在する時間に比例する。そのため、吸収断面積の大きさは、中性子の速さ  $v$  に反比例する。この法則を  $1/v$  則と呼ぶ。

図 2-2 に評価済み核データ（JENDL-4.0 [2-2]）における  $^{10}\text{B}$  の吸収断面積を示す。中性子エネルギーと微視的断面積の両対数グラフにおいて、吸収断面積の大きさが直線的に減少しており、 $1/v$  則に従っていることがわかる。この直線の傾きは中性子の運動エネルギー ( $E = mv^2/2$ ) より、式 2.1 で表現される。

$$\sigma_{1/v} \propto v^{-1} = \sqrt{\frac{m}{2E}} \quad (2.1)$$

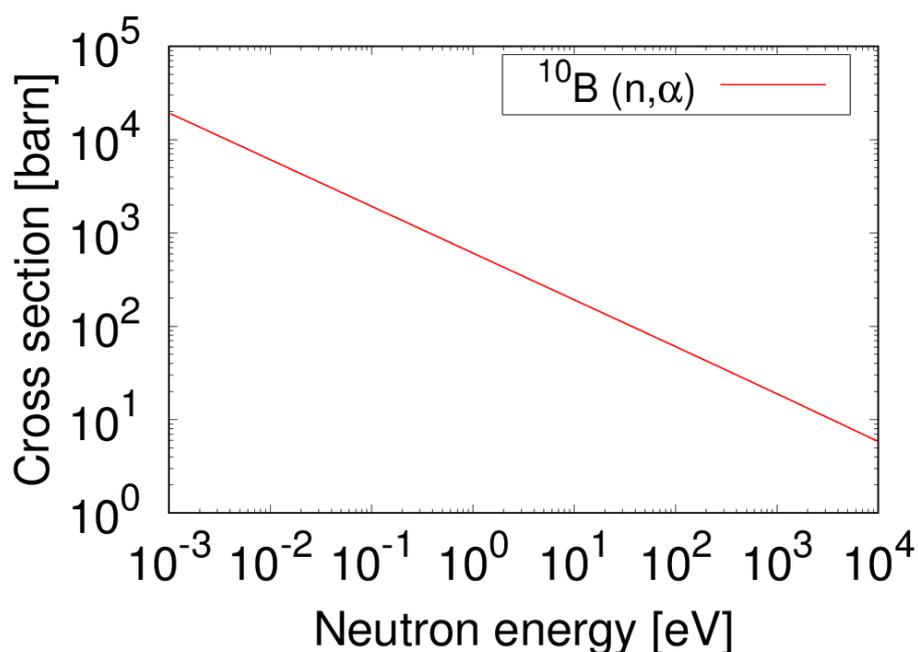


図 2-2.  $^{10}\text{B}$  の吸収断面積 (JENDL-4.0)。

#### 2.1.2.1.2. 原子核ポテンシャルによるポテンシャル散乱 (非干渉性散乱) [2-3]

中性子が、原子核の持つポテンシャルに散乱されることをポテンシャル散乱と呼ぶ。ポテンシャル散乱断面積の大きさは、原子の散乱長 ( $b$ ) によって決定され、 $4\pi b^2$  で計算可能である。ポテンシャル散乱断面積は、およそ keV 程度までは一定であり、エネルギー依存性を持たない。

#### 2.1.2.1.3. 中性子共鳴[2-3]

中性子共鳴は、中性子の持つエネルギーが原子核の励起準位と一致する場合に生じる現象であり、原子核が中性子を吸収し複合核を形成する。共鳴により複合核が形成された場合、原子核からは  $\gamma$  線もしくは中性子が放出される。 $\gamma$  線が放出される場合を共鳴吸収、中性子が放出される場合を共鳴散乱と呼ぶ。共鳴断面積は、中性子のエネルギーが原子核の励起準位と同程度のエネルギーになる領域 (およそ 1 eV 以降) で大きさを持ち、ブライト・ウィグナーの公式[2-3]により表現される。図 2-3 に  $^{47}\text{Ag}$  の全断面積 (JENDL-4.0) を示す、1 eV 以降に多数の共鳴断面積 (ピーク) が存在することがわかる。

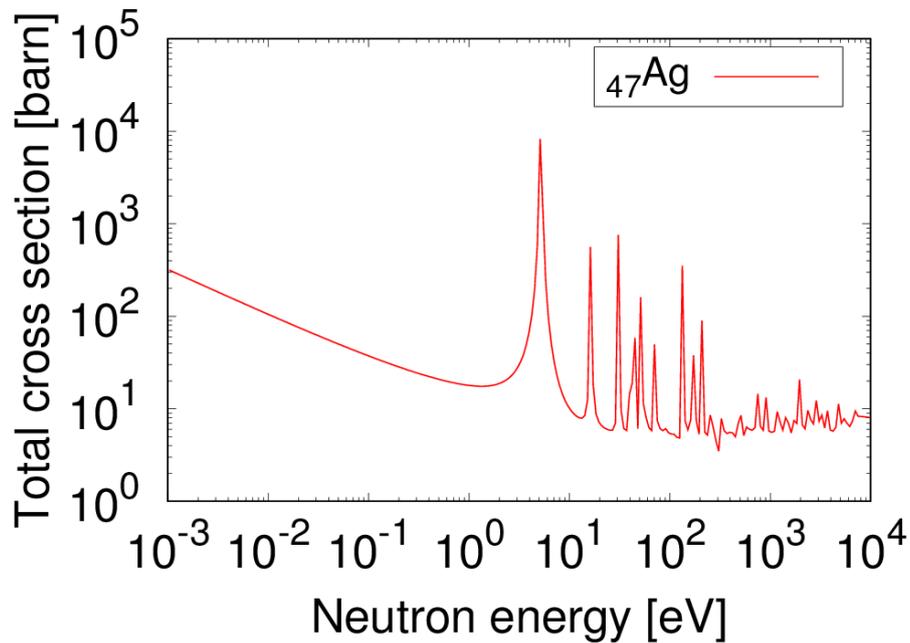


図 2-3.  $^{47}\text{Ag}$  の全断面積 (JENDL-4.0)。

#### 2.1.2.1.4. 粒子放出反応[2-3]

中性子のエネルギーが、原子核の結合エネルギーに相当する場合、中性子により原子核がバラバラにされて、複数の陽子や  $\alpha$  線、中性子等を放出する反応が生じる。これを粒子放出反応と呼ぶ。この反応は、MeV 程度のエネルギーを持つ高速中性子において生じる。

#### 2.1.2.1.5. ブラッグ散乱 (干渉性弾性散乱)

ブラッグ散乱は、中性子が波の性質を持つため、試料の結晶構造によって散乱される現象である。図 2-4 に RITS コード[1-30, 2-4, 2-5, 2-6]により計算した多結晶体の鉄のブラッグ散乱断面積を含む全断面積を示す。ブラッグエッジと呼ばれる、ギザギザ構造が見られており、これがブラッグ散乱断面積により生じている。複数の結晶面により、ブラッグ散乱が生じるため、多数のエッジ構造が形成される。ブラッグ散乱は、中性子の波長が試料の格子面間隔と同程度の場合に生じるため、基本的には低いエネルギーの中性子で生じる。

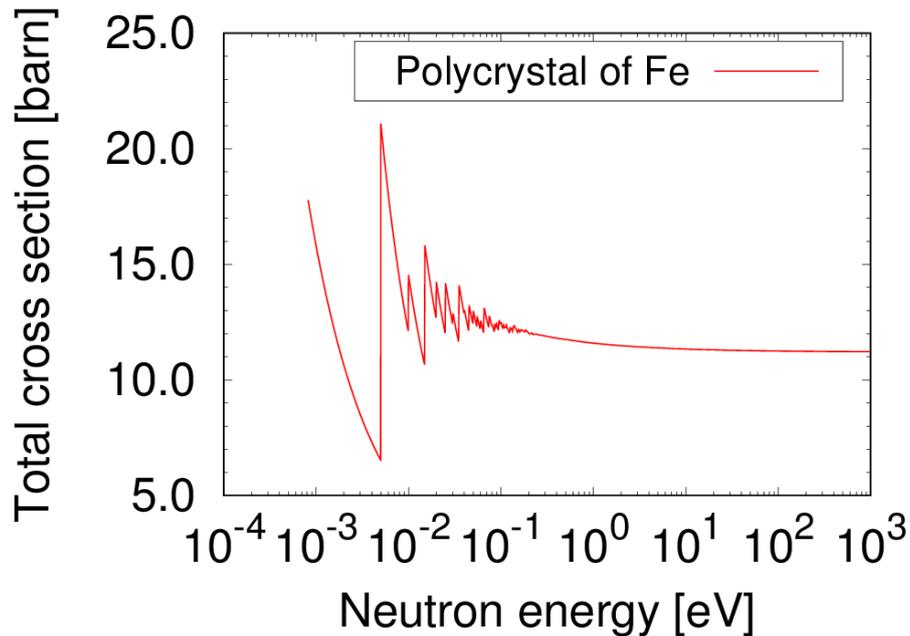


図 2-4. 鉄多結晶体のブラッグ散乱を含めた中性子全断面積。

#### 2.1.2.1.6. 非弾性散乱

中性子が試料中の原子の熱運動（ダイナミクス）等と相互作用し、エネルギーの授受を生じる場合を非弾性散乱と呼ぶ。非弾性散乱は、熱運動付近のエネルギーを持つ中性子における相互作用であり、基本的には低いエネルギーの中性子で生じる。

#### 2.1.2.1.7. 磁気散乱

中性子はスピンを持つため、原子核の持つスピンとの相互作用を生じる。試料中の原子核が持つスピンにより中性子が散乱されることを磁気散乱と呼ぶ。磁気散乱には、磁性体試料の結晶構造から生じる干渉性の磁気散乱（ブラッグ磁気散乱）と不対電子のような周期構造を持たないものによる非干渉性の磁気散乱が存在する。磁気散乱は、基本的に低いエネルギーの中性子で生じる。

#### 2.1.2.1.8. 小角散乱

中性子が、物質中に存在する密度差（密度ポテンシャル）によって散乱される現象である。この現象は、試料内に密度ムラが存在する場合に生じ、中性子は非常に小さな角度だけ散乱されるため、小角散乱と呼ばれる。小角散乱は、波の性質により生じる相互作用であり、密度差が存在する領域の大きさと中性子の波長が同程度の時に生じる。従って、基本的には低いエネルギーの中性子で生じる。

### 2.1.2.2. それぞれの相互作用が生じるエネルギー領域[2-3]

中性子と物質の相互作用には様々な種類が存在し、代表的な相互作用について 2.1.2.1 節で述べた。ここでは、それぞれの相互作用が生じるエネルギー領域について述べる。

中性子と物質の間には様々な相互作用が存在するものの、生じる相互作用の種類は、中性子のエネルギーがサブ eV 以上かそれ以下で大別することが出来る。これは、中性子が相互作用を起こす対象がおよそこのエネルギーを境に変わるためである。サブ eV 以上では中性子は主に原子核とのみ相互作用し、サブ eV 以下では中性子は原子核以外にも物質の結晶構造やダイナミクス等とも相互作用を起こすようになる。

サブ eV 以上のエネルギー領域をここでは熱外中性子エネルギー領域と呼ぶ。この領域の中性子は、原子核一つ一つと相互作用を生じる。従って、 $1/\nu$  に起因する吸収や原子核ポテンシャルに起因するポテンシャル散乱、共鳴に起因する吸収および散乱が、主に生じる相互作用となる。また、中性子のエネルギーが MeV 以上になると、原子核を構成する陽子や中性子（ハドロン）の構造に起因する非弾性散乱や(n, p), (n,  $\alpha$ ), (n, 2n)といった粒子放出反応も生じるようになる。

対して、サブ eV 以下のエネルギー領域をここでは冷・熱中性子エネルギー領域と呼ぶ。この領域の中性子は、原子核一つ一つとの相互作用に加え、物質の結晶構造（原子の配列）やダイナミクス（熱運動）等との相互作用を生じるようになる。従って、 $1/\nu$  に起因する吸収、原子核ポテンシャルに起因するポテンシャル散乱に加え、試料の結晶構造に起因するブラッグ散乱、試料のダイナミクスに起因する非弾性散乱、試料内部の密度差により生じる小角散乱、試料内の磁気構造に起因する磁気散乱等が相互作用として生じることになる。

このように、中性子と原子核の相互作用は多岐にわたり、またサブ eV を境に相互作用の種類に違いがある。

### 2.1.2.3. ENTAX で主に用いる熱外中性子エネルギー領域における全断面積

ENTAX では、熱外中性子領域の中性子透過率スペクトルが原子核一つ一つの全断面積を反映することを利用する。従って、ENTAX が使用するエネルギー領域は、原子核一つ一つとのみ相互作用が生じる、サブ eV 以降のエネルギー領域を用いる。

サブ eV 以降のエネルギー領域における相互作用は、 $1/\nu$  則に起因する吸収、原子核のポテンシャルに起因するポテンシャル散乱、共鳴の 3 種類であり、基本的に元素・物質の全断面積は、この 3 種類の相互作用断面積の足し合わせで表現されることになる。図 2-5 に、例として、 ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^6\text{C}$ 、 ${}^{26}\text{Fe}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$  のサブ eV 以降の評価済み核データ (JENL-4.0) を示す。 ${}^3\text{Li}$  は、 $1/\nu$  に起因する吸収断面積が主要な元素であり、 ${}^{26}\text{Fe}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$  は  $1/\nu$  に起因する吸収とポテンシャル散乱が同程度の大きさを持つ元素、 ${}^6\text{C}$  はポテンシャル散乱断面積が主要な元素となっている。図 2-5 より、 ${}^3\text{Li}$  の全断面積は 10 eV 以下において  $1/\nu$  則をよく反映しているのがわかる。10 eV 以降においては、吸収断面積の大きさが小さくなるため、ポテンシャル散乱断面積の割合が増え、 $1/\nu$  の傾きが緩やかになる傾向が見えている。また、 ${}^6\text{C}$  の全断面積は、

ポテンシャル散乱断面積を反映し、ほぼ一定になっていることがわかる。そして  ${}^3\text{Li}$  や  ${}^6\text{C}$  に対して、 ${}^{26}\text{Fe}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$  の全断面積は、吸収断面積の大きさとポテンシャル散乱断面積がバランスするため、10 eV 以下のエネルギー領域において緩やかなカーブを描いているのがわかる。また、10 eV 以降においては、 ${}^{26}\text{Fe}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$  の持つ共鳴断面積の影響により、断面積のカーブが更に変化しているのがわかる。このように、ENTAX で使用するエネルギー領域において、全断面積の大きさとエネルギー依存性は、 $1/v$  則、ポテンシャル散乱、共鳴による 3 つの断面積が混ざり合うことで決定される。

$1/v$  則とポテンシャル散乱のエネルギー依存性は、それぞれの相互作用だけで見た場合、全ての核種で同じエネルギー依存性となる。しかし、この二つが組み合わさった場合には、核種毎に吸収断面積とポテンシャル散乱断面積の大きさが異なるため、エネルギー依存性に違いが生じる。また、これに加えて核種固有の共鳴断面積が混ざるため、ENTAX で使用するエネルギー領域における全断面積のエネルギー依存性は、多くの核種において、ユニークとなる。ただし、図 2-5 の  ${}^6\text{C}$  のようにポテンシャル散乱断面積が主要であり、ENTAX で使用可能なエネルギー範囲においては、ほぼ一定の全断面積となる核種がある程度存在する。そのため、サブ eV よりも低いエネルギー領域や共鳴が表れるほどの高エネルギー領域まで含めれば、ほぼ全ての核種において、全断面積のエネルギー依存性はユニークと考えられるが、ENTAX で使用可能なエネルギー範囲においては、似たようなエネルギー依存性となる核種が存在することに留意すべきである。

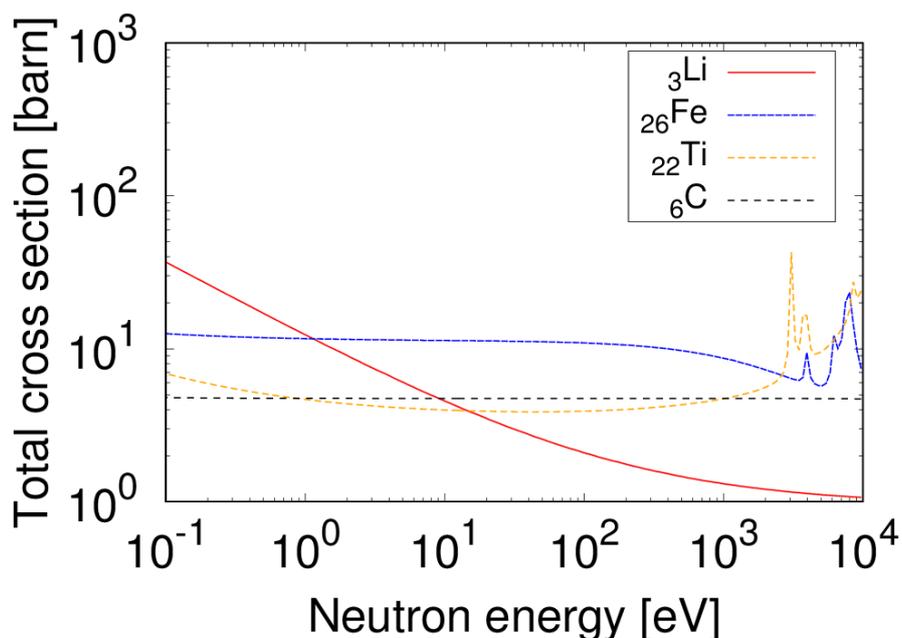


図 2-5.  ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{26}\text{Fe}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^6\text{C}$  の評価済み核データ (JENDL-4.0)。

### 2.1.3. ENTAX で使用するエネルギー領域

2.1.2.3 節でも述べたが、ENTAX では、 $1/v$  則に起因する吸収、原子核のポテンシャルに起因するポテンシャル散乱、共鳴の 3 種類の相互作用が主に生じる熱外中性子領域に着目している。この理由は、熱外中性子領域では試料の結晶構造やダイナミクス等に起因する相互作用が生じないためである。特に、実際の試料を測定した際に全断面積に大きな影響を及ぼすのは、試料の結晶構造に起因するブラッグ散乱断面積であるが、図 2-4 からわかるようにこの断面積は、サブ eV 以降でほぼ 0 となる。そのため、サブ eV 以降において、実測される中性子透過率スペクトルは原子核一つの全断面積をよく反映するようになる。そして、評価済み核データを用いた解析が可能となる。よって ENTAX では、実測した透過率スペクトルが、原子核の全断面積をよく反映するサブ eV 以上の熱外中性子領域を利用する。

しかし、ENTAX で実際に使用可能なエネルギー領域は、測定する試料や実験体系によって大きく変化することに注意すべきである。例えば、結晶構造やダイナミクスとの相互作用が小さい試料の場合は、サブ eV よりも低いエネルギーを利用することが可能となるし、逆に大きい場合は、サブ eV よりも大きいエネルギー領域において ENTAX を適用しなければならない。また、実験施設にもよるが、一般的には高エネルギーになるほどバックグラウンドが大きくなり、実測される透過率スペクトルに系統誤差が混入しやすくなる。系統誤差が混入する場合、中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性やその大きさが変化するため、原子核 1 個の全断面積を反映しなくなってしまう。そのため、熱外中性子領域であっても、際限なく上のエネルギー領域まで使用できるわけではない。従って、ENTAX において、実際に解析に使用するエネルギー範囲は、実測される透過率スペクトルに基づいて決定する。つまり、実測された中性子透過率スペクトルにおいて、「評価済み核データを反映するエネルギー領域」を慎重に決定し、解析範囲を決めるべきである。

また、本研究の範囲においては、ENTAX は、共鳴吸収によるディップを使用せず、共鳴吸収ディップが存在する場合、そのエネルギー領域を除いて解析を行うこととした。ただし、今後の展望として、共鳴吸収ディップを含めて解析を行うことや、共鳴吸収分光法と組み合わせることは十分に考えられる。

### 2.1.4. ENTAX における物質の面密度評価方法

ENTAX は、中性子透過率スペクトルの大きさとそのエネルギー依存性から、複数の物質の面密度を評価する。中性子透過率スペクトルは、測定試料が単一の物質から成る場合、式 1.5 のように表現されるが、測定試料が複数の物質から成る場合、式 2.2 のように表現される。

$$Tr(E) = \prod_i Tr_i(E) = \exp\left(-\sum_i N_i \sigma_i(E)\right) \quad (2.2)$$

ここで、 $i$  は試料を構成する物質の番号、 $N$  は物質の面密度 [ $\text{cm}^2$ ]、 $\sigma$  は物質の全断面積 [ $\text{cm}^2$ ]

を示す。式 2.2 からわかるように、複数物質から成る試料の中性子透過率スペクトルは、試料を構成する各物質の透過率スペクトルの積で表現される。図 2-6 に、式 2.2 の概念図を示す。緑色で示したプロットはある物質 A (炭素) の透過率スペクトル、青色で示したプロットはある物質 B (鉄) の透過率スペクトル、そして赤色で示したプロットは、ある物質 A とある物質 B の混合試料の中性子透過率スペクトルを示している。図 2-6 より、混合試料の透過率スペクトルは、ある物質 A の透過率スペクトルとある物質 B の透過率スペクトルの掛け合わせになっていることがわかる。

試料を構成する物質が既知であれば、それぞれの物質のスペクトル形状 (エネルギー依存性) は評価済み核データにより既知となる。従って、複数物質から成る試料の透過率スペクトルを、試料を構成する各物質の評価済み核データを用いて解析することにより、各物質の面密度をそれぞれ評価することが可能となる。

ENTAX により実際の評価を行う際には、式 2.2 の  $\sigma_i(E)$  に評価済み核データを代入したものをフィッティング関数として、実測される透過率スペクトルに対して、非線形最小二乗法によるフィッティング解析を行う。そして、式 2.2 における  $N_i$  を最適化することにより、複数の物質の面密度を評価する。

ENTAX における面密度の評価方法として、式 2.2 の各中性子エネルギー  $E$  において方程式を立て、連立方程式として解析的に解くという方法も考えられる。しかし、ENTAX における解析方法は、数値的解法である非線形最小二乗法によるフィッティング解析を用いることとした。この理由は、連立方程式を解く方法では、測定される中性子透過率スペクトルの統計誤差の影響を受けやすく、得られる解の精度が、フィッティング解析に比べ低くなるためである。これは、連立方程式を解く場合、変数の数と同数のエネルギー点における方程式しか使用しないことに起因する。例えば、2 変数の連立方程式を解く場合、2 つのエネルギー点における方程式しか利用しないことになるが、これは、フィッティングに置き換えて考えると、2 点でフィッティングを行っていることと同義である。そのため、使用するエネルギー点における透過率の統計精度が、得られる解に大きく影響してしまう。従って、ENTAX における解析手法は、多数のエネルギー点を利用可能な、フィッティング解析を用いることとした。

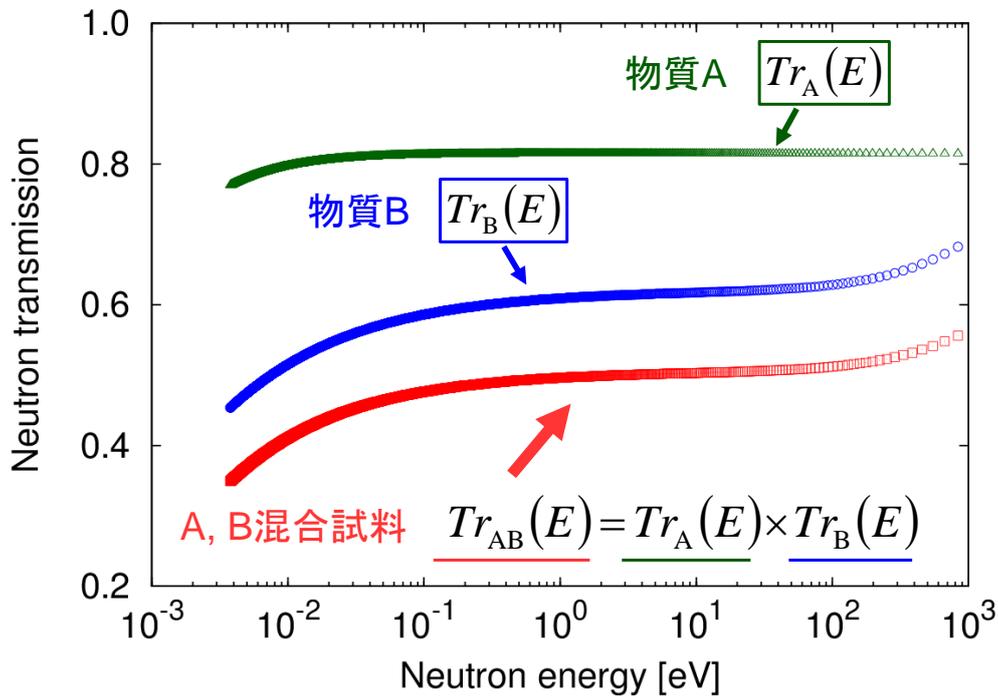


図 2-6. 複数の物質から構成される試料の透過率スペクトル。

### 2.1.5. ENTAX の原理のまとめ

ENTAX は、熱外中性子領域における全断面積が原子核一つとの相互作用により表現され、実測される熱外中性子領域の透過率スペクトルが評価済み核データで解析可能であることを利用する。ENTAX は、熱外中性子領域の透過率スペクトルを評価済み核データの全断面積を用いて非線形最小二乗法でフィッティングすることにより試料を構成する複数の物質の面密度の定量評価を行う。ENTAX では、評価済み核データを用いるため、検量線を取得する必要がない。また、共鳴を用いずに解析が行えるため、軽元素を含めて複数の物質の評価が可能である。従って、ENTAX は、従来の中性子透過型イメージング手法による定量イメージングが困難な試料に対しても、定量イメージングが行える手法となり得る。

## 2.2. ENTAX の原理実証実験

開発した ENTAX の原理実証を行うため、北海道大学電子線形加速器施設にある中性子源 (HUNS) [2-7] の熱中性子源ポートにおいて、中性子透過率スペクトルの測定実験を行い、測定された透過率スペクトルに対して ENTAX を適用し、試料の面密度を評価した。本節では、その結果について述べる。

### 2.2.1. HUNS 熱中性子源ポート

まず、実験を行った施設である、HUNS 熱中性子源ポートについて説明する。

#### 2.2.1.1. 中性子源アセンブリ

図 2-7 に HUNS 熱中性子源ポートにおける中性子源アセンブリ (Target-Moderator-Reflector Assembly, TMRA) を示す。図 2-7 (a) は TMRA の外観を、図 2-7 (b) は (a) 破線部の断面図を示す。HUNS 熱中性子源ポートの TMRA は主に、鉛ターゲット、ポリエチレンモデレータ、グラファイトリフレクターから構成されており、図には示していないが、鉛ターゲットには冷却水用の配管が通っている。各構成要素のサイズ・密度は、鉛ターゲットが 8 cm 角・11.3 g/cm<sup>3</sup>、ポリエチレンモデレータが縦 12 cm x 横 12 cm x 厚さ 5 cm・0.94 g/cm<sup>3</sup>、グラファイトリフレクターが 50 cm 角・1.64 g/cm<sup>3</sup> となっている。ポリエチレンモデレータは、縦 6 cm x 横 12 cm x 厚さ 2.5 cm の小片を 4 つ組み合わせることにより、一つのモデレータとなっている。常温のポリエチレンを用いており、温度制御等は行っていない。また、モデレータと反射体の間にカドミウム等のデカップラーは入れておらず、結合型の減速体系となっている。

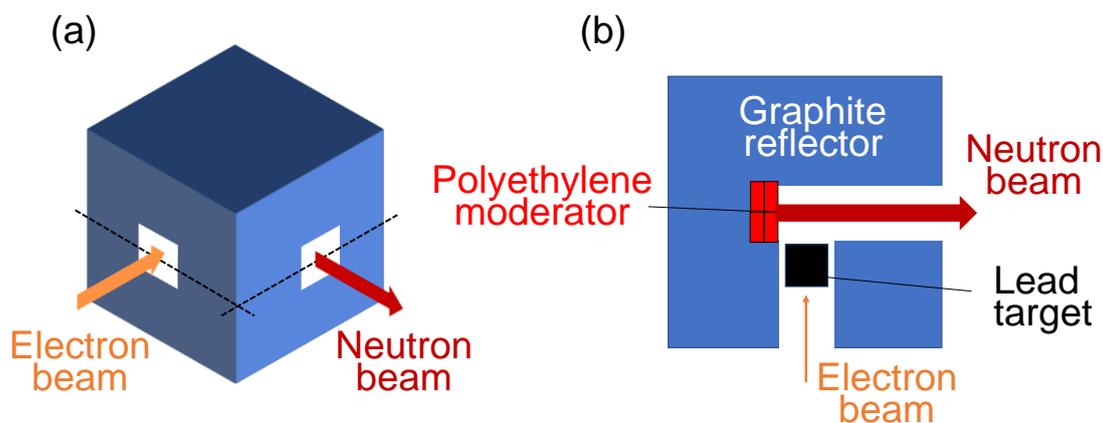


図 2-7. HUNS 熱中性子源ポートにおける TMRA。

### 2.2.1.2. 基本的な実験体系

図 2-8 に HUNS 熱中性子源ポートにおける基本的な実験体系を示す。HUNS 熱中性子源ポートは、中性子を発生させるターゲット室と発生した中性子を測定する実験室で分かれており、ターゲット室と実験室は 3.5 m の厚いコンクリート壁によって隔てられている。

中性子実験を行う際には、まずターゲット室において中性子を発生させる。電子線形加速器 (LINAC) で数 10 MeV まで加速した電子線が鉛ターゲットに入射すると、鉛原子とのクーロン相互作用により、電子線の軌道が曲がる。電子線の軌道が曲がる際に制動放射が生じ、数 10 MeV 程度のエネルギーを持った  $\gamma$  線が鉛の原子核と ( $\gamma, n$ ) 反応 (光核反応) を起こすことにより、中性子が発生する。発生した中性子は、ポリエチレンモデレータ内部で散乱される過程でエネルギーを落とし、熱化される。減速された中性子は、飛行管 (真空ダクト) を通じて実験室に供給される。供給される中性子は様々なエネルギーの中性子を持つパルス中性子であり、実験室に置いた検出器を用いて、中性子の飛行時間を測定することでパルス中性子測定実験を行うことが出来る。中性子のエネルギーは、電子線パルスの発射タイミングから中性子が検出器に到達するまでの飛行時間  $t$  とモデレータから検出器までの距離  $L$  を用いて式 1.4 より計算する。

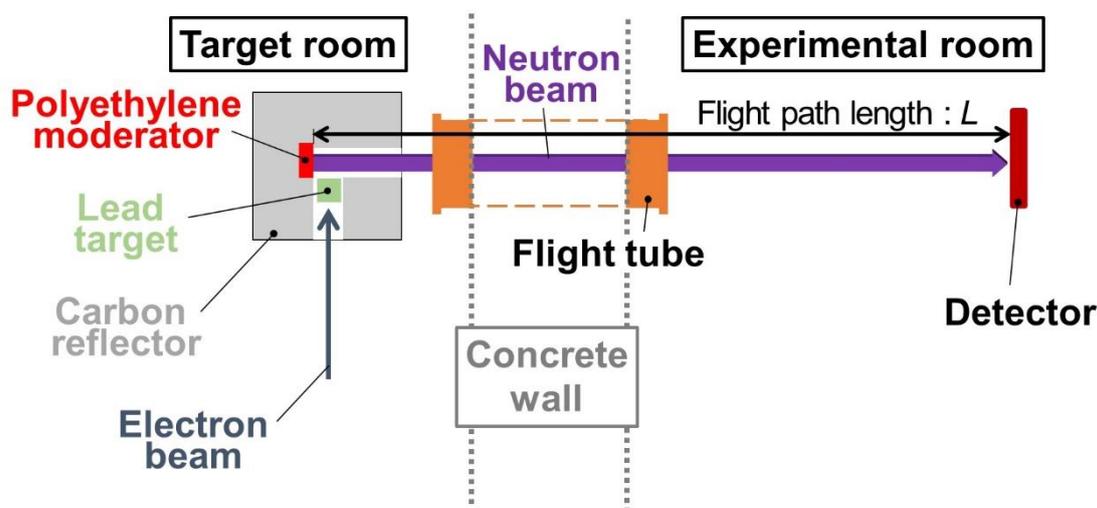


図 2-8. HUNS 熱中性子源ポートの基本的な実験体系。

### 2.2.2. 原理実証実験の測定試料及び実験体系

ENTAX の原理実証実験における測定試料と実験体系について述べる。測定試料として、軽元素である炭素と軽元素ではない鉄の板材を用意し、炭素の板のみ、鉄の板のみ、炭素の板と鉄の板を重ねた積層試料の 3 試料における、中性子透過率スペクトルを測定した。表 2-1 に炭素試料と鉄試料の詳細を、また図 2-9 に積層試料の模式図を示す。炭素及び鉄の単体試料は、ENTAX によるフィッティング解析範囲を決定するため、測定を行った。単体試料の透過率スペクトルから計算した全断面積スペクトルと評価済み核データを比較すること

により、フィッティング解析範囲を決定した。また炭素板と鉄板の積層試料は、ENTAXにより、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の面密度が妥当に評価できるかを確認するための試料として用意し、測定された透過率スペクトルに対して ENTAX を適用した。

実験は、2.2.1.節で説明した HUNS 熱中性子源ポートにて行った。検出器には、Gas electron multiplier (GEM) [2-8]を用いた中性子二次元検出器[2-9]を使用した。この検出器は、高エネルギー加速器研究機構の宇野氏によって作成された検出器であり、検出器性能及び使用時のパラメータは表 2-2 に示す通りである。また、実験における加速器・中性子源・検出器の設定条件は、表 2-3 に示す通りである。

原理実証実験における実験体系の写真及び模式図を図 2-10 に示す。ENTAX による評価では、測定される中性子透過率スペクトルに試料からの散乱線が混入する場合、透過率スペクトルのエネルギー依存性やその大きさが変化してしまうため、妥当な評価が行えなくなる。そのため、試料からの散乱線が検出器に混入しないよう、試料と検出器の間に 1 m の距離を空けて測定を行った。また、環境中性子等が検出器に混入するのを防ぐため、検出器の周囲にホウ酸とレジン材料で混合したブロックを配置し、環境中性子の遮蔽を行った。

表 2-1. ENTAX 原理実証実験における測定試料。

Sample	Size [cm <sup>3</sup> ]	Mass [g]	Purity [%]	Areal density [10 <sup>22</sup> /cm <sup>2</sup> ]
Fe	H 10 x W 10 x T 0.5	402.9	99.99	4.35
C	H 10 x W 10 x T 0.5	89.9	99.5	4.51

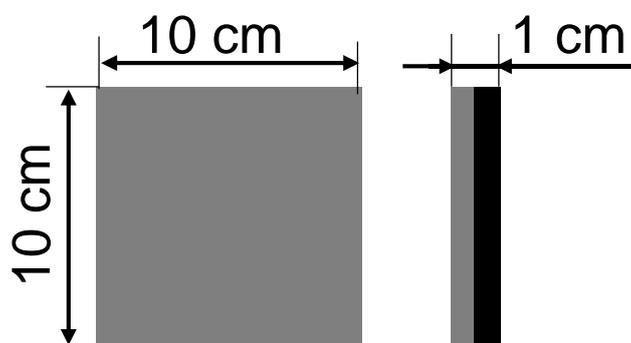


図 2-9. 鉄板と炭素板の積層試料の模式図。

表 2-2. GEM 検出器の性能及び検出器使用時のパラメータ。

Detection type	Strip counting type
Electron multiplier	GEM (Gas electron multiplier)
Neutron converter	$^{10}\text{B}$ of 3.4 $\mu\text{m}$ thickness (Purity > 99%)
Strip pitch	0.8 mm
The number of strip	128 $\times$ 128
Detection area	102.4 mm $\times$ 102.4 mm
TOF resolution of FPGA	10 ns
$\gamma/\text{N}$ ratio	$\sim 1/100000$
Working gas	Ar-CO <sub>2</sub> (Ar : CO <sub>2</sub> = 70 : 30)
Gas flow rate	90 mL/min
Gas pressure	0.11 MPa (gauge pressure)
High voltage supply	-3040 V

表 2-3. ENTAX 原理実証実験における加速器、中性子源、検出器条件。

Experimental facility	HUNS thermal neutron port
Electron beam energy	34 MeV
Electron beam current	32 $\mu\text{A}$
Electron beam power	1 kW
Electron beam pulse width	3 $\mu\text{s}$
Electron beam repetition rate	50 Hz
Target	Lead
Moderator	High density polyethylene
Reflector	Graphite
Neutron flight path	6.80 m
Detector	GEM detector
Recording mode	Histogram
TOF bin width	2 $\mu\text{s}$
The number of TOF channel	4001
Detection neutron energy range	0.004 - 240000 [eV]
Neutron counting rate in the energy range	$0.12 \times 10^4$ [n/cm <sup>2</sup> /s]

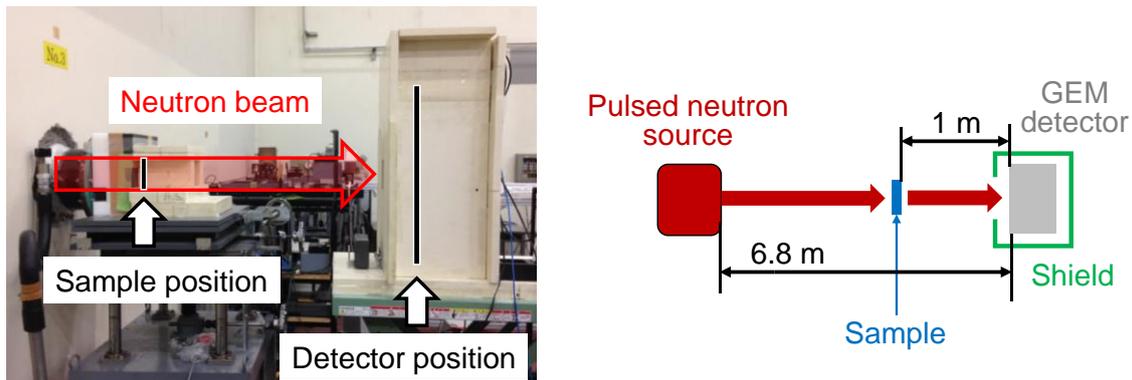


図 2-10. 実験体系の写真及び模式図。

### 2.2.3. 中性子透過率スペクトルの測定結果

図 2-11 に測定された中性子透過率スペクトルを示す。図 2-11 (a)は鉄板の透過率スペクトル、図 2-11 (b)は炭素板の透過率スペクトル、図 2-11 (c)は鉄板と炭素板の積層試料の透過率スペクトルである。各試料の測定時間は、鉄板が約 3 時間、炭素板が約 3.5 時間、積層試料が約 3.5 時間、ダイレクト測定が約 2.5 時間であり、検出器の検出面端を除くほぼ全面 (9.6 x 9.6 cm<sup>2</sup>) の領域における積算中性子カウント数を用いて透過率スペクトルを得た。図 2-11 に示した透過率スペクトルは、測定データの TOF ビン幅を対数軸上で等分されるようにビンニングしてから算出したものであり、各点における統計誤差は、全ての点でおよそ 0.3% 以下であった。

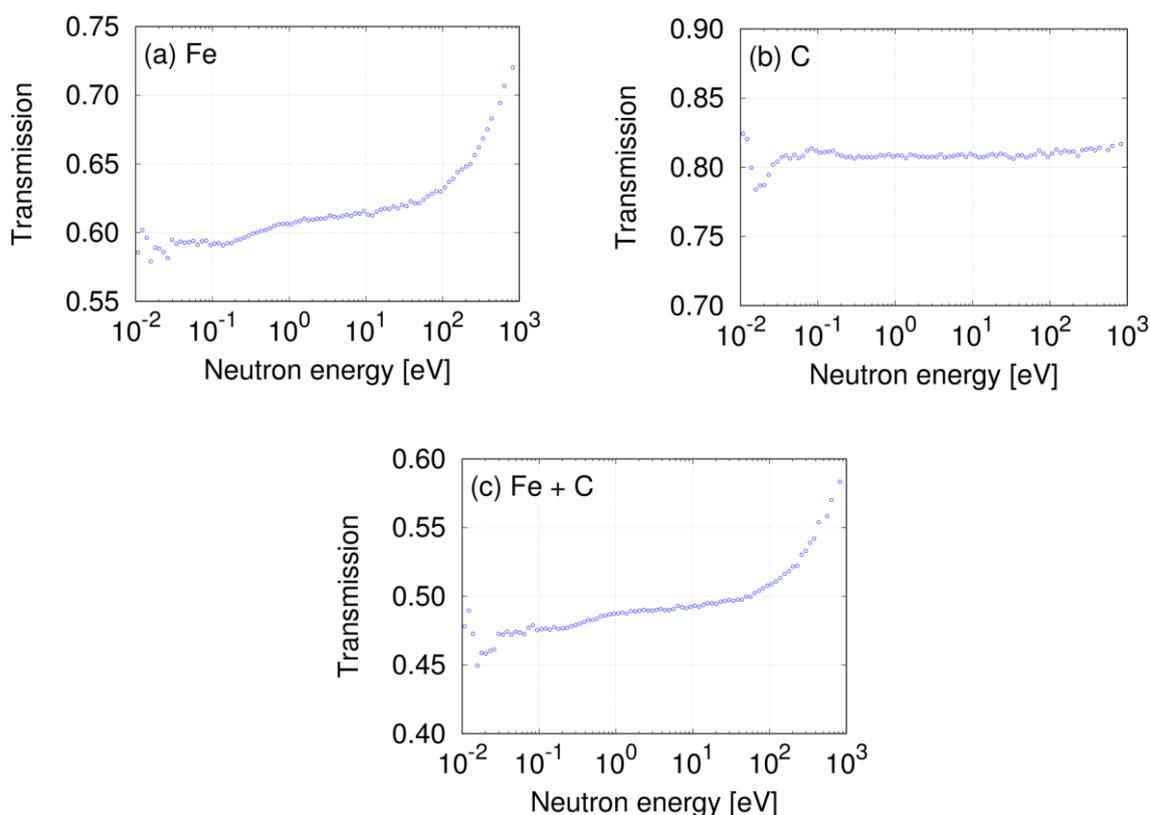


図 2-11. 測定された中性子透過率スペクトル。

## 2.2.4. ENTAX による解析

### 2.2.4.1. フィッティング解析を行うエネルギー範囲の決定

ENTAX によるフィッティング解析を行うエネルギー範囲を決定するため、測定された鉄、炭素の単体試料の中性子透過率スペクトルから、巨視的全断面積スペクトルを計算し、評価済み核データから計算した巨視的全断面積スペクトルと比較した。評価済み核データには、JENDL-4.0 [2-2]を用いた。

比較結果を図 2-12 に示す。図 2-12 の横軸は中性子のエネルギー、縦軸は巨視的全断面積を示す。図のプロット点は、測定された透過率スペクトルから式 1.5 を用いて計算した巨視的全断面積スペクトルを示し、破線は、評価済み核データと試料の実際の密度から計算した巨視的全断面積スペクトルを示す。各点のビン幅は、測定された透過率スペクトルの TOF 幅を 1 ビンあたり 20  $\mu\text{s}$  にまとめてから計算したため、1 ビンあたり 20  $\mu\text{s}$  の TOF 幅に相当する中性子エネルギー幅となっている。図 2-12 より、およそ 0.3 eV 以上の領域において、実測の全断面積スペクトルと評価済み核データから計算した全断面積スペクトルが一致していることがわかる。また、0.3 eV よりも低いエネルギー領域では、試料の結晶構造に起因するブラッグエッジの影響により、実測の全断面積スペクトルと評価済み核データから計算した全断面積スペクトルは不一致となっていることがわかる。よって、鉄と炭素の積層試

料に ENTAX を適用する場合、0.3 eV 以上のエネルギー領域を解析範囲にすればよいと考えられる。ただし、20 eV より高いエネルギー領域において、鉄の実測全断面積が評価済み核データに比べて小さくなっていく傾向が見えている。これは、実験体系から混入するバックグラウンドの影響と考えられる。そのため、本実験におけるフィッティング解析範囲は、ブラッグエッジとバックグラウンドの影響を受けず、実測の全断面積スペクトルと評価済み核データがよく一致する 0.3 - 20 eV とすることとした。

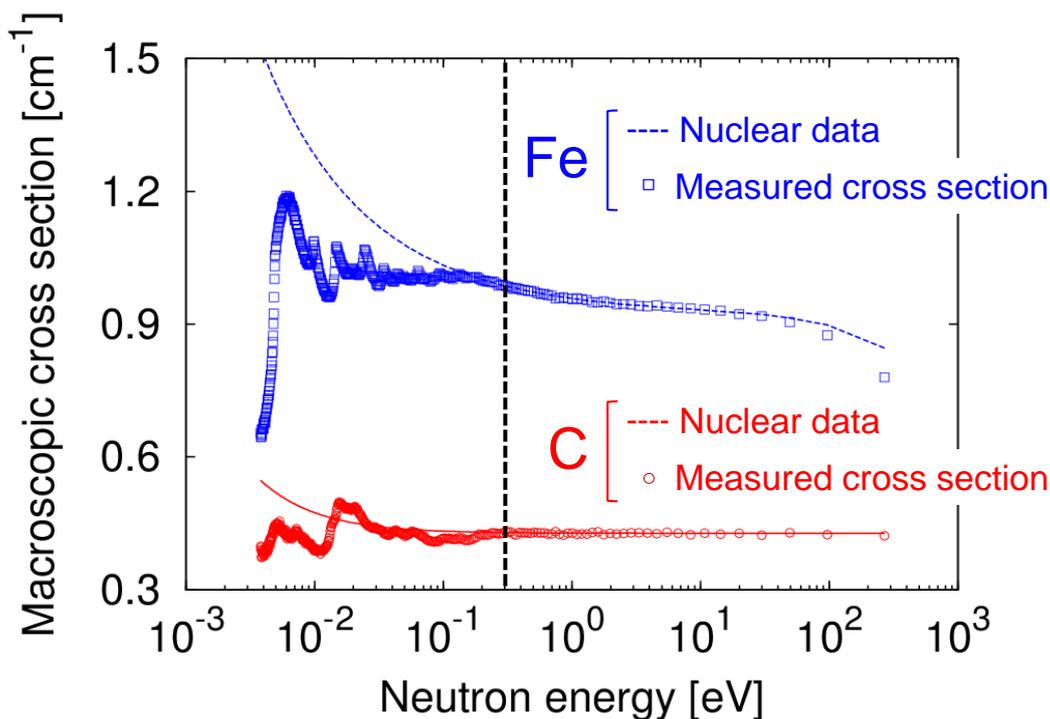


図 2-12. 単体試料における実測の全断面積スペクトルと評価済み核データの比較。

#### 2.2.4.2. ENTAX による解析結果

測定試料の中性子透過率スペクトルに対し、ENTAX を適用してフィッティング解析を行った結果を図 2-13 に示す。鉄試料、炭素試料、鉄・炭素積層試料の全ての解析において、フィッティング範囲内で実験値とフィッティング曲線がよく一致していることがわかる。

また、このフィッティングにより得られた面密度と、実際の面密度の比較結果を表 2-4 に示す。表 2-4 にある Evaluation error は、式 2.3 により計算した。

$$\text{Evaluation error} = \frac{N_{\text{analyzed}} - N_{\text{actual}}}{N_{\text{actual}}} \quad 2.3$$

ここで、 $N_{\text{analyzed}}$  は ENTAX による解析で得られた面密度、 $N_{\text{actual}}$  は試料の重量と体積から計算した実際の面密度を示す。

表 2-4 より、鉄と炭素の単体試料において、ENTAX による解析値は、実際の面密度に対して数%程度の評価誤差で求めた。よって、1 物質の場合、ENTAX は高い確度で面密度を評価出来ることがわかった。また、鉄と炭素の積層試料において、ENTAX によるそれぞれの解析値は、実際の面密度から 10%以内の評価誤差で求めた。従来の中性子透過型イメージング手法における定量確度は 10%程度であるため、ENTAX は、鉄と炭素の 2 物質の場合において、面密度を妥当に評価出来たといえる。

3 試料の解析結果より、ENTAX を用いて面密度の評価が妥当に行えたことから、その原理が成り立つことを実証できた。また、積層試料の解析結果から、ENTAX により、軽元素を構成物質の一部とする複数物質を定量可能であることを実証できた。

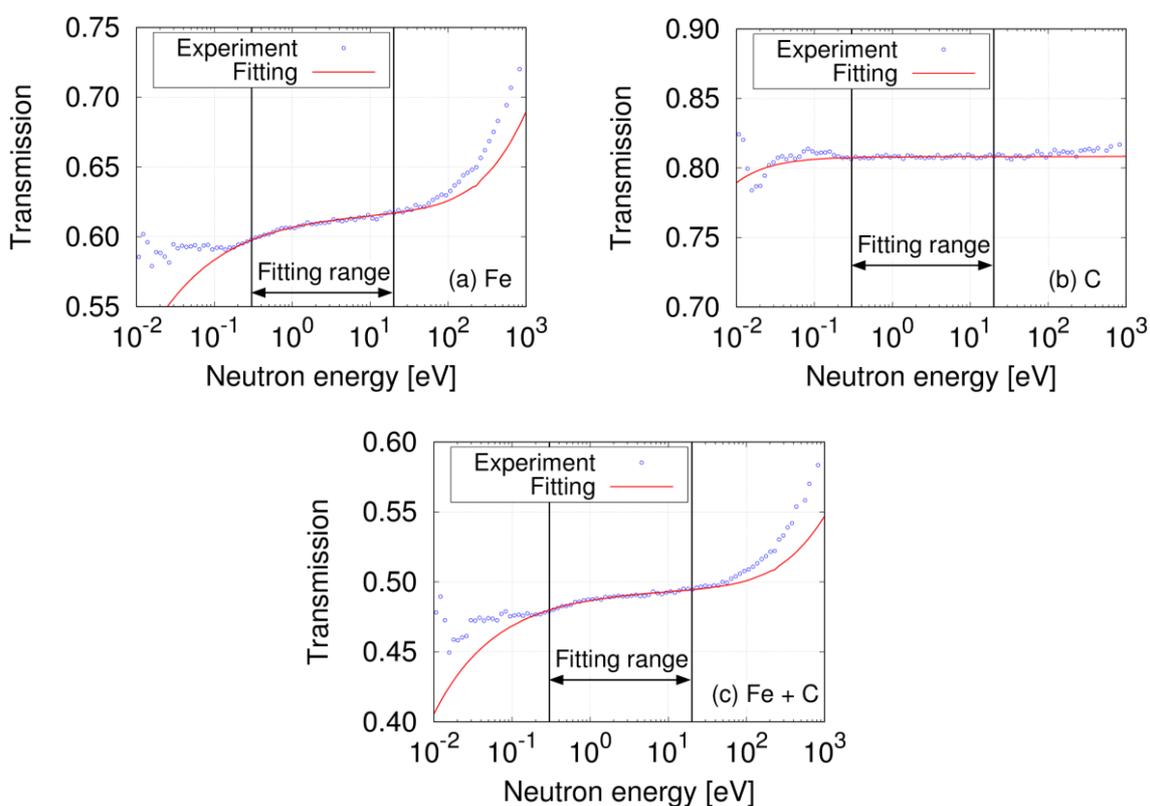


図 2-13. ENTAX によるフィッティング結果。

表 2-4. ENTAX により得られた面密度と実際の面密度との比較。

Sample	Analyzed areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation error [%]
Fe	4.29	4.35	-1.4
C	4.49	4.51	-0.5
Fe in Fe + C	4.48	4.35	+3.0
C in Fe + C	4.18	4.51	-7.3

### 2.2.5. ENTAX の原理実証実験のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおいて、GEM 検出器を用いて、鉄単体、炭素単体、鉄・炭素積層試料の中性子透過率スペクトルを測定した。単体試料の中性子透過率スペクトルから巨視的全断面積スペクトルを計算し、評価済み核データから計算したものと比較した。その結果、フィッティング解析範囲を 0.3 – 20 eV に決定した。決定したフィッティング範囲において、ENTAX を 3 つの試料に適用した結果、鉄と炭素の単体試料では数%程度の評価誤差で面密度を評価することができた。また、鉄と炭素の積層試料ではそれぞれの面密度を 10%以内の評価誤差で評価することができた。

従って、ENTAX の原理実証を行えた。また、ENTAX が軽元素を構成物質の一部とする複数物質の面密度を評価可能な手法であることを実証した。

### 2.3. 2 章のまとめ

本章では、本研究で開発する手法である ENTAX の原理について説明した。また、HUNS の熱中性子源ポートにおける ENTAX の原理実証実験について説明した。

ENTAX は、熱外中性子領域における中性子全断面積が原子核一つとの相互作用により表現されることから、実測される熱外中性子領域の透過率スペクトルは、評価済み核データで解析可能であることに着目した手法である。ENTAX は、熱外中性子領域の透過率スペクトルを評価済み核データの全断面積を用いて非線形最小二乗法でフィッティングすることにより試料を構成する複数の物質の面密度の定量評価を行う。ENTAX では、評価済み核データを用いるため、検量線を取得する必要がない。また、共鳴を用いずに解析が行えるため、軽元素を含めて複数の物質の評価が原理的に可能な手法である。

ENTAX の原理実証実験では、HUNS 熱中性子源ポートにおいて、GEM 検出器を用いて、鉄単体、炭素単体、鉄・炭素積層試料の中性子透過率スペクトルを測定した。単体試料の中性子透過率スペクトルから計算した巨視的全断面積スペクトルと評価済み核データから計算したものを比較し、フィッティング解析範囲を 0.3 – 20 eV に決定した。決定したフィッティング範囲において、ENTAX を 3 つの試料に適用した結果、鉄と炭素の単体試料では数%程度の評価誤差で面密度が評価できた。また、鉄と炭素の積層試料ではそれぞれの面密度を 10%以内の評価誤差で評価することができた。従って、ENTAX の原理が成立していることを確認した。また、ENTAX が軽元素を構成物質の一部とする複数物質の面密度を評価可能な手法であることを実証した。

以上より、ENTAX は、軽元素を含めて複数の物質が評価可能であり、従来の中性子透過型イメージング手法による定量イメージングが困難な試料に対しても、定量イメージングが行える手法となり得ることが確認出来た。



## 第3章 ENTAX のための実験体系の構築

2章で説明したように、ENTAXは、中性子透過率スペクトルが原子核一個の全断面積を反映することを利用しており、中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性とその大きさから、複数物質の量を解析する。測定される中性子透過率スペクトルに系統誤差が混入する場合、そのエネルギー依存性と大きさが変化するため、原子核一個の全断面積を正確に反映しなくなってしまう。そのため、ENTAXによる物質の定量評価が妥当に行えなくなる。従って、ENTAXを行う場合には、測定される中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差を限りなく小さくする必要がある。

本章では、ENTAXを行うための実験体系として、測定される中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差を出来るだけ小さくした体系を構築するため、考え得る系統誤差の要因を、Hokkaido University Neutron Source (HUNS) の熱中性子源ポートを例として列挙し、それぞれの項目についてその影響を調査した。また、各要因の対策方法について言及し、系統誤差を低減する体系を、HUNS熱中性子源ポートにおいて考案・構築した。構築した実験体系における、系統誤差の低減の結果及び、ENTAXによる定量精度の確認結果についても述べる。

### 3.1. 中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差の要因とその調査

実験で測定される中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差の要因として、HUNSの熱中性子源ポートを例として考えた場合、以下の項目が考えられる。

#### 1. モデレータ温度の変化：

HUNS熱中性子源ポートでは、ポリエチレンモデレータを使用しており、温度制御を行っていない。モデレータ温度の変化は、中性子スペクトルの変化をもたらすため、測定される中性子透過率スペクトルへの系統誤差となり得る。

#### 2. 環境中性子の混入：

実験室内の中性子ダンプや天井、床、壁から、検出器へ回り込む中性子が存在する。また、中性子遮蔽体からの反射中性子、フレームオーバーラップの影響等も存在し、これらは、測定される透過率スペクトルの系統誤差となり得る。

#### 3. 検出器の安定性：

HUNS熱中性子源ポートでは、主にGEM検出器[2-9]が使用されている。検出器のゲインに変動がある場合、測定される中性子強度が変動し、系統誤差になり得る。

本節では、それぞれの項目について調査する実験を行い、各要因が測定される中性子透過

率スペクトルにどの程度の大きさに影響しているかを調べた。また、影響が大きい場合には、対策方法の考案を行った。

### 3.1.1. ポリエチレンモデレータの温度変化による系統誤差の調査

HUNS 熱中性子源ポートでは、中性子減速材として、常温のポリエチレンモデレータを用いており、モデレータの温度制御は行っていない。しかし、高エネルギー中性子を減速する過程や加速された荷電粒子からの熱の流入等により、モデレータの温度は加速器駆動に伴い変化することが考えられる。特に、HUNS のような電子線を使用した中性子源では、 $(\gamma, n)$  反応により中性子を発生させるため、反応に用いられなかった  $\gamma$  線によるモデレータへの熱の流入が考えられ、温度変化が大きいと予想される。

モデレータの温度が変化する場合、測定される中性子スペクトルのエネルギー依存性とその大きさは、原理的に変化してしまう。ENTAX に限らずパルス中性子透過分光法を用いた解析手法では、中性子透過率スペクトルを測定する。しかし、中性子スペクトルが変化する場合、測定される中性子透過率スペクトルは、試料の全断面積だけでなく、モデレータの温度変化の影響を受けたものとなってしまう。従って、モデレータの温度変化は、測定される中性子透過率スペクトルの系統誤差になり得る。

そこで、加速器駆動に伴いモデレータ温度がどの程度変化しているか、また、モデレータの温度変化による中性子透過率スペクトルへの影響はどの程度になるかを調査するため、モデレータ温度と中性子スペクトルの同時測定実験を HUNS 熱中性子源ポートにて行った。

また、多くのパルス中性子源施設において、温度制御をせずにポリエチレンモデレータを使用している[2-7, 3-1, 3-2, 3-3, 3-4, 3-5]が、モデレータ温度の変化と中性子透過率スペクトルに与える影響に関して調べられた例はない。そのため、本節の実験により得られる知見は、HUNS だけでなく常温のモデレータを使用する加速器駆動中性子源においても当てはまるものである。

#### 3.1.1.1. モデレータ温度・中性子スペクトル同時測定実験の体系・条件

加速器運転に伴うモデレータ温度の変化及び中性子スペクトルの変化を調査するため、HUNS 熱中性子源ポートのポリエチレンモデレータに熱電対を設置し、温度測定を行った。またそれと同時に、GEM 検出器による中性子スペクトルの測定も行った。

モデレータへの熱電対設置状況を図 3-1 に示す。図 3-1 (a) はモデレータ小片への熱電対設置状況を示す。熱電対は小片にポリイミドテープで張り付けた。また、図 3-1 (b) はモデレータ全体において熱電対がどの位置にあるかを示しており、図の赤点が熱電対の位置を表している。すなわち、モデレータのほぼ中心に熱電対を設置した。

(a)



(b)

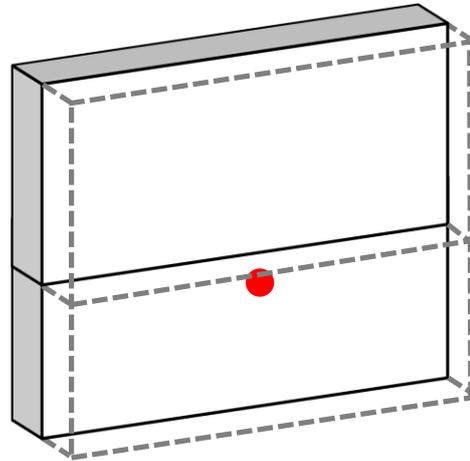


図 3-1. モデレータへの熱電対設置状況。

熱電対のもう一端は、データロガー（型番：GRAPHTEC midi LOGGER GL240）に接続し、温度の経時変化を測定した。また、温度は1秒毎に記録した。熱電対として、タイプ K（クロメルアルメル）を用い、断熱容器（デュワー瓶）に氷水を入れたものを使用して熱電対の零点保証を行った。

表 3-1 に実験条件を、図 3-2 に中性子測定体系を示す。表 3-1 に記載のない実験条件は、表 2-3 と同様である。また、原理実証実験と同様に、検出器には GEM 検出器を用い、検出器使用時のパラメータは表 2-2 と同様である。この測定では、ダイレクトビームのみ測定し、試料等は置かなかった。ダイレクトビームの総測定時間は6時間であり、測定5分毎に中性子数を積算し、一つの中性子スペクトルを得た。

表 3-1. モデレータ温度・中性子スペクトル同時測定実験における実験条件。

Neutron flight path	6.77 m
Detector	GEM detector
Recording mode	Event
TOF bin width	20 $\mu$ s
The number of TOF channel	1000
Detection neutron energy range	0.0006 - 2300 [eV]
Neutron counting rate in the energy range	$0.12 \times 10^4$ [n/cm <sup>2</sup> /s]

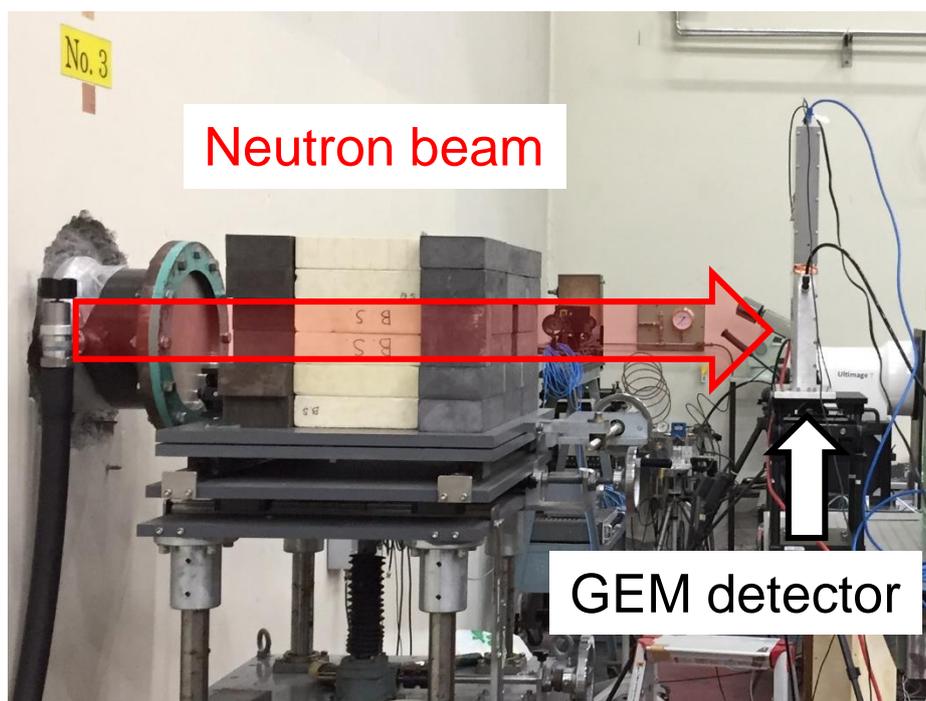


図 3-2. モデレータ温度・中性子同時測定実験における中性子測定体系。

### 3.1.1.2. ポリエチレンモデレータの温度測定結果

図 3-3 に加速器駆動時間に対するポリエチレンモデレータ温度 ( $T_{\text{moderator}}$ ) の変化を示す。1つのプロットは、データロガーで記録した温度の5分間の平均温度を示す。また、エラーバーは、1秒毎に記録した温度(5分間では300点)の標準偏差を示している。

図 3-3 より、モデレータの温度は、加速器駆動開始から6時間で5 K程度上昇していることがわかった。また、モデレータ温度は、加速器駆動開始から1時間までに急激に上昇し(4 K程度)、その後の5時間では緩やかに上昇していく(約1 K)ことがわかった。

従って、HUNS 熱中性子源ポートでは、加速器駆動に伴いポリエチレンモデレータの温度が上昇していることが明らかとなった。また、モデレータ温度上昇の傾向として、加速器駆動1時間で急激に上昇し、その後は緩やかな上昇となっていることがわかった。

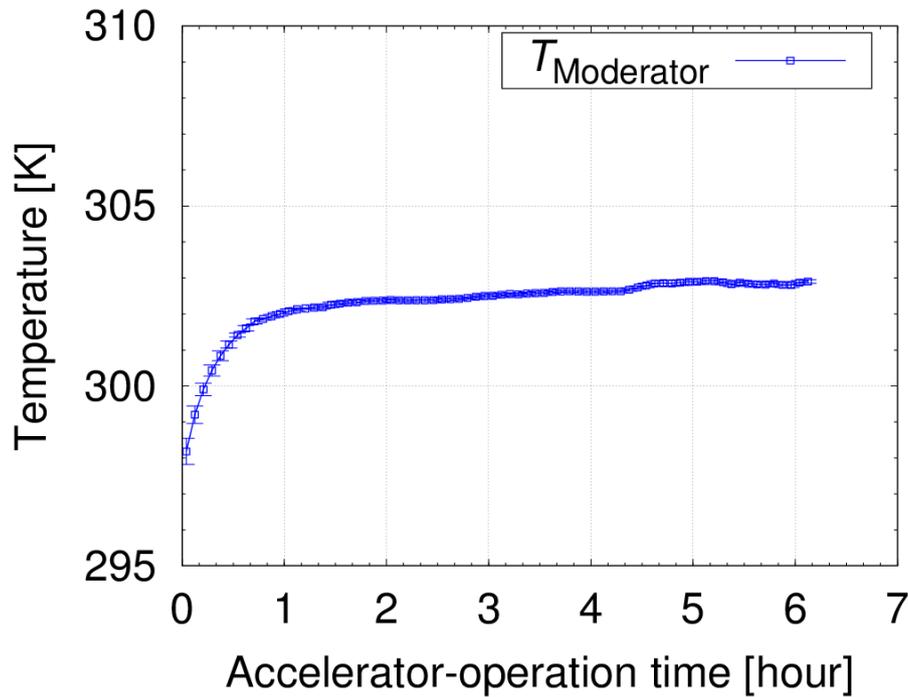


図 3-3. 加速器駆動時間に対するポリエチレンモデレータの温度変化。

### 3.1.1.3. 中性子実効温度の導出

前節で HUNS 熱中性子源ポートのモデレータ温度が加速器駆動に伴い上昇することがわかった。次に、モデレータの温度変化により、中性子スペクトルの変化が生じているかを確認するため、測定された中性子スペクトルに対しマクスウェル・ボルツマン分布をフィッティングし、中性子スペクトルの実効温度[3-6]を求めた。中性子スペクトルがモデレータ温度の変化に追隨して変化しているならば、中性子スペクトルの実効温度はモデレータ温度に追隨して変化するはずである。

フィッティングに用いたマクスウェル・ボルツマン分布の式を式 3.1 に示す。

$$\begin{aligned}
 f_{eq}(E) &= N \times 4\pi v^2 \left( \frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} \exp\left( -\frac{mv^2}{2kT} \right) \\
 &= N \times \frac{4E}{kT} \sqrt{\frac{m}{2\pi kT}} \exp\left( -\frac{E}{kT} \right)
 \end{aligned}
 \tag{3.1}$$

ここで、 $E$  [J]は中性子のエネルギー、 $N$ は総中性子数、 $v$  [m/s]は中性子の速度、 $m$  [kg]は中性子質量、 $k$  [kg·m<sup>2</sup>/s<sup>2</sup>/K]はボルツマン定数、 $T$  [K]は中性子の実効温度を示す。式 3.1 は  $E$  の単位が [J]であり、フィッティングの際は単位を eV に変換して用いた。

また、熱中性子領域よりも高いエネルギー領域においても、以下の式 3.2 を用いて中性子スペクトルのフィッティングを行った。

$$f_{1/E}(E) = \frac{1}{1 + \exp(a/\sqrt{E} - b)} \times \frac{c}{E} \left(\frac{E}{E_0}\right)^\alpha \quad (3.2)$$

ここで、 $a, b, c, \alpha$  はフィッティングパラメータであり、 $E_0$  は 1 eV を示す。式 3.2 の乗算記号の前は接続関数、後ろは  $1/E$  関数と呼ばれる関数であり、中性子スペクトルのフィッティングに用いられる関数となっている[3-7]。

図 3-4 に測定された中性子スペクトルに対し式 3.1 および 3.2 でフィッティングした一例を示す。フィッティング関数として式 3.1 と式 3.2 の和を用いて、実験で測定された中性子スペクトルに対し、0.01 – 10 eV の範囲でフィッティングを行った。フィッティングにより動かすパラメータは、 $N, T, a, b, c, \alpha$  の 6 つであり、これらの初期値は、以下の手順により、解に近い値を求めた。

1. 0.01 – 0.07 eV において、式 3.1 のみでフィッティングを行い、 $N$  と  $T$  の初期値を決定。
2. 0.5 – 10 eV において、 $1/E$  関数（式 3.2 右辺の第二項）のみでフィッティングを行い、 $c, \alpha$  の初期値を決定。
3. 0.01 – 10 eV において、予め求めた  $N, T, c, \alpha$  を式 3.1 と式 3.2 の和に代入・固定した状態でフィッティングを行い、 $a, b$  の初期値を決定。

図 3-4 において、測定されたスペクトルとフィッティング結果は、フィッティング範囲 (0.01 – 10 eV) においてよく合っていることがわかる。また、0.01 eV 以下の領域で実測した中性子スペクトルとフィッティング結果が合っていない。この理由は、実測される中性子スペクトルはモデレータが有限の大きさを持つため、完全な熱平衡状態にならないこと、また、モデレータ材質による中性子の吸収が生じ、特に低エネルギー側で吸収が大きいためである[3-6]。

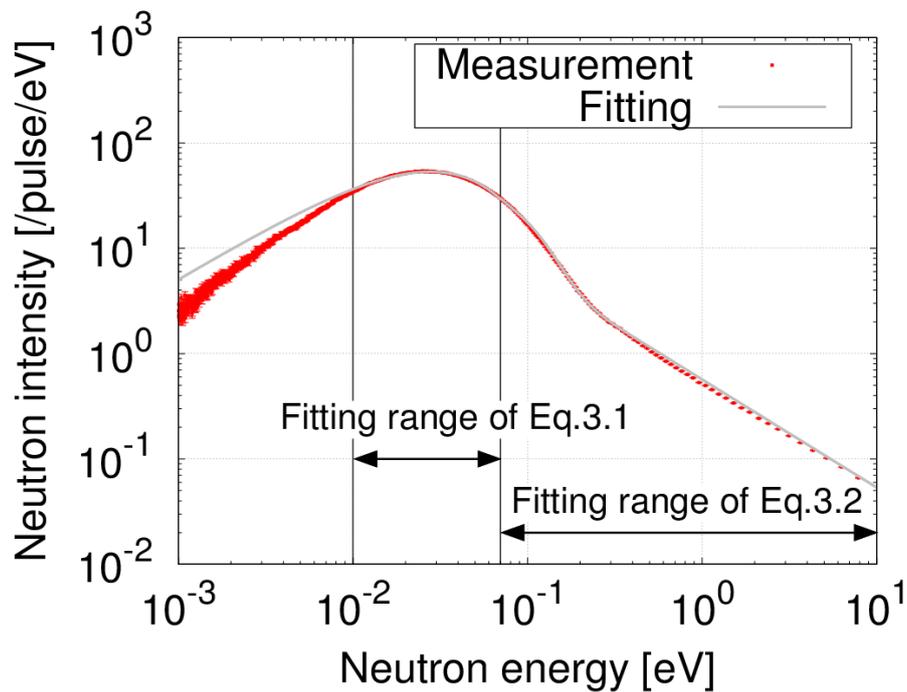


図 3-4. 中性子スペクトルに対するフィッティングの一例。

#### 3.1.1.4. 中性子実効温度のモデレータ温度に対する依存性

6 時間の測定データから測定時間 5 分毎に積算して中性子スペクトルを得た。5 分毎の中性子スペクトルそれぞれに対し、3.1.1.3 節で述べた方法によりフィッティングを行い、中性子実効温度 ( $T_{\text{neutron}}$ ) の時間変化を得た。 $T_{\text{neutron}}$  を加速器駆動時間に対してプロットしたものを図 3-5 に示す。図 3-5 には、中性子実効温度の時間変化に加え、モデレータ温度の時間変化と実効温度とモデレータ温度の比も示す。

図 3-5 上図より、モデレータ温度の変化に追従して中性子温度も同様の傾向で変化していることがわかる。また、図 3-5 下図の  $T_{\text{neutron}}$  と  $T_{\text{moderator}}$  の比がほぼ一定であることから、中性子実効温度の変化がモデレータ温度の変化によって生じていることが確認できた。すなわち、モデレータ温度の変化により、中性子スペクトルが変化していることが確認された。モデレータ温度の上昇の原因としては、中性子発生に伴って発生する  $\gamma$  線や高エネルギー中性子の減速によるモデレータへの熱付与等であると考えられる。

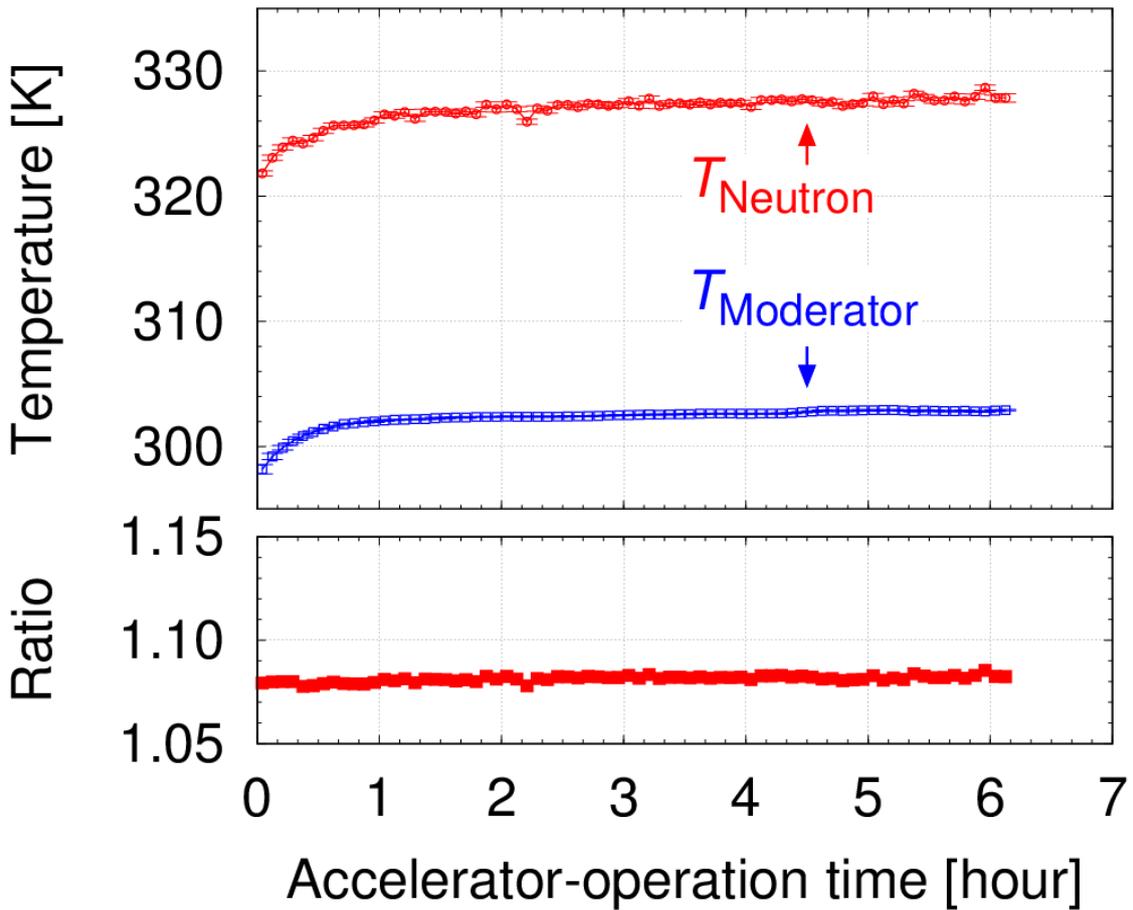


図 3-5. 中性子実効温度とモデレータ温度の時間変化及びその比。

### 3.1.1.5. モデレータ温度の変化が透過率スペクトルに及ぼす影響

モデレータ温度の変化が、測定される中性子透過率スペクトルにどの程度影響するかを評価するため、モデレータ温度が異なる時間に測定された二つの中性子スペクトルを用いて、中性子透過率スペクトルへの影響をシミュレーションした。鉄 5 mm 厚の単体試料の透過率スペクトルを、温度差がない場合（理想的なスペクトル）と温度差がある場合をシミュレーションし、それらの比較を行うことにより、モデレータ温度の変化が中性子透過率スペクトルに及ぼす影響を評価した。

モデレータ温度に差がある場合の透過率スペクトルは、図 3-5 における  $T_{\text{moderator}} = 298.2 \text{ K}$ （加速器駆動時間 0-5 分）の時の中性子スペクトルと  $T_{\text{moderator}} = 302.9 \text{ K}$ （加速器駆動時間 360-365 分間）の時の中性子スペクトルを用い、それらを式 3.3 および式 3.4 に代入することにより、シミュレーションした。

$$Tr(E) = \frac{I'(E)}{I(E)} \quad (3.3)$$

$$I'(E) = I(E) \times \exp(-N\sigma(E)) \quad (3.4)$$

式 3.3 における  $I'(E)$  として、式 3.4 の  $I(E)$  に  $T_{\text{moderator}} = 302.9 \text{ K}$  の時の中性子スペクトル、 $N$  に鉄 5 mm の面密度 ( $4.246 \times 10^{22} [\text{cm}^2]$ )、 $\sigma$  に鉄の評価済み核データ (JENDL-4.0) を代入して得たものを用いた。そして、式 3.3 の  $I(E)$  として、 $T_{\text{moderator}} = 298.2 \text{ K}$  における中性子スペクトルを用いた。以上の計算過程により、モデレータに 4.7 K の温度差がある場合、すなわち、実験で測定したモデレータ温度における最大の温度差を仮定した場合の中性子透過率スペクトルをシミュレーションした。

モデレータに温度差がない場合の透過率スペクトルは、式 3.4 の  $I(E)$  と式 3.3 の  $I(E)$  に代入する中性子スペクトルを同じにすることにより、シミュレーションした (すなわち、 $Tr(E) = \exp(-N\sigma(E))$ ) となり、鉄 5 mm 厚の理想的な透過率スペクトルとなっている。

図 3-6 にモデレータ温度に 4.7 K の差がある場合の鉄 5 mm 厚試料の透過率スペクトル (Simulated) を統計誤差と共に示す。また、モデレータ温度に差がない鉄 5 mm の透過率スペクトル (Theoretical) も同時に示す。このシミュレーションでは、測定した中性子スペクトルのビン幅を対数軸において等分されるように改めてビニングしている。図 3-6 において、Simulated と Theoretical を比較すると、およそ 0.002 - 0.05 eV においては、Simulated は Theoretical よりも小さな値になり、最大で 3% 程度の差 (0.004 eV 付近) が生じていた。また、0.05 - 0.3 eV において、Simulated は Theoretical より大きな値となり、最大で 3% 程度の差 (0.15 eV 付近) が生じていた。従って、HUNS 熱中性子源ポートのポリエチレンモデレータにおいて、4.7 K の温度差が生じた場合、中性子透過率スペクトルには、0.002 - 0.3 eV のエネルギー領域で最大 3% 程度の影響が生じることが確認された。

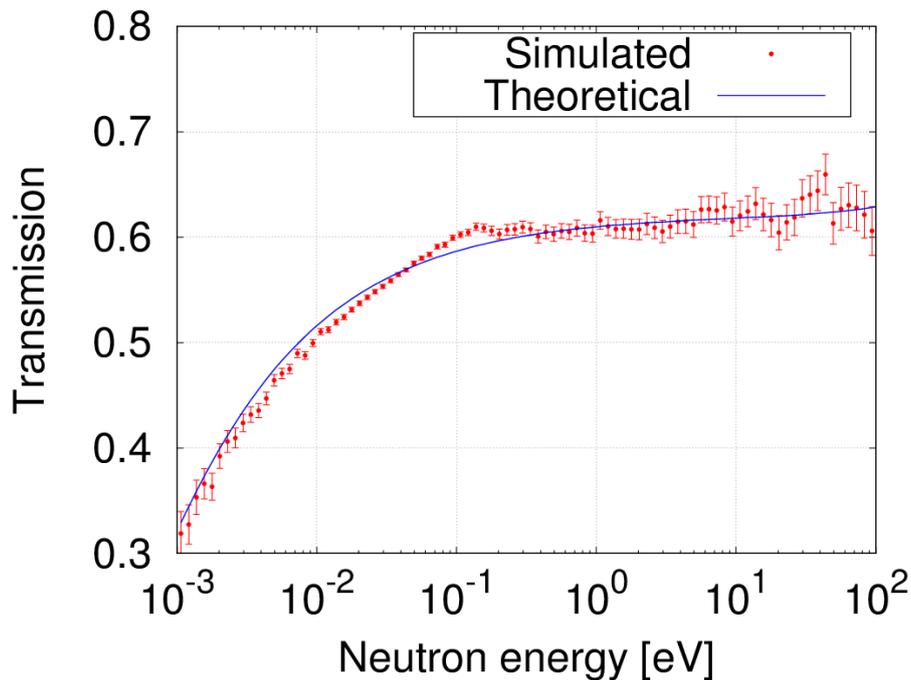


図 3-6. モデレータ温度に差がある場合と差がない場合の透過率スペクトルの比較。

### 3.1.1.6. モデレータ温度の変化が ENTAX による解析に及ぼす影響

HUNS 熱中性子源ポートのポリエチレンモデレータにおいて、6 時間の加速器運転により最大 4.7 K のモデレータ温度の上昇が確認され、また、モデレータ温度が 4.7 K 変化すると中性子透過率スペクトルには、0.002–0.3 eV において、3%程度の影響を与えることがわかった。

モデレータ温度変化により中性子透過率スペクトルが変化した場合に、ENTAX の解析値にどの程度の影響があるかを評価するため、図 3-6 の 4.7 K のモデレータ温度差がある場合の透過率スペクトルに対し、ENTAX を適用した。図 3-7 にその結果を示す。フィッティング解析範囲を、原理実証実験と同様の 0.3–20 eV とした場合、ENTAX により解析された面密度の値 ( $4.253 \times 10^{22} [\text{cm}^{-2}]$ ) は、シミュレーション時に設定した面密度 ( $4.246 \times 10^{22} [\text{cm}^{-2}]$ ) と比較し、ほぼ同様の値となり、差は 0.1%程度であった。従って、原理実証実験と同様の 0.3–20 eV を解析範囲とする場合、4.7 K のモデレータ温度の変化は、ENTAX による解析値に影響を与えないことがわかった。

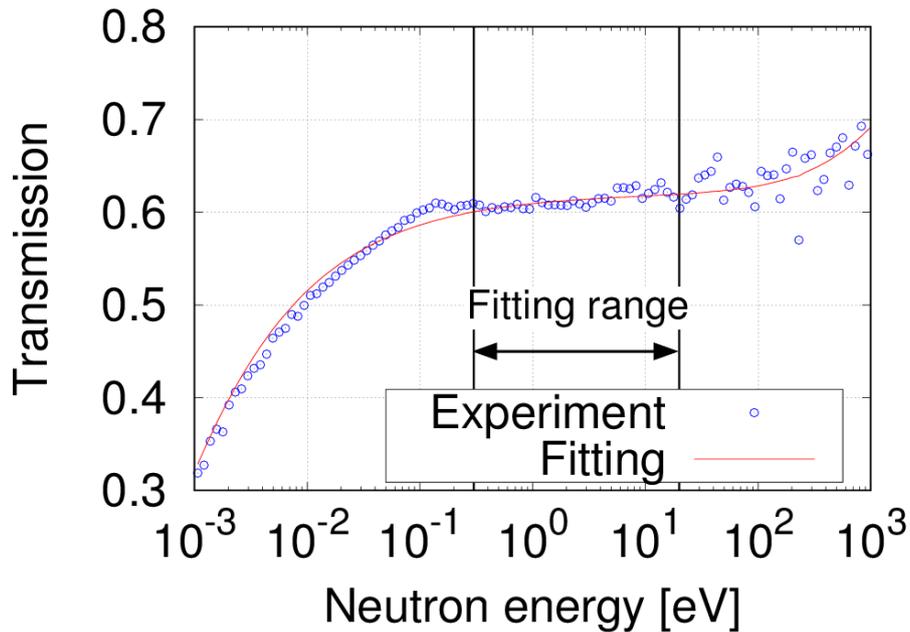


図 3-7. 模擬した中性子透過率スペクトルに ENTAX を適用した結果。

しかし、5章で後述するが、試料のブラッグ散乱が弱い場合、フィッティング範囲を広げたほうが定量精度において有利になる場合が存在する。そのような場合を想定して、フィッティング範囲の下限値をより低エネルギー側に設定し、0.05 – 20 eV においてフィッティング解析を行った場合の結果についても述べる。

図 3-8 に解析範囲を 0.05 – 20 eV としフィッティングを行った結果を示す。モデレータ温度の変化による影響を受けた領域がフィッティング範囲に含まれることがわかる。この場合、解析された面密度の値 ( $4.136 \times 10^{22} [\text{cm}^2]$ ) は、設定した値 ( $4.246 \times 10^{22} [\text{cm}^2]$ ) と比べ、差が-2.6%となり、影響を受けることがわかった。また、以上に示したシミュレーションでは 5 mm 厚の鉄を想定したが、より面密度の小さい試料において同様の範囲でフィッティング解析を行った場合、モデレータ温度の変化による影響はより顕著に現れる。例えば、1 mm 厚の鉄を想定して同様のシミュレーションと ENTAX による解析を行うと、得られる面密度の値 ( $7.396 \times 10^{21} [\text{cm}^2]$ ) は、設定した面密度 ( $8.491 \times 10^{21} [\text{cm}^2]$ ) に比べ、10%以上過小評価される結果となった。これは、モデレータ温度の変化による透過率スペクトルへの影響は、試料の厚さにより変わらないが、鉄試料が透過率スペクトルに与えるシグナルは 5 mm の場合と 1 mm の場合を比較すると、1/5 (もしくは 5 倍) となるため、モデレータの温度変化の影響をより受けてしまったと考えられる。

従って、4.7 K のモデレータ温度差の影響は、0.3 eV よりも低いエネルギー領域を ENTAX の解析範囲として用いる場合に現れる。また、その影響は、試料の面密度や断面積の大きさにより異なるが、試料が透過率スペクトルに与える影響が小さくなるほど、大きな影響として現れる。

今回のシミュレーションでは、0.3 eV よりも大きなエネルギー範囲では、モデレータ温度の変化により、透過率スペクトルの形状が変化しなかったため、この領域で解析を行えば、ENTAX に対する影響はほぼないことがわかった。ただし、モデレータの温度差が 4.7 K よりも顕著に生じる場合には、より中性子スペクトルの変化が大きくなり、さらに高エネルギー側まで影響を受けると予想されるため、注意すべきである。

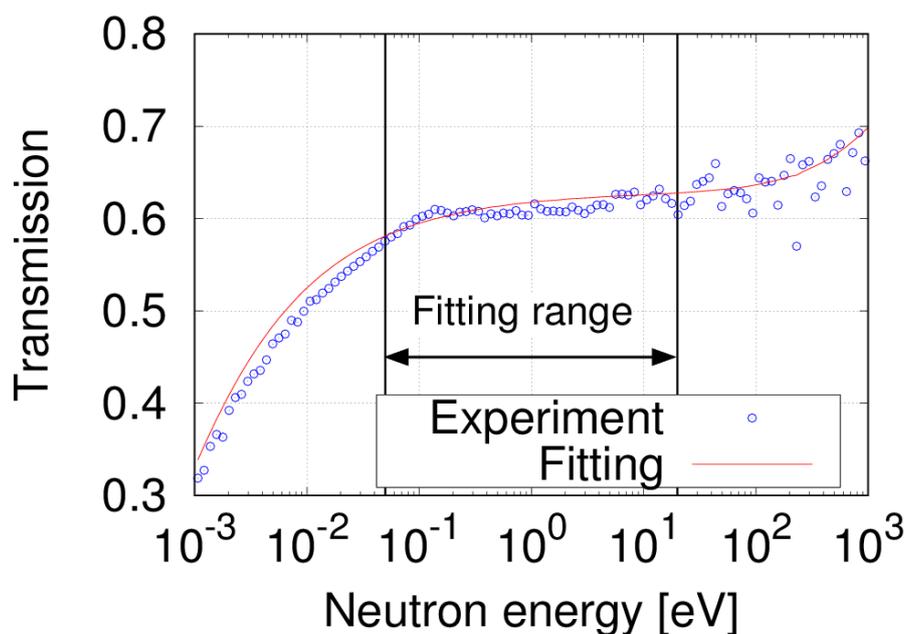


図 3-8. 模擬した透過率スペクトルに ENTAX の解析範囲を広げて適用した結果。

### 3.1.1.7. モデレータ温度の変化に対する対応策

HUNS 熱中性子源ポートでは、ポリエチレンモデレータの温度が加速器駆動に伴って上昇し、6 時間の運転で最大 4.7 K の温度上昇があることを確認した。この温度上昇によって、0.002 – 0.3 eV のエネルギー範囲において、中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性が最大で 3% 程度変化することがわかった。また ENTAX の解析範囲を 0.3 eV 以上の領域とした場合、解析値はモデレータ温度の変化に対する影響を受けない。しかし、0.3 eV より低いエネルギー範囲を使用する場合、解析値が影響を受けることもわかった。従って、サブ eV より低いエネルギー範囲を解析に用いる場合には、モデレータ温度の変化に対する対応策が必要となる。

図 3-3 より、モデレータ温度は、加速器駆動から最初の 1 時間で大きく上昇していることがわかる。具体的には、最初の 1 時間でモデレータ温度は約 4 K 上昇し、後の 5 時間で 1 K 程度の上昇が見られている。このことから、モデレータ温度をモニターし、モデレータ温度が大きく変化している最中のデータを使用しないことが、一つの対応策になると考えられる。例えば、加速器駆動開始から 1 時間後の中性子スペクトル ( $T_{\text{moderator}} = 302.1 \text{ K}$ ) と加速器駆動開始から 360-365 分の間の中性子スペクトル ( $T_{\text{moderator}} = 302.9 \text{ K}$ ) を用いて、3.1.1.5

節と同様に温度差がある場合のシミュレーションを行うと、図3-9の Simulated が得られる。図3-6に比べ、図3-9における Simulated は Theoretical とほとんど一致していることがわかる。図3-9の Simulated に対し、0.05–20 eVにおいて ENTAX を適用すると、解析された面密度の値 ( $4.230 \times 10^{22} [\text{cm}^{-2}]$ ) と設定値 ( $4.246 \times 10^{22} [\text{cm}^{-2}]$ ) の差は0.3%程度であり、また1 mm厚さの鉄を仮定した場合でも差は1.8%程度となった。従って、モデレータ温度の差が1 K程度であれば、フィッティング範囲を広げた状態でも、ENTAXの解析にはほとんど影響はないことがわかった。従って、モデレータ温度をモニターし、モデレータ温度に1 K以上の温度差がある測定データを使用しないことが、対策の一つと考えられる。また、それ以外には、中性子スペクトルモニターを設置し、モニターで測定された中性子スペクトルを用いて規格化することも考えられる(3.2節で詳しく述べる)。

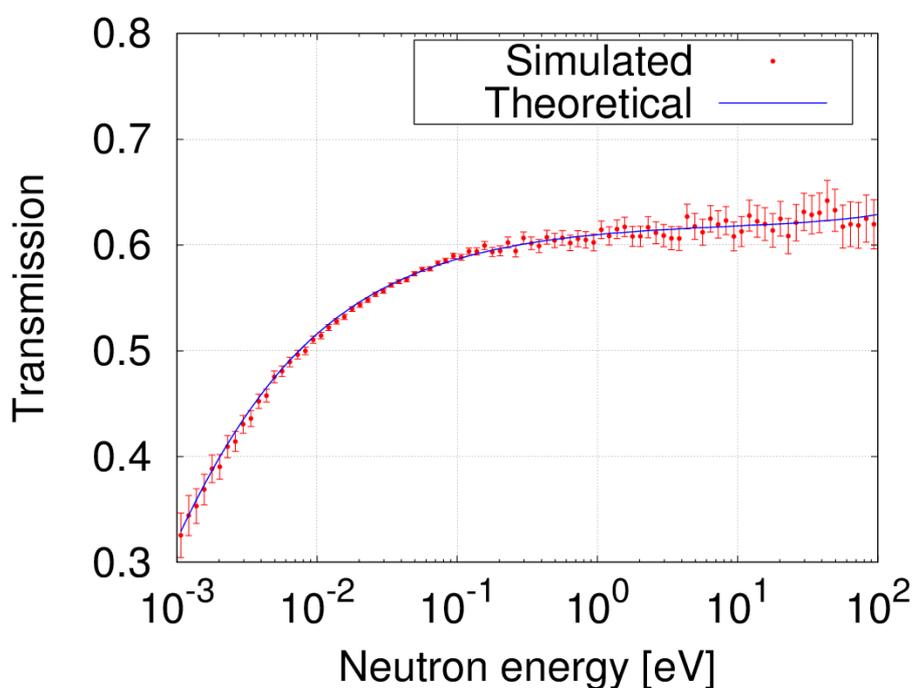


図3-9. モデレータ温度差が1 K以下の中性子スペクトルによる模擬透過率スペクトル。

### 3.1.1.8. モデレータ温度の変化による中性子透過率スペクトルへの系統誤差のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおいて、モデレータ温度と中性子スペクトルの同時測定実験を行った。加速器駆動に伴い、モデレータ温度が変化していることを確認し、6時間の測定で最大4.7 Kの温度上昇があることがわかった。また、モデレータの温度上昇に伴い、中性子スペクトルのエネルギー依存性が、0.002–0.3 eVの範囲において変化しており、モデレータ温度に4.7 Kの差がある場合、測定される中性子透過率スペクトルは、理想的なスペクトルに比べ、0.002–0.3 eVの範囲で最大3%程度変化することがわかった。従って、モデレータ温度の変化による中性子スペクトルの系統誤差は、4.7 Kの温度差がある場合に、3%程

度の大きさとなることがわかった。

また、モデレータ温度に差がある場合を模擬した透過率スペクトルに ENTAX を適用することで、モデレータの温度変化が ENTAX に及ぼす影響も見積もった。0.002–0.3 eV におけるエネルギー範囲を解析領域に含める場合、モデレータ温度の変化は ENTAX の解析値に影響を及ぼし、試料の面密度や断面積の大きさに依存するが、数%~10%程度の解析誤差を及ぼすことがわかった。逆に、0.002–0.3 eV におけるエネルギー範囲を解析領域に含めない場合は、ほぼ影響がないことがわかった。

ENTAX における解析範囲を低エネルギー側に広げるためには、モデレータ温度の変化による系統誤差を低減する必要がある。モデレータ温度の変化による系統誤差への対策は、モデレータ温度のモニターを行いモデレータ温度の差が 1 K 以上のデータを使用しないこと、または中性子スペクトルモニターを設置し、中性子スペクトルの変化を考慮して規格化を行うことが有効だと考えられる。

以上の知見は、HUNS 熱中性子源ポートだけでなく、他の常温モデレータを使用するパルス中性子源施設においても、中性子透過率スペクトルの系統誤差を低減する上で有効なものである。

### 3.1.2. 環境中性子の混入による系統誤差の調査

中性子は透過力が強い反面、実験環境に置かれた物体により散乱され、検出器に回り込んで混入する可能性が高い。このような中性子が検出器に混入する場合、式 3.5 に示すように、測定される中性子透過率スペクトル  $Tr(E)$  の系統誤差となってしまう。

$$Tr(E) = \frac{I(E) + I_B(E)}{I_0(E) + I_B(E)} > \frac{I(E)}{I_0(E)} = Tr_{\text{theoretical}}(E) \quad (3.5)$$

ここで、中性子の  $I_0(E)$  はダイレクトビームの中性子スペクトル、 $I(E)$  は試料を透過した中性子スペクトル、 $I_B(E)$  は実験環境から混入する中性子のスペクトルを示す。試料の全断面積を反映するような理想的な透過率を  $Tr_{\text{theoretical}}(E)$  とすると、 $I_B(E)$  が混入する場合、測定される透過率スペクトル  $Tr(E)$  は、必ず  $Tr_{\text{theoretical}}(E)$  より大きくなってしまふことがわかる。従って、実験環境から回り込む中性子は中性子透過率スペクトルの系統誤差になり得る。また、パルス中性子源における実験環境から生じる系統誤差の一因として、フレームオーバーラップ中性子（詳細は、3.1.2.4 節で述べる）も考えられる。

本節では、パルス中性子源施設の実験環境から混入するバックグラウンド中性子を環境中性子と定義し、以下 3 点の影響を検討した。そして、HUNS 熱中性子源ポートにおいて、それらの混入量を調査する実験を行った。

1. 実験環境から検出器への回り込む中性子（回り込み中性子）
2. 検出面下流にある検出器遮蔽体からの反射中性子
3. フレームオーバーラップ中性子

中性子の散乱は、物質の吸収断面積が小さくなる高エネルギーの中性子であるほど生じやすく、そのため、回り込み中性子や反射中性子が混入する可能性は、中性子のエネルギーが高くなるほど、大きくなる。原理実証実験において、20 eV よりも高エネルギーの領域において、実測断面積が評価済み核データに比べ小さくなる傾向が見えた原因としても、環境中性子の混入は十分に考え得る。

### 3.1.2.1. HUNS における基本的な回り込み中性子遮蔽体系

HUNS 熱中性子源ポートでは、以前から中性子測定実験が行われてきており、当然ながら回り込み中性子の混入を想定して、それを防ぐための実験体系の構築が行われてきた。回り込み中性子の混入を防ぐための重要な要素は、中性子ビームの成形と測定試料・検出器等の遮蔽体系の二点であり、HUNS における回り込み中性子遮蔽体系構築の基本方針は以下2点である。

1. 中性子ビームを適切に成形し、試料と検出器以外に中性子ビームが当たらないようにする。
2. 中性子ビームの飛行経路以外を可能な限り隙間なく遮蔽体で囲み、環境中性子の混入を防ぐ。

この基本方針は、中性子ビームがビームライン外に流出し、回り込み中性子や $\gamma$ 線発生の原因にならないよう中性子ビームを適切に成形すべきであること、また何らかの原因により存在する環境中性子がビームライン・測定試料・検出器に混入しないようにするべきであるということを示している。

原理実証実験では、その方針に従い、図 2-10 のような実験体系を構築した。図 2-10 をビーム成形・遮蔽体系に焦点を当てて改訂したものを図 3-10 に示す。この実験におけるビーム成形・遮蔽体系は以下3つの要素から構成した。

1. 中性子ビームシェイパー：10 cm 厚のポリエチレンと 10 cm 厚の  $B_4C$  レジンから成る。中性子ビームを 10 cm 角に整形している。
2. 試料遮蔽：ホウ酸レジンプロックを用いて 10 cm 角の筒を 20 cm の長さで作成した。中性子ビームライン外からの環境中性子が試料に入ることを防いでいる。
3. 検出器遮蔽：5 cm 厚のホウ酸レジジンで構成されている。検出器の検出面以外を全て覆っており、回り込み中性子がビームライン外から検出器に混入することを防いでいる。

しかし、このように構築した体系においても、回り込み中性子の混入量を調査した例はなく、式 3.5 の  $I_B(E)$  がどの程度の大きさとなっているかはわかっていなかった。そこで、回り込み中性子の混入量を測定する実験を行った。

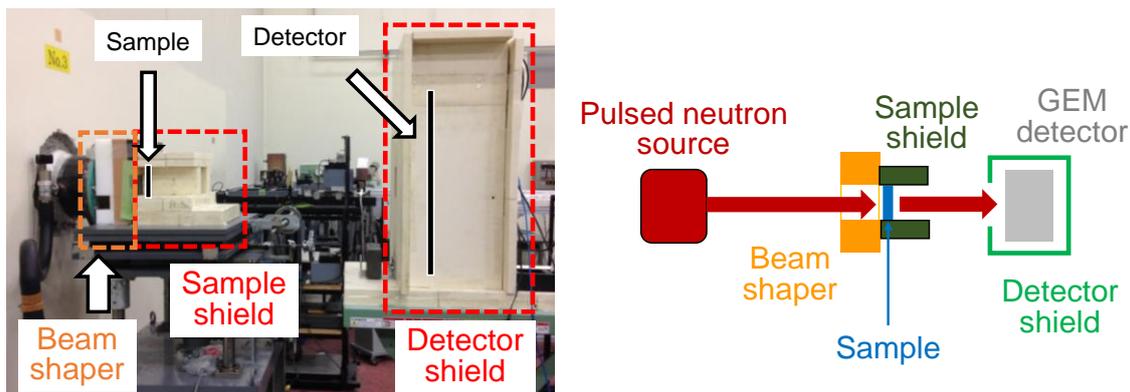


図 3-10. 遮蔽体系に注目した ENTAX の原理実証実験における実験体系。

### 3.1.2.2. 実験室環境における回り込み中性子による系統誤差の調査

中性子実験を行う施設では、実験環境に置かれた物体に中性子が散乱され、回り込み中性子となって、バックグラウンドとなる。HUNS 熱中性子源ポートにおいて、検出器に混入する回り込み中性子の量を測定し、測定される中性子透過率スペクトルに対して、どの程度の系統誤差となっているかを調査した。

#### 3.1.2.2.1. 回り込み中性子の混入量測定実験

HUNS 熱中性子源ポートの検出器位置において、実験環境からの回り込み中性子がどの程度混入しているかを調査するため、中性子ビームを検出器の手前で遮蔽体により完全に止め、回り込んでくる中性子のみを測定する実験を行った。

表 3-2 にこの実験の条件を示す。表 3-2 に記載のない項目は、表 2-3 と同様である。また、検出器には GEM 検出器を使用し、検出器使用条件は表 2-2 と同様である。

図 3-11 に回り込み中性子測定実験の基本体系を示す。中性子ビームの整形用に、3.1.2.1 節で述べた中性子ビームシェイパーを真空管ダクト直後に配置した。また 13.5 cm 厚さのホウ酸レジンブロック（ホウ酸：レジン=7：3（重量比）、密度 1.403 g/cm<sup>3</sup>）を GEM 検出器の検出面手前にビームストッパーとして配置し、中性子ビームが検出面で測定されないようにした。この基本体系に、以下の A-G のように遮蔽体系を追加し、中性子検出器で測定される中性子を測定した。ビームストッパーによって中性子ビームはほぼ吸収されるため、中性子検出器で測定される中性子は、混入した回り込み中性子のみと見なせる。A-G の順に測定することにより、回り込み中性子の混入量だけでなく、その方向依存性も調査した。

- A) 遮蔽なし
- B) 検出器の下面（検出器を置く台の下）にホウ酸レジン遮蔽体（5 cm 厚）を追加
- C) 検出器の正面にホウ酸レジン遮蔽体（2.5 cm 厚）を追加
- D) 検出器の側面にホウ酸レジン遮蔽体（2.5 cm 厚）を追加
- E) 検出器の上面にホウ酸レジン遮蔽体（2.5 cm 厚）を追加

- F) 検出器の背面（検出面の下流 10 cm 角は除く）にホウ酸レジン遮蔽体（10 cm 厚）を追加
- G) 検出面の下流 10 cm 角を塞ぐホウ酸レジン遮蔽体（10 cm 厚）を追加

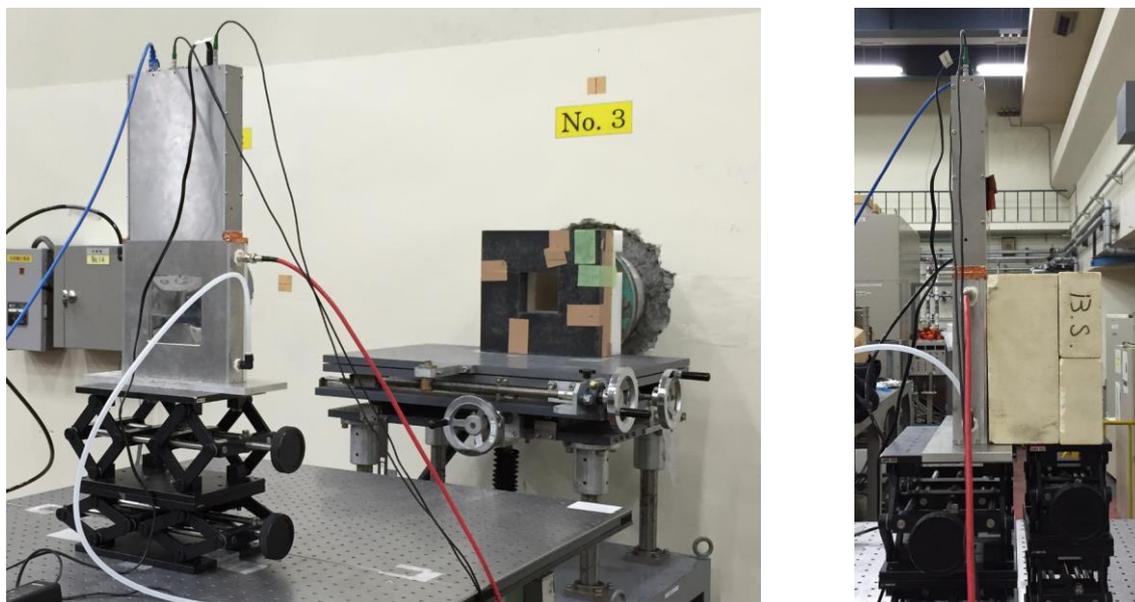


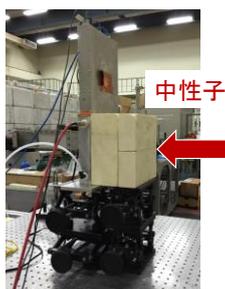
図 3-11. 回り込み中性子の混入量測定実験の基本体系。左は全体図、右はビームストッパーの設置状況を示す。

表 3-2. 回り込み中性子の混入量測定実験における実験条件。

Neutron flight path	7.20 m
Detector	GEM detector
Recording mode	Histogram
TOF bin width	5 $\mu$ s
The number of TOF channel	4001
Detection neutron energy range	0.0007 - 43000 [eV]
Neutron counting rate in the energy range	$0.10 \times 10^4$ [n/cm <sup>2</sup> /s]

図 3-12 に A-G のそれぞれの測定体系を示す。ビームストッパーがある状態で検出器の各方向に徐々に遮蔽を追加していくことで、どの方向からどれくらいの回り込み中性子が混入しているのかを測定した。また、回り込み中性子の量の比較の基準として、A の体系からビームストッパーを取り除いた体系でダイレクトビーム測定も行った。A-G、ダイレクトビームのそれぞれの測定時間は全て約 10 分である。

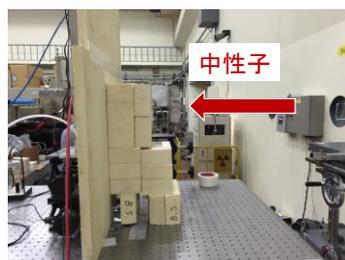
■ **パターンA** 遮蔽なし



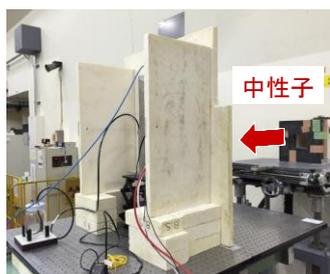
■ **パターンB**  
検出器**下面**に遮蔽体を追加



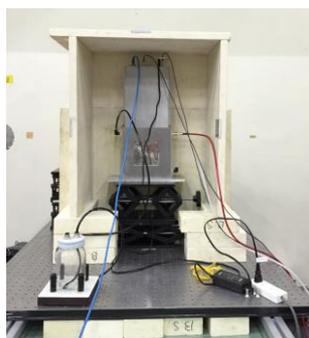
■ **パターンC**  
検出器**正面**に遮蔽体を追加



■ **パターンD**  
検出器**側面**に遮蔽体を追加



■ **パターンE**  
検出器**上面**に遮蔽体を追加



■ **パターンF**  
検出面下流を除いた検出器**背面**に遮蔽体を追加



■ **パターンG**  
検出面**下流**に遮蔽体を追加



図 3-12. 回り込み中性子の混入量測定実験における遮蔽の追加状況。

### 3.1.2.2.2. 回り込み中性子の測定結果と回り込み中性子による系統誤差の評価

図 3-13 に A-G の遮蔽体系において測定された中性子スペクトル、及び A の遮蔽体系においてビームストッパーを取り除いた場合のダイレクトビームスペクトルを示す。

A の遮蔽無し体系から G の遮蔽体系まで、遮蔽の追加に伴って、測定される中性子強度が徐々に減少していくことがわかる。また、F や G における中性子強度のばらつきが大きく、G においては低エネルギー側にプロットが存在しないことがわかる。これは、中性子のカウントがほぼ 0 に近い、もしくは 0 になっていることを意味しており、追加した遮蔽により中性子がきちんと遮られていることを確認できる。

A-G の遮蔽体系による回り込み中性子の混入量について議論する前に、まずこのデータの有効範囲について議論する。図 3-13 において、約 100 eV 以降で A-G の全ての体系における中性子スペクトルがほぼ一致していることがわかる。この理由として、100 eV 以降では回り込み中性子では説明のつかない系統誤差が存在する、もしくは、ビームストッパーや追加した遮蔽を回り込み中性子が透過している可能性が考えられる。また、図 3-13 は縦軸の範囲が広く見づらいため、図 3-14 に A と G の遮蔽体系における中性子計数率スペクトル（図 3-13 と違い検出効率の補正や変数変換を行っていない）を示す。このグラフにおいても、約 100 eV 以降において、A と G のスペクトルがほぼ同様の値になっていることがわかる。従って、図 3-13 のデータの有効範囲は、約 100 eV までと考えられる。

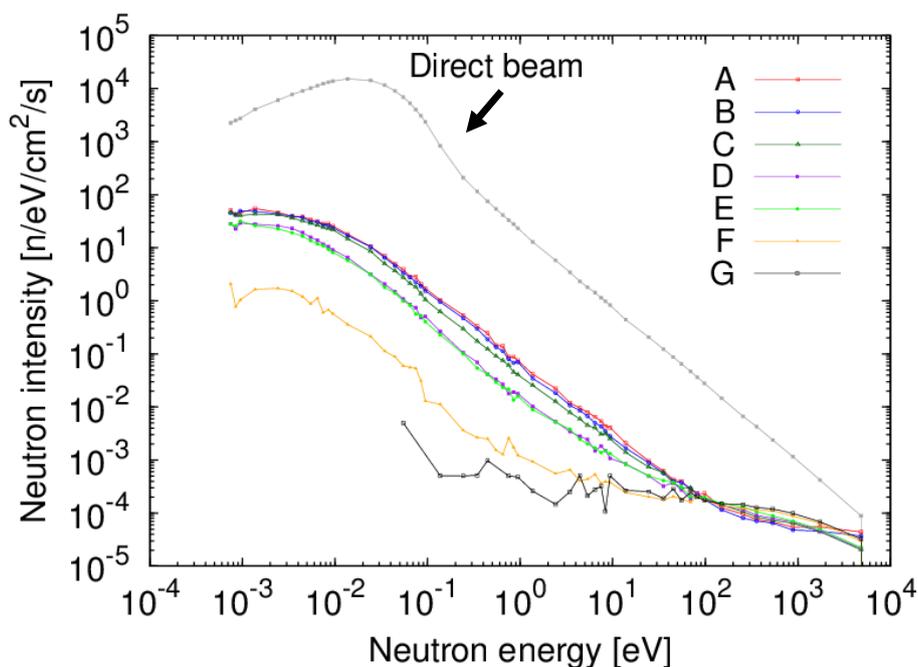


図 3-13. A-G の遮蔽体系における回り込み中性子強度。

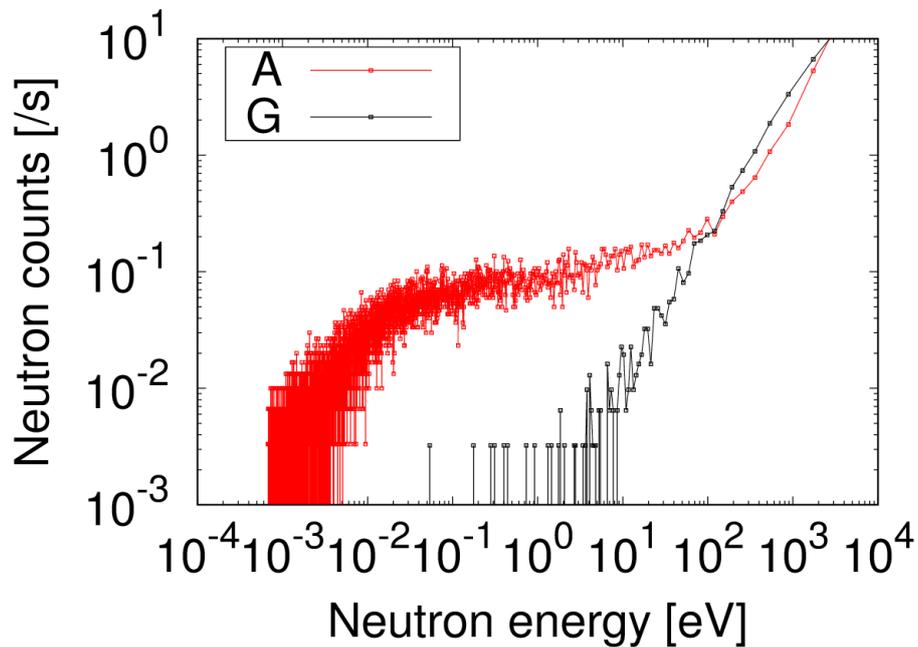


図 3-14. A と G の遮蔽体系における中性子計数率スペクトル。

次に、回り込み中性子の総量について議論する。図 3-15 に A-G の遮蔽体系における中性子スペクトルをダイレクトビームで割った結果を示す。遮蔽体系 A (遮蔽なし) とダイレクトビームとの比に着目すると、回り込み中性子の量は、100 eV 以下の大部分の領域で 1% 以下であり、およそ 0.002 eV 以下のエネルギー領域でのみ、1% を上回っていることがわかる。従って、実験体系の遮蔽がない状態であっても、回り込み中性子の総量は 100 eV 以下のエネルギー領域において、およそ 1% 未満であることがわかった。また、検出器の全方位に遮蔽を付け加えた G の体系とダイレクトビームの比に着目すると、1 eV 以下のエネルギー領域では回り込みがほぼ 0 となり、1 - 100 eV のエネルギー領域においても、0.01% - 0.1% 程度の値を示し、遮蔽によって回り込み中性子がさらに減っていることが確認できる。

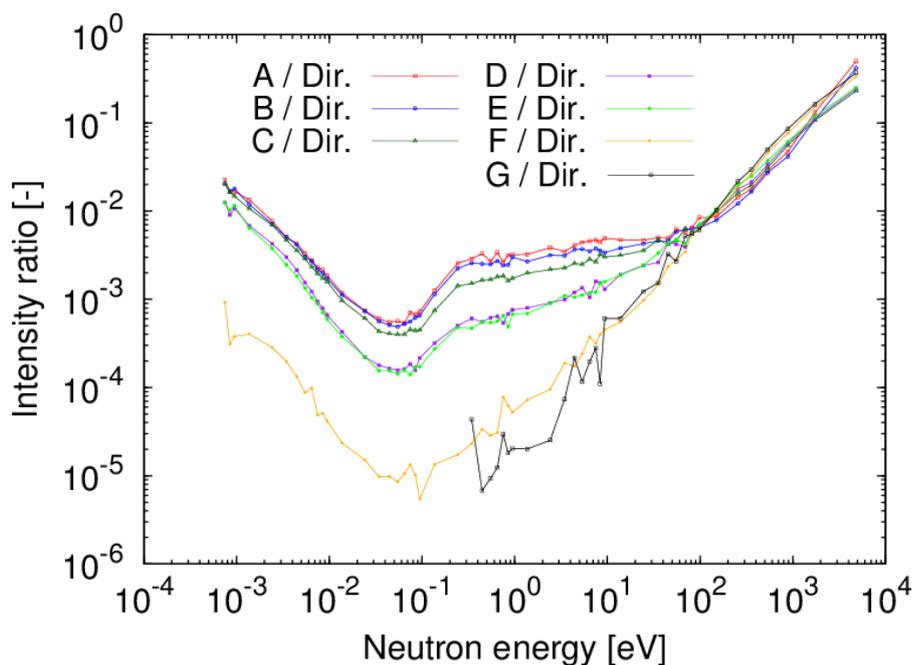


図 3-15. A-G の中性子スペクトルのダイレクトビームに対する比。

最後に、回り込み中性子の方向依存性について議論する。図 3-15 において、体系 A から遮蔽を徐々に追加していくと、比の値も徐々に減少し、検出器で測定される回り込み中性子の量が減少していることがわかる。ある方向に遮蔽を加えた際に、減少した測定強度が、その方向から混入した回り込み中性子の量と考えられるため、遮蔽追加前後の測定中性子強度の差を取ることで、その方向からの回り込み中性子の量を評価出来る。例えば、遮蔽体系 C、D における中性子スペクトル強度を  $I_C$ 、 $I_D$  とすると、遮蔽体系 D は側面に遮蔽を追加した体系であり、それ以外は遮蔽体系 C と同様なので、側面から回り込む中性子の量は  $I_C - I_D$  で計算される。このようにして、各方向から混入する回り込み中性子の量を計算した。そして、回り込み中性子の総量にあたる遮蔽体系 A の中性子強度に対する各方向からの回り込み中性子量の割合をとった。それを表 3-3 に示す。表 3-3 に記載の値は、100 eV 以下のエネルギー領域での積算中性子強度により計算した値である。この表より、回り込み中性子の混入量は、検出器の側面及び背面から混入する割合が多いことがわかる。従って、HUNS 熱中性子源ポートにおいて遮蔽体系を構築する上で、検出器の側面及び背面の遮蔽は特に重要になるという知見が得られた。また、割合の多寡はあるものの、どの方向からも回り込み中性子が混入しており、中性子測定の系統誤差を出来るだけ小さくするためには、検出器全体を遮蔽体で囲むべきであることが実験的に示された。この知見は、HUNS 遮蔽体系の基本方針と矛盾せず、今まで経験則に基づいていた基本方針を実験的に裏付ける結果となった。

表 3-3. 回り込み中性子総量に対する各方向からの回り込み中性子量。

Inflow direction	< 100 eV [%]
Bottom	5.1
Front	9.4
Both sides	36.8
Top	2.9
Behind	43.1
Behind detection area	2.8

また、図 3-15 において、体系 A から遮蔽を徐々に追加していった際に、例えば B/Dir.や C/Dir では、A/Dir.に比べて 0.1 eV 以上においてより減少する傾向が見える。これは、各方向からの回り込み中性子混入量にエネルギー依存性があることを意味している。よって、各方向から混入する回り込み中性子のエネルギー依存性を調べるため、回り込み中性子の混入量を 4 つのエネルギー領域に分けて積算し、表 3-3 と同様に計算を行った。0.01 eV 以下、0.01 – 0.1 eV、0.1 – 10 eV、10 – 100 eV の 4 領域における、回り込み中性子の混入量割合は表 3-4 のようになった。表 3-4 を方向毎に見ていく。検出器の側面と背面からは、全てのエネルギー領域において回り込み中性子が多く混入しているが、特に低エネルギーの中性子においてその割合が高くなっているのがわかる。すなわち、エネルギーの低い中性子は側面および背面から多く回り込んでいることがわかった。また、検出器下面と正面に着目すると、下面からはエネルギーの高い中性子ほど回り込みが多く、正面からは 0.1 – 10 eV において多く回り込みが存在することがわかる。従って、エネルギーの高い中性子は、側面と背面だけでなく下面や正面からも多く回り込んでくることがわかった。この結果より、測定したい中性子のエネルギーにより、注意して遮蔽すべき方向が異なることが明らかとなった。

表 3-4. エネルギー領域毎の回り込み中性子量。

Inflow direction	< 0.01 eV [%]	0.01 – 0.1 eV [%]	0.1 – 10 eV [%]	10 – 100 eV [%]
Bottom	4.9	6.5	11.3	20.4
Front	8.3	17.3	30.3	8.6
Both sides	35.8	44.8	33.4	30.9
Top	2.9	2.8	3.8	2.4
Behind	45.1	26.8	20.2	25.6
Behind detection area	3.0	1.8	0.8	0.6

### 3.1.2.2.3. 回り込み中性子による系統誤差の調査のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおいて、回り込み中性子の混入による系統誤差の大きさを評価するため、回り込み中性子の混入量を測定する実験を行った。検出器の検出面手前にビームストッパーがある場合とない場合において測定した中性子スペクトルから、回り込み中性子の量は 100 eV 以下のエネルギー領域において、ダイレクトビームに対してほぼ 1% 未満であることがわかった。また、検出器の周囲に回り込み中性子の混入を防ぐ遮蔽体を加えていくことにより回り込み中性子の量はさらに減り、検出器の全方向を遮蔽体で囲んだ場合、回り込み中性子の量はダイレクトビームに対してほぼ 0.1% 未満になることがわかった。従って、3.1.2.1 節で述べた HUNS における回り込み中性子遮蔽体系の基本方針に則って構築した実験体系では、回り込み中性子の混入はダイレクトビームに対してほぼ 0.1% 未満であり、中性子透過率スペクトルにほとんど影響を与えないことがわかった。HUNS 熱中性子源ポートにおいて、回り込み中性子の量を実験的に評価した例はなく、本実験結果は、経験則に基づいていた遮蔽体系に実験的な裏付けを与えたという意味において、重要な知見である。また、検出器を中性子遮蔽体で囲むべきという知見は、HUNS 熱中性子源ポートに限らず、他のパルス中性子源施設においても、回り込み中性子の混入による系統誤差を低減する体系を構築する上で、有効なものである。

加えて、HUNS 熱中性子源ポートにおける回り込み中性子の方向依存性とそのエネルギー依存性も確認した。回り込み中性子は、全てのエネルギーの回り込み中性子において、検出器の側面および背面から多く回り込んでいることがわかり、特に 0.1 eV 以下の低エネルギーの中性子は主に側面・背面から回り込んでおり、0.1 eV 以上の高エネルギーの中性子は側面・背面だけでなく正面や下面からも多く回り込んでいることがわかった。

### 3.1.2.3. 検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子による系統誤差の調査

2 章で述べた ENTAX の原理実証実験では、3.1.2.1 節で述べた実験体系構築の基本方針に則り、GEM 検出器の検出面を除いて、検出器を遮蔽体で隙間なく囲んだ。しかし、遮蔽体が検出面の下流にも存在する体系となっており、検出面を通過した中性子ビームが遮蔽体で反射する可能性が考えられる。反射した中性子が検出器に入射する場合、3.1.2 節で説明したように系統誤差となってしまう。そのため、回り込み中性子測定実験に続いて、検出面下流の検出器遮蔽体から反射して混入する中性子を測定する実験を行った。

#### 3.1.2.3.1. 検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子測定実験

反射中性子測定実験における実験条件は、回り込み中性子測定実験と同様であり、表 3-2 (表 2-3) に示されている通りである。また、反射中性子の測定は、図 3-16 に示すような 3 パターンの測定体系で行った。回り込み中性子の測定体系と異なり、全ての体系において、検出面の手前にビームストッパーは置いていない。測定体系 A は、検出面下流に遮蔽体がない体系であり、検出器遮蔽体からの反射中性子がない場合の測定体系である。測定体系 B

は、検出面直下、検出面から約 5 cm 下流に中性子遮蔽体を置いた体系であり、検出器遮蔽体からの反射中性子がある測定体系である。測定体系 C は、検出面から約 30 cm 下流に遮蔽体を置いた体系であり、検出面と遮蔽体の距離によって反射中性子の混入割合が変化するかを見るための測定体系である。



図 3-16. 反射中性子の測定体系 (3 パターン)。

### 3.1.2.3.2. 検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子測定結果とその影響

図 3-17 に反射中性子の測定結果を示す。この測定では、検出面の手前にビームストップパーは置いておらず、ダイレクトビームの強度に反射中性子成分が加算される形で反射中性子が測定される。図 3-17 より、検出面直下（下流約 5 cm）に遮蔽体を置いた体系 B では、遮蔽体を置いていない体系である体系 A と比較して、高エネルギー側で中性子強度の増大が見られる。また、検出面下流 30 cm に遮蔽体を置いた体系 C でも、増大の程度は小さいものの高エネルギー側で中性子強度の増大が見られる。従って、検出面下流に置いた遮蔽体により、中性子が反射し、高エネルギー側における系統誤差となることが確認できた。

また、図 3-18 に、測定体系 A に対する測定体系 B と C の中性子強度スペクトルの比を示す。図 3-18 より、測定体系 B では、およそ 1 eV 程度から反射中性子が混入し始め、体系 A に比べ 10 eV ではおよそ 1.1 倍、100 eV ではおよそ 1.3 倍、1000 eV では約 2 倍程度の中性子強度となっている。これは、反射中性子の混入量が、ダイレクトビーム強度に対し、10 eV で約 10%、100 eV で約 30%、1000 eV で約 100% となったことを表し、検出器下流に置いた遮蔽体からの反射中性子が大きな系統誤差要因になり得るということがわかった。ただし、測定体系 C においては、100 eV で約 2% の反射中性子しか混入していないため、反中性子の混入量は、検出面から遮蔽体までの距離に大きく依存することもわかった。

また、本題からやや外れるが、測定体系 B において検出面と遮蔽体の間に 0.5 mm の Cd を挟んでの測定も行った。反射中性子が遮蔽体のホウ酸レジンにより熱化している場合は、Cd を挟むことで反射中性子の影響をなくすことが可能だと考えたためである。しかし、Cd を挟んでも、結果はほぼ変わらなかった。従って、反射中性子は熱化せずに反射されているということを確認した。

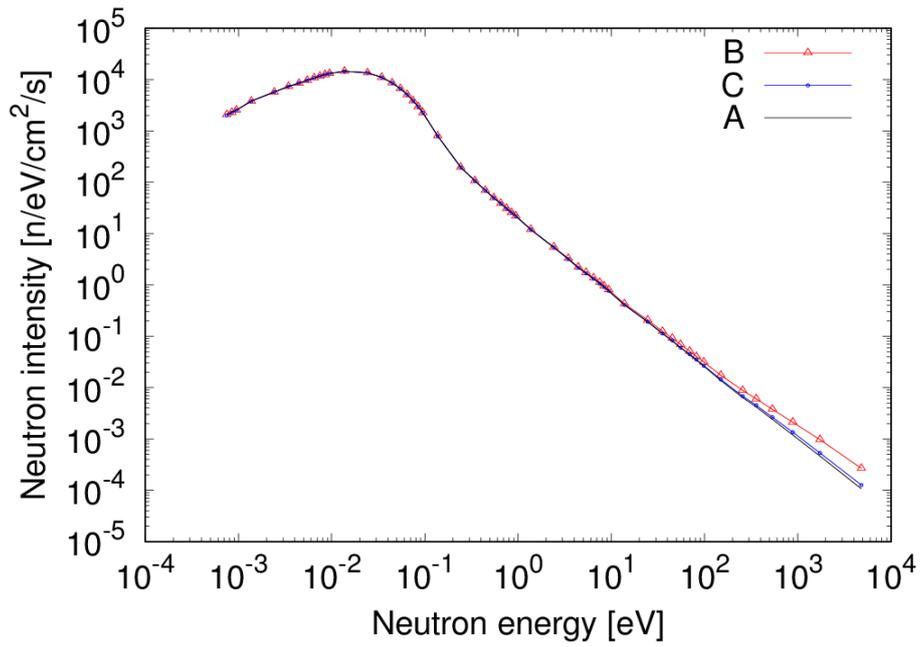


図 3-17. 検出面下流遮蔽体からの反射中性子が混入した中性子スペクトル。

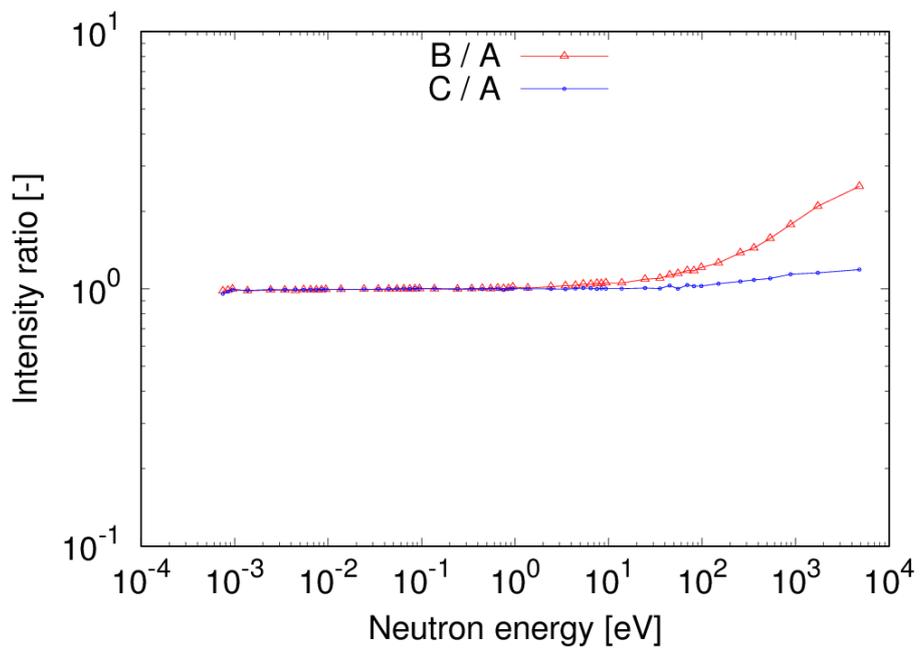


図 3-18. 検出面下流にある遮蔽体からの反射中性子量の割合。

### 3.1.2.3.3. 検出面下流の検出器遮蔽体からの反射中性子による系統誤差の調査のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおいて、検出面下流に置いた中性子遮蔽体からの反射中性子を測定する実験を行った。検出面と遮蔽体の距離に依存するものの、反射中性子の混入により、高エネルギー側で中性子スペクトルの増大が生じ、系統誤差の一因となることがわかった。反射中性子が混入する場合、式 3.5 より中性子透過率は過大評価されるため、測定される中性子透過率スペクトルは、高エネルギー側において過大評価されると考えられる。従って、反射中性子の混入は、高エネルギー側における系統誤差の原因となることがわかった。反射中性子の混入の対策として、検出面下流に中性子遮蔽体を置かないことが考えられる。この知見は、HUNS のように検出器を中性子遮蔽体で囲む実験体系を構築する場合に重要なものとなる。

また、2.2 節で述べた ENTAX の原理実証実験において、20 eV 以降で鉄の実測断面積が評価済み核データに比べ過小評価される傾向にあったが、この原因は、検出面下流に置いた遮蔽体からの反射中性子の影響であると予想される。

### 3.1.2.4. フレームオーバーラップ中性子による系統誤差の調査

フレームオーバーラップは、パルス中性子源において原理的に生じるバックグラウンドであり、非常に遅い低エネルギーの中性子が、高エネルギーの中性子と同時に検出器に入ってしまう現象である。高エネルギーの中性子と同時に混入する非常に遅い低エネルギーの中性子をフレームオーバーラップ中性子と呼び、フレームオーバーラップ中性子が混入する場合、3.5 式で説明したように系統誤差となり得る。

#### 3.1.2.4.1. フレームオーバーラップ中性子

まず、フレームオーバーラップ中性子の概念について説明する。フレームオーバーラップとは、速度の遅い中性子が次のパルス中性子のフレームに混入する現象を指す。パルス中性子源では、パルスの発生させた中性子を減速材により減速することで、物性研究に使用可能な中性子を供給している。この減速過程により、パルス中性子は冷中性子～高速中性子までの広いエネルギースペクトルを持つ中性子となるが、この中に非常に速度の遅い中性子も含まれている。また、パルス中性子源における中性子の発生間隔は、施設によって異なるが、例えば HUNS では通常 1 秒間に 50 回のパルス中性子を発生させている。すなわち、20 ミリ秒毎にパルス中性子が発生しており、パルス中性子の発生間隔 (HUNS では 20 ミリ秒) を 1 フレームと表現する場合が多い。発生したパルス中性子全てが 1 フレームの間に検出器に到達することが理想的ではあるが、モデレータから検出器の間の距離が長い、1 フレームの間隔が短い等の理由により、1 フレームの間に検出器に到達しない中性子が存在する。この中性子は、次のパルス中性子が発生した後に検出器に到達するため、フレームを超えて混入する中性子という意味で、フレームオーバーラップ中性子と呼ばれている。フレームオーバーラップ中性子の概念図を図 3-19 に示す。図 3-19 の青破線がフレームをオーバーした

成分を示しており、それが次のフレームに混入すると、青実線のようになり、これが中性子スペクトルに加算されることになる。

フレームオーバーラップ中性子は、本来の中性子スペクトルとは異なる成分であり、系統誤差の一因となる。

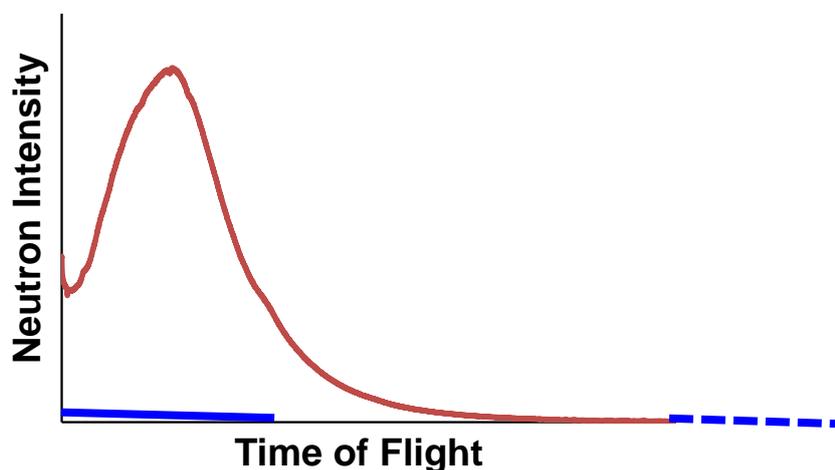


図 3-19. フレームオーバーラップ中性子の概念図。

#### 3.1.2.4.2. フレームオーバーラップ中性子測定実験

フレームオーバーラップ中性子を測定するため、HUNS における 1 秒あたりのパルス中性子発生回数を少なくし、1 フレームの間隔を長くして、ダイレクトビームの測定を行った。HUNS では通常 50 Hz で加速器を運転しているが、この実験では加速器を 25 Hz で運転し、中性子スペクトルを測定した。50 Hz 運転では 20 ミリ秒で 1 フレームとなるが、25 Hz 運転では、40 ミリ秒で 1 フレームとなる。

この測定の実験体系は、回り込み中性子測定実験・反射中性子測定実験と同様であり、実験条件は、加速器運転条件の電子線繰り返し周波数が 25 Hz と変更になっている以外は、表 3-2 (表 2-3) に示されている通りである。また、測定体系は、回り込み中性子測定体系の図 3-12 のパターン A からビームストッパーを取り除いた体系である。

#### 3.1.2.4.3. フレームオーバーラップ中性子の測定結果

図 3-27 にフレームオーバーラップ中性子の測定結果を示す。このグラフにおける 20 ミリ秒以降の中性子スペクトルが、50 Hz 運転においてはオーバーラップ中性子になる成分と考えられる。また、図 3-20 に、図 3-21 の 20~40 ミリ秒の中性子スペクトルが同図の 0~20 ミリ秒に混入したと考えた時の比を示す。オーバーラップ中性子の成分は、ダイレクトビームの成分に対して、0~5 ミリ秒 (0.01 eV 以上のエネルギー) では 0.1%程度からそれ以下となっており、ENTAX で使用するエネルギー領域では、ほぼ問題にならないことがわかった。ただし、5 ミリ秒 (0.01 eV) 以降では、ダイレクトビーム強度が小さくなり、徐々にオーバ

ーラップ中性子の割合が増えている。およそ 10 ミリ秒 (0.0027 eV) 以降では、1%程度の系統誤差になるため、これ以降のエネルギー範囲を利用する場合には留意する必要がある。

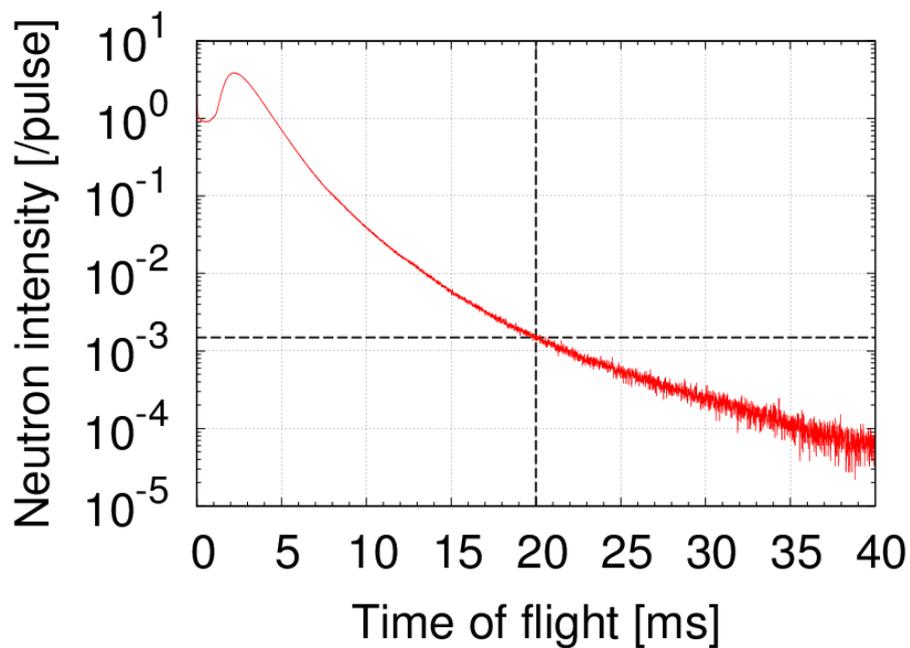


図 3-20. フレームオーバーラップ中性子の測定結果。

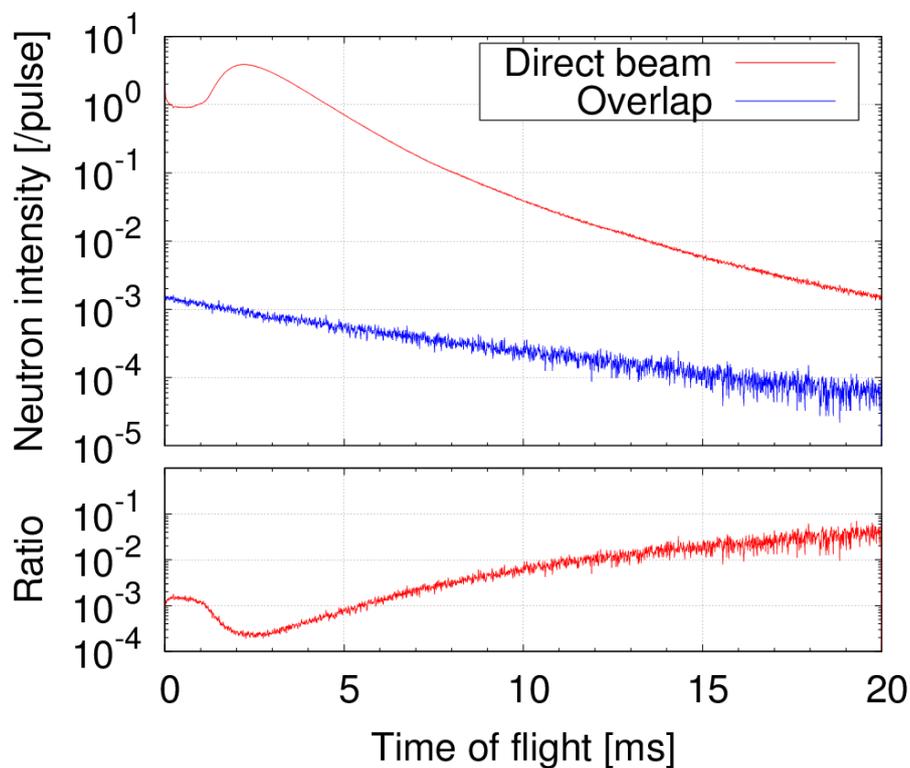


図 3-21. 加速器 50 Hz 運転時に想定されるオーバーラップ中性子による系統誤差。

#### 3.1.2.4.4. フレームオーバーラップ中性子による系統誤差の調査のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおいて、フレームオーバーラップ中性子の混入量を調査した。加速器を 25 Hz 運転した際の中性子スペクトルを使用して、50 Hz 運転時に混入するオーバーラップ中性子の割合を評価した結果、0.01 eV 以上のエネルギー領域ではオーバーラップ中性子の影響は 0.1%程度からそれ以下であり、ほとんど影響しないということがわかった。この結果は、HUNS 熱中性子源ポートの結果であるため、他のパルス中性子源施設においては、同様の方法によりオーバーラップ中性子の混入量が評価されるべきである

#### 3.1.3. GEM 検出器の検出強度の時間変化による系統誤差の調査

HUNS 熱中性子源ポートでは、主に GEM 検出器が使用されており、中性子検出強度が時間に依存して変化している可能性が示唆されていた。中性子検出強度に時間依存性がある場合、測定される透過率スペクトルの系統誤差になり得る。そこで、GEM 検出器を用いて一連のダイレクトビーム測定を行い、GEM 検出器の検出強度の時間依存性について調査した。

##### 3.1.3.1. GEM 検出器における検出強度の時間変化の測定

GEM 検出器における検出強度の時間変化を確認するため、回り込み中性子測定実験と同条件かつ同様の実験体系において、ダイレクトビーム測定を行った。図 3-22 にダイレクトビーム測定を 5 時間行い、15 分ごとに全エネルギーの中性子強度を積算してプロットしたグラフを示す。図 3-22 より、ダイレクトビーム測定中に GEM 検出器の計数率が徐々に変化していることがわかる。検出器以外の中性子強度の変化理由として、加速器の電流値の変化が考えられるが、測定中の電流値の変化は±0.5%以内と安定していることを確認しており、この原因は GEM 検出器の検出強度が変化したためと考えられる。また、測定最初の中性子強度に対し、測定 5 時間後の中性子強度は約 1.05 倍になっており、GEM 検出器の検出強度の時間依存性はかなり大きいものであることがわかった。

次に、図 3-23 に実験中に断続的に測定したダイレクトビームの中性子スペクトルとその比を示す。このダイレクトビームのデータは、実験の合間に測定したものであり、実験開始から、9 時間後 (M1)、18 時間後 (M2)、41 時間後 (M3)、51 時間後 (M4)、77 時間後 (M5) に測定したダイレクトビームデータを示す。図 3-23 の上図では、縦軸のレンジがログスケールなこともありあまり差がないように見えるが、下図を見てわかる通り、測定した時刻によってダイレクトビームの中性子強度が変化しており、最大で 8%程度の差が生じていたことがわかった。下図をさらに詳しく見ると、M5 と最も強度の近いデータが M4 であり、その次に近いのは M2、その次は M1、最後に M3 となっており、実験開始から単調に測定強度の減少や増大が生じているわけではないことがわかる。従って、GEM 検出器の測定強度は、増大や減少がランダムに生じている可能性が高い。また、図 3-23 下図の 1 eV 以降に着目すると、統計精度が低いいため多少ばらつきは見えるものの、比の値はほぼ一定であ

ることがわかる。よって、検出器の測定強度の増減はあるものの、その増減は、測定される中性子スペクトルのエネルギー依存性を変化させるようなものではないと考えられる。1 eV以下に谷のような構造とエネルギー依存性の変化が見られるが、これは 3.1.1 節で説明したモデレータの温度変化による影響であり、検出器の測定強度の変化とは無関係である。

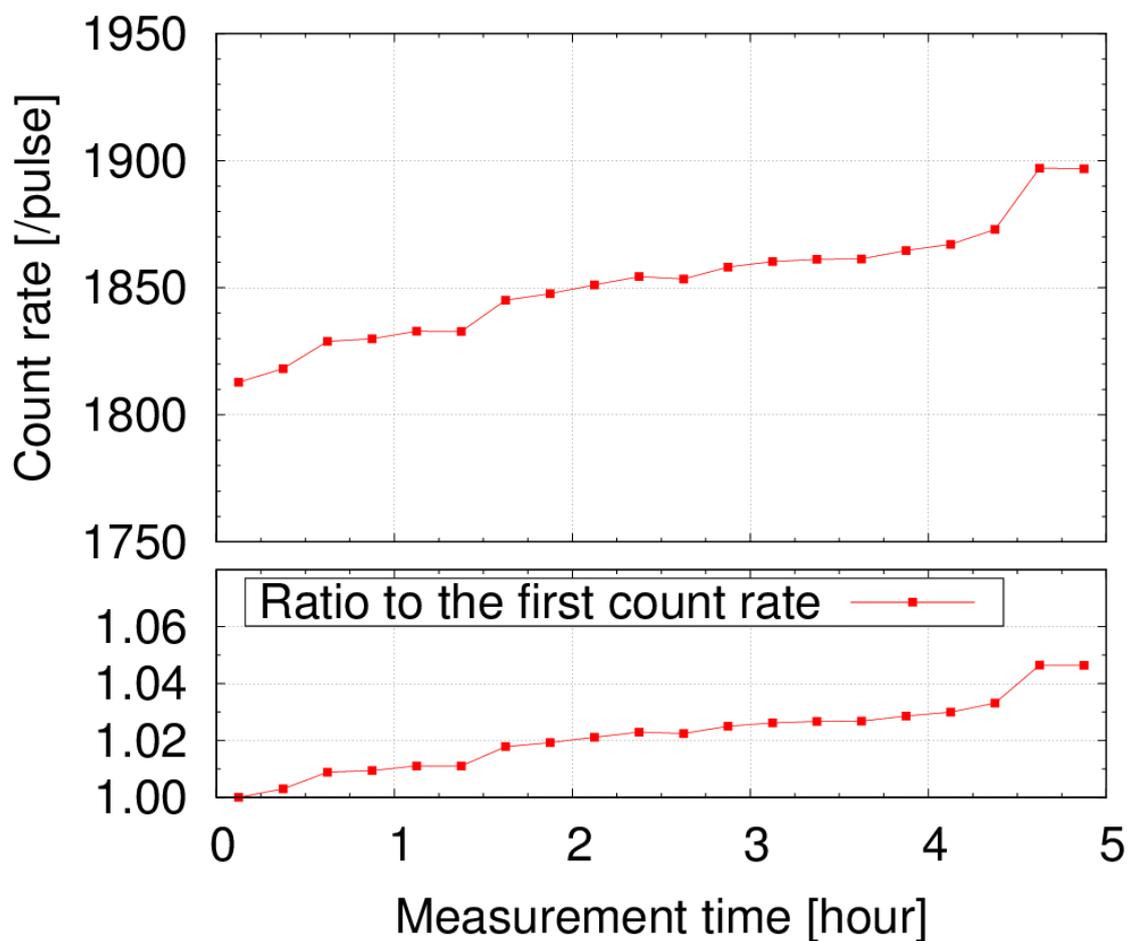


図 3-22. GEM 検出器における中性子検出強度の時間依存性。

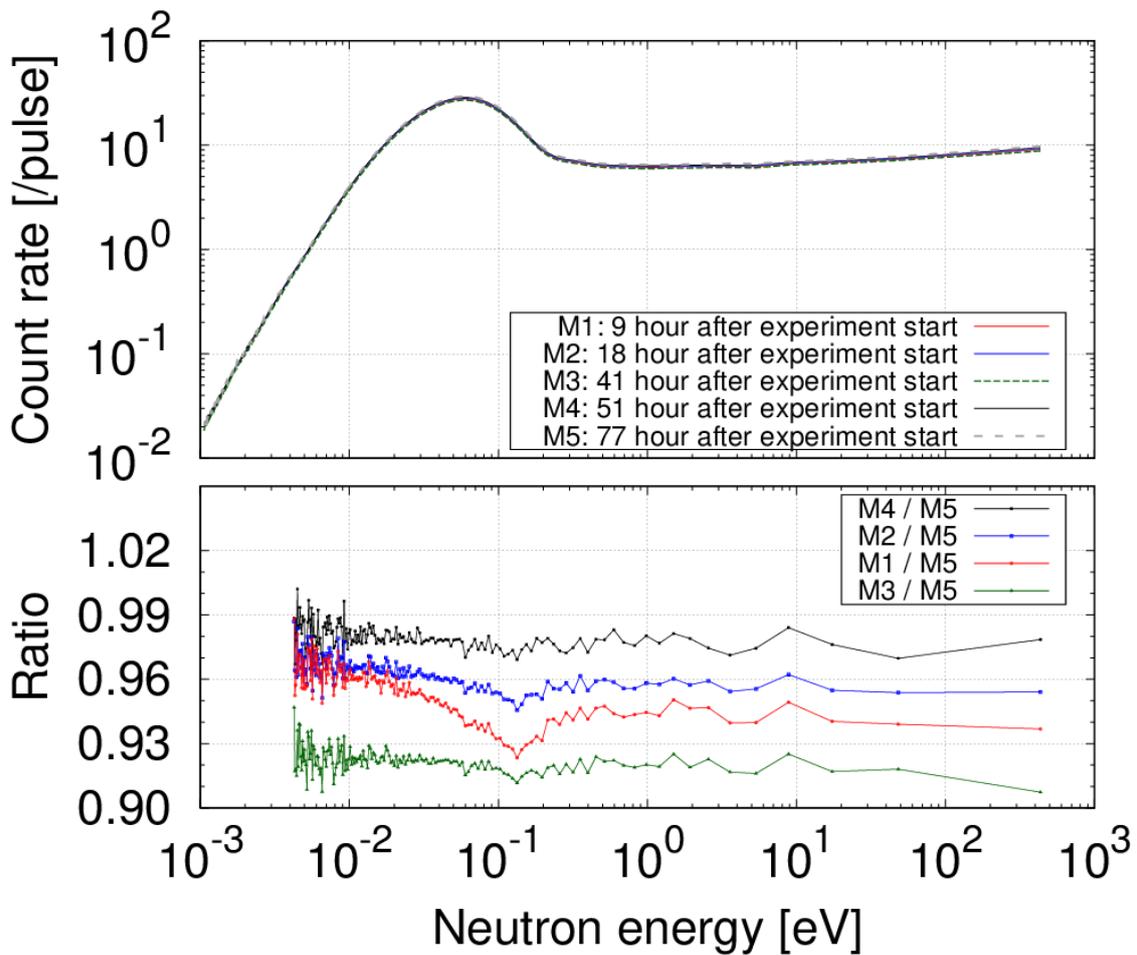


図 3-23. GEM 検出器で断続的に測定した中性子スペクトルの比。

### 3.1.3.2. GEM 検出器の検出強度の時間変化が透過率スペクトルに及ぼす影響

図 3-23 の下図からわかるように、GEM 検出器の検出強度の変動は、測定される中性子スペクトルのエネルギー依存性には影響を与えないが、その高さを変化させる。検出器の検出強度変動により測定される中性子スペクトルの高さが変化する場合、測定される中性子透過率スペクトル  $Tr(E)$  の大きさ（絶対値）は、式 3.6 に示すように変化する。

$$Tr(E) = \varepsilon \times \frac{I(E)}{I_0(E)} \quad (3.6)$$

ここで、 $I_0(E)$  はダイレクトビームの中性子スペクトル、 $I(E)$  は試料を透過した中性子スペクトル、 $\varepsilon$  はダイレクトビーム測定時と試料測定時における検出器の検出強度の比を示す。すなわち、ダイレクトビーム測定時と試料測定時における検出器の検出強度が異なる分だけ、透過率スペクトルの絶対値が変化することになる。従って、検出器の検出強度の変動は、中性子透過率スペクトルの絶対値に対する系統誤差となる。

中性子透過率スペクトルの絶対値は、系統誤差が含まれない場合、試料に含まれる物質の量とその全断面積の大きさにより決まる。そのため、ENTAX では、中性子透過率スペクトルを全断面積で解析することにより、物質の量を評価することが可能である。しかし、透過率スペクトルの絶対値が系統誤差により変化する場合、物質の量と全断面積を正しく反映しなくなるため、解析される物質の量に影響が生じてしまう。従って、検出器の検出強度の変化による系統誤差は、ENTAX による解析値に影響を与える。

### 3.1.3.3. GEM 検出器の検出強度の時間変化による系統誤差の調査のまとめ

HUNS 熱中性子源で使用している GEM 検出器の検出強度の時間変化を調査した。連続的なダイレクトビームの測定においては、5 時間の測定で、5%程度の検出強度の増大を確認した。また、4 日間の実験の間に断続的なダイレクトビーム測定を行い、検出強度の変化を確認した。4 日間の中で、検出強度は最大で 8%程度変化した。検出強度の増大や減少はランダムに生じており、時間的な傾向は確認できなかった。また、断続的に測定した中性子スペクトルのエネルギースペクトルの比から、GEM 検出器の検出強度の変化により、測定される中性子スペクトルのエネルギー依存性が変化していないことを確認した。

GEM 検出器の検出強度の変化は、測定される透過率スペクトルのエネルギー依存性には影響を及ぼさないが、その絶対値を変化させてしまうことがわかった。ENTAX では、中性子透過率スペクトルの絶対値の変化は、解析される物質の量に影響を及ぼす。そのため、対策が必要となる。この対策として、GEM 検出器が二次元検出器であることを利用し、検出面の一部において検出強度を常にモニターすることが考えられる。このようにすることで、検出器の検出強度の変化がモニターされ、検出強度の時間変動の影響をキャンセル出来るようになる。

この結果は、中性子検出器の検出強度の変化が、中性子透過率スペクトルに対する系統誤差となり得ることを示す。従って、ENTAX のための実験体系を構築する上で、使用する中性子検出器における検出強度の時間変化を把握することは重要である。

### 3.1.4. 中性子透過率スペクトルに混入する系統誤差の調査のまとめ

ENTAX に適した実験体系を構築するため、HUNS 熱中性子源ポートにおいて系統誤差の調査を行った。調査項目は以下であった。

1. モデレータ温度の変化による系統誤差
  2. 環境中性子による系統誤差
    - 2.1 回り込み中性子の混入
    - 2.2 検出器遮蔽体からの反射中性子の混入
    - 2.3 フレームオーバーラップ中性子の混入
  3. 検出器の検出強度の変化による系統誤差
- まず、モデレータ温度の変化による系統誤差に関しては、モデレータ温度と中性子スペク

トルの同時測定を行うことにより調査した。6時間の中性子スペクトル測定で、モデレータ温度は5 K程度上昇し、0.002 – 0.3 eVのエネルギー領域で透過率スペクトルに3%程度の系統誤差を及ぼすことがわかった。この系統誤差は、ENTAXによるフィッティング解析範囲を低エネルギー側に広げようとする際に問題となるため、モデレータ温度もしくは中性子ビームスペクトルのモニターを行うなどして、対策を行う必要があることがわかった。

次に環境中性子による系統誤差に関しては、回り込み中性子、検出面下流においた遮蔽体の反射中性子及びオーバーラップ中性子を実際に測定することにより調査した。回り込み中性子の混入は、100 eV以下の領域でダイレクトビーム強度の1%以下であり、また検出器を遮蔽体で囲むことにより0.1%程度になり、ほとんど影響しないことがわかった。しかし、検出器の検出面下流に遮蔽体がある場合、反射中性子が混入することがわかった。反射中性子の混入量は検出面と遮蔽体の距離にもよるが、5 cm程度の距離の場合、10 eVでダイレクトビーム強度の10%程度の混入が見られ、更に高エネルギーになるとより混入量が増えることがわかった。従って、反射中性子の混入は、高エネルギー側で中性子透過率スペクトルの系統誤差となることが明らかとなった。この対策としては、検出器の検出面下流に遮蔽体を置かない、もしくは検出面と遮蔽体との距離を大きく離すべきである。オーバーラップ中性子は、0.01 eV以上のエネルギー領域においてダイレクトビーム強度の0.1%程度からそれ以下であるということがわかり、ほぼ影響しないことがわかった。

GEM 検出器の検出強度の変化に関しては、ダイレクトビーム強度の連続測定と断続測定を行うことにより調査した。5時間の連続測定において、検出強度の変化は5%程度であった。また、4日間の実験における断続測定において、検出強度は最大で8%程度変化していることがわかった。GEM 検出器の検出強度の変化は、測定されるエネルギースペクトルの形状を変化させるような影響はないことがわかったが、測定される透過率スペクトルの絶対値に大きな系統誤差をもたらすこともわかった。ENTAXによる解析では、中性子透過率スペクトルの絶対値が変化すると解析される値に影響が生じるため、GEM 検出器の検出強度変化に対しては対策を行う必要がある。対策方法として、検出面の一部をモニターとして、検出強度の変化を規格化することが考えられる。

以上の調査結果から、HUNS 熱中性子源ポートにおいて、モデレータの温度変化や環境中性子の混入、中性子検出器の検出強度の変化が、測定される中性子透過率スペクトルにどの程度影響しているかが明らかとなった。

以上の結果は、HUNS 熱中性子源ポートにおける結果ではあるが、系統誤差を低減した実験体系を構築する際には、他のパルス中性子源施設においても同様の項目に注意すべきである。そのため、これらの知見は、HUNS 熱中性子源ポートに限らず、他の施設において ENTAX に適した実験体系を構築する際にも、重要な知見となる。

## 3.2. HUNS 熱中性子源ポートでの ENTAX のための実験体系の構築

ENTAX による解析結果の定量確度を高めるためには、測定される中性子透過率スペクトルの系統誤差を十分に減らす必要がある。そのため、前節で調査した系統誤差を低減するための実験体系を、HUNS 熱中性子源ポートにおいて考案した。

### 3.2.1. HUNS 熱中性子源ポートにおける系統誤差を低減する実験体系の考案

実験環境からの回り込み中性子の混入を防ぐため、HUNS における基本的な遮蔽体系（原理実証実験における体系）では図 3-24 の左のように検出器を中性子遮蔽で囲んでいた。しかし、この体系の場合、検出器の検出面下流にも中性子遮蔽が設置されており、反射中性子の混入が予想される。そこで、反射中性子の混入を防ぐため、図 3-24 の左の体系から検出面の下流にある遮蔽体のみを取り除き、図 3-24 の右のような体系を構築することとした。これにより、反射中性子の混入による系統誤差は、ほぼなくなると考えられる。

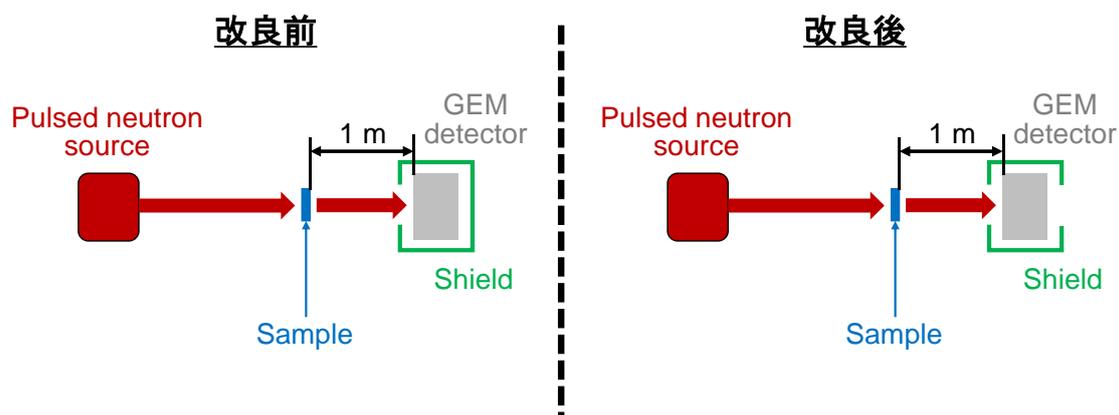


図 3-24. 反射中性子の混入を防ぐための実験体系。

また、モデレータ温度の変化に対する対策として、中性子スペクトルモニターを導入することとした。中性子スペクトルモニターで測定されたスペクトルを用い、測定された中性子スペクトルを規格化することにより、モデレータ温度による中性子スペクトルの変化は補正が可能となる（3.2 節で詳細に述べる）。

さらに、GEM 検出器の測定強度の変化に対する対策として、導入する中性子スペクトルモニターとして、GEM 検出器の一部を用いることとした。これにより、中性子スペクトルモニターは、GEM 検出器の検出強度モニターも兼ねることとなり、検出器の検出強度変化に対する補正が可能となる。

中性子スペクトルモニターは、通常の場合、中性子測定用の検出器とは別の検出器を使用することが多い。しかし、GEM 検出器は 2 次元検出器であるため、一部を測定用に、一部をモニター用に使用するということが可能である。GEM 検出器の一部を中性子スペクトル及び検出強度のモニターとするため、図 3-25 のように中性子遮蔽体により GEM 検出器の

検出面を透過率測定部とモニター部に二分する体系を考案した。

ENTAX を行うためには、試料からの散乱線の混入を防ぐ必要があり、検出面と測定試料の距離を 100 cm 程度離す必要がある。HUNS 熱中性子源ポートでは、中性子ビームの広がりを示す L/D がおよそ 50 程度であるため、中性子ビームは 100 cm 進む間に、2 cm 程度広がる。モニター部では、常にダイレクトビームを測定する必要があり、測定試料を透過した中性子がビーム広がりによりモニター部に混入する場合、モニターとして用いることが出来なくなる。そのため、モニター部を用意するためには、図 3-25 に示すような長い板状の遮蔽体を用いて、測定試料を透過した中性子ビームが、モニター部に混入しないようにした。

従って、HUNS 熱中性子源ポートにおける ENTAX のための実験体系として、図 3-24 のように HUNS における基本的な遮蔽体系から検出面下流の遮蔽体を除き、また、図 3-25 のように GEM 検出器の一部をモニターとして用いる体系を考案した。

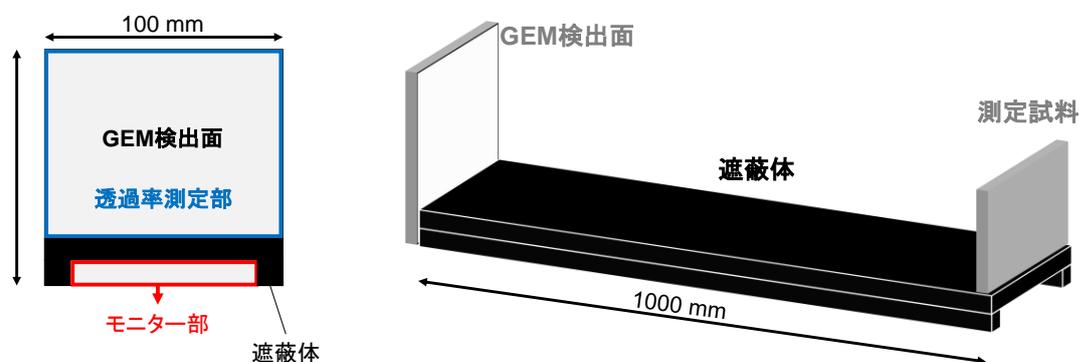


図 3-25. GEM 検出器の検出面を透過率測定部とモニター部に二分する体系。

### 3.2.2. 考案した実験体系における系統誤差の低減の確認

3.2.1 節で考案した実験体系を実際に構築して、中性子透過率スペクトルの測定実験を行い、透過率スペクトルの系統誤差が低減されるかを確認した結果について述べる。

#### 3.2.2.1. 構築した実験体系と測定試料

考案した実験体系を基に、実際に構築した実験体系について述べる。また、その体系で測定される透過率スペクトルにおいて、系統誤差が低減しているかを確認するために測定した試料について述べる。

##### 3.2.2.1.1. 構築した実験体系

図 3-26 に、構築した実験体系を示す。まず、GEM 検出器に回り込み中性子が混入しないようにホウ酸レジン遮蔽体で囲んでおり、また反射中性子が混入しないように検出面下流には遮蔽体を置いていない。また、図 3-25 に示した検出面を透過率測定部とモニター部に分けるための仕切り板を、B<sub>4</sub>C レジン (B<sub>4</sub>C : レジン = 1 : 1) で作成し、設置した (図 3-26

左の partition plate)。仕切り板の厚さは 1 cm であり、1 cm の厚みがあれば、試料を透過した中性子ビームが仕切り板を透過しないことを理論計算により確認した。仕切り板の位置は、仕切り板を支えるための足場（仕切り板と同材質、長さ 100 cm、面積 1 cm 角の棒）により、検出面の最下部から 1 cm 上方に設置した。また、試料と検出器までの間は、環境中性子が混入しないよう、ホウ酸レジン遮蔽体で囲み、通路を作成した。また、この実験条件を表 3-5 に示す。記述のない項目は表 2-3 と同様である。

この体系において測定されるダイレクトビームの中性子強度画像（全中性子エネルギーを積算したもの）を図 3-27 に示す。図 3-27 はビームラインの上流から検出面を見て、上下反転した画像になっている。仕切り板の部分で中性子強度がほぼ 0 になっており、モニター部（図 3-27 上部）と透過率測定部（図 3-27 下部）では、独立した中性子スペクトルが測定できていることが確認できる。透過率測定部とモニター部で中性子強度が異なっているが、これはモニター部に入射する中性子ビームの  $L/D$  が、透過率測定部に入射する中性子ビームの  $L/D$  よりも高くなるためである。また、図 3-27 において中性子強度がほぼ存在しない線（デッドライン）が  $x=30$  付近に存在している。これは、GEM 検出器のハードウェアに起因するものであり、中性子透過率スペクトルを得る際には、この領域を除き、図 3-27 の赤枠の部分で積算した中性子スペクトルを用いた。

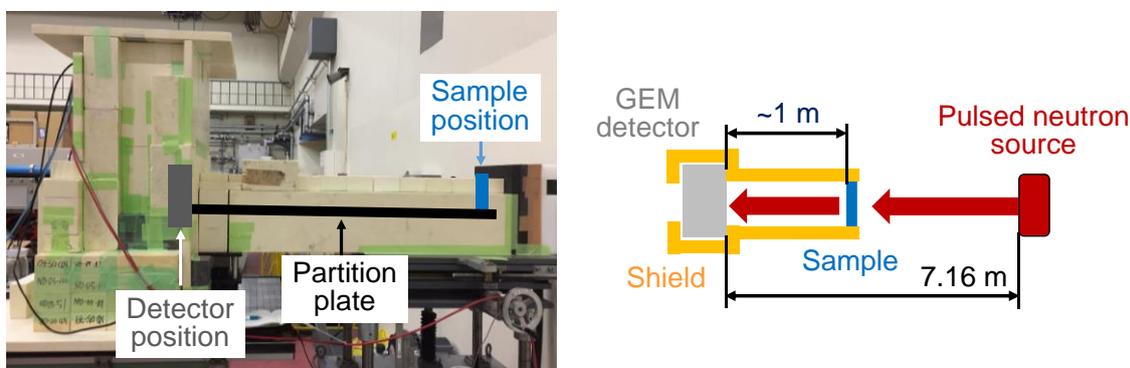


図 3-26. 改良した実験体系。

表 3-5 改良体系における ENTAX 実証実験の実験条件。

Neutron flight path	7.16 m
Detector	GEM detector
Recording mode	Event
TOF bin width	2 $\mu$ s
The number of TOF channel	8000
Detection neutron energy range	0.004 - 240000 [eV]
Neutron counting rate in the energy range	$0.99 \times 10^4$ [n/cm <sup>2</sup> /s]

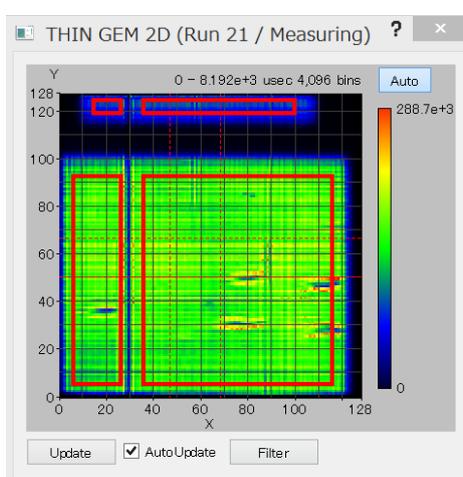


図 3-27. 改良体系において測定された中性子強度画像。

### 3.2.2.1.2. 測定試料

構築した体系では、検出面下流に中性子遮蔽体が置かれていないため、反射中性子の混入がほぼないと考えられる。それに対し、原理実証実験における体系では、検出面下流に遮蔽体が置かれていたため、反射中性子が混入していたと考えられる。構築した体系で、反射中性子の混入が予想される高エネルギー側において系統誤差が低減したかを確認するため、原理実証実験で測定した鉄の単体試料を測定試料とした。

また、構築した体系において測定した中性子透過率スペクトルの再現性が保たれているかを確認するため、5 mm 厚さの炭素 (C)、2 mm 厚さの鉛 (Pb)、5 mm 厚さのチタン (Ti) の 3 種類を測定試料として、それらの透過率スペクトルを、異なるタイミングで 2 度測定した。

### 3.2.2.2. モニター部の中性子スペクトルを用いた透過率スペクトルの補正方法

モニター部の中性子スペクトルを用いて、透過率測定部で測定される透過率スペクトルを補正する方法について説明する。

構築した体系では、GEM 検出器の検出面を透過率測定部とモニター部の 2 つに分けているため、一度の測定で、透過率測定部とモニター部の 2 領域において、中性子スペクトルが得られる。さらに、中性子透過率スペクトルの測定では、試料測定とダイレクトビーム測定を行う。よって、試料測定時の透過率測定部における中性子スペクトル  $I_{\text{sam\_Tr}}(E)$ 、試料測定時のモニター部における中性子スペクトル  $I_{\text{sam\_mon}}(E)$ 、ダイレクトビーム測定時の透過率測定部における中性子スペクトル  $I_{\text{dir\_Tr}}(E)$ 、ダイレクトビーム測定時のモニター部における中性子スペクトル  $I_{\text{dir\_mon}}(E)$  の合計 4 つの中性子スペクトルが測定される。

透過率スペクトルの補正は、式 3.7 により、モニター部における中性子スペクトルを用いて行われる。

$$Tr_{\text{corrected}}(E) = \frac{I_{\text{sam\_Tr}}(E)}{I_{\text{sam\_mon}}(E)} \div \frac{I_{\text{dir\_Tr}}(E)}{I_{\text{dir\_mon}}(E)} \quad (3.7)$$

ここで、 $Tr_{\text{corrected}}(E)$  は補正された透過率を示す。透過率測定部で測定された中性子スペクトルをモニター部で測定された中性子スペクトルにより規格化することにより、中性子スペクトルの変化や検出器の検出強度の変化の影響が補正される。

### 3.2.2.3. 構築した実験体系における系統誤差の低減の確認結果

原理実証実験で測定した鉄の単体試料を測定し、その透過率スペクトルに対し、原理実証実験時と同様のエネルギー範囲で ENTAX によるフィッティング解析を行った。反射中性子の混入が低減されていれば、混入が予想される高エネルギー側において、系統誤差が低減することが予想される。そこで、得られたフィッティングカーブと測定された透過率スペクトルが、どのエネルギー範囲まで一致するかを確認した。

また、モデレータ温度の変化や GEM 検出器の検出強度変化により系統誤差が混入する場合、測定される透過率スペクトルの再現性が担保されなくなる。そこで、これらの系統誤差の混入が低減されているかを確認するため、構築した体系において、中性子透過率スペクトルの再現性が保たれているかを確認した。再現性の確認は、同一試料の透過率スペクトルを異なるタイミングで測定、比較することにより行った。

#### 3.2.2.3.1. 原理実証実験時に測定した鉄単体試料の測定結果

図 3-28 (a) に構築した体系で測定した 5 mm 厚の鉄単体試料の中性子透過率スペクトル及び、0.3–20 eV の範囲で ENTAX によるフィッティングを行った結果を示す。測定された透過率スペクトルは、式 3.7 による補正を行ったものである。また、図 3-28 (b) に原理実証実験時に測定した同試料の中性子透過率スペクトルと 0.3–20 eV の範囲で ENTAX によるフィッティングを行った結果を示す (図 2-13 (a) に示したものと同様)。図 3-28 (a) と図 3-28 (b) を比較すると、(a) におけるフィッティングカーブは、およそ 100 eV まで実測されたスペクトルと一致しているのに対し、(b) におけるフィッティングカーブは、数 10 eV 程度までし

か、実測されたスペクトルと一致していないことがわかる。これは、原理実証実験時では検出面下流に置かれた遮蔽体から反射中性子が混入しているのに対し、構築した体系では反射中性子の混入がないためと考えられる。

従って、構築した体系では、反射中性子の除去により、原理実証実験時の体系に比べ、高エネルギー側の系統誤差が低減されていることがわかった。また、その結果、フィッティング範囲を約 100 eV にまで拡張できることがわかった。

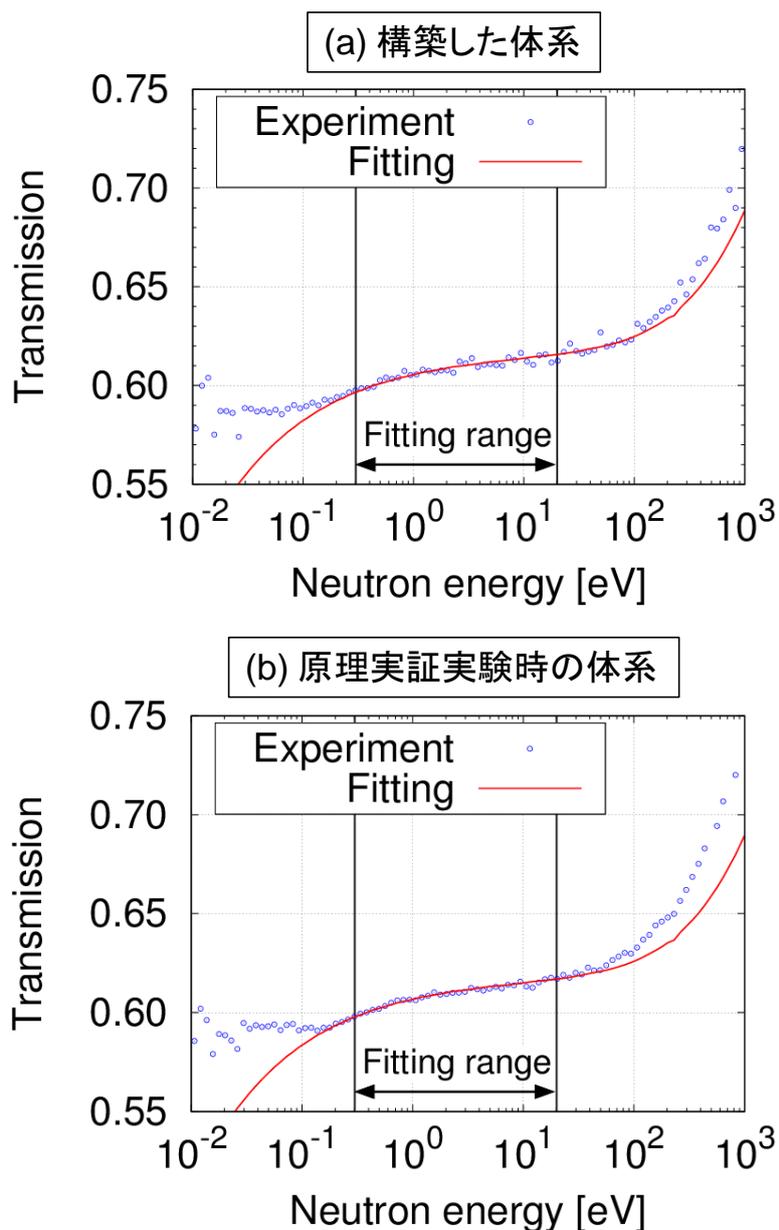


図 3-28. 鉄単体試料の透過率スペクトルと 0.3 – 20 eV における ENTAX によるフィッティング結果。(a)は構築した体系の結果、(b)は原理実証実験時の体系の結果を示す。

### 3.2.2.3.2. 構築した体系で測定される透過率スペクトルの再現性の確認結果

図 3-29 に、式 3.7 による補正を行う前の炭素 (C)・鉛 (Pb)・チタン (Ti) 試料の 3 種類の透過率スペクトルを示す。これらの試料は、異なるタイミングで二度測定しており、一度目と二度目の測定の結果を並べている。一度目の測定と二度目の測定は、1 週間ほどの時間を空けて行っており、その間に加速器のシャットダウンと再立ち上げ等を行っている。また、二度の測定における実験体系や条件は全て同一である。図 3-29 からわかるように、同一の試料を測定したにも関わらず、3 試料における 2 つの透過率スペクトルは、その絶対値やエネルギー依存性が異なっていることがわかる。C 及び Ti における 2 つの透過率スペクトルは絶対値が大きく異なっており、Pb における 2 つの透過率スペクトルは低エネルギー側において、エネルギー依存性が大きく異なっていた。このように、同一試料を同条件で測定したにも関わらず、測定するタイミングにより、中性子透過率スペクトルが異なってしまうのがわかる。この原因は、3.1 節で述べたモデレータ温度の変化や GEM 検出器の検出強度の変動であると考えられる。

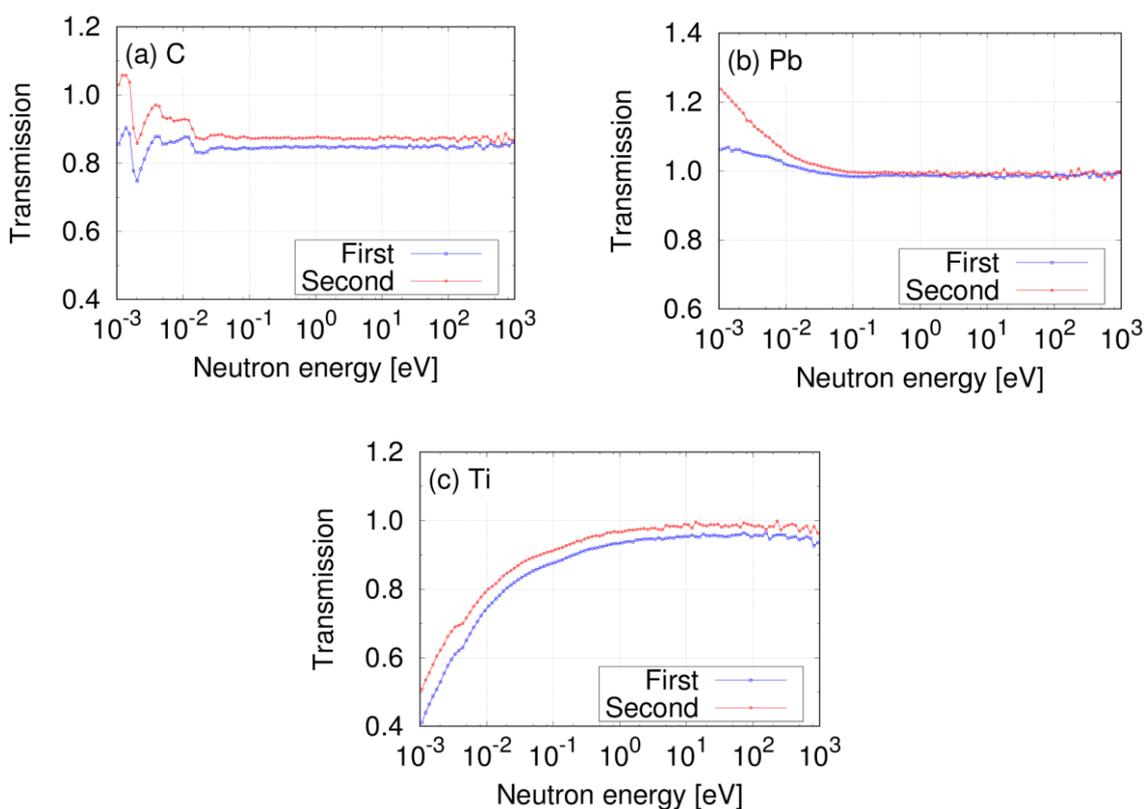


図 3-29. モニター部による補正のない C, Pb, Ti 試料の中性子透過率スペクトル。

図 3-30 に、式 3.7 による補正後の 3 試料の透過率スペクトルを示す。図 3-30 における各試料の二つのスペクトルは、図 3-29 では絶対値やエネルギー依存性が大きく異なっていたのに対して、ほぼ一致していることがわかる。従って、モニター部による補正により、モデルータ温度の変化や検出器の検出強度変化の影響をキャンセルアウトし、再現性の高い中性子透過率スペクトル測定を達成できるようになった。

ただし、図 3-30 において、一度目と二度目の測定における中性子透過率スペクトルの絶対値において、1%程度の差が見られた。この原因は、一度目と二度目の測定の際における試料の置き方の再現性（ヒューマンエラー）や加速器電流値の変動、統計誤差もしくはその複合的な影響が考えられる。

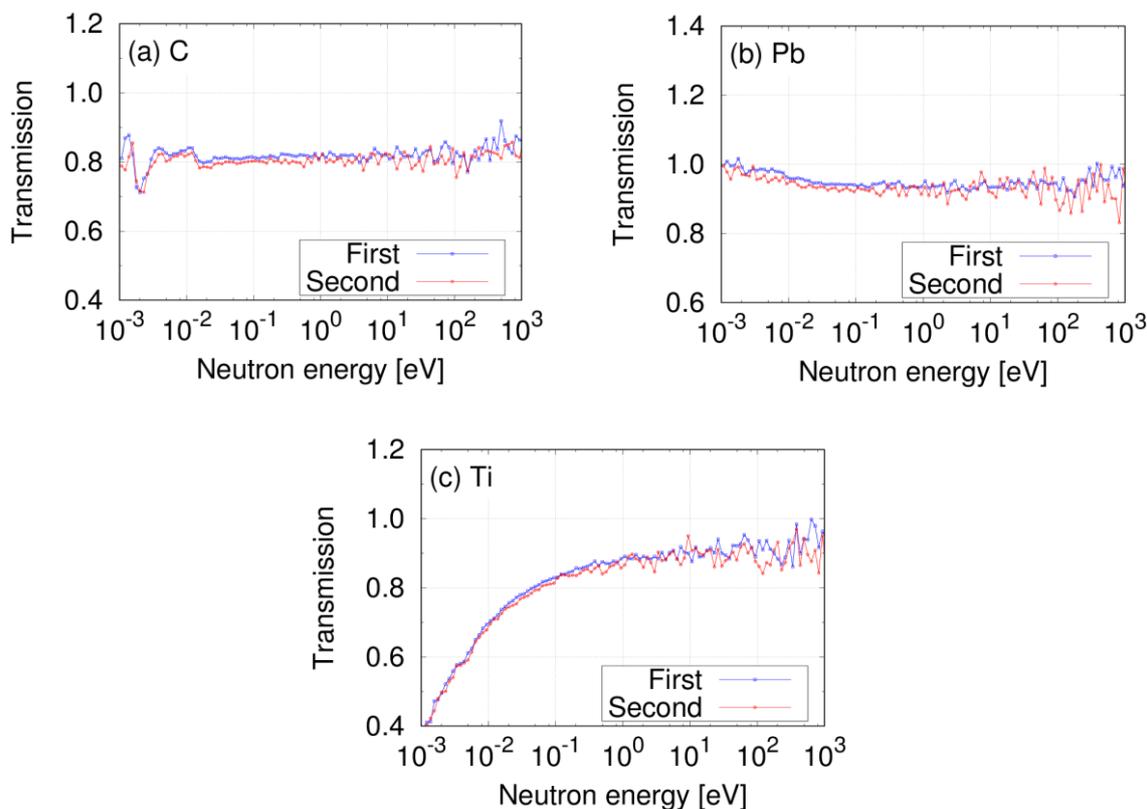


図 3-30. モニター部による補正後の C, Pb, Ti 試料の中性子透過率スペクトル。

#### 3.2.2.4. 構築した実験体系における系統誤差の低減の確認のまとめ

構築した体系では、GEM 検出器の検出面下流の遮蔽体を除くことにより、高エネルギー側の系統誤差が低減したことを確認した。また、モニター部を用いた補正により、測定される透過率スペクトルの再現性が保たれるようになることを確認した。

### 3.2.3. HUNS 熱中性子源ポートでの ENTAX のための実験体系の構築のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおける ENTAX に適した実験体系を、3.1節における系統誤差要因の影響調査の結果に基づいて考案した。考案した体系は、環境中性子の混入を防ぐために、検出器を中性子遮蔽体で囲むが、検出面下流には遮蔽体を置かないようにし、また、GEM 検出器の一部をモニターとして使用できるようにした体系である。そして、考案した体系を HUNS 熱中性子源ポートにおいて、実際に構築し、構築した体系において、系統誤差が低減されているかの確認を行った。確認の結果、構築した体系では、高エネルギー側の系統誤差が低減していることが明らかとなった。また、モニター部で測定される中性子スペクトルを利用して、測定される透過率スペクトルの補正を行うことで、透過率スペクトルの再現性が保たれるようになったことを確認した。

従って、HUNS 熱中性子源ポートにおける ENTAX に適した実験体系の構築が行えた。

### 3.3. 構築した体系における ENTAX の定量確度の確認

3.2.節において構築した体系は、ENTAX のために最適化した体系である。そのため、この体系における ENTAX による評価結果が、ENTAX の現状の性能を示す。よって、この体系において、ENTAX の定量確度を検証する実験を行った。定量確度を検証するための試料として、厚さが異なる複数の鉄試料を用意した。厚さの異なる鉄の単体試料の解析結果から、単体試料における ENTAX の定量確度を検証した。また、5 mm 厚の酸化チタン試料を用意し、酸化チタン試料の ENTAX による解析結果から、複数物質の試料における ENTAX の定量確度を検証した。

#### 3.3.1. 実験体系と測定試料

3.2.節で構築した体系において、ENTAX の定量確度を検証するための実験を行った。実験体系は、3.2.2.1.1.節の図 3-26 に示したものと同様である。また、実験条件も表 3-5 と同様である。

本実験で測定した試料を表 3-6 に示す。厚さの異なる鉄試料及び酸化チタン試料を用意した。鉄試料は、厚さ 2、5、10 mm の 3 種類を用意し、これらを組み合わせて、厚さ 2、5、7、10、12、15 mm の合計 7 種類の厚さを持つ鉄試料とした。一連の厚さの鉄試料における ENTAX の定量結果より、単体試料における ENTAX の定量確度を検証した。また、酸化チタン試料は軽元素を構成物質の一部とする複数物質で構成される試料として用意した。酸化チタンは、原理実証実験で測定した炭素と鉄の積層試料とは異なり、酸素とチタンが混合した状態で試料中に存在する。そのため、試料中において構成物質の偏りが無いものとなっている。酸化チタン試料の構成物質である酸素とチタンの評価済み核データを図 3-31 に示す。また、比較のため、炭素と鉄の断面積も図 3-31 に示す。酸素は一定の断面積を持っており、炭素と同様のエネルギー依存性となっている。また、チタンは、鉄に比べて大きなエネルギー依存性の断面積を持つことがわかる。ENTAX では、試料を構成する物質のエネルギー依存性が異なるほど、原理的に複数物質の定量評価行いやすいと考えられるため、酸化チタン試料は、原理実証実験で測定した炭素と鉄の積層試料よりも評価が行いやすい試料である。この試料における ENTAX の定量結果から、複数物質における ENTAX の定量確度を検証した。

表 3-6. 構築した体系における ENTAX による定量精度の評価のための測定試料。

Sample	Size [cm]	Mass [g]	Purity [%]	Areal density [10 <sup>22</sup> /cm <sup>2</sup> ]
Fe 2 mm	H 10, W 10, T 0.2	157.0	99.99	1.68
Fe 5 mm	H 10, W 10, T 0.5	402.9	99.99	4.31
Fe 7 mm	H 10, W 10, T 0.7	559.9	99.99	5.99
Fe 10 mm	H 10, W 10, T 1.0	803	99.99	8.57
Fe 12 mm	H 10, W 10, T 1.2	960	99.99	10.25
Fe 15 mm	H 10, W 10, T 1.5	1205.9	99.99	12.87
TiO <sub>2</sub>	φ 10.16, T 0.5	163.4	99.8	Ti: 1.52 O: 3.05

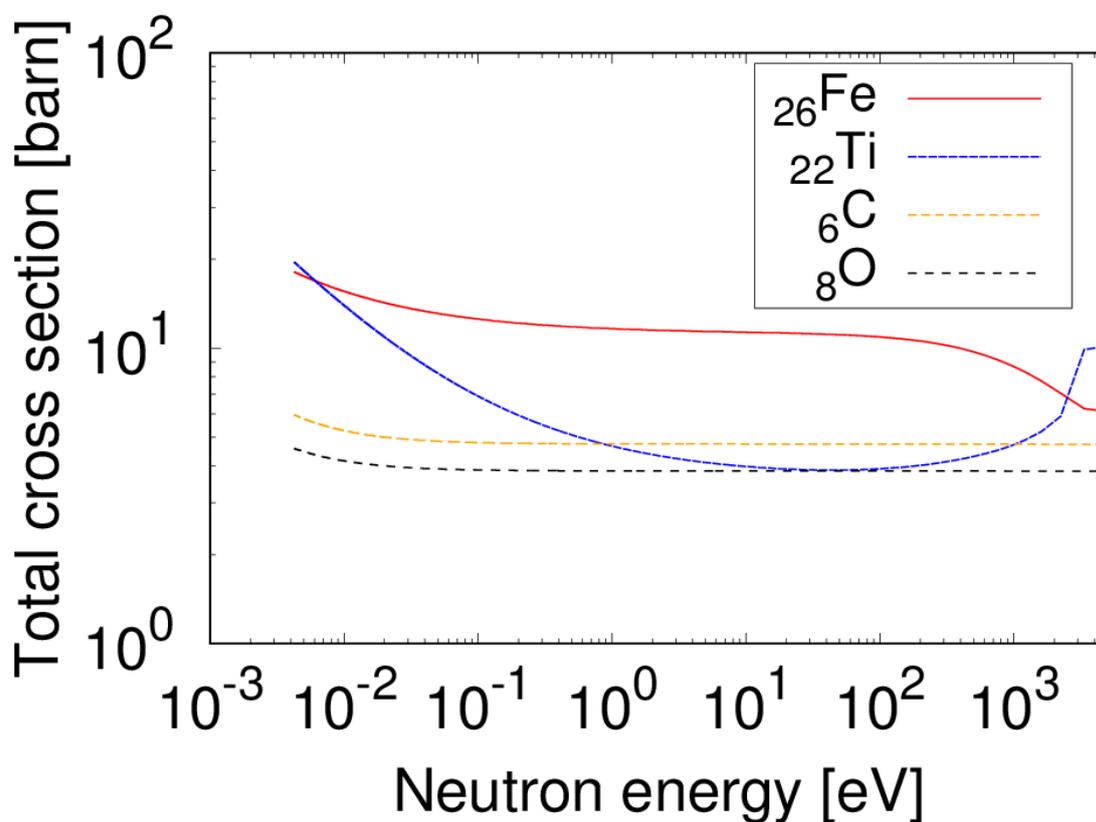


図 3-31. <sup>26</sup>Fe、<sup>22</sup>Ti、<sup>6</sup>C、<sup>8</sup>O の全断面積スペクトル (JENDL-4.0)。

## 3.3.2. 実験結果

### 3.3.2.1. 厚さが異なる鉄試料の測定・解析結果

図 3-32 に厚さが異なる鉄試料の中性子透過率スペクトル及び、それに対する ENTAX によるフィッティング結果を示す。フィッティング解析範囲は、図 3-28 (a)の 0.3–20 eV におけるフィッティングカーブが、実測したスペクトルに対し、100 eV まで一致していることから、構築した体系では、100 eV までを解析範囲としても問題ないと判断し、0.3–100 eV とした。図 3-32 より、フィッティング範囲において、実測した透過率スペクトルとフィッティング曲線はよく合っていることがわかる。また、図 3-33 にフィッティング解析により得られた面密度と実際の面密度との比較を示す。横軸に実際の面密度を、縦軸に解析により得られた面密度を取って、プロットしたものとなっている。図中の点線は  $y=x$  の直線を表しており、この直線上にプロットが存在する場合、実際の面密度と評価値が一致することになる。図 3-33 より、全てのプロット点は、 $y=x$  よりわずかに下に位置するものの、非常に近くに位置しているのがわかる。評価された面密度と実際の値との誤差(式 2.3 により計算)は、全プロットにおいて数%~5%以下であった。

以上の結果から、厚さが異なる鉄試料の全てにおいて、ENTAX は鉄の面密度を 5%以内の評価誤差で評価出来た。従って、構築した体系における、ENTAX による単体試料の面密度の定量確度は 5%程度と確認できた。この定量確度は、従来の中性子透過型イメージング手法における定量確度が 10%程度であるため、実用する上で、十分な値である。

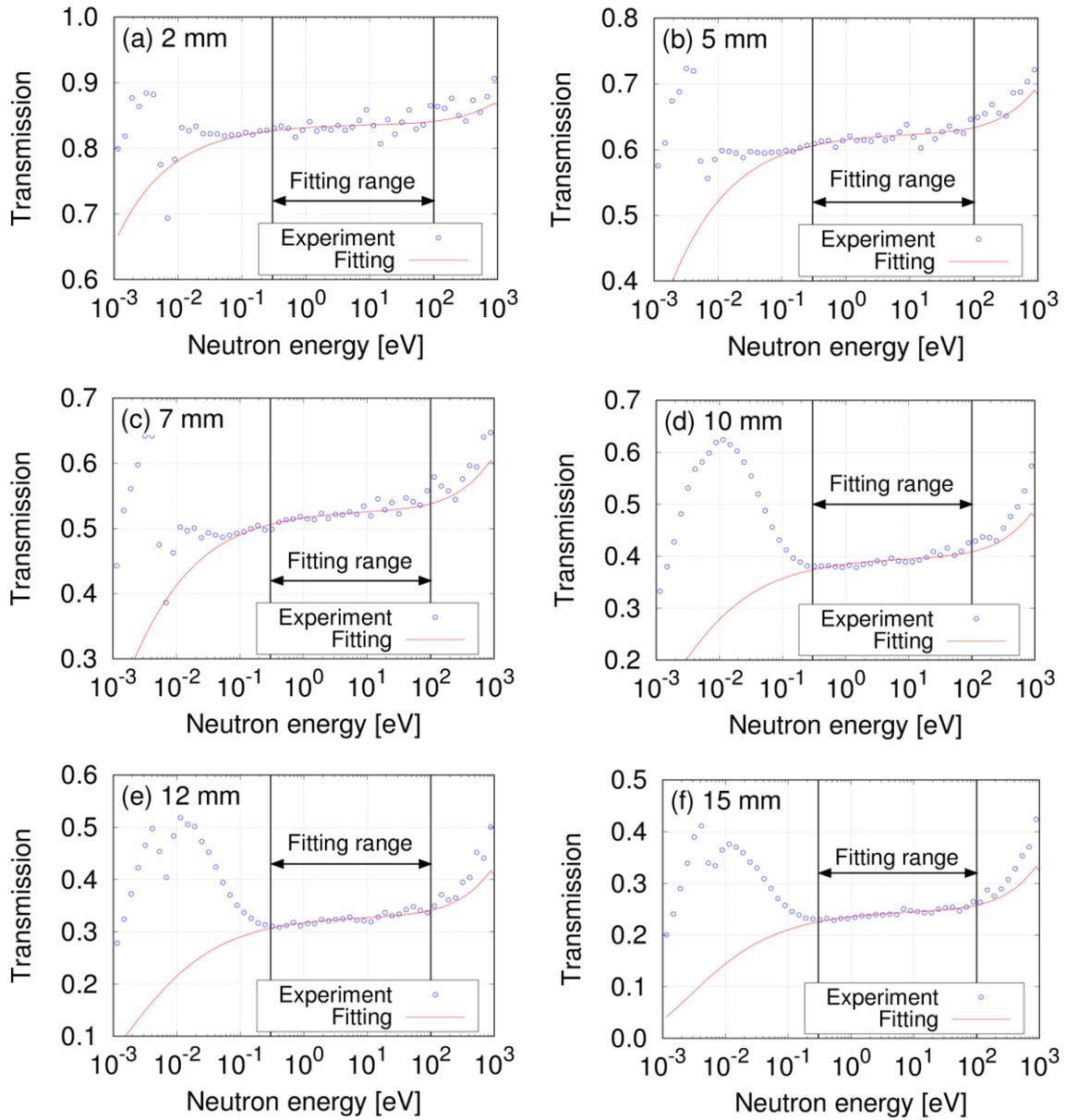


図 3-32. 厚さが異なる鉄試料の中性子透過率スペクトル及びフィッティング結果。

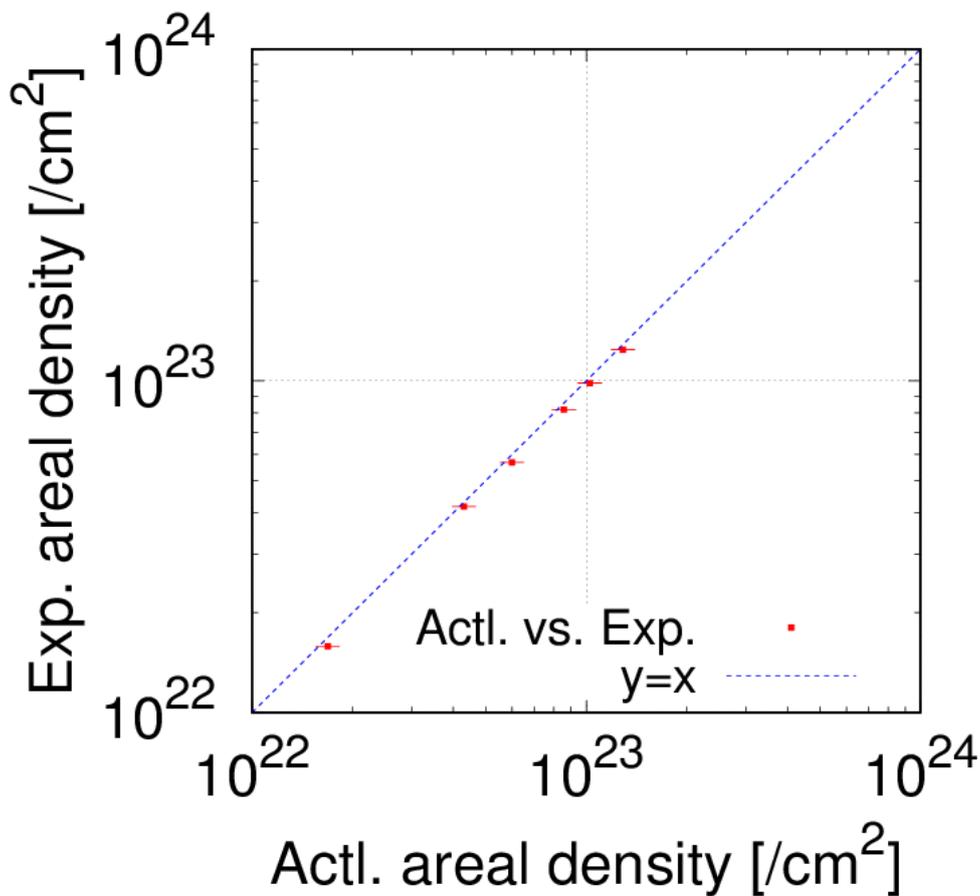


図 3-33. 様々な厚さの鉄試料における面密度評価値と実際の面密度との比較。

### 3.3.2.2. 酸化チタン試料の測定・解析結果

図 3-34 に酸化チタン試料の中性子透過率スペクトル及び、それに対するフィッティング結果を示す。フィッティング範囲は 3.3.2.1 節と同様の  $0.3-100 \text{ eV}$  とした。測定された中性子スペクトルは、高エネルギー側で、統計誤差により大きくばらついているのがわかる。これは、式 3.7 で補正する際に、統計精度の低いモニター部の中性子スペクトルで割り算するためであり、フィッティング範囲における統計誤差の大きさは約 2% 程度であった。このフィッティング解析による面密度の評価結果を表 3-7 に示す。評価誤差は実際の値に対し、チタン・酸素共に 10% 程度であった。

ENTAX では、物質の全断面積のエネルギー依存性の違いを利用して複数物質をそれぞれ評価するため、統計誤差の影響により、透過率スペクトルのエネルギー依存性が歪められてしまう場合には、評価誤差も大きくなると考えられる。よって、表 3-7 の結果は、統計誤差の影響により、評価誤差が大きくなってしまった可能性が高い。そこで、統計誤差を大きくせずに透過率スペクトルの補正を行うため、式 3.8 による補正を試みた。

$$Tr_{\text{corrected}} = \frac{I_{\text{sam\_Tr}}(E)}{\sum_{E=0.5 \text{ eV}}^{E=100 \text{ eV}} I_{\text{sam\_mon}}(E)} \div \frac{I_{\text{dir\_Tr}}(E)}{\sum_{E=0.5 \text{ eV}}^{E=100 \text{ eV}} I_{\text{dir\_mon}}(E)} \quad (3.8)$$

式 3.8 は、モニター部における中性子スペクトルを 0.5 – 100 eV において積算した値を用いて透過率測定部の中性子スペクトルを規格化するものである。この式の場合、0.5 – 100 eV で積算した中性子数により規格化するため、中性子スペクトル（エネルギー毎の中性子数）で割り算を行う式 3.7 に比べ、統計誤差が大きくなる。ただし、式 3.8 による補正は、式 3.7 とは異なり、モデレータ温度変化のような中性子スペクトルのエネルギー依存性が変化する影響の補正は行えず、検出器の測定強度変化のようなエネルギー依存性のない影響のみの補正となる。3.1.1.節で述べたようにモデレータ温度の変化は 0.002–0.3 eV の領域でしか影響しない。そのため、この実験におけるフィッティング範囲（0.3–100 eV）では、中性子スペクトルのエネルギー依存性の変化はないと考えられる。従って、式 3.8 を用いた補正で問題ないと判断した。

図 3-35 に、式 3.8 により補正した中性子スペクトルとそれに対するフィッティング結果を示す。図 3-34 に比べ統計精度の高いスペクトルになっており、フィッティング範囲における統計誤差は、0.5%以下である。このフィッティング解析による面密度の評価値を表 3-8 に示す。ENTAX による評価値は、チタンは-7%程度、酸素は実際の値とほぼ同様の値となった。よって、統計精度の改善により、酸化チタン試料におけるそれぞれの物質の定量精度は向上した。そして、酸化チタン試料においては、それぞれの物質を 10%以内の精度で評価することができた。

従って、構築した体系における、ENTAX による複数物質の面密度の定量精度は、酸化チタンにおいて、10%以内であると確認できた。10%以内という定量精度は、従来の中性子透過型イメージング手法における定量精度と遜色のない値であり、実用上で十分な値である。

また、0.3 eV よりも低いエネルギーの領域をフィッティング範囲に含めて解析を行う場合は、式 3.8 式による補正では不十分であるため、よりモニター部の面積を大きくし、式 3.7 による補正を行っても、統計精度の高い中性子透過率スペクトルが得られるようにすべきである。

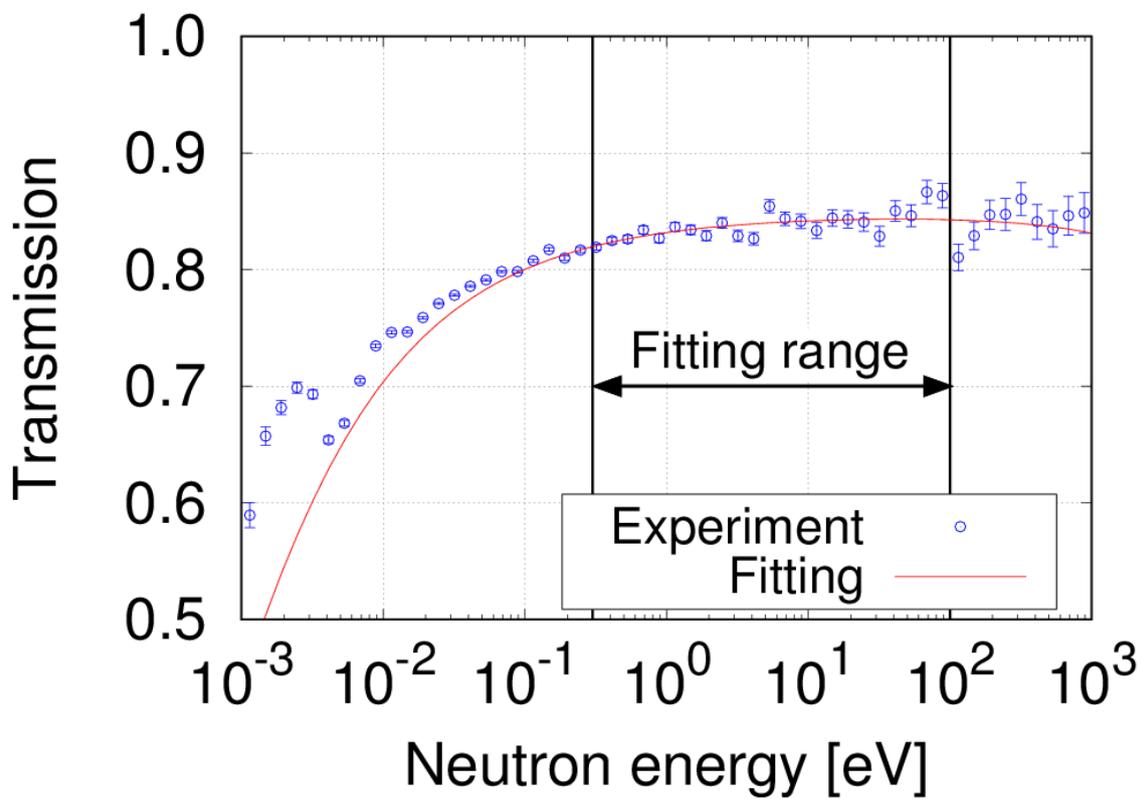


図 3-34. 酸化チタン試料の中性子透過率スペクトル及びフィッティング結果。

表 3-7. 酸化チタン試料の ENTAX による解析結果。

Sample	Analyzed areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation error [%]
Ti in $\text{TiO}_2$	1.71	1.52	+12.5
O in $\text{TiO}_2$	2.71	3.05	-11.1

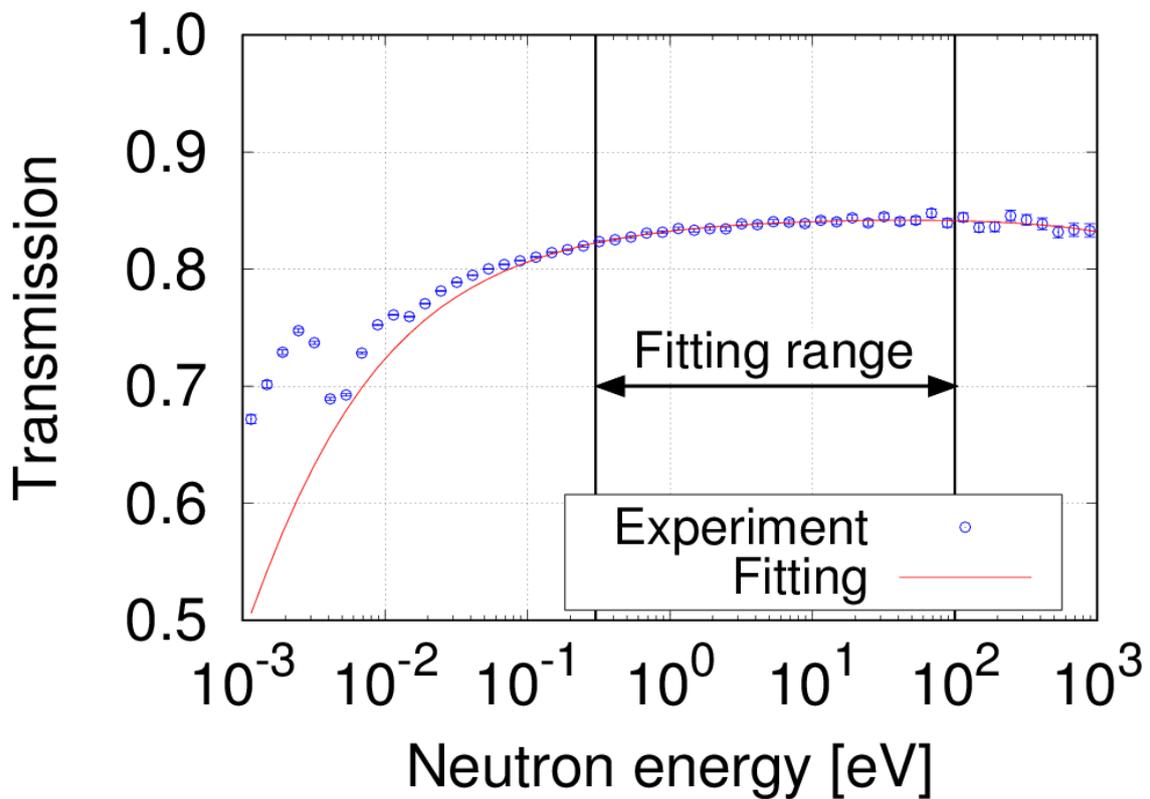


図 3-35. 式 3.8 で補正した中性子スペクトルと ENTAX によるフィッティング結果。

表 3-8 式 3.8 で補正したスペクトルの ENTAX による解析結果。

Sample	Analyzed areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation error [%]
Ti in $\text{TiO}_2$	1.41	1.52	-7.2
O in $\text{TiO}_2$	3.06	3.05	+0.3

### 3.3.3. 構築した体系における ENTAX の定量確度の確認のまとめ

HUNS 熱中性子源ポートにおいて構築した ENTAX のための実験体系（系統誤差をなるべく小さくするための実験体系）において、厚さの異なる鉄の単体試料及び酸化チタン試料の中性子透過率スペクトルを測定し、ENTAX による定量確度の確認を行った。

厚さの異なる鉄の単体試料に ENTAX を適用した結果、全ての厚さにおいて、鉄の面密度は、実際の値から 5%以内の誤差で評価できた。従って、構築した体系における ENTAX の定量確度は、単体試料において、5%以内であると確認出来た。

また、酸化チタン試料に ENTAX を適用した結果、測定される透過率スペクトルの統計精度が高い場合において、チタンと酸素の面密度は、実際の値から 10%以内の誤差で評価出来た。従って、構築した体系における ENTAX の定量確度は、酸化チタン試料において、10%以内であると確認出来た。

本実験により、ENTAX は測定試料の中性子スペクトルから単体および複数の面密度を、実用上十分な定量確度で評価できることを確認できた。

## 3.4. 3 章のまとめ

本章では、ENTAX に適した実験体系の構築を行うため、HUNS 熱中性子源ポートを例として、中性子透過率スペクトルに混入する種々の系統誤差について調査し、その影響を評価した。また、それぞれの系統誤差を低減する方法を提案した。そして、HUNS 熱中性子源ポートにおいて、ENTAX のための実験体系の構築を行った。

構築した実験体系は、検出器の検出面下流に遮蔽体を置かず、また GEM 検出器の一部を中性子モニターとして使用するものである。また、構築した実験体系において、中性子透過率スペクトルの測定実験を行い、原理実証実験時の体系に比べて高エネルギー領域の系統誤差が低減していることを確認した。また、測定される中性子透過率スペクトルの再現性が向上したことも確認した。

また、構築した体系において、ENTAX の定量確度の確認も行った。様々な厚さの鉄試料の透過率スペクトルを測定し、ENTAX による解析を行った結果、ENTAX は、単体試料において、5%以内の定量確度で評価が行えることを確認した。加えて、酸化チタン試料の透過率スペクトルも測定し、ENTAX による解析を行った結果、複数物質の試料においても、10%以下の定量確度で評価が行えることが確認できた。



## 第4章 ENTAX による複数物質の定量評価に関する検討

ENTAX は、透過率スペクトルのエネルギー依存性とその絶対値から複数の元素・物質を定量的に評価する。しかし、試料に含まれる元素・物質の持つ全断面積のエネルギー依存性が同じである場合、ENTAX によりそれらを区別して評価することは原理的に難しいと考えられる。そこで、2 種類の元素や物質において、全断面積のエネルギー依存性がどの程度異なるかを示す「全断面積形状差度」という指標を導入し、ENTAX で評価可能な物質の組み合わせに関しての検討を行った。また、3 種類の元素や物質から構成される試料の中性子透過率スペクトルを粒子輸送シミュレーションにより計算し、ENTAX を適用した。そして、ENTAX により 2 種類以上の元素や物質が区別して評価可能であるかを検討した。

本章では、まず導入した「全断面積形状差度」という指標について説明する。そして、2 種類の元素・物質を様々に組み合わせた試料を用意し、中性子スペクトルの測定実験を行ったことについて述べる。そして、元素・物質を組み合わせた試料の ENTAX による評価結果と導入した指標の関係から、ENTAX で区別して評価可能な 2 種類の元素・物質についての知見を述べる。また、粒子輸送シミュレーションにより 3 種類の元素から構成される試料の中性子透過率スペクトルを計算し、ENTAX を適用した結果について説明する。

### 4.1. 全断面積形状差度の導入

#### 4.1.1. ENTAX による複数物質の定量評価における原理的な課題

ENTAX で複数の元素・物質を評価する場合、試料を構成する元素や物質の持つ全断面積のエネルギー依存性が異なることを利用して、それぞれを区別して評価する。そのため、全断面積エネルギー依存性の差が大きくなるほど、それぞれを分離して評価しやすくなるといえる。しかし、逆に言えば、全断面積のエネルギー依存性に差がほとんどない場合は、複数の物質をそれぞれ分離して評価することが原理的に難しくなる。

2.1.2.3 節で述べたように、ENTAX で使用する熱外中性子領域における物質の全断面積は、 $1/\nu$  による吸収、ポテンシャル散乱、共鳴による断面積から成っている。そして、物質によって、それぞれの断面積の大きさやエネルギー依存性が異なるため、物質の全断面積エネルギー依存性（全断面積形状）は固有のものとなる。しかし、物質によっては、似た全断面積形状を持つこともあり、試料がそのような物質で構成される場合、ENTAX によりそれぞれを分離して評価することは、難しくなると想定される。

そこで、ENTAX により評価可能な物質の組み合わせを見積もるため、物質の全断面積エネルギー依存性の違いを数値化する、「全断面積形状差度（Degree of difference in total Cross-

section Shape, DCS)」という指標を導入することとした。

#### 4.1.2. 全断面積形状差度の定義

2種類の元素・物質における全断面積のエネルギー依存性の違いを表現するため、2つの全断面積スペクトルが作る面積に着目した。2つの全断面積スペクトルが作る面積は、比較する2物質の全断面積形状（全断面積エネルギー依存性）に差があればあるほど大きくなると想定できる。そのため、2つの全断面積スペクトルが作る面積により、全断面積形状の違いを数値化できると考えた。そして、2つの全断面積スペクトルが作る面積を、「全断面積形状差度（Degree of difference in total Cross-section Shape, DCS）」と定義した。以下に、DCSの具体的な計算方法を述べる。

図4-1は、 $^1\text{H}$ と $^3\text{Li}$ の全断面積スペクトル（JENDL-4.0）を示している。2つの全断面積スペクトルが作る面積には、全断面積スペクトルの形状だけでなく、全断面積のそもそもの大きさの違いによって生じる面積が存在している。そのため、図4-1において、単純に全断面積スペクトルの面積を計算しても、全断面積形状の差を表現したことにはならない。そこで、全断面積形状の差のみを表現するため、全断面積の大きさの違いによって生じる面積をキャンセルする必要がある。

DCSを計算する際には、まず、全断面積の大きさの違いによって生じる面積をキャンセルするため、面積を計算するエネルギー領域を限定し、その領域における各全断面積スペクトルの平均値を計算する。すると、図4-2で示すように平均値の差（図中の点線間の距離）が得られる。この平均値の差をオフセットとして、平均値が小さい方の全断面積スペクトルを平行移動する。すると、全断面積の大きさの違いがキャンセルされるため、図4-3のように、全断面積形状の差のみによって作られる面積を得ることが出来る。そして、この面積 $S$ を積算するエネルギー範囲の長さ $L$ （実際には積算したチャンネル数）で割ったものをDCSと定義し、ENTAXによる複数評価の指標とした。

DCSは、その計算過程において、計算するエネルギー領域を制限するため、エネルギー領域の選び方により値は変化する。すなわち、ENTAXで使用するフィッティング範囲が変化すると、DCSの値も変化することに留意すべきである。また、DCSは、2つの全断面積スペクトルの面積をエネルギー範囲で規格化するため、単純にエネルギー範囲を広げても、断面積スペクトルの差が大きくならなければ、DCSは大きくならない。

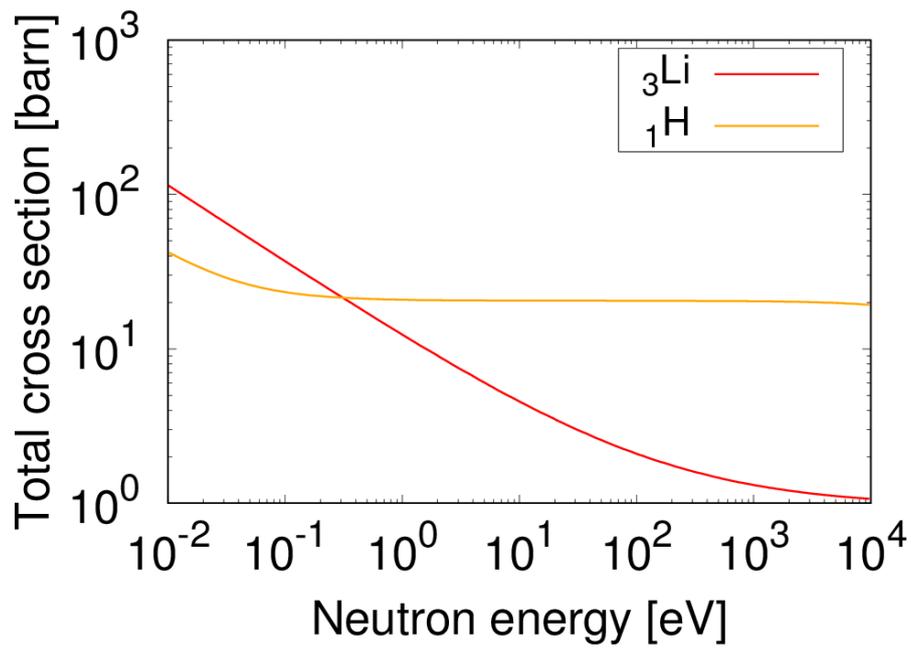


図 4-1.  ${}^1\text{H}$  と  ${}^3\text{Li}$  の全断面積スペクトル。

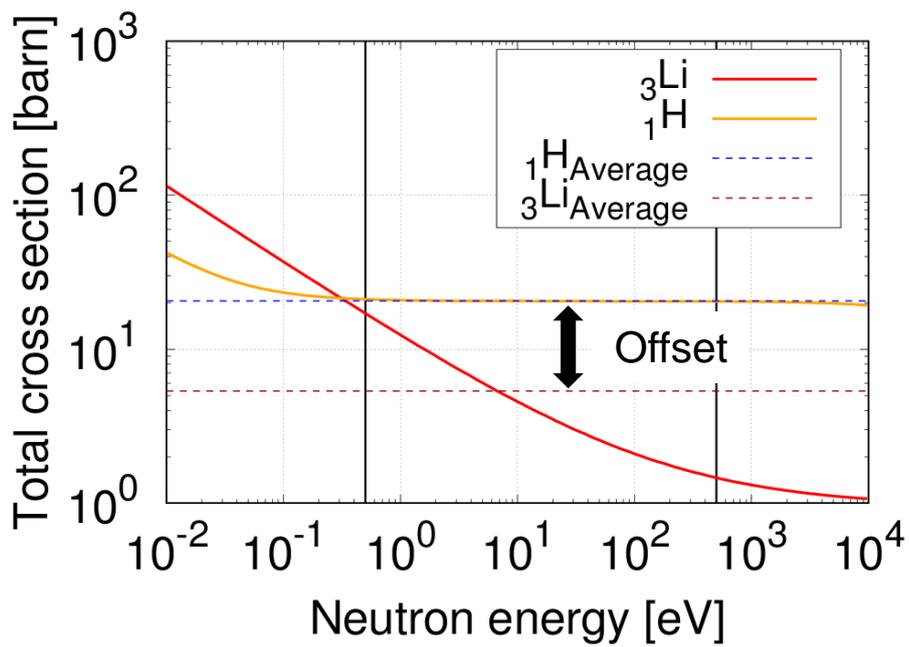


図 4-2.  ${}^1\text{H}$  と  ${}^3\text{Li}$  の 0.5-500 eV における全断面積スペクトルの平均値とオフセット。

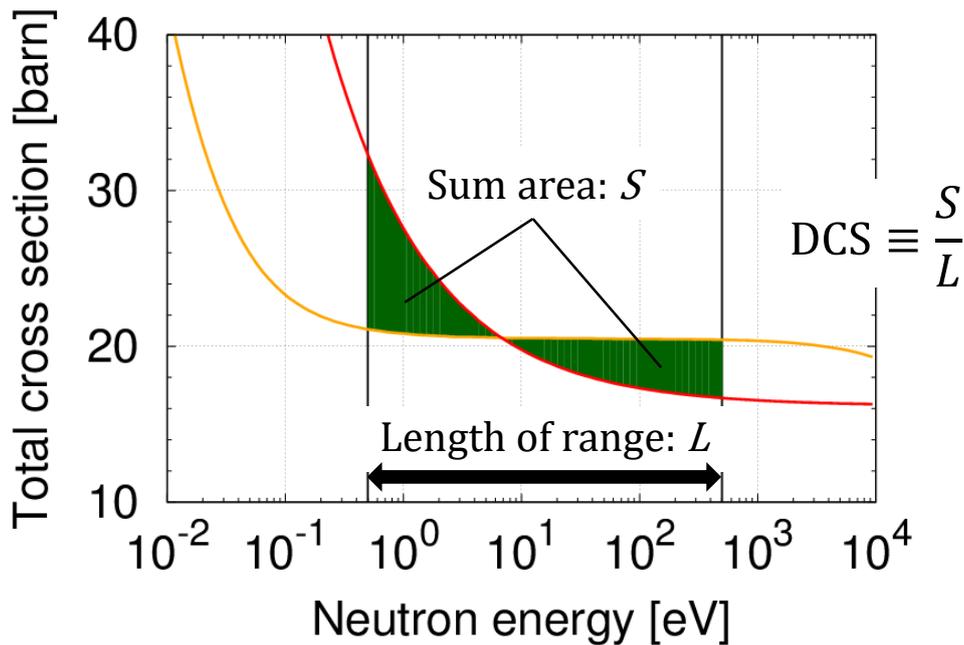


図 4-3. 全断面積形差度 (DCS) の定義。

## 4.2. 2 種類の元素・物質を組み合わせた試料への ENTAX の適用実験

4.1 節で定義した DCS により、ENTAX により分離して評価可能な物質の組み合わせを見積もるためには、様々な DCS の物質の組み合わせに対して、ENTAX を適用した結果が必要となる。本節では、種々の全断面積形状を持つ元素・物質を組み合わせた 2 物質試料を用意し、それらの中性子透過率スペクトルを測定して ENTAX を適用した結果について述べる。

### 4.2.1. 測定試料

様々な DCS を持つ物質を用意するため、物質の持つ全断面積形状が大まかに 3 つに分類可能なことを利用して、2 物質試料を作成するための元素・物質を選定した。本節では、その選定基準を述べ、また、用意した試料の詳細について述べる。

#### 4.2.1.1. 試料の選定基準

熱外中性子領域における元素・物質の全断面積形状は、共鳴断面積を除いて考えた場合、以下の 3 つに分類することが可能である。

- A) 全断面積のエネルギー依存性に変化がないもの (ポテンシャル散乱断面積が主要)
- B) 全断面積のエネルギー依存性に変化があるもの
  - B1) B のうち、吸収断面積が主要な相互作用であるもの
  - B2) B のうち、吸収断面積とポテンシャル散乱断面積が同程度のもの

よって、上記3分類の全断面積形状を持つ単一元素・単一物質を用意し、分類毎に組み合わせることにより、様々なDCSの大きさを持つ2物質試料を作成した。

#### 4.2.1.2. 用意した単一元素・物質とそれらを組み合わせた2物質試料

4.2.1.1.で述べた全断面積形状の分類に従って、各分類の全断面積形状を持つ単一元素・物質を2種類以上選定し、合計で7種類の単一元素・物質を用意した。用意した単一元素・物質を分類毎に表1に示す。

全ての単一元素・物質は板状のものを用意し、板を積層することにより、2物質試料とした。各分類の全断面積形状を持つ物質を様々なパターンで組み合わせて、種々の2物質試料を作成した。また、単一物質のうち、Al-Li alloyとBNは2元素で構成された試料として取り扱うことが可能であるため、これらを2物質試料としても取り扱った。加えて、2種類の化合物試料も用意し、合計11種類の2物質試料を用意した。用意した2物質試料を、分類の組み合わせ毎に表2に示す。化合物試料に関しては、別枠で示しているが、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>とTiO<sub>2</sub>の全断面積形状分類の組み合わせは、どちらもA(O)とB2(Fe, Ti)の組み合わせとなっている。このように、様々な2物質試料を用意することにより、様々なDCSを持つ試料を用意した。

2物質試料を構成する単一元素・物質の全断面積スペクトル(JENDL-4.0)を図4-4に示す。全断面積のエネルギー依存性は、Al-Li alloyとBNは1 $\nu$ による吸収が主要なもの(B1)であり、Pb、C(加えて、O)はポテンシャル散乱が主要なもの(A)、Cu、Fe、Tiは1 $\nu$ による吸収断面積とポテンシャル散乱断面積が同程度のもの(B2)となっている。

実験においては、用意した2物質試料だけでなく、単一元素・物質の測定も行い、ENTAXによる定量精度を評価した。ただし、ビームタイムの都合により、Cuのみの測定が行えなかった。

表 4-1. 2物質試料を作成するために用意した単一元素・物質。

A (thickness, purity)	B1 (thickness, purity)	B2 (thickness, purity)
C (5 mm, 99.5%)	Al-Li alloy (3.2 mm, Al : Li : Cu :	Cu (5 mm, 99.96%)
Pb (2 mm, 99.99%)	Mg = 95 : 2.5 : 1.5 : 1.0 in wt %)	Fe (5 mm, 99.99%)
-	BN (1 mm, 99.995%)	Ti (5 mm, 99.5%)

表 4-2. 用意した2物質試料。

Stacked	A	B1	B2	Compound
A	C + Pb	-	-	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>
B1	BN + Pb, B + N, Al + Li	Al-Li alloy + BN	-	TiO <sub>2</sub>
B2	Ti + Pb	Ti + BN	Ti + Fe, Fe + Cu	-

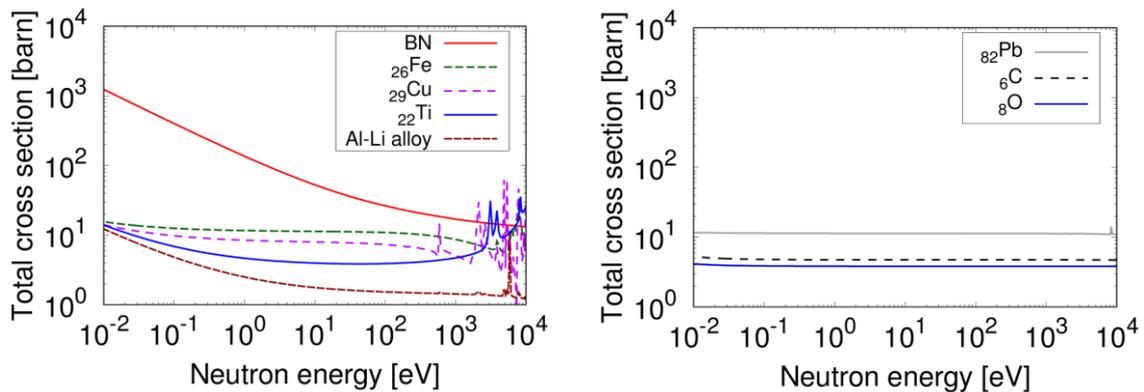


図 4-4. 用意した単一元素・物質の全断面積スペクトル (JENDL-4.0)。

#### 4.2.2. 実験体系および実験条件

用意した試料の中性子透過率スペクトル測定実験は、茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設 (Japan Proton Accelerator Research Complex, J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (Material and Life science experimental Facility, MLF) における 10 番ビームポート「NOBORU」[4-1, 4-2]にて行った。

J-PARC MLF は、大強度陽子加速器により、大強度の中性子ビームを利用可能な施設である。J-PARC MLF の中性子源で発生する中性子数は、HUNS に比べ圧倒的に多いため、NOBORU では、中性子ビームの平行度を高めても、HUNS 以上の強度を持つ中性子ビームが利用可能となる。ENTAX 実験を行う場合、試料からの散乱線が検出器に混入することを防ぐため、試料検出器間距離を 1 m 程度離す必要がある。しかし HUNS では、中性子ビームの平行度が低いため、試料検出器間距離を 1 m 離すと透過像がぼけてしまう。そのため、一回の測定で、一試料の透過率スペクトルしか測定出来ていなかった。それに対し、NOBORU では、高い平行度の中性子ビームが利用可能であるため、一回の測定で複数の試料を同時に測定することが可能である。また、ビーム平行度を高めた状態においても、HUNS より高強度であるため、多数の試料を短時間で測定することが可能である。また、NOBORU では、3 章で検討した系統誤差の影響 (モデレータ温度の変化、環境中性子の混入、検出器の安定性) を低減する体系が確立されている。従って、多数の試料を測定する本実験に適した施設として、NOBORU を選択した。

測定体系を図 4-5 に示す。本実験において、検出器には株式会社 Bee Beans Technology が販売している中性子二次元 TOF 検出器である nGEM 検出器を用いた。この検出器の動作原理等は、HUNS における実験で使用していた GEM 検出器[2-9]と同様のものである。検出器条件を表 4-3、実験条件を表 4-4 に示す。nGEM 検出器はモデレータから 14.45 m の位置に設置した。また測定試料は、検出器から約 1 m 離れた位置 (13.45 m) に置き、試料からの散乱線が検出器に混入するのを防いだ。

本実験では、ビームライン上流 (モデレータ表面から 8.0 m 位置) にあるコリメータの径

を最も小さいものすることで、中性子ビームの平行度 (L/D) をおよそ 2000 とした。L/D が 2000 の場合、試料を通過した中性子のビーム広がり、1 m 先の検出器位置において、0.5 mm となる。この値は、検出器の空間分解能よりも小さいため、透過像のボケは 1 ピクセル以下である。従って、本体系で測定されるデータは、1 ピクセルにおける解析も可能なものである。

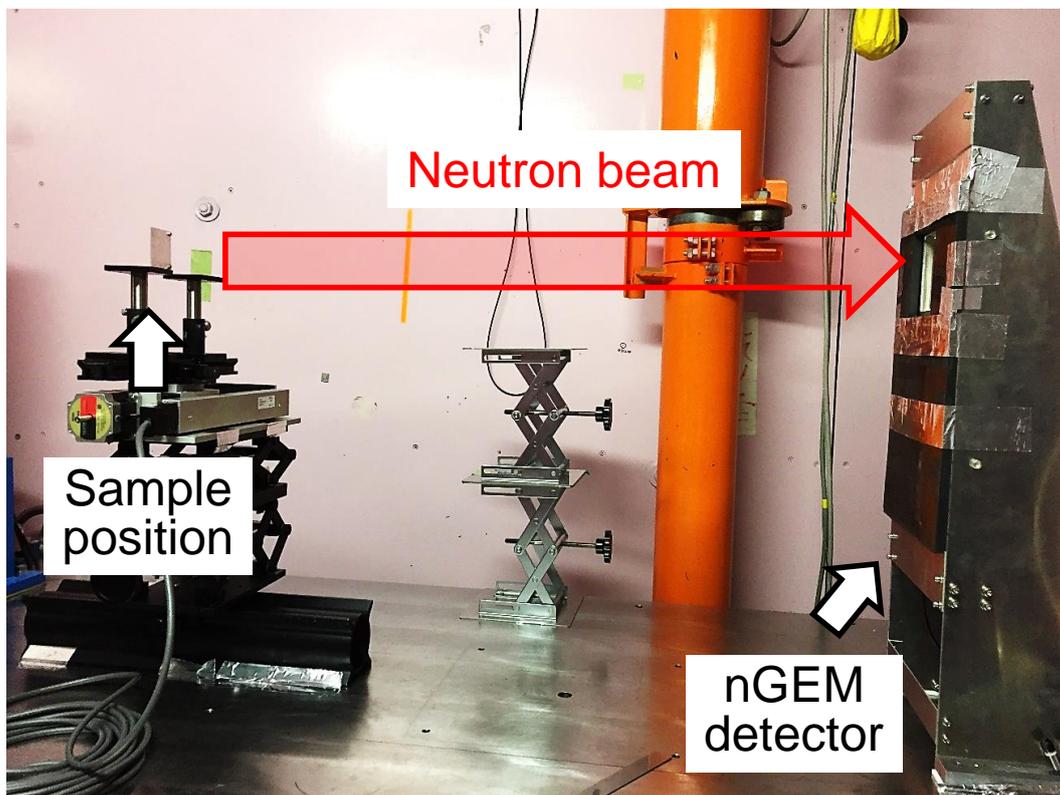


図 4-5. NOBORU における中性子透過率スペクトル測定体系。

表 4-3. 使用した検出器 (nGEM) の性能及び使用パラメーター。

Detector	nGEM
Detection type	Strip counting type
Electron multiplier	GEM (Gas electron multiplier)
Neutron converter	$^{10}\text{B}$ of 2.0 $\mu\text{m}$ thickness (Purity > 99%)
Strip pitch	0.8 mm
The number of strip	128 x 128
Detection area	102.4 x 102.4 $\text{mm}^2$
TOF resolution of FPGA	10 ns
$\gamma/\text{N}$ ratio	$\sim 1/100000$
Maximum counting rate (Experimental value)	$\sim 200$ kHz
Working gas	Ar-CO <sub>2</sub>
Gas flow rate	95 mL/min
Secondary gas pressure	0.08 MPa (gauge pressure)
High voltage apply	-2650 V

表 4-4. NOBORU における実験条件。

Experimental facility	J-PARC MLF BL10 “NOBORU”
Proton beam power	300 and 400 kW
Proton beam frequency	~25 Hz
Target	Liquid mercury
Moderator	JSNS decoupled moderator
Detector	nGEM detector
Neutron flight path	14.45 m
Sample-detector distance	~1 m
Rotary collimator (at 8.0 m)	Tiny (3.16 mm square)
L/D	~2000
Disk type flame-overlap chopper (at 7.2 m)	ON
B <sub>4</sub> C slit 1 (at 7.1 m)	w/o
B <sub>4</sub> C slit 2 (at 12.7 m)	w/o at 300 kW, w/ at 400 kW for beam shaping to the size of 70 x 70 mm <sup>2</sup>
Neutron or gamma-ray filter	w/o
Air conditioner	Working (setting at 23 °C)
Input T <sub>0</sub> signal type (Scheduled or with beam)	With proton beam injection
Recording mode	Event
TOF bin width	2 μs
The number of TOF channel	8000
Detection neutron energy range	0.004 – 1100000 [eV]
Neutron counting rate in the energy range	0.26 x 10 <sup>4</sup> [n/cm <sup>2</sup> /s] at 300 kW 0.34 x 10 <sup>4</sup> [n/cm <sup>2</sup> /s] at 400 kW

#### 4.2.3. 中性子透過率スペクトル測定及び ENTAX によるフィッティング結果

まず、単一試料の中性子透過率スペクトル及びフィッティング結果を図 4-6 に示す。ENTAX によるフィッティング解析範囲は、0.5-100 eV とした。フィッティング範囲の下限は、ブラッグエッジの影響を余裕を持って避けるため、0.5 eV とした。またフィッティング範囲の上限は、測定された透過率スペクトルと試料の重量・体積から計算した面密度を用いて断面積スペクトルに換算し、評価済み核データと比較して一致する範囲とした。次に、図 4-7 に 2 物質試料の中性子透過率スペクトル及びフィッティング結果を示す。フィッティング範囲は単一試料で決めた範囲と同様とした。図 4-6、図 4-7 の解析範囲内において、フィッティングカーブは、実測した透過率スペクトルとよく合っていることがわかる。

表 4-5 に単一試料の面密度評価結果、表 4-6 に 2 物質試料の面密度評価結果を示す。表 4-5 より、単一試料の面密度は、試料の実際の面密度から数%程度の評価誤差で得られており、高い確度で評価できた。それに対し、表 4-6 の 2 物質試料の評価結果では、高い確度で評価されている試料もあれば、そうでない試料も存在しているのがわかる。表 4-6 に記載した RMS of errors は、評価誤差 (式 2.3) の二乗平均平方根を意味し、ENTAX による複数物質評価の際の評価誤差を示す。

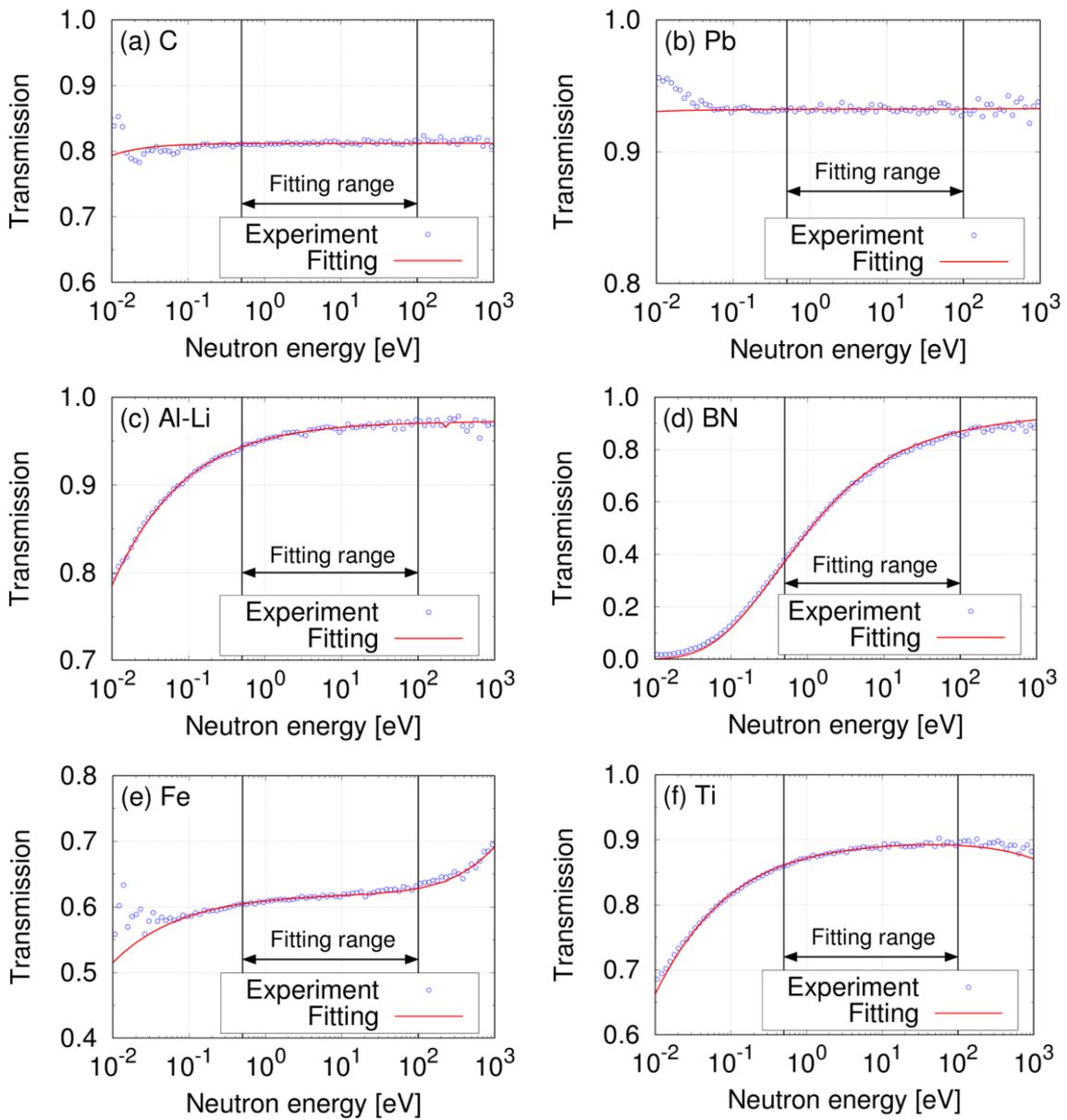


図 4-6. 単一試料の中性子透過率スペクトルとフィッティング結果。

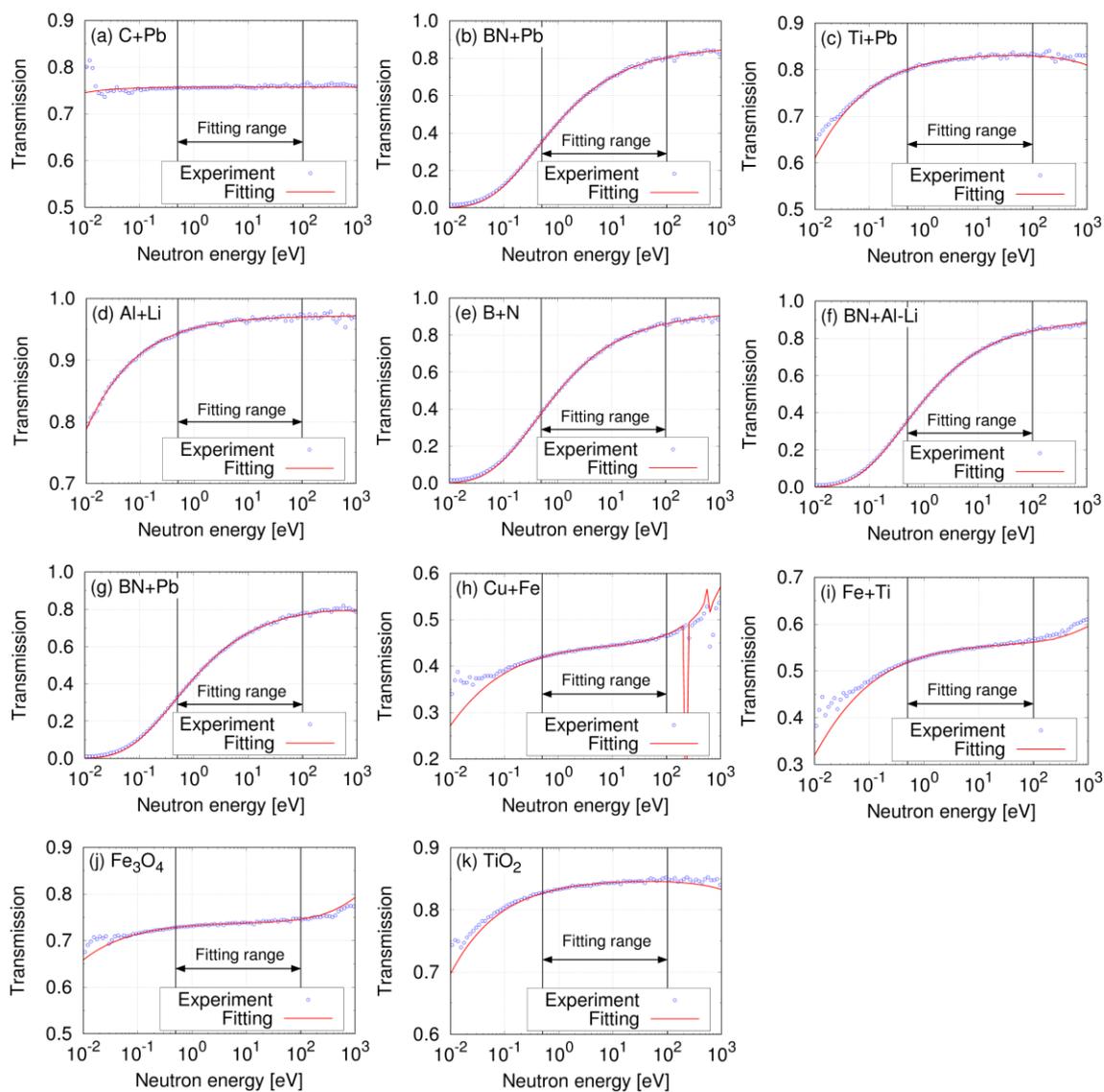


図 4-7. 2 物質試料の中性子透過率スペクトルとフィッティング結果。

表 4-5. 単一試料の面密度評価結果と実際の面密度との比較。

Sample	Analyzed areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation error [%]
C	4.40	4.51	-2.5
Pb	0.618	0.636	-2.8
Al-Li alloy	1.97	1.93	2.0
BN	5.29	5.20	1.7
Fe	4.26	4.31	-1.2
Cu		4.21	
Ti	2.94	2.88	2.1

表 4-6. 2 物質試料の面密度評価結果と実際の面密度との比較。

Sample	Analyzed areal densities [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal densities [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation errors [%]	RMS of errors [%]
C + Pb	C: 2.08 Pb: 1.59	C: 4.51 Pb: 0.636	C: -54.0 Pb: 150	112.6
BN + Pb	BN: 0.514 Pb: 0.734	BN: 0.520 Pb: 0.636	BN: -1.2 Pb: 15.4	10.9
Ti + Pb	Ti: 3.03 Pb: 0.606	Ti: 2.88 Pb: 0.636	Ti: 5.0 Pb: -4.7	4.8
B + N	B: 0.513 N: 0.668	B: 0.520 N: 0.520	B: -1.3 N: 25.4	20.1
Al + Li	Al: 1.90 Li: 0.177	Al: 1.72 Li: 0.176	Al: 10.0 Li: 0.3	7.1
Al-Li + BN	Al-Li: 2.58 BN: 5.14	Al-Li: 1.93 BN: 5.20	Al-Li: 33.5 BN: -1.3	23.7
Ti + BN	Ti: 3.15 BN: 0.515	Ti: 2.88 BN: 0.520	Ti: 9.2 BN: -1.1	6.6
Ti + Fe	Ti: 3.76 Fe: 3.94	Ti: 2.88 Fe: 4.31	Ti: 30.3 Fe: -8.5	22.3
Fe + Cu	Fe: 2.87 Cu: 6.09	Fe: 4.31 Cu: 4.21	Fe: -33.4 Cu: 44.5	39.3
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Fe: 2.68 O: 0 (not evaluated)	Fe: 1.92 O: 2.56	Fe: 39.8 O: 100	76.1
TiO <sub>2</sub>	Ti: 1.83 O: 2.51	Ti: 1.52 O: 3.05	Ti: 20.2 O: -17.5	18.9

### 4.3. 全断面積形状差度 (DCS) と ENTAX の定量確度との関係

ENTAX による複数物質の定量確度は、4.1 節で定義した DCS の大きさと関係があると考えられる。そこで、測定した 2 物質試料の DCS を評価済み核データ (JENDL-4.0) から計算し、表 4-6 の RMS の値との関係を調べた。図 4-8 に、横軸に DCS、縦軸に RMS を取りプロットしたグラフを示す。また、表 4-7 に測定試料毎の DCS と RMS の値を示す。

図 4-8 において、DCS が大きくなるほど、RMS が小さくなる傾向が見えていることがわかる。従って、DCS が大きい物質の組み合わせ程、ENTAX による定量評価が行いやすいことが確認できた。また、DCS の値がおおよそ 0.2 以上において、RMS が 0.1 以下になる点が表れている。従って、ENTAX では、DCS が 0.2 以上において、従来の中性子透過型イメージング手法と同程度の定量確度で、2 物質の定量評価が行える可能性が見出せる。

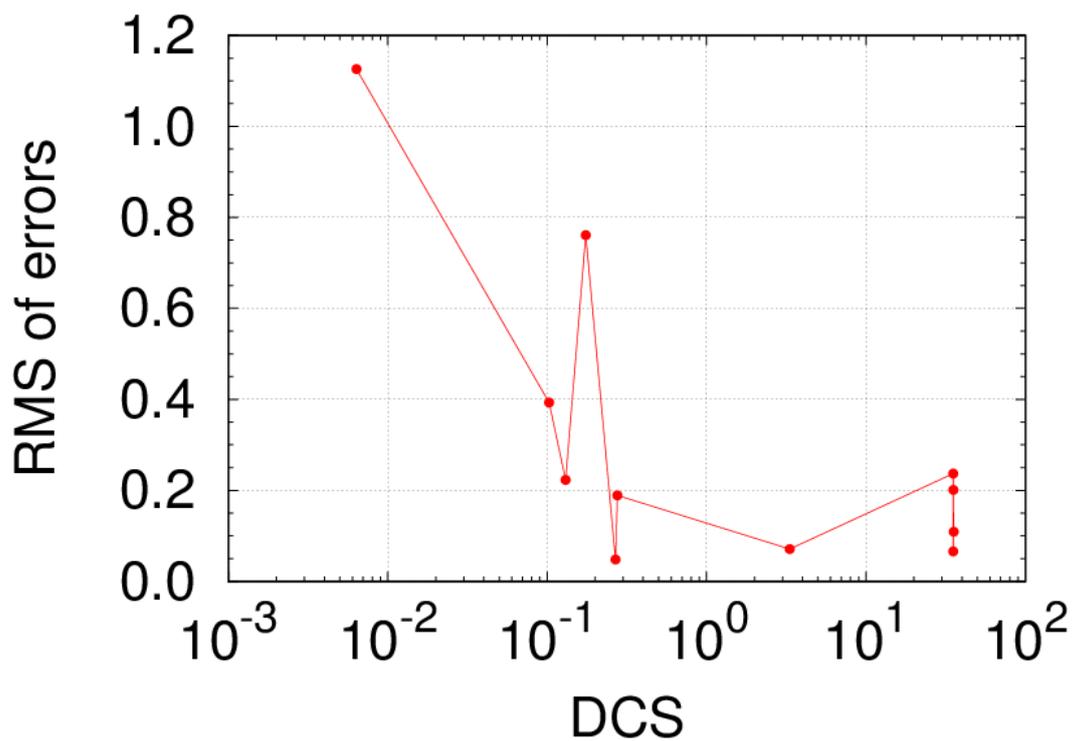


図 4-8. DCS と RMS の相関。

表 4-7. 測定した 2 物質試料の DCS および評価誤差の RMS の大きさ。

Sample	DCS [-]	RMS of errors [-]
C + Pb	0.0064	1.126
Cu + Fe	0.103	0.393
Fe + Ti	0.131	0.223
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.175	0.761
Ti + Pb	0.268	0.048
TiO <sub>2</sub>	0.276	0.189
Al + Li	3.325	0.071
BN + Al-Li	35.271	0.237
BN + Ti	35.310	0.066
B + N	35.401	0.201
BN + Pb	35.578	0.109

また、ENTAXによるフィッティング解析範囲を0.5 – 100 eVとしていたが、単一試料に対するフィッティング結果(図4-6)を見ると、フィッティング曲線は低エネルギー側でもよく合っていることがわかる。これは、試料のブラッグエッジ等の影響が小さいためと考えられる。そこで、ブラッグエッジの影響が最も強く表れている鉄のフィッティング結果(図4-6(e))において、フィッティングカーブが、測定されたスペクトルと0.05 eV以上でほぼ一致していることから、解析範囲を0.05 – 100 eVとして再解析を行った。低エネルギー側では $1/\nu$ による吸収断面積が大きくなるため、基本的に、全断面積のエネルギー依存性が大きくなり、DCSも大きくなると考えられる。よって、この再解析は、DCSを大きくした場合に定量精度が改善するかを確認するものである。

図4-9に解析範囲を0.05 – 100 eVとした場合のDCSとRMSのグラフを示した。比較のため、図4-9には、図4-8におけるプロットも同時に載せている。また、表4-8に、0.05 – 100 eVにおける測定試料毎のDCSとRMSの値を示す(比較のため、表4-7の値も灰色で示す)。図4-9より、0.5 – 100 eVに比べ、0.05 – 100 eVにおけるDCSは、全体的に大きくなっていることが確認できる。また、フィッティング解析範囲を広げたことにより、ほとんどの試料において評価誤差の低減が見られ、やはりDCSが0.2以上になると、RMSがおおよそ0.1かそれ以下となる組み合わせが多くなる(ただし、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 試料では、DCSが0.2以上だが、特にRMSが大きくなっている)。従って、評価誤差10%程度で2物質の評価が行えるDCSの値は0.2程度である。

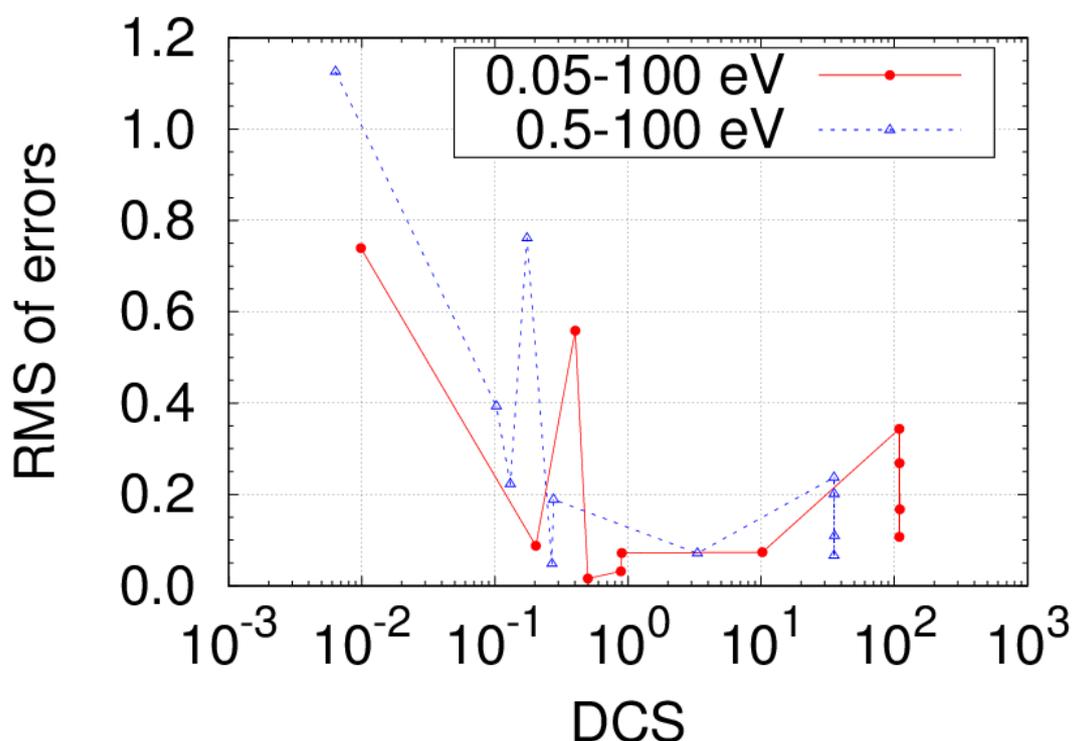


図4-9. 0.05 – 100 eVにおけるDCSとRMSの相関。

表 4-8. 計算及び解析範囲を 0.05 – 100 eV としたときの DCS と RMS。

0.05 – 100 eV sample	DCS [-]	RMS of errors [-]	0.5 – 100 eV sample	DCS [-]	RMS of errors [-]
C + Pb	0.0099	0.739	C + Pb	0.0064	1.126
Cu + Fe	0.203	0.0875	Cu + Fe	0.103	0.393
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.402	0.559	Fe + Ti	0.131	0.223
Fe + Ti	0.501	0.0159	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.175	0.761
Ti + Pb	0.884	0.0316	Ti + Pb	0.268	0.048
TiO <sub>2</sub>	0.900	0.0717	TiO <sub>2</sub>	0.276	0.189
Al + Li	10.23	0.0734	Al + Li	3.325	0.071
BN + Al-Li	109.033	0.344	BN + Al-Li	35.271	0.237
BN + Ti	109.095	0.107	BN + Ti	35.310	0.066
B + N	109.289	0.269	B + N	35.401	0.201
BN + Pb	109.979	0.167	BN + Pb	35.578	0.109

ただし、図 4-9 からわかるように、DCS が特に大きな 2 物質試料 (BN + Al-Li、BN + Ti、B + N、BN + Pb の 4 試料) においては、DCS が大きいものにも関わらず、RMS がやや大きくなっている。この点に関しては、表 4-6 の 4 列目を見ると、全断面積のエネルギー依存性が大きな BN および B の評価結果に関しては、数%程度の評価誤差で定量が行えており、RMS が大きくなっている原因は、もう一方の評価誤差が大きいことにあることがわかる。これらの試料において、このように一方の評価誤差が大きくなる原因は、測定された透過率スペクトルが BN および B によりほぼ決まってしまうためであると考えられる。すなわち、フィッティング解析において BN および B の面密度により  $\chi$  二乗値がほぼ決まってしまう、もう一方の面密度が自由に動けなくなるためと考えられる。そのため、BN や B は、小さな誤差で評価されるのに対し、もう一方の誤差は大きくなってしまふ。よって DCS が大きくとも、試料中のある物質が透過率スペクトルの支配的な要因となる場合は、ENTAX により、複数の物質それぞれを高い確度で評価するのは難しくなると考えられる。

しかし、逆に考えると、透過率スペクトルを形作る主要な物質に関しては、ENTAX により、確度の高い評価が可能であるともいえる。図 4-10 に、横軸に DCS、縦軸に RMS ではなく 2 物質のそれぞれの評価誤差をプロットした図を示す。この図の各点の DCS は、0.5-100 eV における値であり、評価誤差は表 4-6 に示した Evaluation errors の値を示す。丸点は表 4-6 における評価誤差が小さい値を示し、バツ印は評価誤差が大きい値を示している。図 4-10 において、小さい方の評価誤差を示す丸点に着目すると、DCS が大きくなる程、評価誤差が小さくなる傾向がより顕著に現れていることがわかる。また DCS が特に大きな 2 物質試料 (BN + Al-Li、BN + Ti、B + N、BN + Pb の 4 試料) において、評価誤差は数%程度となり、高い定量確度で評価されている。よって、試料中の主要な一物質により透過率スペク

トルが決まっている場合でも、その物質のみであれば、ENTAX はその物質を区別し、高い確度で評価可能である。

また、ENTAX により、2 物質以上の評価を行う場合には、それぞれの物質間における DCS がある程度大きい必要があると考えられる。

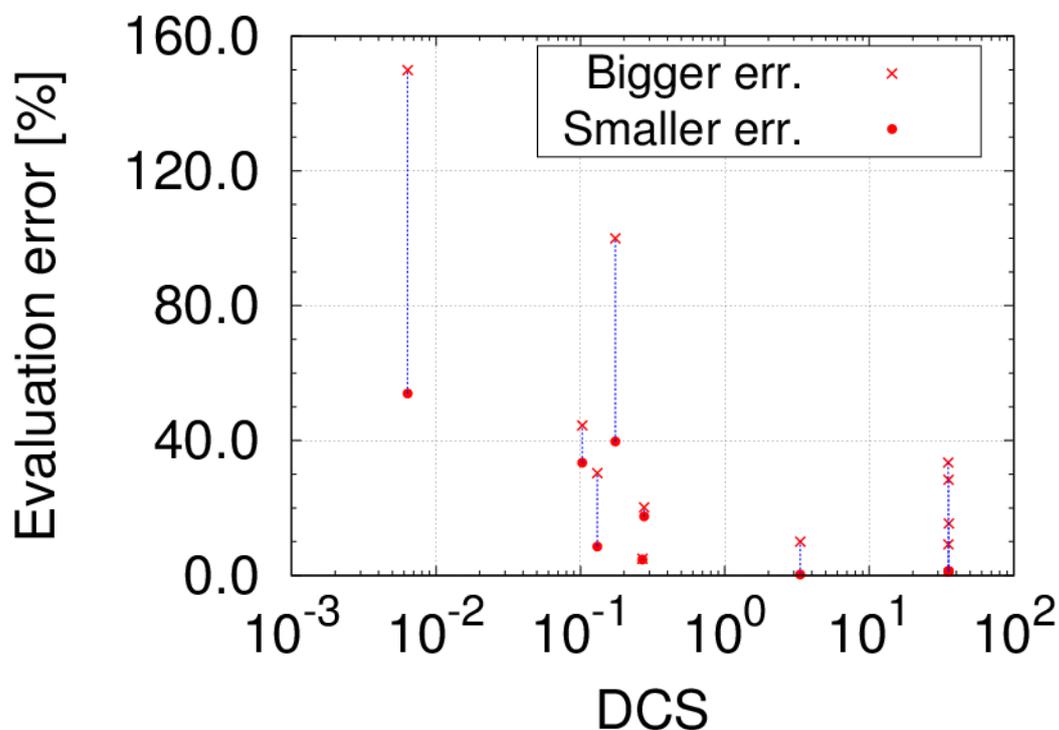


図 4-10. 0.5 – 100 eV における DCS と 2 物質それぞれの評価誤差。

#### 4.4. 透過率スペクトル形状差度の検討

DCS は、中性子透過率スペクトルの形状（エネルギー依存性）を決定する要素の一つである全断面積のみに着目していた。しかし、透過率スペクトルは、式 2.2 からわかるように、全断面積と面密度の積の指数関数として表現され、透過率スペクトルの形状は、全断面積だけでなく面密度の大小によっても変化することとなる（すなわち、全断面積のエネルギー依存性が大きくても面密度が小さければ、透過率スペクトルに現れるエネルギー依存性は小さくなるし、その逆もあり得る）。そのため、複数の元素・物質の評価を行う際の指標としてより正確なものは、全断面積に加え、面密度の影響も考慮した、透過率スペクトル形状差度（Degree of difference in Transmission spectra Shape, DTS）であると考えられる。そのため、これについての検討も行った。

##### 4.4.1. 透過率スペクトル形状差度（DTS）の定義

DTS は、DCS とほぼ同様の方法で定義し、2 種類の元素・物質の透過率スペクトルが作る面積に着目した。図 4-11 は、4.2 節で測定した Pb 試料と BN 試料の実測した面密度と評価済み核データ (JENDL-4.0) から計算される透過率スペクトルを示している。2 つの透過率スペクトルが作る面積には、透過率スペクトルのエネルギー依存性の違いだけでなく、透過率の大きさの違いによって生じる面積が含まれている。そこで、透過率の大きさの違いによって生じる面積をキャンセルするため、面積を計算するエネルギー領域を限定し、その領域における各透過率スペクトルの平均値を計算する。すると図 4-12 で示すように平均値の差 (図中の点線間の距離) が得られるので、この平均値の差をオフセットとして、平均値が小さい方の透過率スペクトルを平行移動する。すると、図 4-13 のように透過率スペクトルの形状 (エネルギー依存性) の差のみによって作られる面積を得ることが出来る。この面積  $S$  を積算するエネルギー範囲の長さ  $L$  (実際には積算したチャンネル数) で割ったものを DTS と定義した。

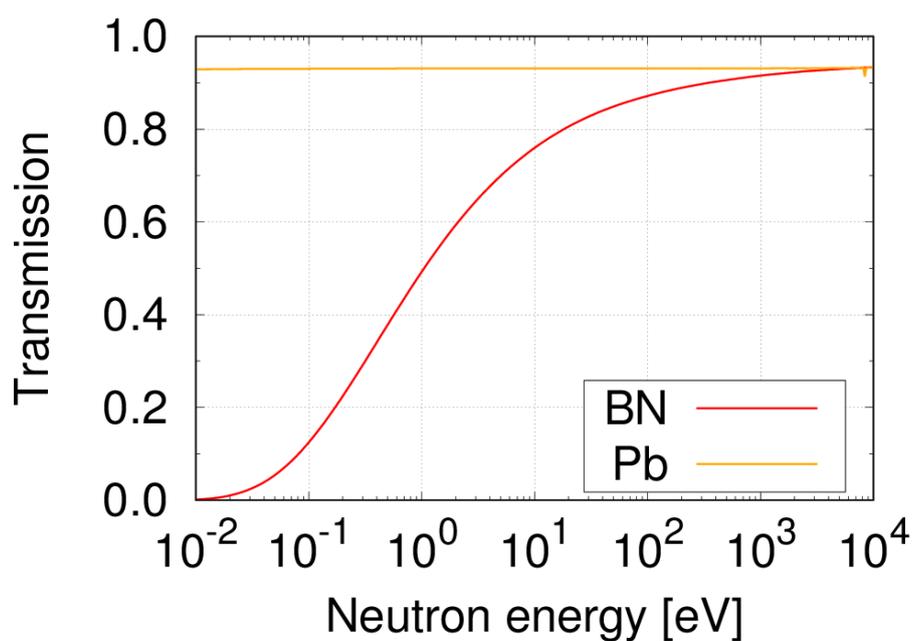


図 4-11. Pb 試料と BN 試料の透過率スペクトル。

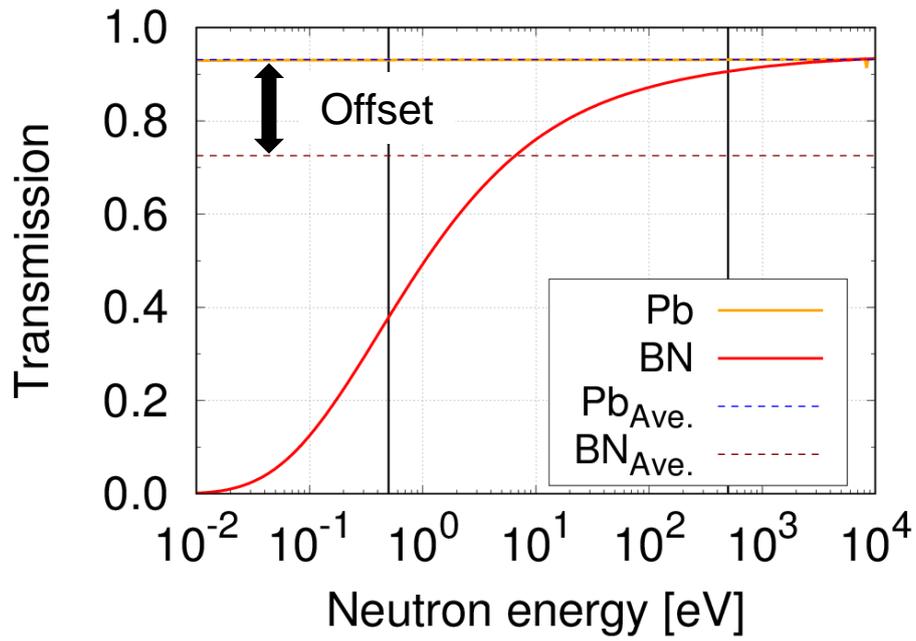


図 4-12. 0.5 – 500 eV における透過率スペクトルの平均値とオフセット。

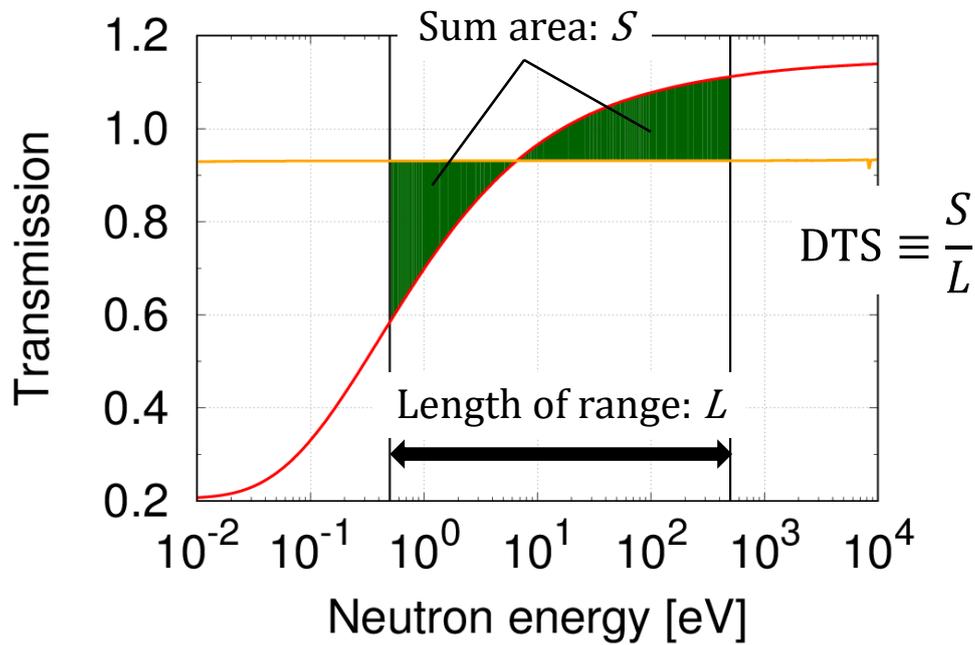


図 4-13. 透過率スペクトル形状差度 (DTS) の定義。

#### 4.4.2. DTS と ENTAX の定量精度との関係

図 4-14 に、DTS に対する表 4-7 及び表 4-8 の RMS をプロットしたものを示す（図 4-9 の横軸に DTS を取った場合のもの）。また、表 4-9 に図 4-14 の作成に用いた DTS と RMS の値を示す。図 4-14 の DTS-RMS のプロットでは、指標（DTS）の増大に対して RMS が減少するという傾向が、図 4-9 の DCS-RMS のプロットに比べて、より強く出ている。図 4-9 においては、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  の評価結果において、DCS がそれなりの大きさであるにも関わらず RMS が大きくなっており、DCS が増大すると RMS が小さくなるという傾向の例外となっていた。しかし、図 4-14 においては、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  の DTS が小さい値となるため、DTS が増大すると RMS が減少するという傾向がより顕著に見えるようになった。

従って、DTS は、DCS よりもより正確に ENTAX による複数物質の評価可能性を見積もることが可能であると考えられる。

また、DTS がおよそ 0.004 付近から、RMS が 0.1 を下回る試料が表れており、DTS を指標として扱う場合、評価誤差 10%程度で複数物質の評価が行える DTS の値は 0.004 程度である。

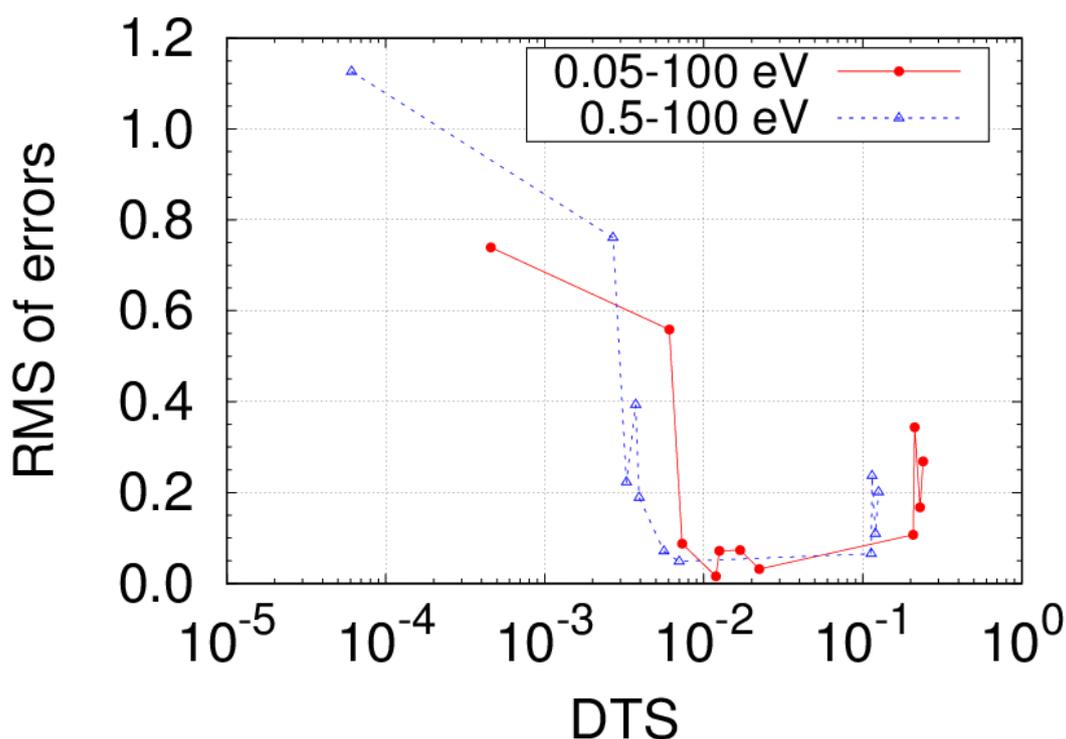


図 4-14. DTS と RMS の関係。

表 4-9. 図 4-13 における DTS と RMS の値。

0.05 – 100 eV sample	DTS [-]	RMS of errors [-]	0.5 – 100 eV sample	DTS [-]	RMS of errors [-]
C + Pb	0.00046	0.739	C + Pb	0.000061	1.126
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.00607	0.559	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.00268	0.761
Cu + Fe	0.00732	0.0875	Fe + Ti	0.00327	0.223
Fe + Ti	0.0119	0.0159	Cu + Fe	0.00373	0.393
TiO <sub>2</sub>	0.0125	0.0717	TiO <sub>2</sub>	0.00392	0.189
Al + Li	0.0169	0.0734	Al + Li	0.00562	0.071
Ti + Pb	0.0224	0.0316	Ti + Pb	0.00700	0.048
BN + Ti	0.208	0.107	BN + Ti	0.113	0.066
BN + Al-Li	0.212	0.344	BN + Al-Li	0.114	0.237
BN + Pb	0.229	0.167	BN + Pb	0.120	0.109
B + N	0.240	0.269	B + N	0.126	0.201

#### 4.4.3. DCS と DTS の使い分け

DCS と DTS の違いは、透過率スペクトルの形状を決定する要素の一つである面密度の影響を考慮するかしないかの違いとなる。本手法を適用する場合、通常、試料中の面密度は未知である状況が想定される。そのため、DTS を予め計算して、複数物質の評価可能性を見積もるということは不可能である。従って、基本的には DCS を用いて、ENTAX による複数物質の評価可能性を見積もることになる。

ただし、透過率スペクトルを解析する ENTAX では、面密度の影響を考慮に入れた DTS の方が、複数物質の評価可能性を見積もる指標としては正確であると考えられる。そのため、試料を構成する物質のおよその面密度が予想可能であるならば、DTS を用いて、複数物質の評価可能性を見積もるべきである。

### 4.5. 3 種類の物質から成る試料の ENTAX による定量可能性の検討

前節までに、2 種類の元素や物質で構成される試料において、ENTAX による評価が可能な組み合わせに関する検討を行った。次に、2 種類以上の元素や物質で構成される試料において、ENTAX による評価が可能であるかを検討するため、粒子輸送シミュレーションにより、3 種類の元素で構成された試料の中性子透過率スペクトルを計算し、ENTAX による定量評価を行った。

#### 4.5.1. 粒子輸送シミュレーションによる透過率スペクトルの計算

3 種類の元素や物質で構成された試料の中性子透過率スペクトルを再現するために、粒子

輸送モンテカルロシミュレーションコード”PHITS” (Particle and Heavy Ion Transport code System) [4-3]を用いた。PHITS は、幅広いエネルギーを持つ様々な放射線を扱うことのできる汎用の粒子・重イオン輸送計算コードであり、PHITS を使用することにより、任意の3次元体系における粒子の挙動をモンテカルロ法を用いてシミュレーションすることができる。PHITS で中性子を用いる場合、その挙動は、20 MeV 以下のエネルギー領域では、評価済み核データにより、それ以上のエネルギー領域ではモデル関数により再現される。本節で行ったシミュレーション計算は、20 MeV 以下の中性子しか用いていないため、中性子の反応は、評価済み核データに則って再現されることになる。

ENTAX による3物質の定量評価を行う試料として、 ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^{82}\text{Pb}$  で構成された試料を選択した。そして、この3物質試料の中性子透過率スペクトルを、PHITS によりシミュレーション計算した。 ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^{82}\text{Pb}$  の3つを試料の構成物質として選択した理由は、これらの全断面積形状がそれぞれ異なっており、ENTAX により原理的に見分けやすい組み合わせとなるためである。図 4-15 に、 ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^{82}\text{Pb}$  の全断面積スペクトル (JENDL-4.0) を示す。それぞれの全断面積スペクトルは大きく異なっていることがわかる。

図 4-16 に、PHITS において設定した中性子透過率スペクトルのシミュレーション体系を示す。中性子ビームは、HUNS 熱中性子源の実測ダイレクトビームを模擬したパルス中性子を設定した。また、試料は上流から、5 mm 厚さの  ${}^{82}\text{Pb}$ 、5 mm 厚さの  ${}^{22}\text{Ti}$ 、1 mm 厚さの  ${}^3\text{Li}$  を重ねて配置し、3物質で構成された試料を再現した。試料を構成する物質のそれぞれの厚さは、透過率スペクトルに与える影響が、各物質で大きく異ならないように調整した。また、試料からの散乱線が混入しないよう、試料検出器間距離は 100 cm に設定した。中性子ビーム、試料、検出器のサイズは全て  $10\times 10\text{ cm}^2$  とし、試料以外の領域は全て真空とした。試料がある場合とない場合のシミュレーションを行い、3物質で構成された試料の透過率スペクトルを模擬した。

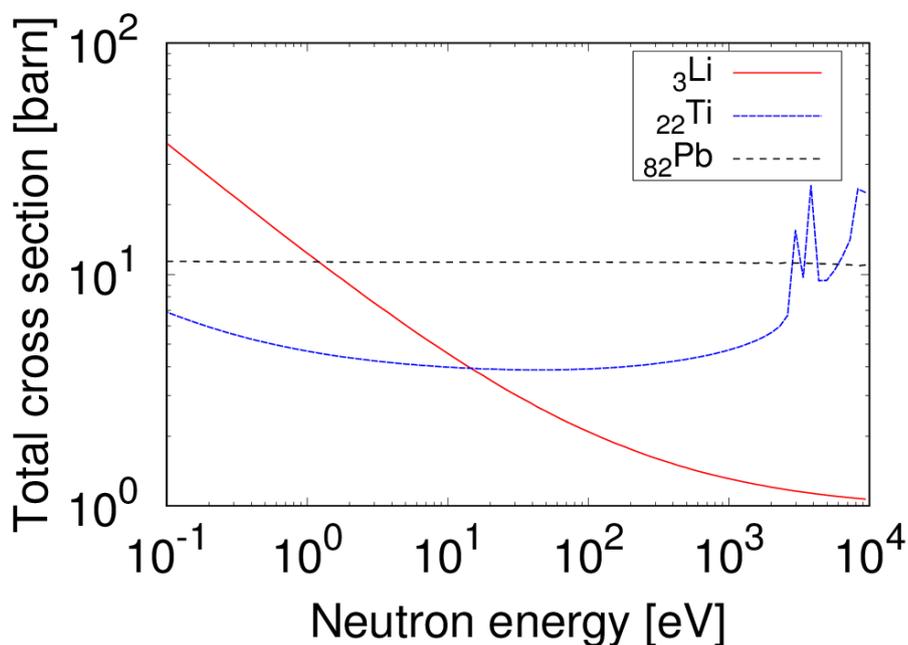


図 4-15.  ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^{82}\text{Pb}$  の全断面積スペクトル (JENDL-4.0)。

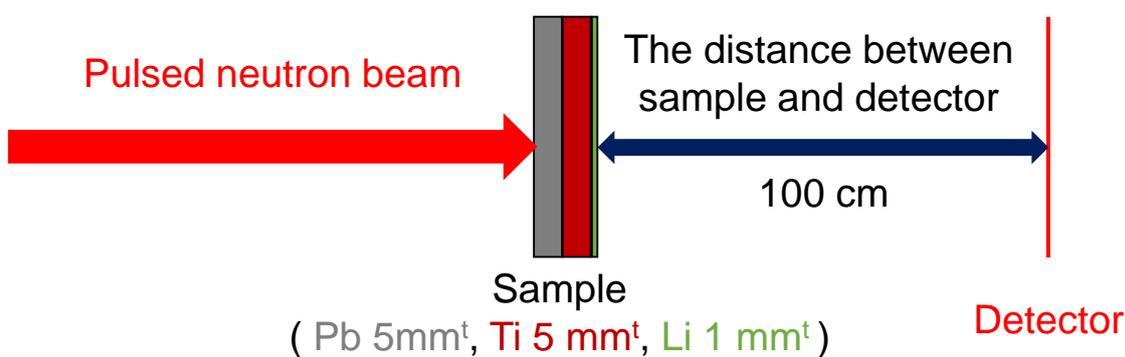


図 4-16. 透過率スペクトルのシミュレーション体系。

#### 4.5.2. 計算した透過率スペクトルに対する ENTAX によるフィッティング結果

図 4-17 にシミュレーションにより計算した透過率スペクトルと、それに対する ENTAX のフィッティング結果を示す。計算したスペクトルの統計誤差は、全ての点で 0.2% 以下であり、フィッティング範囲は、4.2.3 節における解析と同様の 0.5–100 eV とした。図 4-17 において、フィッティングカーブは、フィッティング範囲だけでなく、表示している全範囲で計算した透過率スペクトルとよく一致していることがわかる。これは、PHITS で再現された透過率スペクトルが、評価済み核データを基に計算されており、試料の結晶構造に由来するブラッグエッジや、実験体系による系統誤差の影響は、考慮されていないためである。

表 4-10 に、シミュレーションで設定した面密度及び ENTAX による解析で得られた面密

度、それらの評価誤差（式 2.3 により計算）を示す。試料を構成する 3 種類の物質がそれぞれ 5% 以下の誤差で評価されており、ENTAX により、3 種類の物質の定量評価が可能であることが示された。

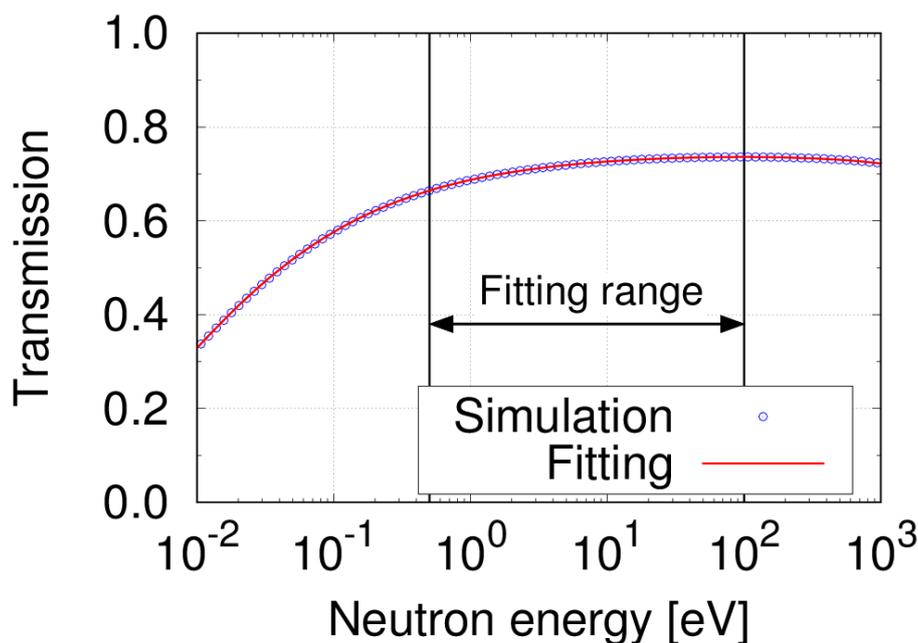


図 4-17. シミュレーションした  ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^{82}\text{Pb}$  の積層試料の中性子透過率スペクトル及び 0.5 – 100 eV で ENTAX によるフィッティングを行った結果。

表 4-10. ENTAX の解析値及び PHITS に設定した値、その評価誤差。

element	Analyzed areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Setting areal density [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation error [%]
Li	0.450	0.463	-3.0
Ti	2.91	2.83	4.5
Pb	1.62	1.65	-1.6

#### 4.5.3. 3 種類の物質から成る試料の ENTAX による定量可能性の検討のまとめ

2 種類以上の物質から構成される試料を、ENTAX によって評価可能かどうかを検討するため、粒子輸送シミュレーションコード「PHITS」を用いて、 ${}^3\text{Li}$ 、 ${}^{22}\text{Ti}$ 、 ${}^{82}\text{Pb}$  で構成された 3 物質試料の中性子透過率スペクトルを計算した。そして、計算した透過率スペクトルに、ENTAX を適用し、3 物質の定量評価が行えるかを確認した。その結果、それぞれの物質を 5% 以内の誤差で評価でき、ENTAX により、3 種類の物質の定量評価が可能であることが示された。

#### 4.6. 4 章のまとめ

ENTAX による複数物質の評価に関する検討を行った。2 種類の物質における全断面積のエネルギー依存性の違いを DCS という指標を導入して表現し、DCS と様々な 2 物質試料の ENTAX による評価結果との関係を調べた。また、全断面積のエネルギー依存性の違いだけでなく面密度の影響を考慮した DTS という指標も導入した。その結果、DCS や DTS が大きい程、複数物質を評価した際の定量確度が向上する傾向にあることがわかった。また、DCS では 0.2 程度、DTS では 0.004 程度の大きさがあれば、2 物質を 10% 程度の定量確度で、評価が行える可能性が高いということがわかった。従って、ENTAX による複数物質の定量可能性を、DCS や DTS を用いてある程度見積もることが可能となった。

また、ENTAX により、2 種類以上の物質を区別して評価可能かどうかを検討するため、3 種類の物質から構成された試料の中性子透過率スペクトルを、粒子輸送シミュレーションにより計算した。そして、計算したスペクトルに ENTAX を適用した結果、ENTAX により、3 種類の物質を区別して評価可能であることがわかった。



## 第5章 ENTAX による定量イメージング(ENTAXI)

本章までに、ENTAX は、軽元素を構成物質の一部とする複数物質を評価可能な手法であることを示した。ENTAX は、二次元検出器を用いて位置毎に解析を行えば、イメージングが行える手法である。そのため、ENTAX によるイメージング (ENTAX Imaging, ENTAXI) は、軽元素を構成物質の一部とする複数物質を定量イメージングすることが可能であると考えられる。

本章では、ENTAXI をアルミリチウム合金試料に適用し、リチウムとアルミニウムの定量イメージングを行った結果について説明する。そして、ENTAXI により、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージングが行えることを実証したことについて述べる。

### 5.1. アルミリチウム合金への ENTAXI の適用

ENTAXI が、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージングを行えることを実証するため、アルミリチウム合金試料に対して、ENTAXI を適用する実験を行った。

#### 5.1.1. 実験体系と測定試料

アルミリチウム合金試料に対する ENTAXI 実験は、J-PARC MLF BL10 “NOBORU”において行った。また、アルミリチウム合金を用いて、様々な厚さを持つ階段状試料及び同じ厚さで組成を変化させた試料を用意した。これらについて説明する。

##### 5.1.1.1. 実験体系

実験は、J-PARC MLF BL10 “NOBORU”にて行った。4 章でも述べたが、NOBORU は、HUNS 以上の強度を持つ高い平行度の中性子ビームを利用可能なビームラインである。そのため、HUNS では行えていなかった、ENTAXI 実験を行うことが可能となる。

実験体系及び実験条件は、4 章の図 4-5 及び表 4-4 と同様である。また、使用した検出器も、4 章で説明した実験と同様の nGEM 検出器であり、検出器条件は表 4-3 と同様である。試料検出器間距離を約 1 m とし、試料からの散乱線の混入を防いだ。本実験では、ビームライン上流 (モデレータ表面から 8.0 m 位置) にあるコリメータとして、3.16 mm 角のものをを用い、中性子ビームの平行度 (L/D) をおよそ 2000 とした。L/D が 2000 の場合、試料を通過した中性子のビーム広がり、1 m 先の検出器位置において、0.5 mm となる。この値は、検出器の画素サイズ (0.8 mm) よりも小さいため、透過像のボケは 1 ピクセル以下である。従って、本体系で測定されるデータは、1 ピクセルにおける解析も可能であり、ENTAXI 実験が行える。

また、ビームライン上流にある 3.16 mm 角のコリメータで中性子ビームを絞ることから、この実験体系は、拡大光学系になっている。コリメータ出口から検出器までの距離が約 6.5

m、試料検出器間距離が約 1 m であるため、拡大率は、約 1.2 倍となる。従って、測定される画像は、実物よりも 1.2 倍ほど大きくなって得られる。

また、NOBORU は、3 章で調査した系統誤差の影響が低減されたビームラインとなっている。モデレータ温度は、モデレータが温度管理されているため、ほぼ変化しない。また、環境中性子は、ビームダンプやチョッパー等により低減されている。さらに、nGEM 検出器の測定強度の変化は、以下の二つの方法により、低減することが可能となっている。

- 二次元検出器において試料が存在しない部分をビームモニターとして使用する。
- 試料とダイレクトビームを 1 時間毎に交互に測定する。

本実験では、加速器ビームパワー 300 kW 時には、1 の方法により、加速器ビームパワー 400 kW 時には、2 の方法により、nGEM 検出器の測定強度変化の影響を低減した。

#### 5.1.1.2. 測定試料

本実験の測定試料として、アルミリチウム合金で作成した、様々な厚さを持つ階段状試料及び同じ厚さで組成を変化させた試料を作成した。同じ厚さで組成を変化させた試料については、アルミリチウム合金と純アルミニウムの短冊状試料を積層することで作成したため、これ以降は短冊積層試料と呼称する。

評価する試料としてアルミリチウム合金を選定した理由は、以下 2 点にある。

1. アルミリチウム合金は、軽元素であるリチウムと軽元素ではないアルミニウムで主に構成され、軽元素を構成物質の一部とする複数物質で構成された試料であるため。
2. リチウムは ENTAX による定量イメージングの応用先の一つであるため（リチウムはリチウムイオン電池等に用いられ、その定量イメージングが求められている）。

また、階段状試料及び短冊積層試料の 2 つを作成した理由は、以下 2 点である。

1. 広い範囲のリチウム量とアルミニウム量における ENTAX の定量確度を確認するため。
2. 厚さや組成の変化が、ENTAX の定量確度に影響するかどうかを確認するため。

本節では、それぞれの測定試料について詳しく述べる。

##### 5.1.1.2.1. 階段状試料

図 5-1 に階段状試料の模式図を示す。幅の異なるアルミリチウム合金の板を重ねることにより、階段状試料を作成した。5 枚の合金板を重ねることで 5 段の階段状試料としており、1 枚の板厚が 1.6 mm であるため、1.6 mm 刻みで最大 8 mm の厚さを持つ。また一段の面積は、50 x 10 mm<sup>2</sup> である。5 枚の板は、アルミニウム製のネジとナットを用いて連結して固定した。

階段状試料の作成に使用したアルミリチウム合金は、(株) ニラコから購入し、組成は、Al : Li : Cu : Mg = 0.95 : 2.5 : 1.5 : 1.0 (in wt%)である。また、この組成の誤差範囲は、Al で 0.93 – 0.962、Li で 0.022 – 0.027、Cu で 0.01 – 0.016、Mg で 0.006 – 0.013 である。この誤差は、合金の作成時に使用する材料のばらつきから生じるものである。

表 5-1 に階段状試料の各段における各元素の面密度を示す。リチウムの量は、 $0.9 \times 10^{21} \sim 4.5 \times 10^{21}$  [/cm<sup>2</sup>]の範囲にあり、純リチウムの厚さに換算すると、0.2 ~ 1 mm 程度の範囲となる。また、リチウムの量はアルミニウムの量に比べ桁少なくなっている。これらの値は、試料の重量・体積・組成比から計算した。ただし、組成比の誤差を考慮すると、表中の値は Al で 97.8 – 101.2%、Li で 88 - 108%、Cu で 67 – 107%、Mg で 60 - 130%程度の幅を持つことに留意すべきである。また、図 5-2 に階段状試料を構成する元素の評価済み核データ (JENDL-4.0) と、表 5-1 の 3 段目の面密度と評価済み核データから計算した中性子透過率スペクトルを示す。図 5-2 (a)より、構成元素の中では、Li のエネルギー依存性が大きいことがわかる。また、図 5-2 (b)より、Cu と Mg は中性子透過率スペクトルにほとんど影響を及ぼさないことがわかる。そのため、階段状試料において ENTAX による解析を行う際は、Cu と Mg の影響を考慮せずに解析を行った。

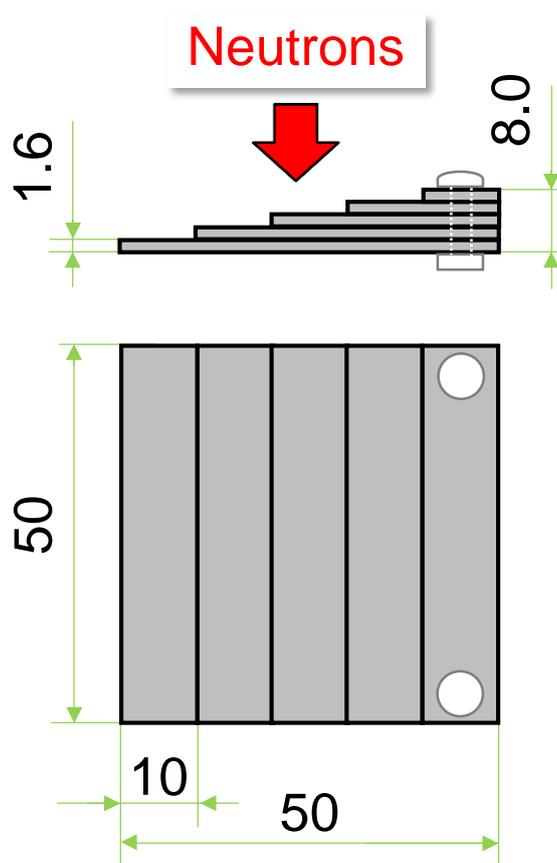


図 5-1. アルミリチウム合金の階段状試料。

表 5-1. 階段状試料の各段における構成元素の実際の面密度。

The num. of step	Areal dens. of Li [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Areal dens. of Al [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Areal dens. of Cu [ $10^{20}/\text{cm}^2$ ]	Areal dens. of Mg [ $10^{20}/\text{cm}^2$ ]
1	0.929	0.908	0.609	1.061
2	1.835	1.793	1.202	2.096
3	2.729	2.668	1.789	3.118
4	3.617	3.536	2.370	4.132
5	4.517	4.416	2.960	5.160

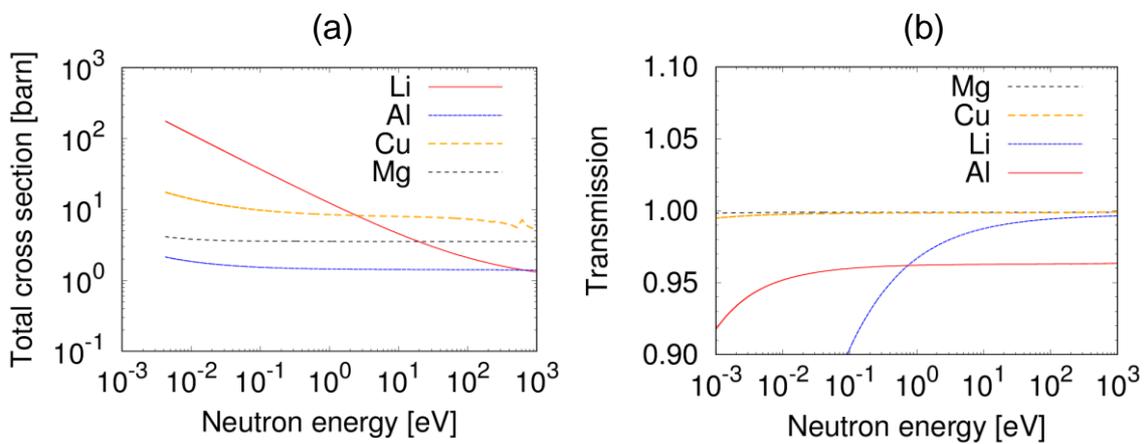


図 5-2. (a) 階段状試料に用いたアルミリチウム合金の構成元素の全断面積、(b) 試料 3 段目の面密度と全断面積を用いて計算した中性子透過率スペクトル。

#### 5.1.1.2.2. 短冊積層試料

図 5-3 に、短冊積層試料の模式図を示す。アルミリチウム合金の短冊と純アルミニウムの短冊を積層し、全体の積層枚数を変えず、その枚数比を変化させることで、同じ厚さで組成の異なる試料を作成した。一枚の短冊の大きさは、 $10 \times 70 \times 3.0 \text{ mm}^3$  とし、全体の積層枚数は 10 枚とした。また、アルミニウム製のネジとナットで 10 枚の短冊を固定し、短冊積層試料とした。使用したアルミリチウム合金は、フルウチ化学 (株) から購入し、組成は、Al:Li = 0.96 : 0.04 (in wt%) である。この組成は、誘導結合プラズマ発光分光分析法 (ICP-AES) により調べられた値である。ただし不純物として、900 ppm 程度の銀が含まれていた。また、使用した純アルミニウムは、純度 99.5% 以上のもの (A1050) である。

短冊積層試料は、アルミリチウム合金と純アルミニウムの枚数比を変えて、合計で 7 種類の試料を作成した。表 5-2 に作成した短冊積層試料の短冊の枚数比、リチウムとアルミニウムの組成比、重量・体積・組成比から計算したリチウムとアルミニウムの面密度を示す。ま

た、便宜上それぞれの試料に名前をつけた。結果を示す際はこの名前を使用する。表 5-2 において、リチウムの量は、 $0.24 \times 10^{22} \sim 2.4 \times 10^{22}$  [ $\text{cm}^2$ ]の範囲にあり（ただし、試料 A は除く）、純リチウムの厚さに換算すると、 $0.5 \sim 5$  mm 程度の範囲となる。階段状試料に含まれるリチウムの量が、 $0.9 \times 10^{21} \sim 4.5 \times 10^{21}$  [ $\text{cm}^2$ ]であると考え、短冊積層試料は階段状試料よりも多量のリチウムを持つ試料である。

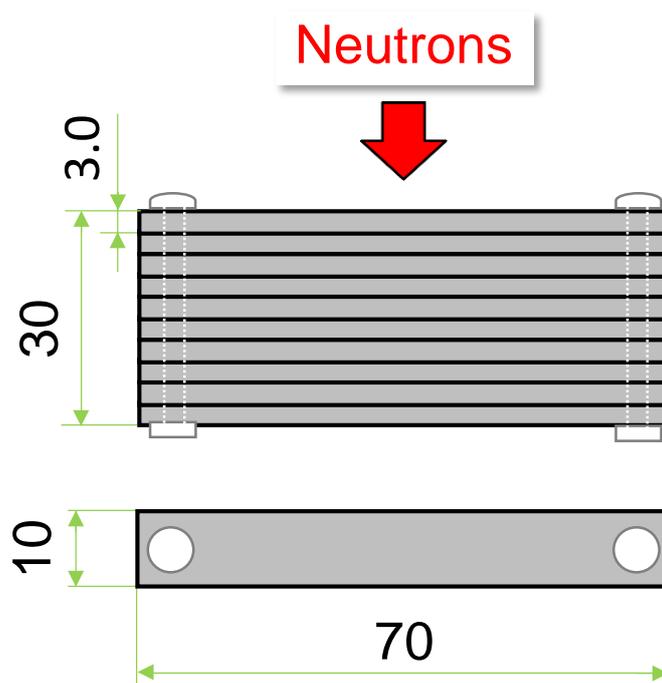


図 5-3. 短冊積層試料の模式図。

表 5-2. 短冊積層試料の各試料における短冊の枚数比、組成、リチウムとアルミニウムの実際の面密度。

Sample name	The num. of slice (Al-Li : pure Al)	Composition in wt% (Li : Al)	Areal dens. of Li [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Areal dens. of Al [ $10^{23}/\text{cm}^2$ ]
A	0 : 10	0.0 : 100	0	1.808
B	1 : 9	0.37 : 99.63	0.244	1.776
C	3 : 7	1.14 : 98.86	0.732	1.713
D	4 : 6	1.53 : 98.47	0.976	1.681
E	5 : 5	1.92 : 98.08	1.220	1.649
F	7 : 3	2.75 : 97.25	1.708	1.586
G	10 : 0	4.04 : 95.96	2.439	1.491

## 5.1.2. アルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムの ENTAX による定量 確度の評価

厚さや組成が異なるアルミリチウム合金試料中のリチウムとアルミニウムを、ENTAX を用いて適切に定量評価できるかを確認するため、統計精度の高い中性子透過率スペクトルに対して ENTAX を適用し、定量確度を評価した。

ENTAX の定量確度を評価する場合、解析値が測定される中性子透過率スペクトルの統計精度に影響されないよう、なるべく統計精度の高いスペクトルに対し、ENTAX を適用すべきである。そのため、階段状試料であれば各段において、短冊積層試料であれば各試料において、中性子強度を積算して、統計精度の高い中性子透過率スペクトルを取得した。そして、取得したスペクトルに ENTAX を適用し、得られた評価値と実際の値を比較することで定量確度を評価した。

### 5.1.2.1. 測定試料の中性子透過率像と透過率スペクトル取得のための積算範囲

図 5-4 に、全エネルギーの中性子を積算して得た階段状試料の中性子透過率像（ラジオグラフィ像）を示す。測定時間は、試料測定及びダイレクトビーム測定のもつちも約 12 時間である。画像の左から右に従って階段試料の段数が増え、透過率が減少していく様子が見えている。また、階段状試料の 5 段目（ $x=7-8\text{ cm}$ ）においては、試料の連結に用いたアルミネジのコントラストが見えており、 $y=1\text{ cm}$  以下においては、試料ステージによるコントラストが見えている。階段状試料の各段におけるリチウムおよびアルミニウムの面密度は、均一であると考えられるので、図 5-4 の各段に示した黒枠の範囲において中性子強度を積算し、統計精度の高い中性子透過率スペクトルを取得した。

また、図 5-5 に、全エネルギーの中性子を積算して得た短冊積層試料の中性子透過率像を示す。合計 7 種類の短冊積層試料は、2 回に分けて測定を行ったため、それぞれの測定における透過率像を示している。透過率像上部に示されたアルファベットは、表 5-2 で示した各試料の名前を示している。測定時間は、試料測定は 17 時間、ダイレクトビーム測定は 16 時間である。図 5-5 において、短冊積層試料の厚みは全て同一であるが、透過率像のコントラストには違いが見えている。これは、リチウムの全断面積がアルミニウムに比べ大きいため、リチウムが多い試料ほど、透過率が減少するためである。また、短冊積層試料の測定の際には、 $B_4C$  スリットにより中性子ビームを  $7\text{ cm}$  角に成形したため、透過率像にその影が見えている。図 5-5 では、図 5-4 と同様に、短冊の連結に用いたアルミネジや試料ステージのコントラストも見えている。各短冊積層試料におけるリチウムおよびアルミニウムの面密度は、均一であると考えられるので、図 5-5 の各試料に示した黒枠の範囲において中性子強度を積算し、統計精度の高い中性子透過率スペクトルを取得した。

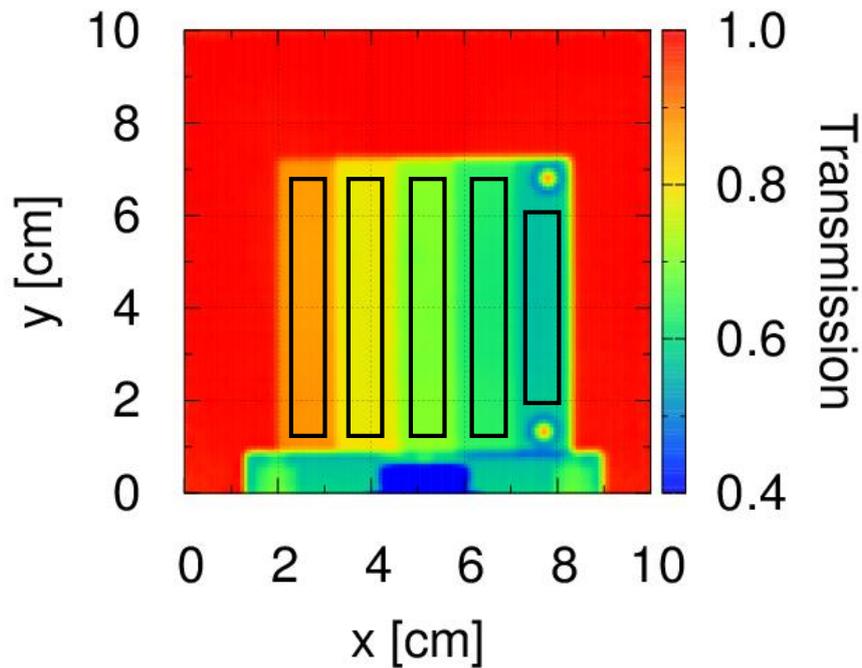


図 5-4. 階段状試料の中性子透過率像と透過率スペクトルを取得する際の積算範囲。

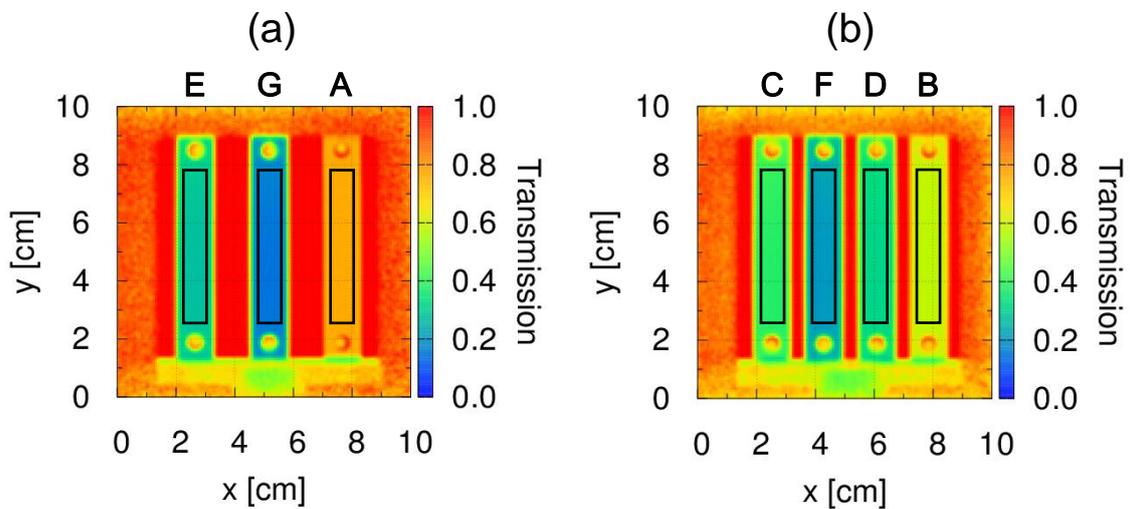


図 5-5. 短冊積層試料の中性子透過率像と透過率スペクトルを取得する際の積算範囲。

#### 5.1.2.2. 領域毎に積算した透過率スペクトルと ENTAX によるフィッティング結果

図 5-6 に、図 5-4 及び図 5-5 で示した黒枠の範囲から取得した、高統計精度の中性子透過率スペクトルを示す。図 5-6 (a)は階段状試料の透過率スペクトル、図 5-6 (b)は短冊積層試料の透過率スペクトルを示す。図 5-6 (a)の凡例は階段の厚みを示し、また、図 5-6 (b)の凡例は表 5-2 に示した試料の名前を示す。図 5-6 の両方のグラフにおいて、リチウムが多くなるにつれて、中性子透過率スペクトルのエネルギー依存性が大きくなっていることがわかる。ま

た、図 5-6 (b)の短冊積層試料の透過率スペクトルでは、図 5-6 (a)の階段状試料の透過率スペクトルに比べ、低エネルギー側においてブラッグエッジが大きく表れているのがわかる。図 5-6 (b)において、純アルミニウム短冊の枚数が多い A から、少ない G になるに従って、ブラッグエッジが小さくなっていくことから、純アルミニウムの短冊により、ブラッグエッジが生じていると考えられる。また、図 5-6 (b)の透過率スペクトルにおいて、5 eV 付近に共鳴ディップが生じているのがわかる。これは、短冊積層試料のアルミニウム合金に含まれる不純物の銀によって生じたものであり、アルミニウム合金の短冊の枚数が少ない A から、多い G になるに従って、ディップの大きさが大きくなっているのがわかる。

厚さや組成の異なるアルミニウム合金における ENTAX の定量精度を評価するため、図 5-6 (a)及び(b)に示した高統計精度の中性子透過率スペクトルに対し、ENTAX を適用した。フィッティング解析範囲については、図 5-6 (b)に見えているブラッグエッジの影響を余裕を持って避けるため、下限を 0.5 eV とした。また、高エネルギー側におけるバックグラウンドの影響を避けるため、上限を 100 eV とした。すなわち、フィッティング解析範囲を 0.5 – 100 eV として、ENTAX を適用した。また、共鳴ディップが生じているエネルギー領域は解析範囲に含めずに解析を行った。図 5-7 に階段状試料の各段の中性子透過率スペクトルに対するフィッティング結果を、図 5-8 に各短冊積層試料の中性子透過率スペクトルに対するフィッティング結果を示す。図 5-7 および図 5-8 の全てのスペクトルにおいて、フィッティングカーブと実測したスペクトルは、解析範囲内でよく一致しているのがわかる。

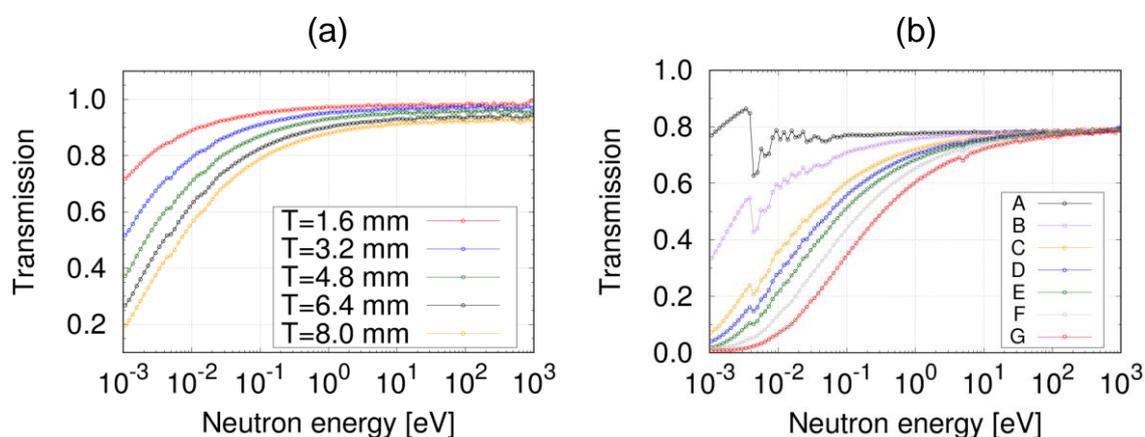


図 5-6. 階段状試料及び短冊積層試料の透過率スペクトル。(a)は階段状試料のスペクトルを示し、(b)は短冊積層試料のスペクトルを示す。

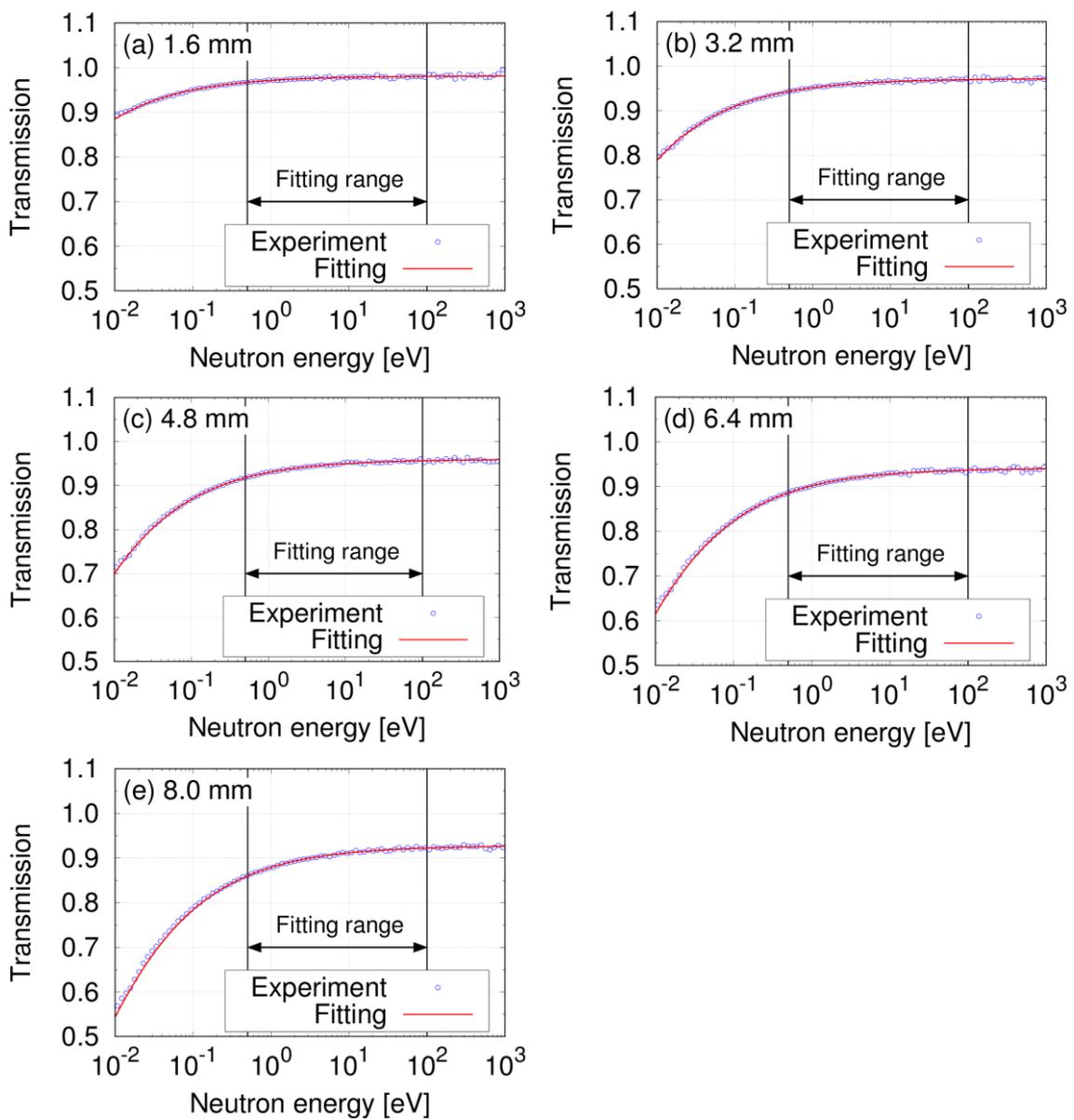


図 5-7. 階段状試料の各段のスペクトルに対する ENTAX によるフィッティング結果。

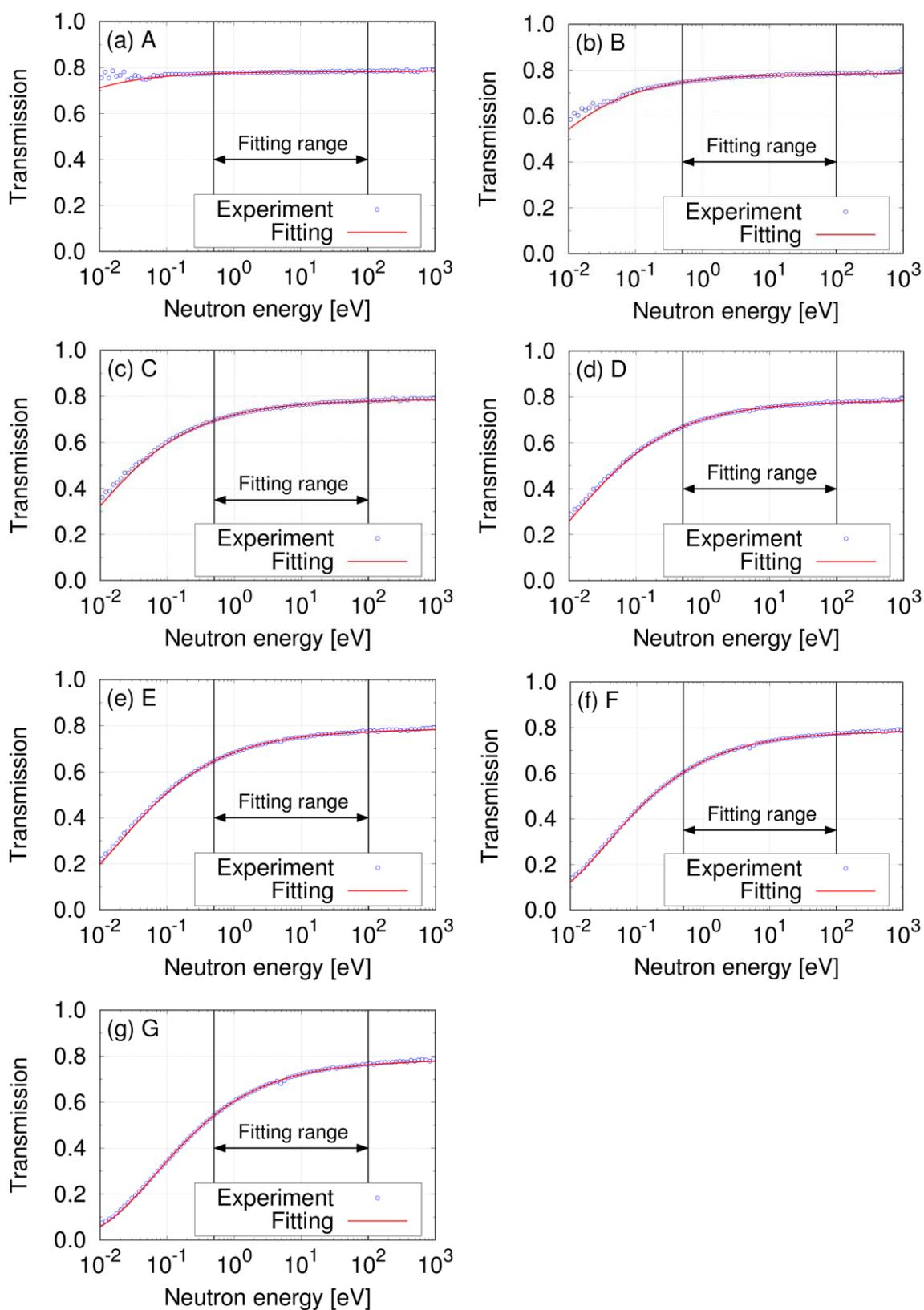


図 5-8. 短冊積層試料における ENTAX によるフィッティング結果。

### 5.1.2.3. 様々な厚さや組成を持つアルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムの定量精度評価結果

階段状試料及び短冊積層試料の中性子透過率スペクトルに対する、ENTAXによる面密度の評価結果を図5-9に示す。図5-9(a)はリチウムの評価結果、図5-9(b)はアルミニウムの評価結果を示しており、横軸は表5-1及び表5-2で示した実際の面密度、縦軸はENTAXで評価された面密度を示している。図中のエラーバーは、最小二乗法によりフィッティングを行った際の解析誤差を示している。この図では、評価された面密度と実際の面密度が一致する場合、 $y=x$ の直線上にプロットされることになる。また、表5-3及び表5-4に図5-9の数値データと、解析値と実際の値との評価誤差(式2.3により計算)を示す。

図5-9(a)では、全てのプロット点が、 $y=x$ の直線上の近くに位置しており、また、表5-3及び表5-4の数値データを見ると、全ての試料において評価誤差10%以内でリチウムの評価が行えていることがわかる。また、図5-9(b)では、リチウムよりばらつきは大きいものの、プロット点は $y=x$ の直線上の近くに位置している。数値データを見ると、アルミニウムの量が最も少ない点(階段状試料の厚さ1.6mmの段)において、評価誤差が大きくなったものの、ほとんどの試料において、評価誤差10%程度もしくはそれ以下でアルミニウム評価が行えていることがわかる。従って、アルミリチウム合金に対するENTAXの定量精度は、広い範囲のリチウムとアルミニウムの量において、10%程度であることがわかった。この定量精度は、従来の中性子透過型イメージング手法と遜色のない値であり、実用上、十分な精度である。

階段状試料の評価結果のみに着目すると、表5-3より、階段の厚さが大きくなると、リチウムの評価誤差が小さくなっていく傾向が見えている。これは、厚さが大きくなると、リチウムの量が多くなり、透過率スペクトルのエネルギー依存性がより解析しやすくなるためだと考えられる。図5-7からわかるように、階段状試料の1段目(1.6mm厚さ)における透過率スペクトル(図5-7(a))は、フィッティング範囲においてかなりエネルギー依存性が小さいが、厚くなっていくと(図5-7(b)~(e)では)、透過率スペクトルのエネルギー依存性がはっきりと見えるようになるのがわかる。従って、リチウムの量が多くなると、リチウムが透過率スペクトルに及ぼすエネルギー依存性が大きくなり、解析が行いやすくなるため、定量精度が向上したと考えられる。また、逆に言うと、リチウムの量が少ない場合は、透過率スペクトルのエネルギー依存性が解析しにくくなり、リチウムの量が決まりにくくなる。その場合、同時にアルミニウムの量も決まりにくくなるため、階段状試料の1段目(1.6mm厚さ)におけるアルミニウムの評価誤差が特に大きい原因は、リチウムが透過率スペクトルに与えるエネルギー依存性が小さく、リチウムの量が決まりにくいいためと考えられる。

短冊積層試料の評価結果に着目すると、表5-4より、ENTAXによる評価誤差は、組成の変化に伴って大きく変化していないことがわかる。また、短冊積層試料では、階段状試料よりもリチウムの量の変化幅が大きく、リチウムの量は大きく変化しているものの、リチウムの量が多くなっても、定量精度はほぼ変化していないことがわかる。中性子ラジオグラフィ

による定量評価では、ビームハードニング[1-29]の影響により、物質の量が多くなると定量確度が低下するという問題がある。しかし、短冊積層試料の評価結果より、ENTAX では、物質の量が多くなっても定量確度に影響がないことが確認できた。ENTAX において物質の量が多くなっても定量確度が低下しない理由は、エネルギー分析を行うため、原理的にビームハードニングの影響をほとんど受けないためであり、これは、ENTAX による定量評価の利点の一つであるといえる。

以上より、ENTAX は、広い範囲のリチウムとアルミニウムを持つアルミリチウム合金において、定量確度 10%程度で評価を行えることがわかった。また、ENTAX の定量確度は、試料の厚さや組成が変化しても、影響を受けないことが確認できた。ただし、試料中の物質の量が少なくなり、透過率スペクトルのエネルギー依存性により試料を構成する物質を分離して評価することが難しい場合には、ENTAX の定量確度は低下することがわかった。逆に、物質の量が多い場合は、透過率スペクトルのエネルギー依存性が大きいため、定量確度は向上する。また、ENTAX は、ビームハードニングの影響を受けないため、物質の量が多い場合でも、定量確度が低下しないことが確認できた。

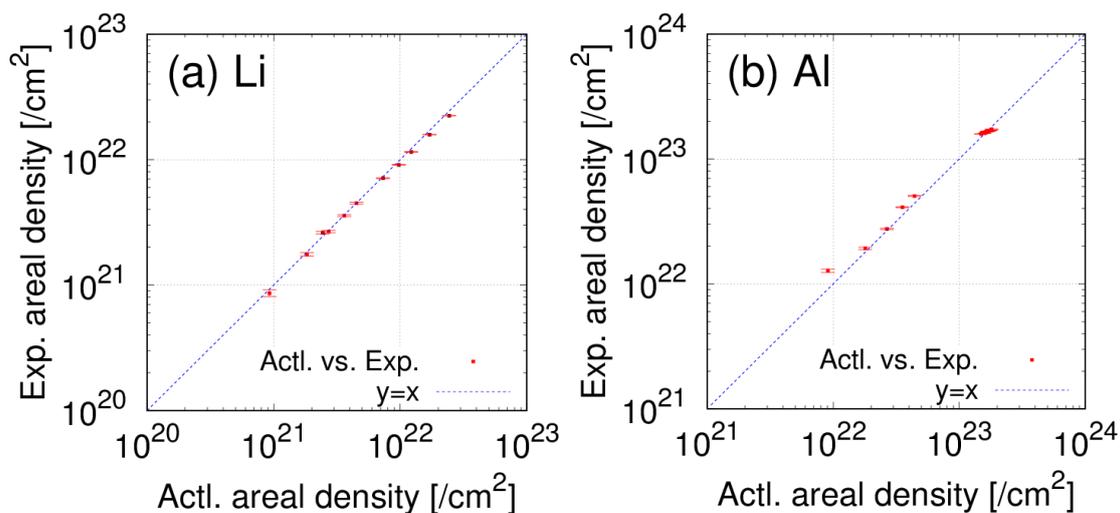


図 5-9. 階段状試料の各段・短冊積層試料の各試料の中性子透過率スペクトルに対する ENTAX の評価結果と実際の面密度との比較。

表 5-3. 階段状試料の各段の中性子透過率スペクトルに対する ENTAX による評価値と実際の値、及びその評価誤差。

Thickness [mm]	Analyzed areal densities [10 <sup>21</sup> /cm <sup>2</sup> ]	Actual areal densities [10 <sup>21</sup> /cm <sup>2</sup> ]	Evaluation errors [%]
1.6	Li: 0.862 Al: 12.75	Li: 0.929 Al: 9.08	Li: -7.2 Al: 40.4
3.2	Li: 1.757 Al: 19.22	Li: 1.835 Al: 17.93	Li: -4.3 Al: 7.2
4.8	Li: 2.672 Al: 27.54	Li: 2.729 Al: 26.68	Li: -2.1 Al: 3.2
6.4	Li: 3.575 Al: 40.97	Li: 3.617 Al: 35.36	Li: -1.2 Al: 15.9
8.0	Li: 4.492 Al: 50.51	Li: 4.517 Al: 44.16	Li: -0.6 Al: 14.4

表 5-4. 短冊積層試料の各試料の中性子透過率スペクトルに対する ENTAX による評価値と実際の値、及びその評価誤差。

Sample name	Analyzed areal densities [10 <sup>22</sup> /cm <sup>2</sup> ]	Actual areal densities [10 <sup>22</sup> /cm <sup>2</sup> ]	Evaluation errors [%]
A	Li: 0.018 Al: 17.28	Li: 0 Al: 18.08	Li: - Al: -4.4
B	Li: 0.261 Al: 16.90	Li: 0.244 Al: 17.76	Li: 7.1 Al: -4.9
C	Li: 0.711 Al: 16.63	Li: 0.732 Al: 17.13	Li: -2.8 Al: -2.9
D	Li: 0.907 Al: 16.70	Li: 0.976 Al: 16.81	Li: -7.0 Al: -0.7
E	Li: 1.151 Al: 16.46	Li: 1.220 Al: 16.49	Li: -5.7 Al: -0.2
F	Li: 1.579 Al: 16.04	Li: 1.708 Al: 15.86	Li: -7.6 Al: 1.1
G	Li: 2.237 Al: 15.83	Li: 2.439 Al: 14.91	Li: -8.3 Al: 6.2

#### 5.1.2.4. 階段状試料における不純物の影響の補正による定量確度の向上

階段状試料に用いたアルミリチウム合金には、その組成中に銅とマグネシウムが含まれている。前節ではこれらを考慮せずに解析を行ったが、本節では、それらを考慮した場合に定量確度に改善が見られるかを検討した。

試料中の不純物元素である銅とマグネシウムが、透過率スペクトルに及ぼす影響は、表 5-

1 に示した実際の面密度と評価済み核データ (JENDL-4.0) を式 1-5 に代入することにより、計算することが可能である。2 章で説明したように、ある試料の透過率スペクトルは、構成物質それぞれが成す中性子透過率スペクトルの積により表現される (式 2-1)。逆に言えば、実測された透過率スペクトルを、不純物元素の中性子透過率スペクトルで割れば、その影響をキャンセルアウトすることが可能である。従って、式 1-5 により計算した銅とマグネシウムの中性子透過率スペクトルで実測された中性子透過率スペクトルを割ることで不純物元素の影響を補正した。例として、図 5-10 に階段状試料の 3 段目 (厚さ 4.8 mm) における補正前と補正後の中性子透過率スペクトルを示す。銅とマグネシウムの影響は図 5-2 で示したようになりに小さいが、補正により透過率の絶対値が全体的にやや大きくなったことがわかる。また、透過率スペクトルのエネルギー依存性は、ほぼ変化していないということも確認できる。

図 5-11 に補正した透過率スペクトルに対し、ENTAX による解析を行った評価結果を示す。比較のため、補正前の透過率スペクトルに対する評価結果 (図 5-9) も示しており、補正したスペクトルにおける評価結果が赤点、補正前のスペクトルにおける評価結果が緑点で示されている。また、表 5-5 に図 5-11 の数値データを示す (比較しやすいよう、図 5-9 の数値データも灰色で示している。)

図 5-11 (b) より、不純物元素の補正を行った場合、アルミニウムの評価結果が全体的に  $y = x$  の直線に近づいていることがわかる。また、表 5-5 より、アルミニウムの評価誤差は全てのプロットにおいて、数%~5%程度減少していることもわかる。また、図 5-11 (a) より、リチウムの評価結果は、不純物元素の補正を行ってもほぼ変化していないことがわかる。

従って、不純物元素の影響は、アルミニウムの評価結果のみに影響し、リチウムの評価結果には、ほとんど影響を与えていないことがわかった。不純物元素の影響がリチウムの評価結果に影響を与えない理由は、リチウムの評価結果が、透過率スペクトルのエネルギー依存性によりほぼ決定されているためと考えられる。すなわち、不純物元素の補正により透過率の絶対値が変化しても、評価値はあまり影響を受けないためだと考えられる。また、不純物元素の影響の補正により、アルミニウムの評価誤差が減少した理由は、アルミニウムの全断面積が一定であり、アルミニウムの評価結果は、透過率の絶対値によってのみ決定されるためと考えられる。すなわち、不純物元素の影響による透過率の絶対値の変化が、評価結果に影響を与えていたためと考えられる。

以上のことから、階段状試料の不純物元素は、中性子透過率スペクトルの絶対値を変化させており、そのため、ENTAX によって解析されるアルミニウムの面密度に影響を与えていることがわかった。これを補正することにより、アルミニウムの評価誤差は数%~5%程度低減することを確認した。従って、試料中に不純物が存在する場合には、その影響の補正により定量精度の向上が可能であることがわかった。

また、以上の議論により、ENTAX による複数物質の評価においては、透過率の絶対値に対する系統誤差は、全断面積のエネルギー依存性が一定もしくは小さい物質に影響すると

考えられる。このことは、複数物質を評価する際に、全断面積のエネルギー依存性が一定もしくは小さい物質を評価したい場合には、透過率の絶対値に対する系統誤差に注意を払うべきということを示し、留意すべきである。

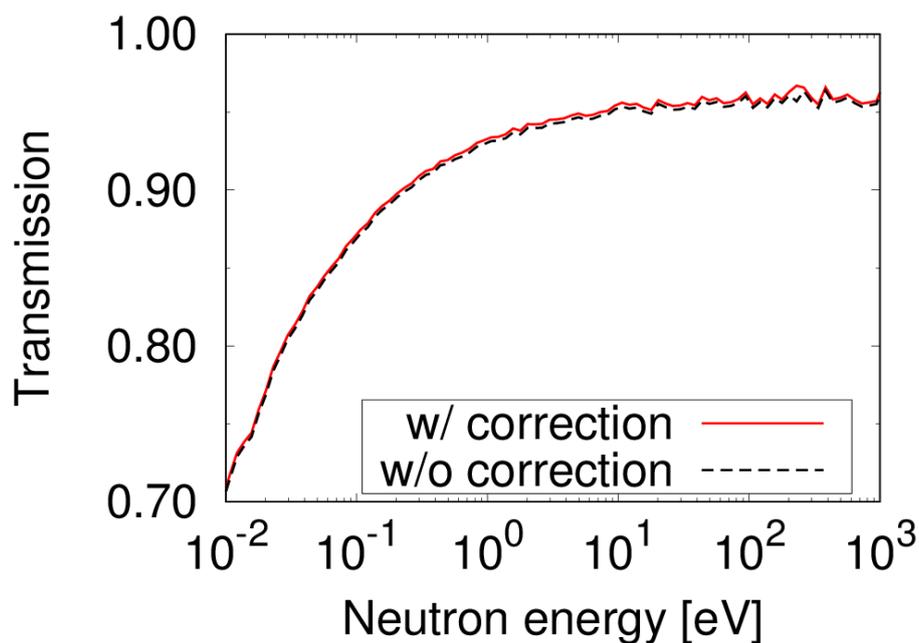


図 5-10. 階段状試料において銅とマグネシウムの影響を補正した透過率スペクトル。

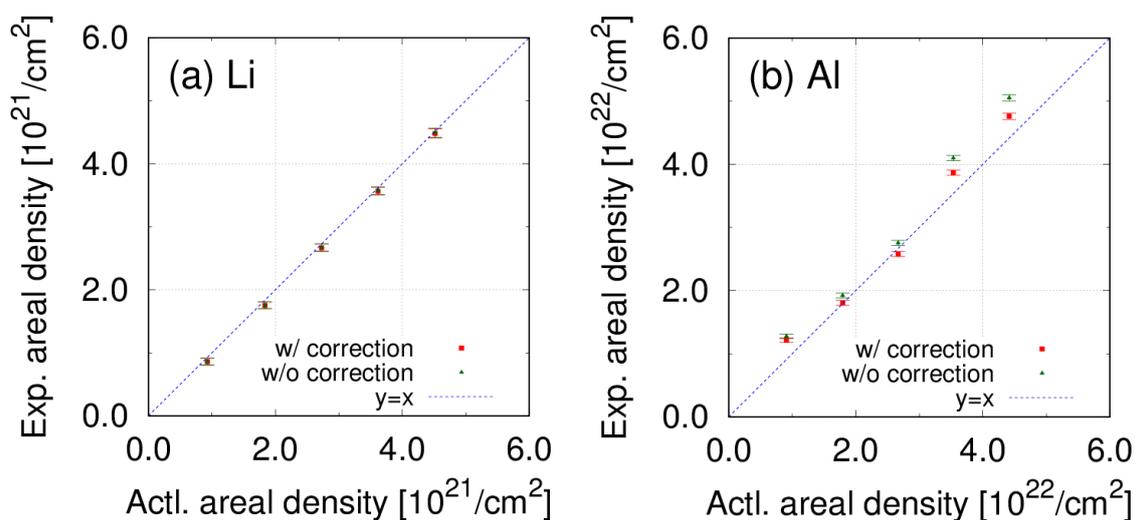


図 5-11. 階段状試料において不純物元素の影響を補正したスペクトルに対する ENTAX の評価結果と実際の面密度との比較。

表 5-5. 不純物の補正を行った階段状試料の中性子透過率スペクトルに対する ENTAX による評価値と実際の値、及びその評価誤差。

Thickness [mm]	Analyzed areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation errors [%]	Analyzed areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation errors [%]
1.6	Li: 0.860 Al: 12.16	Li: 0.929 Al: 9.08	Li: -7.4 Al: 33.9	Li: 0.862 Al: 12.75	Li: 0.929 Al: 9.08	Li: -7.2 Al: 40.4
3.2	Li: 1.752 Al: 18.05	Li: 1.835 Al: 17.93	Li: -4.5 Al: 0.7	Li: 1.757 Al: 19.22	Li: 1.835 Al: 17.93	Li: -4.3 Al: 7.2
4.8	Li: 2.665 Al: 25.79	Li: 2.729 Al: 26.68	Li: -2.3 Al: -3.3	Li: 2.672 Al: 27.54	Li: 2.729 Al: 26.68	Li: -2.1 Al: 3.2
6.4	Li: 3.565 Al: 38.65	Li: 3.617 Al: 35.36	Li: -1.4 Al: 9.3	Li: 3.575 Al: 40.97	Li: 3.617 Al: 35.36	Li: -1.2 Al: 15.9
8.0	Li: 4.480 Al: 47.62	Li: 4.517 Al: 44.16	Li: -0.8 Al: 7.8	Li: 4.492 Al: 50.51	Li: 4.517 Al: 44.16	Li: -0.6 Al: 14.4

#### 5.1.2.5. 透過率スペクトルの絶対値に対する系統誤差の影響の考察

5.1.2.4 節で述べた試料中の不純物のように、透過率スペクトルの絶対値を変化させるような系統誤差の影響について、更なる考察を行う。

透過率スペクトルの絶対値に対する系統誤差の影響は、試料の透過率スペクトルが 1 に近い程 (すなわち、式 2.2 の  $N\sigma(E)$  が小さい程)、大きくなると考えられる。それは、ENTAX では、試料からのシグナル (1 - 透過率) を解析するためである。例えば、透過率スペクトルの絶対値が 0.8 の試料 (A) と、透過率スペクトルの絶対値が 0.2 の試料 (B) を測定したとする。試料のシグナルは、A の試料では 0.2、B の試料では 0.8 となる。この時、透過率スペクトルの絶対値が 1% (0.01) ずれる系統誤差が混入したとする。その影響は単純に考えて、A の試料で  $0.01/0.2=0.05$  (5%)、B の試料で  $0.01/0.8=0.0125$  (1.25%) となり、A の方が大きくなるのがわかる。よって、ENTAX では、試料のシグナルを解析するため、試料のシグナルが小さい、すなわち透過率が 1 に近い試料ほど、系統誤差の影響を大きく受け、解析値の評価誤差も大きくなると考えられる。

従って、透過率の絶対値に対する系統誤差の影響は、透過率スペクトルの絶対値が 1 に近い程、その影響が大きくなる。これは、例えば薄い試料や断面積の小さい物質など、透過率スペクトルの絶対値が 1 に近い物質を評価する際には、小さな系統誤差でも大きく影響を受ける可能性があるため、留意すべきである。

#### 5.1.2.6. アルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムの定量確度の評価のまとめ

様々な厚さや組成を持つアルミリチウム合金試料の透過率スペクトルに対して ENTAX を適用し、広い範囲のリチウムとアルミニウムの量に対する定量確度を評価した。その結果、アルミリチウム合金に対する ENTAX の定量確度は、広い範囲のリチウムとアルミニウムにおいて、10%程度であることが評価できた。ただし、リチウムの量が少ない場合には、透過率スペクトルのエネルギー依存性が小さくなるため、定量確度が低下することがわかった。また、ENTAX では、リチウムやアルミニウムの量が多くなっても、ビームハードニングの影響を受けず、定量確度が低下しないことが示された。

また、階段状試料の透過率スペクトルにおいて、不純物元素の影響の補正を行い、ENTAX の定量確度が変化するかを確認した。不純物元素の影響により透過率スペクトルの絶対値が変化しており、その補正により、アルミニウムの定量確度が向上することが明らかとなった。不純物元素の影響のように、透過率スペクトルの絶対値を変化させる系統誤差は、複数物質の評価においては、全断面積のエネルギー依存性が小さい物質に影響することがわかった。また、透過率スペクトルの絶対値が変化する系統誤差が混入する場合、試料の透過率スペクトルが1に近い場合ほど、ENTAX による解析値への影響が大きくなるという考察を行った。

#### 5.1.3. ENTAXI によるアルミリチウム合金の定量イメージング

5.1.2 節において、統計精度の高い中性子スペクトルに対して ENTAX を適用し、アルミリチウム合金中のリチウムとアルミニウムを 10%程度の定量確度で評価可能であることを確認した。次に、検出器の各ピクセルで測定された中性子透過率スペクトルに ENTAX を適用し、ENTAXI による定量イメージングを行った。

##### 5.1.3.1. アルミリチウム合金の定量イメージング結果

検出器の各ピクセルで測定された中性子透過率スペクトルに ENTAX を適用し、ENTAXI を行った。各ピクセルの透過率スペクトルにおける ENTAX の解析エネルギー範囲は、高統計のスペクトルを解析した際と同様の 0.5 – 100 eV とした。図 5-12 に階段状試料におけるリチウムとアルミニウムの定量イメージング結果を示す。図 5-12 (a)がリチウムの、図 5-12 (b)がアルミニウムの定量イメージング結果となっている。どちらのイメージング結果も、試料厚さの増大に伴ってそれぞれの面密度が増大していく様子が可視化できている。また、リチウムの定量イメージング結果（図 5-12 (a)）においては、試料の連結に使用したアルミネジやアルミニウム製の試料ステージが見えていないのに対し、アルミニウムの定量イメージング結果（図 5-12 (b)）では、アルミネジや試料ステージの存在が確認できる。このことから、ENTAXI では、リチウムとアルミニウムが、それぞれ適切に分離されて評価されていることが確認できた。ただし、階段状試料の薄い段（1、2 段目）においては、評価されている値のばらつきが大きく、また、評価が妥当に行っていない点（図 5-12 において試料範

囲内にも関わらず青色となっている点)が存在している。

次に図 5-13 に短冊積層試料におけるリチウムとアルミニウムの定量イメージング結果を示す。図 5-13 (a)及び(c)がリチウムの結果、図 5-13 (b)及び(d)がアルミニウムの結果となっている。これらの定量イメージング結果も、試料の組成の変化に伴うリチウムとアルミニウムの増減が可視化できている。また、階段状試料の定量イメージング結果に比べ、リチウムとアルミニウムの両方において、評価値のばらつきが少なく、また妥当に評価が行えていない点もほとんど存在していない。

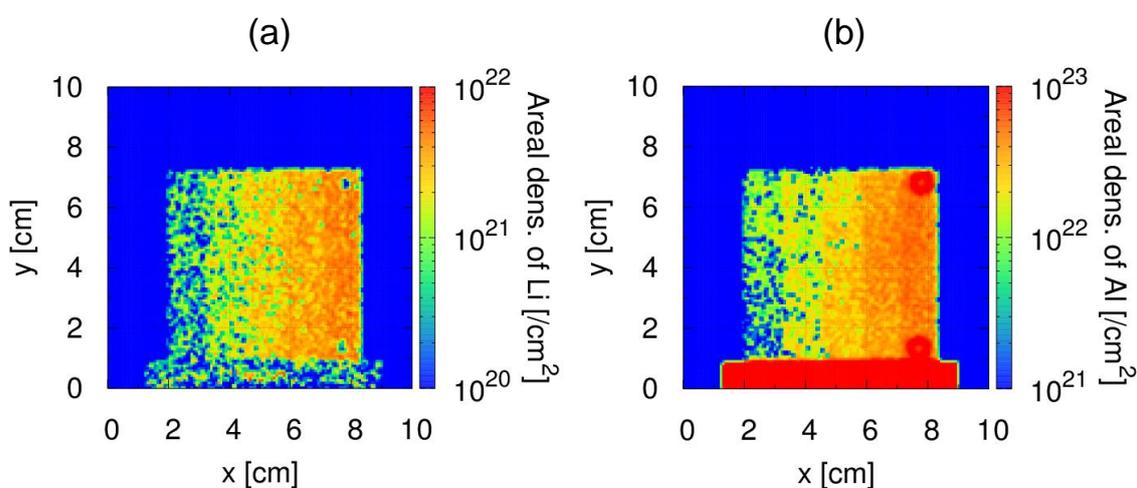


図 5-12. 階段状試料におけるリチウムとアルミニウムの定量イメージング結果。(a)はリチウム、(b)はアルミニウムのイメージング結果を示す。

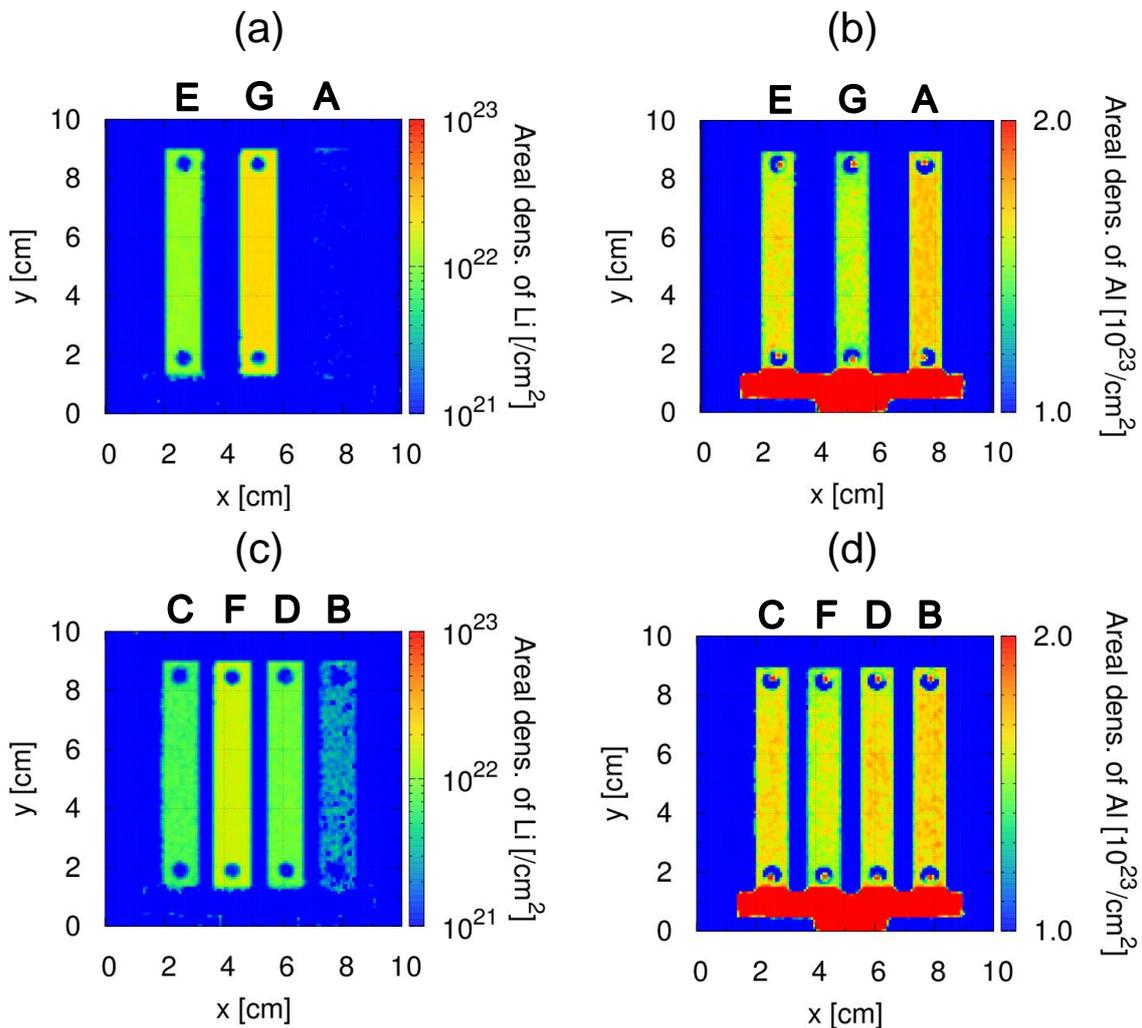


図 5-13. 短冊積層試料におけるリチウムとアルミニウムの定量イメージング結果。(a)および(c)はリチウムの、(b)および(d)はアルミニウムの結果を示す。

### 5.1.3.2. 定量イメージング結果における定量確度と定量精度の評価

図 5-12 および図 5-13 の定量イメージング結果において、試料中のリチウムとアルミニウムの面密度が妥当に評価されているかを確認するため、定量確度と定量精度の評価を行った。ENTAXI における定量確度は、定量イメージング結果の各段・各試料における「面密度評価値の平均値」と表 5-1 及び表 5-2 に示した「重量と体積から計算した実際の面密度」の評価誤差 (式 2.3) を計算することにより評価した。また、ENTAXI における定量精度は、定量イメージング結果の各段・各試料における「面密度評価値の標準偏差」を計算することにより評価した。

階段状試料の定量イメージング結果における定量確度及び定量精度は、図 5-4 の各段の黒枠内における面密度評価値を用いて評価した。その結果を、表 5-6 にまとめる。表 5-6 の Evaluation error (評価誤差) が定量確度の評価結果を示し、Standard deviation (標準偏差) が

定量精度の評価結果を示している。表 5-6 の評価誤差より、階段状試料において、ENTAXI によるリチウムの定量確度は、1 段目以外で 10%程度もしくはそれ以下となっていることがわかる（1 段目で評価誤差が大きくなった理由については、次節で述べる）。それに対し、アルミニウムの定量確度は、全ての段において 20%以上となった。リチウムの定量確度がアルミニウムに比べて大きい理由は、リチウムの全断面積エネルギー依存性が大きく、リチウムの評価が行いやすいためと考えられる。また、定量精度に関しては、ENTAXI の標準偏差は、全ての段において、リチウムで 30%以上、アルミニウムで 70%以上となっており、かなり大きい値となった。リチウムの標準偏差は、アルミニウムの標準偏差と比べると、小さくなっており、この理由は、リチウムの全断面積エネルギー依存性が大きく、解析値のばらつきが小さくなるためと考えられる。また、リチウム及びアルミニウムのどちらの標準偏差も、段が多くなるほど（厚さが厚くなるほど）小さくなり、定量精度が向上する傾向が見えている。

また、短冊積層試料のイメージング結果における定量確度及び定量精度は、図 5-5 の各試料の黒枠内における面密度評価結果を用いて評価した。その結果を、表 5-7 にまとめる。表 5-7 の評価誤差より、短冊積層試料における ENTAXI の定量確度は、リチウムとアルミニウムの両方において、10%程度もしくはそれ以下となっていることがわかる。また、定量精度に関しては、アルミニウムでは、全試料において、標準偏差が 5%程度と小さく、定量精度が高いことがわかる。リチウムでは、階段状試料と同様に、リチウムの量が増えるほど定量精度が向上する傾向にあることがわかる。

表 5-6 及び表 5-7 を俯瞰的に見ると、リチウムやアルミニウムの量が増えると、定量確度及び定量精度が向上する傾向にあることがわかる。これは、リチウムやアルミニウムが透過率スペクトルに及ぼす寄与が大きくなるほど、ENTAXI による評価が行いやすくなるためである。逆に、リチウムやアルミニウムの量が少ない場合、透過率スペクトルへの寄与が小さいため、ENTAXI による評価値は、測定された透過率スペクトルの統計誤差や系統誤差の影響を受けやすくなり、定量確度や定量精度は低下する。特にアルミニウムは、全断面積のエネルギー依存性が小さく、より系統誤差や統計誤差の影響を受けるため、リチウムと比べて、定量確度・定量精度が低くなったと考えられる。この点に関しては、次節で階段状試料の定量イメージング結果を例に詳しく説明する。

定量イメージング結果における定量確度と定量精度の評価結果より、ENTAXI による定量イメージングは、リチウムとアルミニウムの量がある程度多い場合において、10%以内の定量確度・定量精度で行えることが示された。従って、ENTAXI による複数物質の定量イメージングが行えることが実証された。ただし、リチウムやアルミニウムの量が少なくなると系統誤差や統計誤差の影響により、定量イメージング結果における定量精度や定量確度が低下することに留意すべきである。

表 5-6. 階段状試料の定量イメージング結果における定量確度と定量精度の評価結果。

Thickness [mm]	Average of analyzed areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation errors [%]	Standard deviation [%]
1.6	Li: 1.381	Li: 0.929	Li: 48.6	Li: 62.0
	Al: 18.88	Al: 9.08	Al: 107.9	Al: 207.3
3.2	Li: 2.034	Li: 1.835	Li: 10.9	Li: 55.7
	Al: 24.73	Al: 17.93	Al: 37.9	Al: 150.6
4.8	Li: 2.806	Li: 2.729	Li: 2.8	Li: 47.8
	Al: 31.87	Al: 26.68	Al: 19.5	Al: 96.6
6.4	Li: 3.596	Li: 3.617	Li: -0.58	Li: 39.5
	Al: 46.23	Al: 35.36	Al: 30.7	Al: 87.2
8.0	Li: 4.322	Li: 4.517	Li: -4.32	Li: 35.4
	Al: 67.09	Al: 44.16	Al: 51.9	Al: 72.2

表 5-7. 短冊積層試料の定量イメージング結果における定量確度と定量精度の評価結果。

Sample name	Average of analyzed areal densities [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal densities [ $10^{22}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation errors [%]	Standard deviation [%]
A	Li: 0.95	Li: 0	Li: -	Li: 73.1
	Al: 17.02	Al: 18.08	Al: -5.2	Al: 3.4
B	Li: 0.269	Li: 0.244	Li: 10.4	Li: 39.8
	Al: 16.84	Al: 17.76	Al: -5.2	Al: 4.9
C	Li: 0.713	Li: 0.732	Li: -2.5	Li: 14.8
	Al: 16.61	Al: 17.13	Al: -3.0	Al: 4.7
D	Li: 0.915	Li: 0.976	Li: -6.2	Li: 12.0
	Al: 16.67	Al: 16.81	Al: -0.8	Al: 5.0
E	Li: 1.156	Li: 1.220	Li: -5.2	Li: 9.7
	Al: 16.43	Al: 16.49	Al: -0.4	Al: 4.8
F	Li: 1.589	Li: 1.708	Li: -7.0	Li: 7.3
	Al: 16.00	Al: 15.86	Al: 0.9	Al: 5.3
G	Li: 2.247	Li: 2.439	Li: -7.9	Li: 5.2
	Al: 15.81	Al: 14.91	Al: 6.1	Al: 5.4

### 5.1.3.3. 階段状試料の定量イメージング結果における定量確度・定量精度の低下原因

階段状試料の定量イメージング結果 (図 5-12) を例として、リチウムやアルミニウムの量が少ない場合において、定量確度・定量精度が低下する原因について詳しく述べる。

まず、表 5-6 の階段状試料の 1 段目において、リチウムの定量確度が大きく低下している原因を述べる。この原因は、検出器の 1 ピクセルで測定される中性子透過率スペクトルの統計誤差が大きいこと、そして、試料中に存在するリチウムの量が少なく、透過率スペクトルのエネルギー依存性が小さいことが挙げられる。図 5-14 は、階段状試料の 1 段目における、

妥当な評価が行えていないピクセル（図 5-12 (a)の 1 段目内にある青点）の中性子透過率スペクトル及びそれに対する ENTAX のフィッティング結果を示している。フィッティング範囲内において、実測したスペクトルとフィッティングカーブは合っており、解析自体は正しく行えていることがわかる。しかし、実測した透過率スペクトルの統計誤差に影響され、量の少ないリチウムにより生じる透過率スペクトルの小さなエネルギー依存性を捉えることが出来ず、妥当な評価が行えなかったと考えられる。一方で、階段状試料の 1 段目における高統計の透過率スペクトルに対する ENTAX によるフィッティング結果が、図 5-7 (a)に示されている。この場合には、評価誤差 10%以内の妥当な評価が行えているため、小さなエネルギー依存性は、統計誤差が小さいため、きちんと捉えられたと考えられる。従って、階段状試料の 1 段目においてリチウムの定量確度が低くなった原因は、リチウムの量が少ないため透過率スペクトルへの寄与が小さく、また 1 ピクセルの透過率スペクトルにおける統計誤差が大きいためである。逆に、1 段目以外においてリチウムの定量確度が高くなった理由は、リチウムの量が多くなり、透過率スペクトルのエネルギー依存性が、統計誤差の影響を受けても、捉えられるようになったためと考えられる。

次に、階段状試料の全段において、アルミニウムの定量確度が低くなった原因を述べる。この原因は、試料中に存在するアルミニウムの量が少なく、アルミニウムが透過率スペクトルに与える寄与が小さいことにより、系統誤差の影響を受けやすいためと考えられる。系統誤差をなるべく低減した体系であっても、検出器ノイズや中性子ビーム強度の変動、バックグラウンド中性子の混入等により、系統誤差は少なからず存在している。これらの系統誤差は、ほぼエネルギー依存性のないものであると予想され、5.1.2.5 節でも述べたように、ENTAX では、透過率スペクトルに与える影響が小さい物質の評価値ほど、透過率スペクトルの絶対値が変動するような系統誤差の影響を受けやすい。そのため、アルミニウムの量が少ない階段状試料では、系統誤差の影響を受けて、アルミニウムの定量確度が低くなったと考えられる。逆に、アルミニウムの量が多い短冊積層試料では、混入する系統誤差の大きさに比べ、アルミニウムが透過率スペクトルに及ぼす寄与が大きいため、高い定量確度になったと考えられる。

最後に、階段状試料において、全体的に定量精度が低くなった理由を述べる。この理由は、階段状試料のリチウムとアルミニウムの量が少なく、それぞれの元素の透過率スペクトルへの寄与が小さいため、ENTAX による評価値が、系統誤差や統計誤差の影響を受けて、ばらつきやすくなるためと考えられる。短冊積層試料では、リチウム及びアルミニウムの量が階段状試料よりも多く、各元素の透過率スペクトルへの寄与が大きいため、定量精度も高くなったと考えられる。

以上の議論から、リチウムやアルミニウムの量が少ない場合において、ENTAX の定量確度・定量精度が低下する原因は、各物質が測定される透過率スペクトルに及ぼす寄与が小さいため、系統誤差や統計誤差の影響を受けやすく、解析が正しく行えなくなる、もしくは評価値がばらつきやすくなるためである。

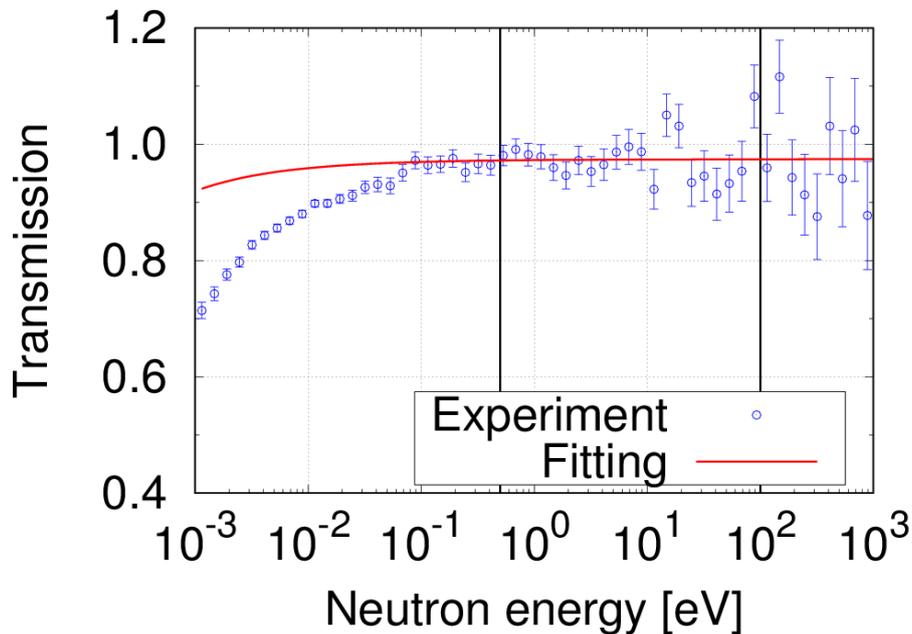


図 5-14. 妥当な評価が行えていないピクセルの中性子透過率スペクトルとそれに対する ENTAX によるフィッティング結果。

#### 5.1.3.4. フィッティング範囲の拡大による定量確度・定量精度の改善

5.1.3.3 節より、リチウムやアルミニウムの量が少ない場合において、定量確度・定量精度が低下する原因は、試料中のリチウムやアルミニウムが透過率スペクトルに及ぼす寄与が小さく、系統誤差や統計誤差の影響を受けてしまうためである。よって、ENTAXI における定量確度・定量精度を改善するには、解析範囲における透過率スペクトルの統計精度を高くすることが考えられる。通常のパルス中性子源施設では、熱中性子領域で中性子数が多いため、透過率スペクトルの統計精度は、熱中性子領域で向上する。そこで、解析範囲に統計精度が高い、熱中性子領域を含めることを検討した。

図 5-14 では、フィッティング範囲の下限である 0.5 eV 以下のエネルギー領域において、エラーバーが小さく、スペクトルの統計精度が高いことがわかる。従って、0.5 eV よりも低いエネルギー領域を使用できれば、透過率スペクトルの統計精度は、解析範囲において向上することがわかる。ここで、図 5-7 を見ると、0.5 - 100 eV での解析により得られたフィッティングカーブは、階段状試料の全段において、0.5 eV より低エネルギー側まで、実測したスペクトルと一致していることがわかる。よって、階段状試料では、ブラッグエッジ等の影響が小さく、0.5 eV より低いエネルギー領域でも、ENTAX を適用可能であると考えられる。

フィッティング範囲の下限を改めて決定するため、階段状試料の透過率スペクトル (図 5-6 (a)) を見た。図 5-6 (a) において、ブラッグエッジは 0.05 eV 以下のエネルギー領域から現れており、0.05 - 0.5 eV においては現れていない。よって、ブラッグエッジの影響は、0.05 eV 以上では、ほとんど存在していないと考え、フィッティング範囲の下限を 0.5 eV から

0.05 eV に広げることとした。そして、フィッティング範囲を 0.05 – 100 eV として、再び ENTAXI による定量イメージングを行った。図 5-15 にその結果を示す。図 5-15 は、(a) リチウム、(b) アルミニウムのどちらの結果においても、0.5 – 100 eV でフィッティングした定量イメージング結果 (図 5-12) と比べ、評価値のばらつきが大きく改善していることがわかる。図 5-15 において、図 5-12 と同様の領域 (図 5-4 の各段の黒枠内) の面密度評価値を用いて、定量イメージング結果の定量確度と定量精度の評価をした。その結果を、表 5-8 にまとめる。表 5-8 と表 5-6 を比較すると、階段状試料の 1、2 段目におけるリチウムの評価誤差が小さくなっており、定量確度が向上していることがわかる。また、リチウムに関しては、全段において標準偏差が小さくなり、定量精度も大きく改善していることがわかる。これは、解析範囲を低エネルギー側に拡張することにより、透過率スペクトルの統計精度が向上し、リチウムが透過率スペクトルに及ぼす寄与を解析しやすくなったためである。加えて、低エネルギー側では、リチウムの全断面積のエネルギー依存性も大きくなるため (図 5-2 (a) 参照)、リチウムが透過率スペクトルに及ぼす寄与も大きくなる。リチウムの定量確度及び定量精度の向上に関しては、この効果も寄与していると考えられる。また、階段状試料の 3 ~ 5 段目においては、リチウムの評価誤差が数%程度大きくなっているものの、評価誤差は 10% 以下であり、従来の中性子透過型イメージング手法と同程度の定量確度である。

アルミニウムに関しては、解析範囲における透過率スペクトルの統計精度が向上しても、定量確度及び定量精度の改善はほとんど見られなかった。この理由は、アルミニウムの定量確度・定量精度は、統計誤差ではなく系統誤差の影響を大きく受けているためと考えられる。従って、量の少ないアルミニウムを評価するためには、系統誤差の更なる改善が必要であると考えられる。

以上から、フィッティング範囲の下限を低エネルギー側に拡張することにより、解析範囲における透過率スペクトルの統計精度が向上し、量の少ないリチウムにおいて、ENTAXI の定量確度・定量精度を向上させられることがわかった。よって、1 ピクセル毎の低統計の透過率スペクトルに対して ENTAX を行う ENTAXI では、可能であれば、フィッティング範囲を低エネルギー側に拡張すべきである。ただし、フィッティング範囲の拡張が可能かどうかは、試料の中性子透過率スペクトルから慎重に判断する必要がある。

最後に、透過率スペクトルの統計精度を向上する方法として、単純に測定時間を長くすることも考えられる。実験施設のビームタイムは限られている場合がほとんどであるが、このような方法を取り得るならば、ENTAXI の定量確度・定量精度の向上が期待できる。

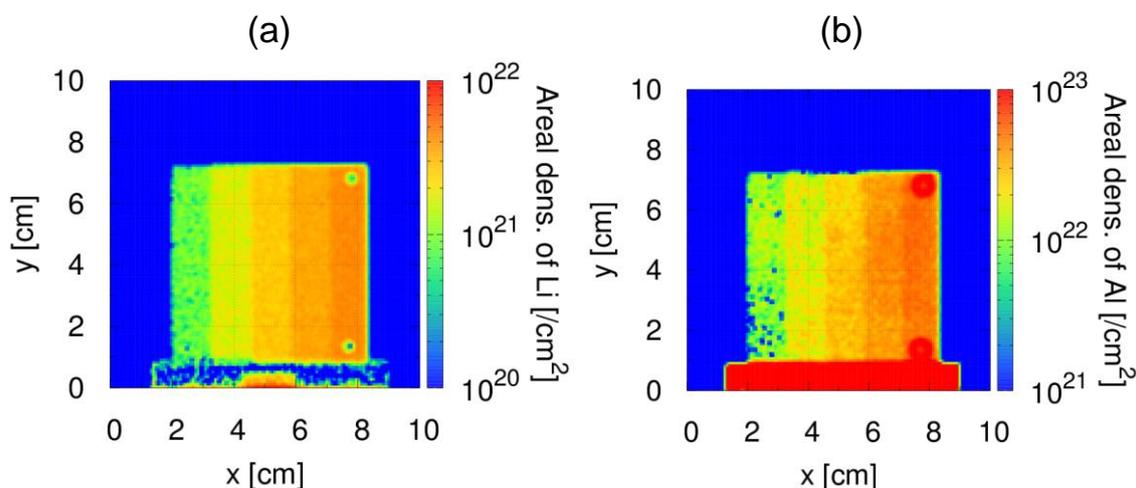


図 5-15. 0.05 – 100 eV を解析範囲とした ENTAXI による階段状試料の定量イメージング結果。(a)はリチウム、(b)はアルミニウムの結果を示している。

表 5-8. 0.05-100 eV を解析範囲とした階段状試料の定量イメージング結果における定量確度と定量精度の評価結果。

Thickness [mm]	Average of analyzed areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal densities [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Evaluation errors [%]	Standard deviation [%]
1.6	Li: 0.852	Li: 0.929	Li: -8.32	Li: 36.1
	Al: 18.07	Al: 9.08	Al: 99.0	Al: 208.6
3.2	Li: 1.682	Li: 1.835	Li: -8.32	Li: 21.9
	Al: 24.50	Al: 17.93	Al: 36.6	Al: 147.7
4.8	Li: 2.577	Li: 2.729	Li: -5.6	Li: 14.8
	Al: 32.22	Al: 26.68	Al: 20.8	Al: 89.8
6.4	Li: 3.432	Li: 3.617	Li: -5.1	Li: 12.7
	Al: 46.92	Al: 35.36	Al: 32.7	Al: 82.9
8.0	Li: 4.083	Li: 4.517	Li: -9.6	Li: 17.9
	Al: 68.15	Al: 44.16	Al: 54.3	Al: 69.0

### 5.1.3.5. 高統計スペクトルにおいてフィッティング解析範囲を拡大した場合の定量確度

5.1.3.4 節において、1 ピクセルの透過率スペクトルにおける統計精度を改善するため、フィッティング範囲を低エネルギーに拡張した。そして、ENTAXI によるリチウムの定量確度が改善することを確認した。次に、図 5-6 (a) で示した高統計の中性子透過率スペクトルにおいてフィッティング範囲を拡張した場合に、定量確度に影響がないかを確認した。

図 5-6 (a) における高統計の中性子透過率スペクトルにおいて、フィッティング範囲を 0.05 – 100 eV とした場合の評価結果を図 5-16 に示す。比較のため、図 5-16 にはフィッティング

範囲を 0.5-100 eV とした場合の評価結果 (図 5-9) も同時に示す。図 5-16 より、0.05 – 100 eV における評価結果は、0.5 – 100 eV における評価結果と比較して、ほとんど変化していないことがわかる。よって、階段状試料の高統計スペクトルにおいてフィッティング範囲の下限を低エネルギー側に拡大しても、定量確度にほとんど影響しないことが確認できた。

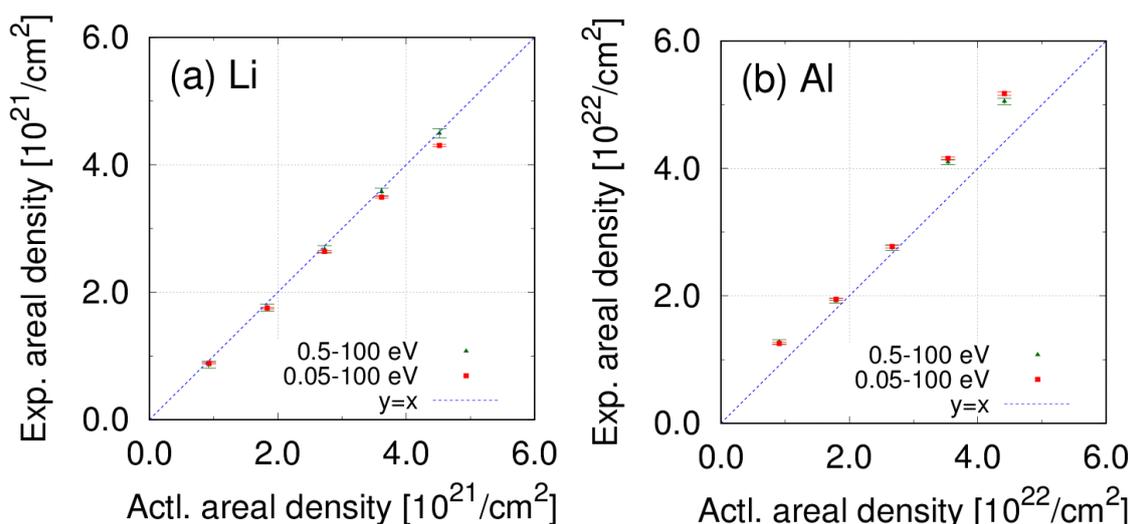


図 5-16. 0.05 – 100 eV を解析範囲として高統計の中性子透過率スペクトルに ENTAX を適用して得た階段状試料の面密度評価結果。

### 5.1.3.6. ENTAXI によるアルミリチウム合金の定量イメージングのまとめ

アルミリチウム合金で作成した階段状試料及び短冊積層試料に ENTAXI を適用し、リチウムとアルミニウムの定量イメージングを行った。その結果、ENTAXI は、リチウムとアルミニウムの量がある程度多い場合において、10%以内の定量確度・定量精度でリチウムとアルミニウムの定量イメージングが可能であることが示された。従って、ENTAXI による複数物質の定量イメージングが実証された。

また、リチウムやアルミニウムの量が少なくなると系統誤差や統計誤差の影響により、定量イメージング結果における定量精度や定量確度が低下した。しかし、リチウムに関しては、解析範囲を低エネルギー側に拡張することにより、統計誤差の低減及びリチウムの全断面積エネルギー依存性が増大し、定量精度・定量確度を向上させられることがわかった。従って、試料の透過率スペクトルから慎重に判断する必要があるが、ENTAXI におけるフィッティング範囲は可能な限り、低エネルギー側に拡張するべきである。

## 5.2. 5 章のまとめ

J-PARC MLFBL10 NOBORU において、様々な厚さ・組成を持つアルミリチウム合金試料の高統計精度の中性子透過率スペクトルを測定し、ENTAX を適用した。また、それぞれの試料に ENTAXI を適用した。高統計精度の中性子透過率スペクトルに ENTAX を適用した結果より、アルミリチウム合金に対する ENTAX の定量確度は、広い範囲のリチウムとアルミニウムにおいて、10%程度であることが評価できた。また、アルミリチウム合金試料に対する ENTAXI の適用結果より、ENTAXI は、リチウムとアルミニウムの量がある程度多い場合において、10%以内の定量確度・定量精度でリチウムとアルミニウムの定量イメージングが可能であることが示された。この定量確度は、定量イメージング手法として、実用的な範囲である。従って、ENTAXI による複数物質の定量イメージングが実証された。

また、リチウムの量が少ない場合において、ENTAXI によるリチウムの定量確度・定量精度は、解析エネルギー範囲を低エネルギー側に拡張することで向上することがわかった。解析範囲の拡張は、ブラッグ散乱断面積が小さい試料等でしか行えず、可能かどうかは試料の中性子透過率スペクトルから慎重に判断する必要がある。しかし、ENTAXI のように低統計のデータを解析する場合には、特にリチウムのようなエネルギー依存性の大きな物質の定量確度・定量精度を向上させるために有効な手段である。

以上より、ENTAXI は、従来の中性子透過型イメージングでは行えなかった軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージングを行えることを実証した。従って、ENTAXI は、従来の中性子透過型イメージングでは行えていなかった、リチウムイオン電池内のリチウム分布や、燃料デブリ内のボロン分布等の定量イメージングが行える可能性を有し、今後これらへの応用が期待される。



## 第6章 結論

中性子ラジオグラフィは、バルク試料内部に存在する物質の空間分布を非破壊、in-situ で測定可能であるという大きな特長を持っている。そのため、火工品の検査や原子力材料内の水素分布の定量評価、コンクリート・燃料電池内の水分分布の定量評価など、バルク内軽元素の空間分布の定量評価に多く用いられてきている。しかし、中性子ラジオグラフィでは、中性子透過率と物質量の検量線が取得可能な被写体や、流体のように試料内部からの出し入れが可能な被写体の場合のみ、物質量の定量が可能である。そのため、例えば、試料内部から被写体の出し入れが難しい実稼働中のリチウムイオン電池におけるリチウムの空間分布の定量評価や、検量線の取得がそもそも困難な燃料デブリ内におけるホウ素の空間分布の定量評価等には適用できていなかった。本研究では、パルス中性子透過分光法に着目し、中性子ラジオグラフィでは定量が困難だった被写体に対して定量イメージングを行うことができる新たな中性子透過型イメージング手法 (ENTAX) の開発を行った。

ENTAX は、全断面積のエネルギー依存性が物質に固有であることを利用し、複数の物質から構成される試料の中性子透過率スペクトルを、評価済み核データから得られる物質それぞれの全断面積を用いて解析することにより、各物質の定量評価を可能とする手法である。また、ENTAX で用いるエネルギー領域として、パルス中性子透過分光法の中でも従来用いられていなかったブラッグエッジ領域と中性子共鳴領域以外のエネルギーを選択した。ブラッグエッジ領域より上のエネルギー領域では、測定される透過率スペクトルが原子核一個の全断面積をよく反映するようになる。そのため、評価済み核データを用いたスペクトル解析により物質の量を評価可能となる。また ENTAX は、中性子共鳴の有無に関わらず定量評価が行える。従って ENTAX は、共鳴の測定が難しい軽元素の評価が行えるという特長を持つ。

本研究では、ENTAX、すなわちパルス中性子透過分光法を利用した軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージング手法の確立を目的とした。そして、手法を確立するために、以下の項目について研究し、本論文の各章としてまとめた。

- 評価済み核データを用いた複数物質の定量解析手法の原理及び解析手法に適した中性子エネルギー範囲 (2章)。
- ENTAX を行うにあたり気を付けるべき系統誤差、及び ENTAX に適した測定体系 (3章)。
- ENTAX で評価可能な2物質の組み合わせ及び3物質の定量可能性 (4章)。
- ENTAX によるイメージング (5章)。

第2章では、ENTAX の原理、及び原理実証のために行った実験についてまとめた。まず、ENTAX が解析に使用する中性子エネルギー範囲について、中性子と物質の相互作用断面積

の観点から検討した。ブラッグエッジは原子核一個の断面積を反映しないことから、ブラッグエッジ以上のエネルギー領域を利用することとした。また ENTAX は、共鳴吸収を利用せずに物質定量が行えることから、熱外中性子領域の共鳴を除いたエネルギー領域を利用することとした。また、評価済み核データを用いて、中性子透過率スペクトルから複数物質を定量評価する解析方法についての原理を考案した。次に、北海道大学加速器中性子源 (HUNS) の熱中性子源ポートにおいて、ENTAX の原理実証実験を行った。実証実験では、ENTAX により軽元素を構成物質の一部とする複数物質が評価できることを実証するため、軽元素である炭素と鉄の試料を用意し、それら単体試料とそれらの積層試料における中性子透過率スペクトルを測定し、ENTAX の適用を行った。その結果、炭素と鉄の単体試料においては、実際の値と数%程度の評価誤差で面密度を評価できることを確認し、そして積層試料においては、実際の値と 10%以内の評価誤差でそれぞれの面密度を評価出来ることを確認した。従って、ENTAX は、軽元素を含めた複数物質の定量評価が行えることを実証した。

第 3 章では、ENTAX に適した測定体系の構築方法について、HUNS 熱中性子源ポートを例として述べた。ENTAX により適切な定量評価を行うためには、測定される透過率スペクトルと評価済み核データから計算した透過率スペクトルが一致している必要があり、透過率スペクトルのエネルギー依存性と絶対値を正確に測定する必要がある。そのため、中性子透過率スペクトルに系統誤差の混入がある場合、ENTAX の定量性に影響が生じる。パルス中性子源施設においては、中性子減速材の温度変化や環境中性子の混入、検出器の検出強度変動といった項目が、測定される透過率スペクトルの系統誤差の原因となり得る。そこで、HUNS 熱中性子源ポートにおいて、これらの項目についての影響を調査した。

中性子減速材の温度変化に関して調査した結果、HUNS のポリエチレンモデレータは、加速器駆動に伴い 1 時間で約 4 K の温度変化があり、0.002 – 0.3 eV の中性子エネルギー領域で測定される中性子透過率スペクトルに数%の影響を与えることがわかった。そして、0.3 eV 以下のエネルギー領域を解析範囲として用いた場合、ENTAX の評価値に数%~10%程度の影響を与えることがわかった。

HUNS における環境中性子の混入に関して調査した結果、回り込み中性子の量は、100 eV 以下のエネルギー範囲において、ダイレクトビーム強度の 1%以下であった。さらに、検出器の周囲に中性子遮蔽体を設置することで、回り込み中性子の影響をさらに小さくなることがわかった。ただし、熱外中性子領域では、検出器の検出面下流に遮蔽体を置いた場合、反射中性子が混入し、大きな系統誤差となり得ることがわかった。また、オーバーラップ中性子の量はダイレクトビームの 0.5%以下であることもわかった。

ENTAX の適用実験に使用する GEM 検出器の検出強度の変化は、5 時間の測定で 5%程度存在することを確認した。この検出強度の変化により、透過率スペクトルの絶対値が変化してしまうことがわかった。

以上の系統誤差の調査結果から、サブ eV より低エネルギーの領域では、モデレータ温度の変化による系統誤差が、また熱外中性子領域においては、反射中性子の混入による系統誤

差が生じる可能性があることがわかった。それに加え、検出器の検出強度の変化により、透過率スペクトルの絶対値に変化を及ぼす系統誤差が生じる可能性があることもわかった。これらの系統誤差を低減するため、HUNS 熱中性子源ポートにおける実験では、GEM 検出器の一部をモニターとして用い、また検出面下流の中性子遮蔽体を除いた体系を考案し、その構築を行った。そして、この体系において ENTAX 実験を行い、系統誤差が低減することを確認した。これらの結果は、他の中性子源施設において ENTAX 実験を行う際にも、有効な知見である。

第 4 章では、ENTAX による複数物質の定量評価に関する検討を行った。ENTAX では、物質により全断面積のエネルギー依存性が異なることを利用して複数物質の評価を行う。そのため、試料を構成する物質の全断面積のエネルギー依存性が同様の場合、それらを区別して評価することは、原理的に難しいと考えられる。そこで、2 種類の物質において、全断面積のエネルギー依存性がどの程度異なるかを示す「全断面積形状差度 (DCS)」という指標を導入し、ENTAX で評価可能な物質の組み合わせに関しての検討を行った。まず、種々の全断面積エネルギー依存性を持つ物質を用意し、それらを組み合わせて作成した 2 物質の試料の中性子透過率スペクトルを J-PARC MLF BL10 NOBORU で測定した。測定されたスペクトルに対して ENTAX を適用し、その定量確度を評価した。そして、得られた定量確度と DCS の関係を調べた。その結果、DCS が大きい程、定量確度が高くなる傾向があることがわかった。そして、ENTAX により 2 物質の定量評価が行える指標として、DCS が約 0.2 以上であるという知見を得た。また、ENTAX により 2 種類以上の物質を評価可能であるかを調べるため、3 物質で構成される試料の中性子透過率スペクトルをシミュレーションにより計算し、ENTAX を適用した。その結果、3 種類の物質をそれぞれ区別して評価でき、ENTAX は、3 種類の元素や物質を区別して評価可能であることを示した。

第 5 章では、ENTAX による定量イメージング (ENTAXI) を行い、その結果について述べた。ENTAXI を適用する試料として、アルミリチウム合金を選定し、厚さや組成の異なる試料を作成し、広い範囲のアルミニウムとリチウムの量を持つ試料を用意した。これらの試料に対し、J-PARC MLF BL10 NOBORU において、平行度の高い中性子ビームを用いることにより、アルミニウムとリチウムの定量イメージング実験を行った。まず、高統計の中性子透過率スペクトルに ENTAX を適用し、得られた解析値と実際の値を比較することにより、定量確度の評価を行った。その結果、アルミリチウム合金に対する ENTAX の定量確度は、広い範囲のアルミニウムとリチウムの量において、10%程度であることが確認できた。次に、2次元検出器の各ピクセルにおいて得られた透過率スペクトルに対して ENTAX を適用することにより、ENTAXI を行った。その結果、ENTAXI は、リチウムとアルミニウムの量がある程度多い場合において、10%以内の定量確度・定量精度でリチウムとアルミニウムの定量イメージングが可能であることが示された。従って、ENTAXI により、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージングが行えることを実証した。また、リチウムの量が少ない場合において、ENTAXI によるリチウムの定量確度・定量精度は、解析エネルギー範囲

を低エネルギー側に拡張することで向上することもわかった。

以上より、本研究では、パルス中性子透過分光法により、従来の中性子透過型イメージング手法では困難であった、軽元素を構成物質の一部とする複数物質の定量イメージング手法を開発し、その実証を行った。さらに、高精度化のための実験体系を考案し、複数物質の解析に関する指標も得た。この研究により、中性子透過型イメージングによるリチウムイオン電池内のリチウム空間分布や燃料デブリ内のホウ素空間分布の定量イメージング等へ資することが期待される。



## 付録 A 様々な物質定量手法の概要

ここでは、現在用いられている元素・物質の定量評価手法について、序論では述べなかった手法をまとめる。

### A.1. 破壊分析法と非破壊分析法

元素・物質の定量評価手法は大きく分けて、破壊分析法と非破壊分析法に分けることが出来る。破壊分析法は、評価したい試料を元素レベルにバラバラにして評価する手法であり、物質の同定（定性評価）や定量評価を精度よく行えるという特徴を持っている。ただし、手法を適用する際に、試料の前処理が必須であり、その工程も非破壊分析法と比べて多く必要である。また、そもそも試料を破壊しなければならない。それに対し、非破壊分析法は試料への前処理行程がない、もしくは少なく済み、また試料を破壊せずに定性・定量評価が行える。そのため、破壊分析に比べ、より簡便に評価を行うことが可能であり、また試料の再測定や *in-situ* での測定が行えるといった特徴を持っている。

現在用いられている元素・物質の定量評価手法は、その目的や手法の特徴に従って使い分けられており、破壊分析法と非破壊分析法どちらにも、様々な手法が存在している。以下本節では、現在用いられている物質評価手法について、破壊分析法と非破壊分析法の二つに大きく分けて、その中の各手法について説明する。

#### A.1.1. 破壊分析法

破壊分析法は、試料を酸等を用いて溶液にする、またプラズマやイオンビームを用いてイオン化する等の操作を用いて、試料を原子や分子のレベルまで分解して定性・定量評価する手法である。数多くの手法が存在し、試料形状や評価したい物質・元素等により、使用される手法が異なる。また、複数の破壊分析手法が組み合わせられて使用される場合も多い。

##### A.1.1.1. 熱重量測定（Thermogravimetry, TG）[A-1]

熱重量測定とは、熱分析（物質の温度を設定した条件で変えながら、その物質の物理的性質を温度や時間の関数として測定する一連の手法）のひとつであり、物質の温度を変化または保持しながら、試料の質量を温度又は時間の関数として測定する方法である。

熱重量測定では、燃焼ガスを流しながら炉で試料を熱し、酸化、熱分解、脱水等により生じた液体やガスを収集し、試料の重量変化と併せて有機物の定量評価を行う（図 A-1）。また、後述するクロマトグラフィーや吸光光度法と組み合わせることで、より詳細な定性・定量評価を行う場合もある。この手法は、試料中に存在する C、H、N、O、S 等の有機物元素の定量評価手法として古くから用いられており、現在も食品やプラスチック製品等の定量評価に用いられている。

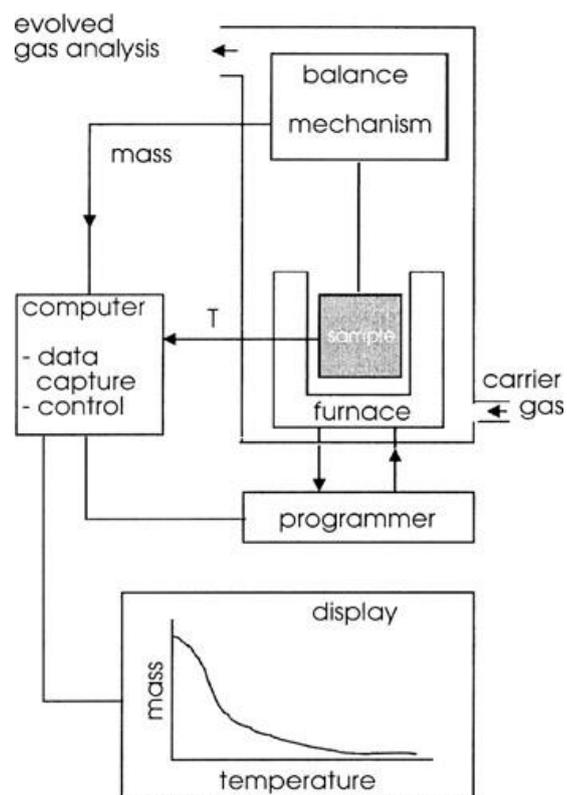


図 A-1. TG の模式図[A-2]。

#### A.1.1.2. クロマトグラフィー[1-2, A-3]

クロマトグラフィーは、混合物を構成する成分毎に分離する技術である。この技術は、もともとは成分を分離精製するための技術であったが、現在は混合物の構成成分を定量する目的で行われることも多く、物質定量手法の一つとして用いられている。クロマトグラフィーでは、試料の（相）状態により、液体クロマトグラフィー（Liquid Chromatography, LC）とガスクロマトグラフィー（Gas Chromatography, GC）に大別される。

クロマトグラフィーは、カラムと呼ばれる管の中に保持された固定相の中に、混合物を溶かして移動相を流すことで行われる。このようにすると、固定相と混合物中の各成分の相互作用の大小により、混合物が各成分に分離・検出される。固定相と相互作用が弱い成分は、固定相からすぐに溶出し、強い成分は固定相に長く保持される。その結果、移動相を流し込んだ点から近い距離には相互作用の強い成分が、遠い距離に相互作用の弱い成分が溶出されるため、混合物中の成分を分離することが出来る（図 A-2）。

クロマトグラフィーの一般的な測定は図 A-3 のように行われる。クロマトグラフィーでは、分離後に様々な検出器や分析法を用いてデータの記録と処理を行い、定量的評価が行われている。例えば、吸光度検出器や電気伝導度検出器、蛍光検出器、熱伝導度検出器、質量分析計など評価したい物質に合わせて多くの検出器、そして分析法が用いられている。一般的なクロマトグラフィーの場合、移動相注入後からの時間を横軸に取ったスペクトルを得ることが一般的である。（図 A-4）

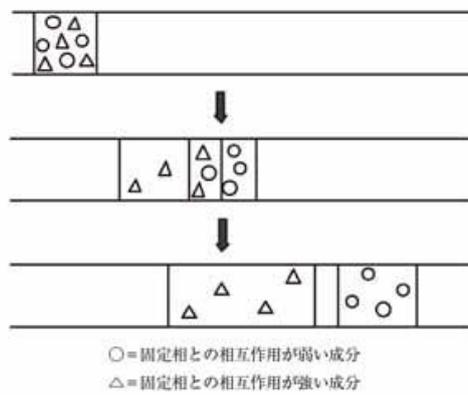


図 A-2. クロマトグラフィーの概念図[A-4].

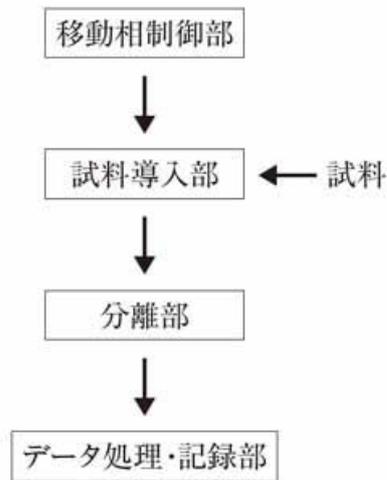


図 A-3. クロマトグラフィーの測定フローチャート[A-4].

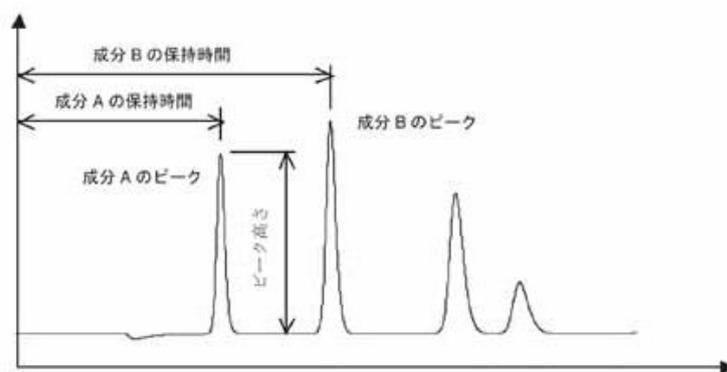


図 A-4. クロマトグラフィーで得られるスペクトルの概念図[A-4].

クロマトグラフィーでは、「カラムに注入されてから溶出するまでの時間は、測定条件が同じであれば成分によって変化しない」という特性を利用している。従って、それぞれの成分の標準試料を用意し、保持時間を測定しておけば、混合試料測定時の溶出時間から、成分を同定できる。また、この時に得られた信号のピーク面積が成分濃度に比例するため、標準試料を用いて検量線を作成することにより、成分の定量評価が行える。

クロマトグラフィーは、既知の成分がどの程度入っているかを調べるのには、非常に強力な手法である。しかし、クロマトグラフィーを全く未知の物質に対して行った場合、成分の溶出時間が同じとなるような物質が入っている場合もあり、クロマトグラフィーのみによる成分の定性評価は不確かさが残る。ただし、分離された成分を質量分析法などの別手法と組み合わせて解析すれば、より高精度な成分の定性・定量評価に繋げることができるため、有機物から無機物まで多種多様な物質の微量評価によく使われる手法となっている。また、この原理を基本として、イオンクロマトグラフィー、吸着クロマトグラフィーなど多くの派生手法がある。

#### A.1.1.3. キャピラリー電気泳動 (Capillary Electrophoresis, CE) [A-5]

キャピラリー（毛細管）と呼ばれる非常に狭い内径（100  $\mu\text{m}$  以下）の中空ガラス管を用い、電気泳動により、試料をその成分に分解する手法である。キャピラリーに緩衝液を満たし、キャピラリーの方端に微量の試料を加えた状態で、高電圧をかけると、電気泳動が生じる（図 A-5）。電気泳動の速度は、試料成分の電荷や質量等の性質の違いにより異なるため、試料成分を分離することが可能である。そして、分離した成分を吸光光度測定等により分析し、定量評価を行うことが出来る。CE は、少量の試料で測定を行うことが出来る。また、高電圧をかけて電気泳動させた場合、クロマトグラフィーに比べ短時間で高分解能を達成できるという利点を持つ。

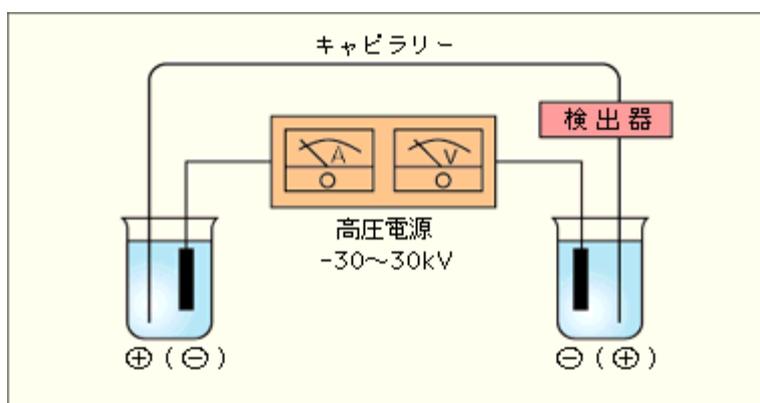


図 A-5. 電気泳動測定の様式図[A-5]。

#### **A.1.1.4. 湿式化学分析[A-6]**

湿式化学分析は、試料を酸分解などの試薬により溶液化し、溶液中の化学反応に基づいて解析する手法である。分析方法としては主に、容量分析と重量分析がある。容量分析は、滴定操作により、分析したい成分と反応する標準液の体積を求め、その量から成分を定量する手法であり、重量分析は、分析したい成分を一定の組成の純物質として分離し、その質量もしくは残分の質量から成分を定量する手法である。湿式化学分析は、化学両論に基づく測定のため、高精度な絶対定量法である。主成分の高精度分析や機器分析用標準試料の値を決定するなどの、精度に高い信頼性が求められる場面でよく使用されている。

#### **A.1.1.5. 質量分析法（Mass Spectroscopy, MS） [1-1]**

質量分析法は、物質をイオン化することにより、その質量数と数を測定する手法である。物質を構成する原子や分子をひとつずつイオン化して測定するため、物質同定が可能であり、高感度の定量評価が行える。イオン化手法は後述するが、イオン化のさらに前段階に前述の熱重量測定や湿式化学分析、クロマトグラフィーが用いられる場合もある。

物質をイオン化する手法は、評価したい物質の種類や状態により異なる。また、イオンの種類ごとに弁別する機構にも様々なものが存在する。

##### **A.1.1.5.1. 質量分析法における物質のイオン化手法**

試料をイオン化させる手法として、様々な手法が開発されている。以下に代表的なイオン化手法を示す。

###### **A.1.1.5.1.1. 電子イオン化法[1-1]**

試料分子あるいは原子に、熱したフィラメントから放出される熱電子を衝突させ、イオン化させる方法である。簡単なイオン化方法であるため、気体試料のイオン化法としてよく用いられている。一価のイオンだけでなく、多価のイオンも生じやすい（フラグメンテーションが生じやすい）ため、スペクトルが複雑になる。適用可能な分子量の範囲は1~1000程度である。

###### **A.1.1.5.1.2. 化学イオン化法[1-1]**

メタンなどのガスを電子イオン化法などで予めイオン化し、イオン化したガス中に気体試料を挿入することで、試料をイオン化する手法である。イオン化ガスと試料分子（原子）の間で電気交換反応が生じる。電子イオン化法に比べ、フラグメンテーションが生じにくい。

###### **A.1.1.5.1.3. 電解脱離法**

試料をひげ状の特殊な電極上に塗布し、これに熱と電圧を加えて、電極先端部に高電場を生じさせる。すると、トンネル効果が生じ、試料がイオンとして取り出される。フラグメンテーションが生じにくい、試料は揮発性のものに限られる。

#### **A.1.1.5.1.4. レーザー脱離イオン化法**

固体、液体試料に紫外レーザーを照射し、試料を気相に脱離させる手法である。レーザー光の吸収により、試料のみがイオン化する。ただし、試料の内部エネルギーが高まり試料分子が分解してしまうという問題がある。

#### **A.1.1.5.1.5. マトリックス支援レーザー脱離イオン化法[A-7]**

試料を芳香族有機化合物などのマトリックス中に混ぜて、結晶を作成し、この結晶にレーザーを照射することでイオン化する手法である。上述のレーザー脱離イオン化法にもあるように、紫外レーザーを照射することで、試料はイオン化される。試料がレーザーのダメージを受けてしまうという欠点を、レーザー光によりイオン化されやすい物質（マトリックス）を予め混合し、エネルギーの授受を媒介させることにより解決している。大型の生体分子のイオン化に有利である。

#### **A.1.1.5.1.6. エレクトロスプレーイオン化法[A-8]**

エレクトロスプレーという現象により、試料をイオン化する手法である。エレクトロスプレーは、細いキャピラリーに高電圧を加え、先端に強い電場が生じると、先端付近に強く帯電したイオンが集中し、液体がジェットのように吹き出る現象である。吹き出た液体中のイオンは強く帯電しているため、クーロン力で反発しあい、非常に細かい液滴としてスプレーされる。この手法は、高分子量化合物のイオン化に有利であるため、たんぱく質の定性・定量評価に利用されている。

#### **A.1.1.5.1.7. イオンビーム照射[A-9]**

固体試料の表面にイオンビームを照射し、試料の分子、原子をイオン化させる手法である。イオン銃で作りに出された数 keV のイオン（アルゴンや酸素、セシウム等）を試料に照射し、表面の原子をスパッタリングもしくはイオン化する。

この手法では、試料表面に限られるが、組成、化学構造、深さ方向分布などの情報を得ることが出来る。特徴として、ほぼ全ての元素の定性・定量評価が可能である。

#### **A.1.1.5.1.8. グロー放電**

固体試料をマイナス極として Ar 雰囲気化でグロー放電を行い、試料をイオン化させる手法である。グロー放電により、Ar ガスがイオン化し、試料に衝突することにより、試料物質がスパッタリングされる。スパッタリングされた物質は、Ar ガス化でイオン化される。

#### **A.1.1.5.1.9. 誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma, ICP)**

誘導結合プラズマ (ICP) とは、気体に高電圧をかけることでプラズマ化させ、さらに高周波数の変動磁場によってプラズマ内部に渦電流によるジュール熱を発生させることにより得られる高温のプラズマである。通常は、Ar ガスで ICP を作成し、ICP と気化させた試料を混合することにより、試料元素を原子化、熱励起によりイオン化させる手法である。

この手法では、他のイオン化手法に比べ、Ar ガスやプラズマ発生用のガラス容器やその他の部材から試料以外の元素のイオンも生じることが問題となる。

#### A.1.1.5.2. 質量分析法におけるイオン分析手法

質量分析法では、イオン化された試料成分は、質量数と電荷の比 ( $m/z$ ) が異なることを利用して、種々の分析法により分析される。質量分解能と測定可能な質量範囲がそれぞれの分析手法により異なる。以下に代表的な質量分析手法を示す。

##### A.1.1.5.2.1. 四重極型質量分析[A-10]

4本の電極ロッドに直流と交流の電圧を与えることで、特定の質量—電荷比( $m/z$ )を持つイオンだけが通過できる電場を形成し、物質を分析する方法である。この手法により測定可能な質量範囲はおよそ 3000 までであり、質量分解能は、約 6000 程度である。

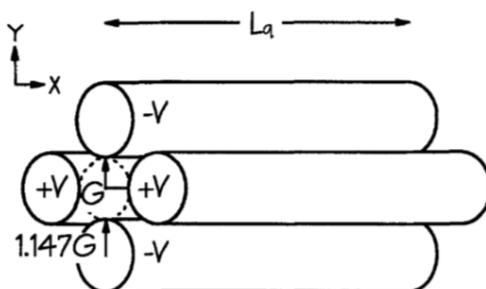


図 A-6. 四重極型質量分析計の概念図[A-10]。

##### A.1.1.5.2.2. 二重収束型質量分析[A-10]

主にイオンを磁場中を通し、ローレンツ力により飛行経路を変化させて、試料成分の  $m/z$  を分析する手法である。磁場中を動くイオンは、その電荷と質量により動く円軌道が異なる。そのため、検出位置により  $m/z$  を分離することが可能となる。二重収束と呼ばれるのは、放出されたイオンの速度差や方向差を電場セクター (ESA) と磁場セクター (MAG) と呼ばれる場所で揃える (一つに収束させる) 仕組みのためである。イオンが取り出される時、 $m/z$  が同じイオンでも速度や方向が一つに揃っていないが、電場セクターでは、 $m/z$  が同一のイオンの速度を一つに収束させ、磁場セクターでは入射方向を一つに収束させる。この分析法は、測定可能な質量範囲が 10000 程度まで、質量分解能は 12000 と高い。

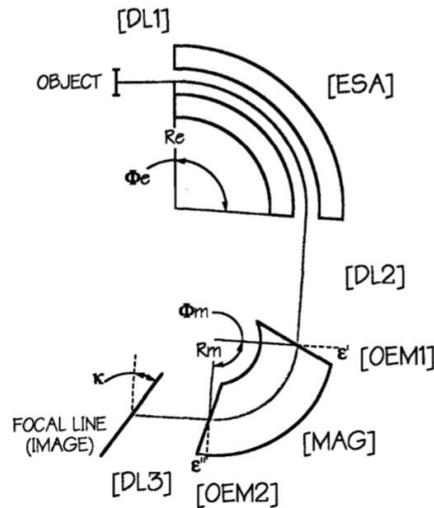


図 A-7. 二重収束型質量分析計の概念図[A-10]。

#### A.1.1.5.2.3. 飛行時間型質量分析[A-11]

荷電粒子がドリフトチャンバーを通過する飛行時間を計測することにより  $m/z$  を分析する手法である。イオンは、分析機に入る前に既知の電界強度により加速され、イオンの持つ電荷と質量により速度が異なるため、荷電粒子の飛行時間から  $m/z$  を測定することが出来る。この手法の特徴として、パルス状イオンビーム照射による試料のイオン化と組み合わせることで、試料表面の成分マッピングを行うことが出来る。測定可能範囲、質量分解能は原理上存在せず。また高感度である。装置の性能によるが、共に 10000 を超えるものもある。

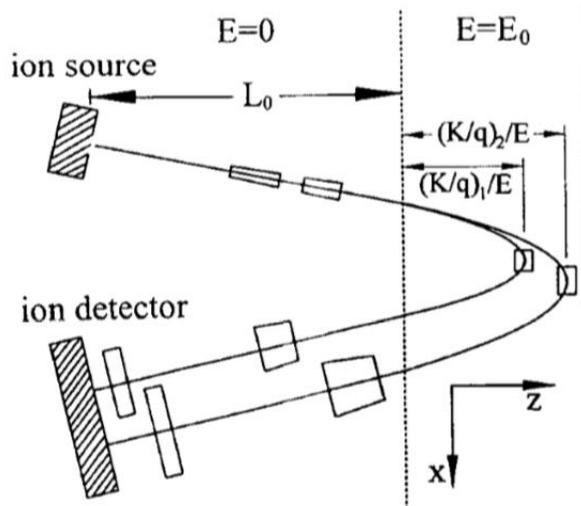


図 A-8. 飛行時間型質量分析計の概念図[A-11]。

#### A.1.1.5.2.4. イオントラップ型質量分析[A-12]

イオンを電極から成るトラップ室に保持し、この電位を変化させることで選択的にイオ

ン放出させて  $m/z$  を分離する手法である。安価で分解能も高いという特徴を持つが、他の分析法に比べ、定量性が低いという欠点がある。

#### A.1.1.5.2.5. サイクロトロン共鳴型質量分析[A-13]

イオンを静電場と静磁場の印加されたセルに導入し、高周波電圧を印加することにより、イオンの周回周期から  $m/z$  を分離する手法である。分解能が非常に高い手法であるが、コストがかかる。

#### A.1.1.6. 誘導結合プラズマ原子発光（蛍光）分析法（ICP-Atomic Emission Spectroscopy, ICP-AES or ICP-Optical Emission Spectroscopy, ICP-OES）[A-14]

A.1.1.5.1.9 節で述べた誘導結合プラズマを用いて試料を原子化・イオン化すると、原子・イオンは、励起されたエネルギー状態で得られる。励起状態にある原子・イオンが基底状態に落ちるときに放出する光の波長が元素固有であるため、この光を観測することにより、元素を定性・定量評価する手法である。図 A-9 のように、放出光を回折格子等で分光し、検出器で観測する。検出システムにもよるが、多元素を同時に定性・定量評価することが可能である。合金や有機材料、セラミックス等様々な試料に用いられ、特に、不純物として混入する微量金属元素の評価手法としてよく使われる手法である。ただし、溶液試料を対象とする分析法であるため、固体試料の評価を行う場合には、溶液化処理といった前処理が必要になる。

ICP-AES は、ICP-MS に比べ共存する元素の影響を受けにくいという特徴があり、同定精度が高いという特徴を持つ。（それに対して ICP-MS は、ICP-AES よりも測定感度が高いため、より微量でも測定可能であるという特徴を持つ。）

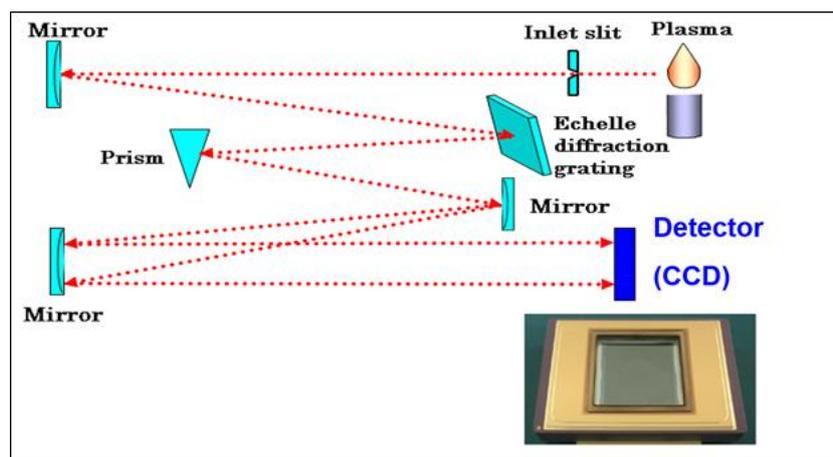


図 A-9. ICP-AES の測定体系例[A-14]。

#### A.1.1.7. 原子吸光分析法（Atomic Absorption Spectroscopy, AAS）[A-15]

溶液化した試料を炎や電流等を用いて原子化し、原子蒸気となった状態の試料に単色光

を透過させ、原子による光の吸収量から、元素を定量評価する手法である。元素により吸収する光の波長が決まっているため、元素選択的に定量評価が行える。

原子による吸収スペクトルは、スペクトル幅が非常に狭いため、正確な定量評価のためには、スペクトル幅の狭い光源が必要になる。そのため、ホロカソードランプと呼ばれる特殊な光源を用いる。図 A-10 のように、原子化した試料に対してランプからの単色光を照射し、透過光をスリットや偏向フィルタ等を用いて分光・偏光し、検出器で測定する。定量評価の手法としては、標準試料から作成した検量線を利用して、ピーク面積等から量を評価する。

この手法は、主に金属元素の定量評価によく用いられており、60～70種の金属元素の評価が可能である。また特定の元素に対し、高い選択性を示すが、目的元素に特化した光源が必要で、他成分の同時評価は難しい。

原子吸光分析法（AAS）と似た原理を持つ手法として吸光光度法（後述）が存在するが、吸光光度法は主に分子による光の吸収を観測するのに対し、AAS は原子による光の吸収を観測するという違いがある。そのため AAS は、元素レベルでの定性・定量評価が可能である。

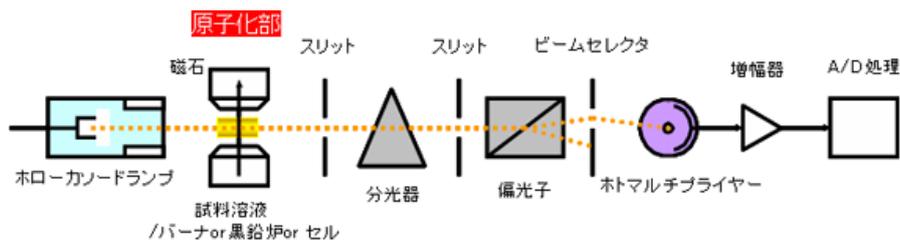


図 A-10. 原子吸光分析法の測定体系例[A-16]。

## A.1.2. 非破壊分析法

非破壊分析法は、試料に光や電子線、中性子線といった量子ビーム等を照射し、試料の表面や内部を非破壊的に調べる手法である。ただし、非破壊分析法には、薄い試料や表面にしか適用できない手法や溶液化試料にしか適用できないものも存在し、このような手法においては、試料の溶液化や薄膜化といった前処理を必要とする。そのため、非破壊分析法であっても、手法によっては、試料を破壊するような前処理が必要な場合が存在することに留意されたい。

### A.1.2.1. 赤外線・可視光・紫外線を用いた分析手法

赤外線・可視光・紫外線を照射する手法は、薄膜もしくは溶液試料を非破壊で分析可能である。

#### A.1.2.1.1. 近赤外・可視光・紫外線を用いた吸光光度法[A-17]

吸光光度法は、溶液や薄膜試料に光を照射し、光の吸収の程度を測定することにより、その物質の濃度や密度を定量評価する手法である。均質な媒質を透過する光の強度はランベルト・ベールの法則に従い、次の式 A.1 のように定式化される。

$$I = I_0 \exp(-act) \quad (\text{A.1})$$

ここで、 $I$ は透過光の強度、 $I_0$ は入射光の強度、 $a$ は媒質の吸光係数、 $c$ は媒質の密度、 $t$ は光の経路長を示す。

一般的な測定体系を、図 A-11 に示す。この手法では、光源として白色光源を用い、回折格子などの分光器で単色化して用いる。そして、分光器で波長を変化させながら検出器で光の透過（もしくは吸収）スペクトルを測定する。媒質の吸光係数  $a$  が固有であるため、 $a$  を予め求め、厚さ  $t$  を固定すれば、光の透過強度から密度  $c$  が求められる。実際の測定では、標準試料を用いて検量線を作成しておくことにより、定量評価を行う。また、試料成分のスペクトル形状が予めわかっているならば、ある程度の定性評価が行える。この手法で定量評価を行う際は、光源を単色化する際に、吸収のピークとなる波長に光源の波長をある程度合わせておく必要がある。

この手法は、近赤外線、可視光、紫外線といった波長領域の光を用いて行われ（200 nm～1500 nm 程度の波長）、分子内の電子遷移に由来する光の吸収を観測する。これは、後述の赤外線分光法が分子振動や回転を観測するのと対照的である。また、手法の適用は光が透過可能な溶液試料、薄膜試料に制限されるものの、低コストかつ簡便に定量評価が行えることが特徴である。測定可能な物質は溶液中の金属イオンや有機化合物など、無機物質から有機物質まで広範である。また、吸光だけではなく反射を用いることにより、適用範囲を溶液だけでなく固体試料の表面に拡張する手法も存在する。



図 A-11. 吸光光度法の測定体系例[A-18]。

#### A.1.2.1.2. 赤外分光法 (Infrared Spectroscopy, IR)

赤外線を物質に照射し、前述の吸光光度法と同様に、透過もしくは吸収スペクトルを測定する手法である。IR で得られるスペクトルは、分子の化学構造や運動状態（振動・回転）を反映するため、分子に固有の形状を示す。そのため、分子の定性及び定量評価が可能である。また、定性・定量評価ではなく単に分子の構造や運動状態を調べるために使われることも多く、特に有機化合物の構造決定に使われている。

赤外分光法に用いられる光は、1500 nm ~ 4000 nm 程度までの波長範囲である。また、物体表面からの反射を利用して、より高感度の測定を行う手法や、物体表面から放出される熱赤外線（8000 nm ~ 15000 nm）を用いた物体の定性評価手法も存在する。

#### A.1.2.1.3. ラマン分光法 (Raman Spectroscopy, RS) [A-19]

光を物質に照射した際に、エネルギー授受を生ずるラマン散乱（非弾性散乱）を観測する手法である。ラマン散乱は、物質に入射した光が、分子の固有振動（振動・回転によるエネルギー準位）に相当するエネルギーもしくは電子準位に相当するエネルギーを受け取るか失うかして散乱される現象である。

赤外線・可視光・紫外線が物質に入射する場合、ラマン散乱は分子の固有振動によるエネルギー授受を伴った散乱となる。通常、赤外線・可視光・紫外線が分子に入射して散乱される場合、散乱光のほとんどはレイリー散乱によるものであり、レイリー散乱は弾性散乱であるため、分子と光の間でエネルギーのやり取りが生じない。そのため、分光測定を行うとレイリー散乱とラマン散乱を区別することが可能となる。ただし、散乱光におけるラマン散乱の割合は、レイリー散乱のおよそ百万分の一程度であるため、ラマン散乱の観測には、レーザーのような高強度光源を用いる必要がある。

図 A-12 に一般的な顕微ラマン散乱分光装置を示す。レーザー光を試料に照射し、散乱光を観測する。観測する際、レイリー散乱による散乱光をカットするためのフィルタが置かれる。分光器を通して検出器で測定することにより、スペクトルを得る。図 A-13 にラマン散乱で得られるスペクトルの一例を示す。ラマンスペクトルでは、まず入射光の波長でレイリー散乱による強いピークが見られる。そして、ラマン散乱によりエネルギーを失った散乱光と、エネルギーを得た散乱光が見られることがわかる。ラマン分光法では、エネルギーを失った散乱光をストークス線、得た散乱光をアンチストークス線と呼び区別し、散乱光の強

度が強いストークス線を用いて分析が行われることが多い。

赤外線・可視光・紫外線によるラマン分光法では、図 A-13 のようなスペクトルが得られ、レイリー散乱に対するラマン散乱線の位置から、化学結合の種類や分子の同定が行える。また、ピークの高さを用いれば、その分子の濃度を定量評価することも出来る。そのほかに、ラマンスペクトルの形状が分子の結晶格子や結晶化度を反映することも知られており、これらの情報を得ることもできる。

ラマン分光法は、赤外吸収分光法と同様に分子の固有振動の情報を得る手法であるが、異なる情報が取得されるため、赤外吸収分光法と相補的な手法であるといえる。また、レーザー光を用いるため、レーザー光サイズ（微小領域）の分析が行える。そのため、1  $\mu\text{m}$  程度の空間分解能で分子の同定や分布状態のイメージングを行うことが可能であるという点で特徴的である。また、赤外線よりも高い波長の光を用いた測定であれば、ガラス越しの観察や水分を多く含むものでも測定可能となる。

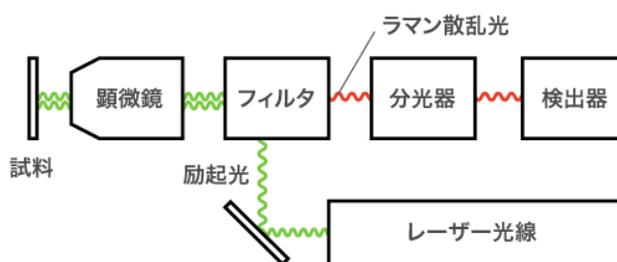


図 A-12. 一般的な顕微ラマン分光装置[A-19]。

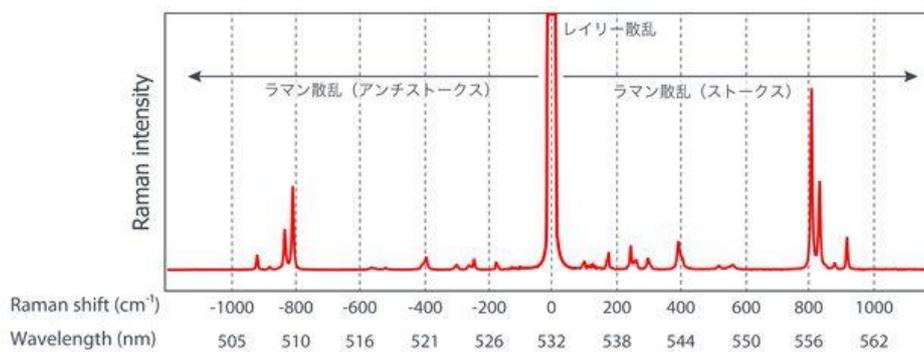


図 A-13. ラマンスペクトルの一例[A-19]。

## A.1.2.2. 赤外線よりも長い波長の電磁波を用いた分析手法

### A.1.2.2.1. 核磁気共鳴分光法 (Nuclear Magnetic Resonance, NMR, spectroscopy) [A-20]

核磁気共鳴分光法 (NMR) は、磁場中に置かれた原子核が固有の周波数の電磁波と相互作用する現象 (核磁気共鳴) を利用して、物質の定性・定量評価を行う手法である。原子核が磁気双極子モーメントを持つ場合 (原子番号と質量数が共に偶数でない原子核であれば)、その原子核は磁気量子数を持つ。通常、磁気量子数だけが異なる軌道のエネルギー準位は縮退しており、同一と見なせる。しかし、磁場中に原子核が置かれた場合、ゼーマン分裂によって縮退が解け、原子核のもつエネルギー準位が増える。縮退が解けた際に増えるエネルギー準位の差 (図 A-14) は、ラジオ波程度のエネルギー (数  $\mu\text{eV}$  ~ 数  $10\mu\text{eV}$  程度) となるため、ラジオ波と共鳴を起こすようになる。これが、核磁気共鳴である。また、核磁気共鳴が生じるラジオ波の周波数を共鳴周波数 (ラーモア周波数) と呼ぶ。

共鳴周波数は核種によって異なる。また、同一核種であっても、原子核の化学結合状態や磁場・電場等の環境に応じて差が生じる。そのため、NMR を用いることで、原子の化学結合状態、すなわち化合物に含まれる官能基の種類等を定性評価することが可能となる。そして、スペクトルのピーク高さをを用いれば、ある程度の定量評価も可能である。従って、NMR は、複雑な有機化合物の化学構造の決定、転じて、有機化合物の定性・定量的評価が行えることが特徴である。また、核磁気共鳴分光法は、共鳴の緩和時間等を用いて、分子の運動状態も見ることが可能であり、核磁気共鳴画像法 (Magnetic Resonance Imaging, MRI) として応用されている。

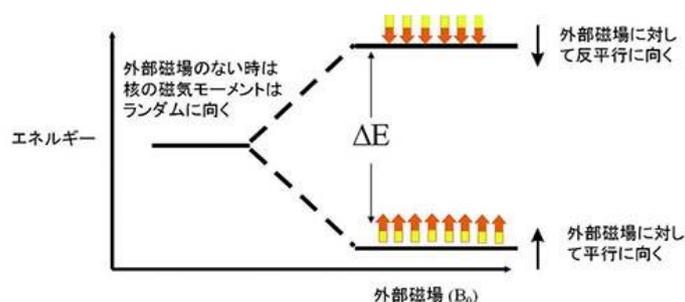


図 A-14. 外部磁場中のゼーマン分裂[A-20]。

### A.1.2.2.2. 電子スピン共鳴法 (Electron Spin Resonance, ESR)

磁場中に置かれた試料中の不対電子が、ある特定のエネルギーを持つマイクロ波を共鳴吸収する現象を利用して、遷移金属イオンや有機化合物のフリーラジカルの定性・定量評価を行う手法である。前述の NMR と原理はほぼ同じであり、原子核ではなく不対電子により生じる共鳴現象を利用する。磁場中の不対電子のエネルギー準位がゼーマン分裂により増え、エネルギー準位の差がマイクロ波 (数  $10\mu\text{eV}$  ~ 数  $100\mu\text{eV}$  程度) のエネルギーとなる。

この手法は、不対電子からの信号が得られることが特徴である。そのため、ラジカルの定

性・定量評価が行える。しかし、通常の安定な有機化合物は閉殻構造を取り、不対電子を持たないものが多い。そのため、NMR に比べると適用範囲は狭い。

#### **A.1.2.3. X 線を用いた分析手法**

X 線は、元素や使用するエネルギーに依存するが、およそ数  $\mu\text{m}$  (金属) ~ 数 mm (軽元素) 程度の透過能力を持つ。そのため、X 線を用いた分析手法では、その程度の厚さまで、試料を非破壊的に分析可能である。

##### **A.1.2.3.1. 蛍光 X 線分析 (X-Ray Fluorescence analysis, XRF) [A-21]**

試料に一定以上のエネルギーを持つ X 線を照射すると、コンプトン散乱により試料を構成する原子の内殻軌道電子が弾き出され、原子のエネルギー状態が不安定になる。弾き出された電子の穴は、それより外殻に存在する軌道電子により埋められ、原子のエネルギー状態は再び安定に戻る。この時に、元素に固有のエネルギーを持つ特性 X 線が放出される。これを検出することにより、元素を定性・定量評価する手法が蛍光 X 線分析 (XRF) である。XRF では、特性 X 線のエネルギーから元素の同定を、また測定されるスペクトルのピーク面積から定量評価を行うことが可能である。XRF は試料の前処理がほぼ不要なため手軽かつ迅速な非破壊測定が可能であり、応用範囲が広い。

特性 X 線は、原子の内殻電子が弾き出されることにより生じるため、原理的に、X 線だけでなく電子線や粒子線を照射しても発生する。使用する量子ビームにより、特性 X 線を利用した分析手法の名前は変化し、特に X 線照射による特性 X 線分析のことを、蛍光 X 線分析と呼ぶ。電子線を用いた特性 X 線分析や粒子線を用いた特性 X 分析も存在し、これらについては、後述する。

蛍光 X 線分析には、高いエネルギー分解能を持つ検出器を使用するエネルギー分散型 X 線分析とモノクロメータ等を用いて試料から放出された X 線を分光する波長分散型 X 線分析の二種類が存在する。

##### **A.1.2.4.1.1. エネルギー分散型蛍光 X 線分析 (Energy Dispersive X-Ray Fluorescence analysis, ED-XRF)**

X 線を試料に照射し、試料から放出された X 線をエネルギー分解可能な検出器で計測し、元素の定性・定量評価を行う手法である。検出器は、基本的にエネルギー分解能が高い半導体検出器が用いられる。一度の測定で得られるエネルギースペクトルを用いて評価を行う。エネルギー分散型蛍光 X 線分析 (ED-XRF) は、多元素の同時評価が可能であり、また、測定が迅速であるという特徴を持つ。しかし、バックグラウンドが大きくなりやすく、エネルギー分解能の点では、後述する波長分散型蛍光 X 線分析 (WD-XRF) には劣る。特性 X 線のエネルギーは、数 100 eV ~ 数 100 keV までの範囲で存在しており、基本的に低エネルギー側にはバックグラウンドが大きいため、XRF では重い元素の方が観測しやすい。ED-XRF では、Na より上の原子番号の元素において評価が行える。

#### A.1.2.4.1.2. 波長分散型蛍光 X 線分析 (Wavelength Dispersive X-Ray Fluorescence analysis, WD-XRF)

試料から放出された X 線を、結晶モノクロメータ等を介すことにより波長を制限し、波長毎の X 線強度を検出する手法である。結晶モノクロメータを少しずつ回転させて、波長を変えながら測定するため、ED-XRF に比べて測定時間が長くなる。しかし、モノクロメータにより単一波長の X 線のみを測定していくため、ED-XRF に比べて、バックグラウンドが小さい。また、ED-XRF 以上のエネルギー分解能が達成可能であるという特徴を持つ。そのため、評価精度に優れており、ED-XRF と場合によって使い分けられている。WD-XRF では、B より上の原子番号の元素において評価が可能である。

#### A.1.2.3.2. X 線光電子分光 (X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS) [A-22]

試料表面に X 線を照射し、光電効果により放出される光電子のエネルギーを測定することにより、試料の定性・定量評価および試料の電子状態を評価する手法である。数 keV 程度の軟 X 線を試料に照射した場合、光電効果が主な相互作用となることを利用する。光電効果によってたたき出される光電子のエネルギーは、式 A.2 で表される。

$$E = h\nu - E_B - \phi \quad (\text{A.2})$$

ここで、 $E$  は光電子のエネルギー、 $h$  はプランク定数、 $\nu$  は照射した X 線の振動数、 $E_B$  は電子の結合エネルギー、 $\phi$  は試料表面における仕事関数である。X 線光電子分光 (XPS) では、X 線のエネルギー ( $h\nu$ ) と  $\phi$  が既知ならば、光電子のエネルギーを測定することで、電子の結合エネルギーを求めることが出来る。図 A-15 に横軸に結合エネルギー、縦軸に放出光電子強度を示した光電子スペクトルを示す。電子の結合エネルギーは元素およびその電子状態に固有であるため、このスペクトルから試料元素の同定が可能である。また、ピーク面積から、定量評価も行うことが可能である。また、XPS では、元素の結合状態の変化により電子状態が変化するため、同じ元素であっても、スペクトルのピーク位置に違いが表れる。従って、化学結合によるシフトを観測し、試料の化学結合状態を評価可能であることが特徴である。

XPS では、光電子を計測するため、数 nm 程度の表面の情報しか得られない。しかし、表面をエッチングしながら深さ分析を行う手法も存在する。また、X 線を絞って試料を走査しながら測定を行うことで、イメージング測定も可能である。ほぼあらゆる試料に使用でき、適用範囲が広い手法である。

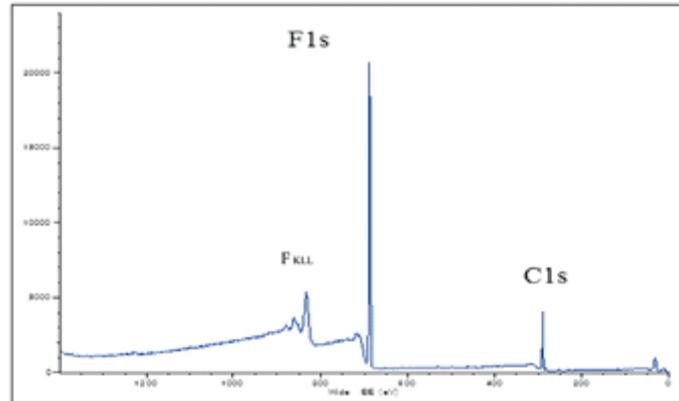


図 A-15. 光電子分光スペクトル[A-22]

#### A.1.2.3.3. X線吸収分光法 (X-ray Absorption Spectroscopy, XAS)

X線のエネルギーを分光器を用いて変化させながら試料に照射し、測定されるX線吸収スペクトルから、元素の定性・定量評価、また、X線吸収微細構造 (X-ray Absorption Fine Structure analysis, XAFS) と呼ばれる吸収端の近傍を解析することで、元素の電子状態や局所的な化学状態を評価することも可能な手法である。この手法は、エネルギーが可変で強度の強いX線が得られる放射光を用いて行なわれており、試料にX線を照射した際の透過率や発生する電子の総量、発光量等から試料のX線吸収スペクトルを測定する。

XASで使用されるX線のエネルギーの範囲は、元素の内殻電子を励起することが可能な0.1 – 100 keV程度である。XASで着目される領域は、通常XAFSであり、X線吸収スペクトル上の吸収端付近のスペクトルにおいて見られる固有の構造を解析することにより、X線吸収元素の電子状態や原子配置の局所構造、複数の化学種の組成比等の情報を得る。物質分析手法としては、複数の化学種の組成比を見分けられるという点で特徴的である。また、複数の元素が混合した試料から、観察したい元素の吸収端を選ぶことで、元素選択的に観察することが可能である。

XAFSでは、X線吸収端近傍構造 (X-ray Absorption Near Edge Structure, XANES) と呼ばれる吸収端前後50 eV程度の領域と、広域X線吸収微細構造 (Extended X-ray Absorption Fine Structure, EXAFS) と呼ばれる吸収端から1000 eV程度の領域の、二領域が注目される。XANESからは、元素の電子状態や化学種の組成等の情報が得られ、EXAFSからは、観察原子の局所構造 (原子間距離、配位数等) 等の情報が得られる。XAFSは、X線結晶構造解析と異なり、試料が長距離秩序を必要とせず、結晶物質に限らずに構造情報の解析が出来る。この手法を行うには、非常に高いエネルギー分解能と、吸収スペクトルに現れる微細構造を得ることが可能な強いX線強度を必要とする。そのため、放射光を用いて行われている。

#### A.1.2.3.4. X線ラマン分光法 (X-ray Raman Spectroscopy, XRS)

X線を物質に照射した際に、エネルギー授受を生ずるラマン散乱 (非弾性散乱) を観測す

る手法である。A.1.2.1.3 節で述べたように、ラマン散乱は物質に入射した光が分子の固有振動（振動・回転によるエネルギー準位）に相当するエネルギーもしくは電子準位に相当するエネルギーを受け取るか失うかして散乱される現象であり、X 線ラマン分光法（XRS）の場合、試料元素の電子準位に相当するエネルギー授受を伴った散乱が測定される。そのため、XRS は、元素の電子状態を評価可能な手法である。また、X 線ラマンスペクトルのピーク位置とその高さから、元素の定性・定量評価を同時に行うことも可能である。

XRS は、吸収端のエネルギーが軟 X 線領域（1 - 1000 eV）にある場合でも、よりエネルギーの高い硬 X 線（1 - 10 keV 程度）を用いて、電子状態の情報を得られることが特徴である。通常は、A.1.2.3.3 節で述べた XAFS を用いてこの吸収端付近を見ることになるが、吸収端のエネルギーが軟 X 線領域の場合は、これを観測するのが難しいため、これは大きな利点となる。

通常のラマン分光法と同様に、XRS を行う場合も、非常に強い光源が必要となる。そのため、XRS は放射光を用いて行われる。

#### A.1.2.3.5. X 線回折法（X-Ray Diffraction, XRD） [A-23]

試料に X 線を照射した際に、試料の結晶構造により生じる回折現象を観測し、結晶構造の解析を行う手法である。この手法では、回折ピークの位置から結晶構造の定性評価を、回折ピークの高さからその量を定量評価することが可能である。そのため、結晶性の物質であれば、その物質の定量評価が行える。

結晶中の格子面間隔と X 線の波長の関係がブラッグ条件を満たす時、回折が生じ、回折ピークが測定される。このピークの位置に結晶格子面の情報が、ピークの高さに結晶中の単位胞の数の情報が含まれている。また、回折ピークの幅の中にも試料の結晶構造の情報が多数含まれている。

#### A.1.2.3.6. X 線反射率法（X-Ray Reflectivity, XRR） [A-24]

X 線反射率法（XRR）は、X 線を試料の表面すれすれに照射し、反射した X 線を測定することにより、試料の膜厚や密度、粗さといった情報を取得可能な手法である。XRR では、X 線の入射角を変化させ、反射 X 線を測定することで、入射角に対する強度のスペクトルを測定する。X 線を物質に入射すると、可視光等と同様に物質表面で反射・屈折が生じる。X 線における複素屈折率  $n^*$  は式 A.3 のように定義される。

$$n^* = 1 - \delta - i\beta \quad (0 \leq \delta, \beta) \quad (\text{A.3})$$

ここで、 $\delta, \beta$  は入射する X 線の波長、物質の組成、密度によって理論的に計算可能であり、一般的な物質では  $\delta, \beta$  はおよそ  $10^{-6}$  の値となり、真空で 0 になる。従って、X 線の物質に対する屈折率は、1 よりやや小さい程度になる。屈折率が真空より小さい場合、入射角がある角度（臨界角  $\theta_c$ ）より小さくなると全反射が生じる。また、全反射が生じる角度より、入射

角が大きくなると、屈折成分が表れ、反射強度が小さくなる。

XRR は、母相の上に薄膜がある場合に利点があり、図 A-16 のような反射率スペクトルが得られる。振動周期から膜厚が、振動の振幅から、母相と膜厚の密度差が、臨界角以下の反射率から薄膜の密度が評価できる。従って反射率測定は通常、薄膜の測定に利用され、例えば表面が十分に平坦でない試料などには利用できない。

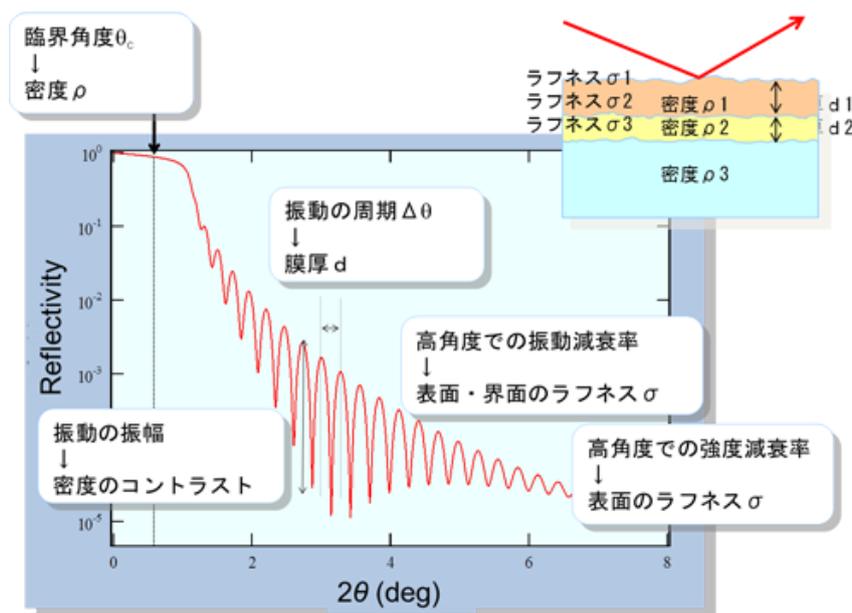


図 A-16. X 線反射率スペクトル[A-22]。

#### A.1.2.4. 電子線を用いた分析手法

電子線の物体透過能力は、試料によるが、およそ  $1\ \mu\text{m}$  程度である。そのため、電子線を用いた分析手法は、表面近傍の情報が得られる手法となる。また、電子線は空気の影響を大きく受けるため、試料は真空中に置かれる必要がある。

##### A.1.2.4.1. 電子線照射による特性 X 線分析

A.1.2.3.1 (蛍光 X 線分析) 節で述べたように、試料に X 線ではなく電子線を照射しても、特性 X 線が発生する。そのため、電子線照射による特性 X 線を利用した手法が存在する。電子線照射による特性 X 線分析は、基本的に走査型電子顕微鏡 (SEM) に付随した形で行われており、蛍光 X 線分析と同様にエネルギー分散型と波長分散型の二種類の方式が存在する。

SEM は、電子線を径の細いビームとして取り出し、試料表面上を走査して照射し、試料表面から放出される二次電子や反射 (回折) 電子を検出し、試料を観察する装置である。SEM にエネルギー分散型の X 線分析装置を組み合わせる特性 X 線分析手法を SEM-EDX と呼び、SEM に波長分散型の X 線分析装置を組み合わせる特性 X 線分析手法を

電子線マイクロアナライザ（EPMA）と呼ぶ。

#### **A.1.2.4.1.1. 走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分光装置（Scanning Electron Microscope and Energy Dispersive X-ray Spectroscopy, SEM-EDX） [A-25]**

SEM-EDX は、走査型電子顕微鏡に半導体検出器等のエネルギー分散型の検出器を備えた装置による特性 X 線分析手法である。A.1.2.3.1.1 節で述べたように、エネルギー分散型の特性 X 線分析は一度の測定で多元素の同時評価が行えるので、測定が迅速に行えるという利点がある。しかし、定量精度は波長分散型に劣る。また、電子線走査しながら試料の各点の元素の情報が得られるため、元素イメージングが可能であるという特徴を持つ。

SEM だけでなく、透過型電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope, TEM）でエネルギー分散型の特性 X 線分析を行う手法もあり、それは TEM-EDX と呼ばれている。また、走査型透過電子顕微鏡（Scanning Transmission Electron Microscope, STEM）で EDX を行える装置は STEM-EDX と呼ばれる。

#### **A.1.2.4.1.2. 電子線マイクロアナライザ（Electron Probe Micro Analyzer, EPMA） [1-5]**

EPMA は、SEM に結晶モノクロメータ等の分光器による波長分散型検出システムを備えた装置の名称であり、また、その装置による特性 X 線分析手法の名称としても使用されている。波長分散型の特性 X 線分析を行うためには、複数の結晶モノクロメータを用意する必要がある上に、試料とモノクロメータ、X 線検出器を適切な位置に配置する必要がある。そのため、走査型電子顕微鏡に波長分散型検出システムを備えた装置（EPMA）は、特性 X 線分析による元素の定性・定量評価を主体とした装置となっている。

A.1.2.3.1.2 節で述べたように、波長分散型の特性 X 線分析は、モノクロメータを移動させながら一波長ごとに測定を行うため測定に時間がかかるが、分析・定量精度はエネルギー分散型よりも高い。EPMA では、軽元素はホウ素から重元素はプルトニウムまで評価を行うことが可能である。

#### **A.1.2.4.2. 電子エネルギー損失分光法（Electron Energy-Loss Spectroscopy, EELS） [1-6]**

試料に電子線を照射し、電子の非弾性散乱によるエネルギー損失を測定することで元素分析や試料の電子状態分析を行う手法である。

試料に入射した電子線は、試料内の電子と相互作用し、エネルギーを失う。図 A-17 に電子エネルギー損失分光法（EELS）で得られるスペクトルの一例を示す。EELS スペクトルは大きく分けて 3 つの領域に分けることが出来る。一つ目は、電子線が試料内電子と相互作用しない、もしくは弾性散乱のみ生じた場合の領域であり、図のゼロロス領域と呼ばれる大きなピーク部である。二つ目は、試料内の自由電子群の振動（プラズモン）もしくは価電子帯にある電子と相互作用し（バンド間遷移を生じさせ）、エネルギーを失う荷電子励起領域である。そして最後が、試料内原子の内殻電子と相互作用し、エネルギーを失う内殻電子励起領域である。EELS では、荷電子励起領域の解析により電子密度や試料の光学特性が得

られ、内殻電子励起領域の解析により元素の定性・定量評価が行える。加えて、前述した XAFS 等と同様に、元素の電子状態の評価が行える。EELS 装置は透過型電子顕微鏡に付随している場合が多く、EELS 分析を電子線走査により行えば、イメージングを行うことも可能である。

特性 X 線を用いた手法 (SEM-EDX, EPMA) と比べると、EELS は、軽元素への感度が高く、軽元素は Li 元素から評価可能である。また、エネルギー分解能も高いため、定性・定量評価の精度が高いという特徴を持っている。ただし、電子が試料を透過した際のエネルギー損失を見るため、電子線が透過可能な厚さの試料への適用に限られ、厚さが 1  $\mu\text{m}$  以下の試料にしか適用できない。

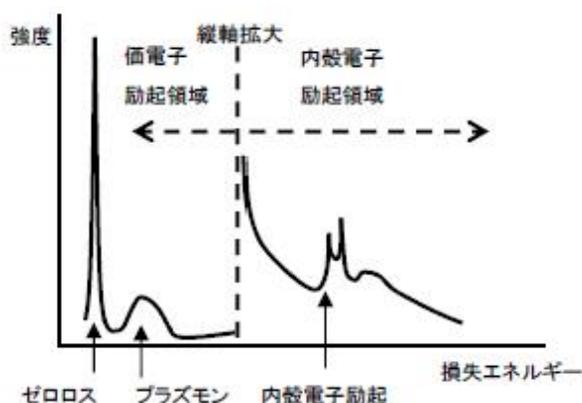


図 A-17. EELS スペクトルの例[1-6]。

#### A.1.2.4.3. オージェ電子分光法 (Auger Electron Spectroscopy, AES) [A-26]

試料に電子線を照射し、放出されたオージェ電子を測定することにより、試料元素の定性・定量評価を行う手法である。オージェ電子は、原子の内殻電子が電子線等によりたたき出された際に、不安定になったエネルギー状態を安定状態に戻すため、電子がたたき出された殻よりも外側の殻から放出される電子のことである。オージェ電子の放出は、特性 X 線放出の競合過程として生じる。

オージェ電子の放出は、H、He では生じないが、Li から生じ、軽元素においてその発生確率が高い。そのため、特性 X 線分析に比べ軽元素を高感度で定性・定量評価することが可能である。また、元素の定性・定量評価だけでなく、元素の化学結合状態の評価も行えるという特徴を持つ。AES 装置は、走査型電子顕微鏡にオージェ電子分光器が付随している場合が多く、電子線走査をしながら AES を行えば、イメージングが可能である。ただし、放出されたオージェ電子は、数 nm 程度の飛程しか持たないため、分析は表面に限られる。

#### A.1.2.4.4. 電子線回折法 (Electron Diffraction, ED)

結晶性の試料に電子線を照射した際に生じる回折を利用し、試料の結晶構造解析を行う手法である。前述した XRD と原理は同様であり、X 線ではなく電子線を用いるという点が

異なる。電子線回折法 (ED) は、ほぼ TEM により行われており、X 線に比べ、電子線の収束が技術的に容易であるため、観察したい場所にスポット的に電子線照射を行えるという特徴を持つ。そのため、極小領域における結晶構造解析が可能である。

#### **A.1.2.4.5. 電子後方散乱回折法 (Electron Backscatter Diffraction, EBSD) [A-27]**

結晶性の試料に電子線を照射し、後方散乱された電子を測定し、結晶構造解析を行う手法である。回折パターン of 測定手法が異なるだけで、得られる情報は基本的に ED と同様である。EBSD では、後方散乱される電子を測定するため、測定試料を 60~70° 傾斜させる。ED は TEM により行われるが、SEM を用いて ED と同様の情報が得られるという利点がある。

#### **A.1.2.5. 粒子線を用いた分析手法**

粒子線の透過能力は、粒子の種類とそのエネルギーによって異なるものの、基本的には、同程度のエネルギーの場合、電子線に比べて透過能力が低い。粒子線を用いた分析手法では、主に数 MeV のエネルギーの粒子線が用いられており、この時、電子線を用いた分析手法と同程度 (およそ 1 μm 程度) の深さまで分析が行える。粒子線を用いた分析手法は、電子線同様、表面近傍の情報が得られる手法となる。

粒子線は電子線に比べ質量が重いいため、直進性が高い。電子線を用いた分析手法では、電子線が空気の影響を大きく受けるため、試料を真空中に置く必要があった。それに対し、粒子線を用いた分析手法では、粒子線が空気の影響を受けにくく、大気下に置かれた試料の測定が可能であるという特徴を持つ。

##### **A.1.2.5.1. 粒子線励起 X 線分析法 (Particle Induced X-ray Emission, PIXE) [A-28]**

A.1.2.3.1 (蛍光 X 線分析) 節で述べたように、試料に X 線ではなく粒子線を照射しても、特性 X 線が発生する。粒子線励起 X 線分析法 (PIXE) は、加速器で発生させた粒子線を試料に照射し、試料から放出される特性 X 線を分析することにより、元素の定性・定量評価を行う手法である。PIXE においても、X 線照射や電子線照射による特性 X 線分析と同様、エネルギー分散型と波長分散型の検出システムが用いられており、目的によって使い分けられている。試料に照射する粒子線は、主に MeV 程度のエネルギーを持つプロトンビームがよく用いられている。

PIXE では、電子線照射に比べ制動放射によるバックグラウンドが低く、また特性 X 線の発生数も多い。そのため、S/N 比が高いという特徴を持つ。また、粒子線の直進性により、電子線照射では困難な、液体試料や大気化での適用が可能である。加えて、粒子線の収束制御により、X 線照射に比べて局所的な分析が行えるため、イメージングが可能であるという特徴も持っている。PIXE は、試料の前処理がほとんど必要なく、試料状態も選ばないため、空気中の微粒子や細胞等へ適用されており、環境試料や生体試料に対してよく用いられている。

#### **A.1.2.5.2. ラザフォード後方散乱分光法 (Rutherford Backscattering Spectroscopy, RBS) [A-29]**

試料に数 MeV のイオンビームを照射し、後方散乱されたビームのエネルギースペクトルや角度スペクトルから、試料の組成やその深さ分布、また表面近傍の原子配置等の情報が評価可能な手法である。ラザフォード散乱は、クーロン相互作用による荷電粒子間の弾性散乱のことである。そのため、単一のエネルギーを持つイオンビームを試料に入射し、試料に対してある角度で設置したエネルギー分解可能な検出器でエネルギースペクトルを測定すると、イオンの種類とエネルギーは既知であるので、検出器で測定されたエネルギースペクトルを用いて、散乱を起こした元素の定性・定量評価が可能である。

#### **A.1.2.5.3. イオン散乱分光法 (Ion Scattering Spectroscopy, ISS)**

試料に数 keV～数 100keV の低・中エネルギーイオンを照射し、後方散乱されたイオンのエネルギースペクトルや角度スペクトルから、試料の組成やその深さ分布、また表面近傍の原子配置等の情報が評価可能な手法である。原理は RBS と同様であり、検出器で測定されたエネルギースペクトルを用いて、散乱を起こした原子の質量が得られ、元素の定性・定量評価が可能である。イオン散乱分光法 (ISS) は、前述の RBS に比べ、用いるイオンビームのエネルギーが低いため、より試料表面の原子によって散乱される。そのため、より表面に近い領域の情報が取得可能であるという特徴を持つ。

#### **A.1.2.6. 散乱・反射中性子を用いた分析手法**

1.2 節でも述べたが、中性子線の特徴は、高い物体透過能力と軽元素に対する断面積の大きさである。その特徴から、中性子は cm オーダーの物体を透過可能であるため、バルク材料やバルク内部の測定が可能であり、またバルク中の軽元素を評価可能である。中性子を用いた物質定量手法として、中性子照射により発生する  $\gamma$  線を利用する手法と透過中性子を利用する手法については、1.3 節にまとめた。以下本節では、中性子を物質に照射した際に生じる散乱や反射を利用して物質定量を行う手法について述べる。

##### **A.1.2.6.1. 中性子回折法 (Neutron Diffraction, ND)**

結晶性の試料に中性子を照射した際に、生じた回折中性子を測定することにより、結晶構造解析を行う手法である。前述した XRD、ED と原理は同様であり、X 線や電子線ではなく中性子を用いるという点が異なる。

中性子回折法 (ND) では、中性子が X 線や電子線と異なり電子と相互作用しないため、透過力が非常に強く、物体内部の結晶構造や磁気構造を観察することが可能であるという特徴を持つ。加えて、試料を薄く削るなどの前処理が必要なく、数 cm 程度のサイズであれば、そのままの状態でも測定可能である。また、X 線や電子線に比べ、中性子は軽元素への断面積が大きいため、軽元素で構成された物質からの回折も測定しやすいという特徴も持つ。

以上のような利点から、ND は XRD や ED では測定が困難なものに利用されており、例えば、たんぱく質分子の結晶構造解析等に用いられている。

ND は、連続中性子源において、モノクロメータを利用して行う方式もあれば、パルス中性子源において、飛行時間測定を利用して行う方式も存在する。

#### **A.1.2.6.2. パルス中性子ブラッグエッジ解析法[A-30]**

パルス中性子を試料に透過し、中性子透過率スペクトルを得ると、ブラッグエッジと呼ばれる結晶構造を反映したパターンが表れる。これを解析し、試料の結晶構造を解析する手法を（パルス中性子）ブラッグエッジ解析法と呼ぶ。ブラッグエッジ解析法では、中性子回折法が回折された中性子そのものを測定するのに対し、中性子の透過成分を測定する。透過成分は、回折された中性子の分だけ減少するため、回折現象を中性子回折法とは異なる捉え方で測定することになる。ブラッグエッジを解析することで、ND とほぼ同様の情報が得られ、回折ピークの位置から結晶構造の定性評価を、回折ピークの高さから定量評価が可能である。ブラッグエッジ解析法の特長は、ND に比べて二次元イメージングが容易に行えることである。ND でイメージングするには、中性子を絞り試料を走査する必要があるが、この手法では、二次元検出器を用いて効率的にイメージングを行うことが可能である。

#### **A.1.2.6.3. 中性子反射率測定法[A-31]**

中性子線を試料の表面すれすれに照射し、反射した中性子線を測定することにより、試料の膜厚や密度、粗さといった情報を取得可能な手法である。A.1.2.3.6 節で述べた XRR と原理は同様である。中性子を用いることで、X 線に比べより表面の深い領域を観察することが可能である。また、軽元素に対する感度を大きく持つため、XRR では測定が難しい高分子や生物試料等にも適用可能という特徴を持っている。

#### **A.1.2.6.4. 中性子小角散乱法[A-32]**

試料内の微細組織（析出物等の粒子）によって散乱された中性子を測定する手法である。ここでいう、微細組織とは、およそ nm サイズの構造を言い、小角散乱プロファイルを解析することにより、微細組織のサイズや量、形状等の情報が得られる。



## 付録 B ENTAX の応用方法の検討

ここでは、ENTAX の応用方法について検討した結果を述べる。検討項目は以下 2 点である。

1. ENTAX による目的物質の抽出評価
2. ENTAX による化合物の組成分析

また、最後に、ENTAX を実際の試料に応用する際に検討すべき事項と、小型中性子源において ENTAXI を行うために検討すべき事項について述べる。

### B.1. ENTAX による目的物質のみの抽出評価

#### B.1.1. 目的物質の抽出評価を行う目的

ENTAX による複数物質の評価を行うには、4 章で述べたように、物質同士の全断面積のエネルギー依存性が異なっている必要がある。4 章では、2 種類の物質の組み合わせに関して、物質間の全断面積のエネルギー依存性の異なりの程度（DCS や DTS）と ENTAX による 2 物質の評価結果の関係を得た。その関係から、今後、より多種の物質が含まれる試料に ENTAX を適用する場合、試料に含まれる物質のそれぞれの全断面積エネルギー依存性がある程度異なっている必要があると考えられ、ENTAX により評価可能な物質の組み合わせの条件はより厳しくなると想定される。そのため、多種の物質が含まれる試料に ENTAX を適用する際に、全ての物質を定量評価することが難しい場合は、目的物質だけでも抽出して評価することが出来れば、ENTAX の応用範囲はより広がると考えられる。そこで、目的物質の抽出評価を行う解析法の検討を行った。

検討した解析法は、適用するための前提条件はあるものの、目的物質の評価のみに着目することにより、目的物質を高い確度で評価出来る手法である。

#### B.1.2. 抽出評価を行う解析法

検討した解析法は、前提として、評価対象となる目的物質は全断面積のエネルギー依存性が大きなものであり、試料に含まれる評価対象以外の物質は全て一定の全断面積エネルギー依存性を持つことが必要となる。そして、この条件を満たす場合に、目的物質の抽出評価が行える解析法となっている。

上述した条件を満たす場合、ENTAX でフィッティング解析を行う際に、解析パラメータを、目的物質の面密度と定数パラメータの 2 つとする。すると、フィッティング関数を式 B.1 のように書くことができる。

$$Tr(E) = \exp(-N_1\sigma_1(E)) + c \quad (B.1)$$

ここで、 $N_1$ は目的物質の面密度 [ $\text{cm}^2$ ]、 $\sigma_1$ は目的物質の全断面積 [ $\text{cm}^2$ ]、 $c$ は定数パラメータを示す。

式 B.1 において、 $c$ は、一定の全断面積エネルギー依存性を持つ物質が透過率スペクトルに与える成分を示す。目的物質以外の全断面積エネルギー依存性が一定ならば、目的物質以外の全物質の透過率スペクトルへの寄与は、 $c$ で表現されることになる。すなわち、B.1 式は、全断面積のエネルギー依存性が一定の物質の影響を  $c$  にまとめてしまったフィッティング関数である。従って、上述の前提条件が満たされるならば、多種類の物質から構成される試料から測定される透過率スペクトルを式 B.1 によりフィッティングして、 $N_1$ を評価することが可能となる。そして、パラメータが少なくなった分、 $N_1$ を確度良く評価可能である。

上述した前提条件が満たされるような試料として、例えばリチウムイオン電池が考えられる。リチウムイオン電池は、リチウムと多くの軽元素で構成されており、リチウム以外には炭素や酸素、水素、フッ素等により構成されている。そして、電池の構成元素において、リチウム以外の元素は一定の全断面積を持つ場合があるため、考案した抽出評価法が適用可能となる。

### B.1.3. 抽出評価を行う解析法の適用

5 章において述べたアルミリチウム合金製の階段状試料に、考案した解析法を適用した。アルミリチウム合金は Li と Al により構成されており、Li は全断面積のエネルギー依存性が大きく、Al は全断面積のエネルギー依存性が一定である。そのため、抽出評価を行うための解析法の前提条件を満たしている。よって、この試料において、Li を目的物質として抽出評価が行えるかを確認した。

まず、フィッティング結果の一例を図 B-1 に示す。図 B-1 は、階段状試料の厚さ 4.8 mm の段に式 B.1 によりフィッティングした結果であり、フィッティング範囲を 0.5–100 eV とした。フィッティング範囲において、測定された透過率スペクトルとフィッティングカーブがよく一致しているのがわかる。次に、試料の全段において得られた面密度を図 B-2 に示す。また、数値データを表 B-1 に示す。図 B-2 は、図 5-9 と同様の形式で示しており、評価された Li の面密度と実際の値が一致する時、 $y=x$  の直線上にプロットされる。図 B-2 及び表 B-1 より、リチウムの量は実際の値から 5%程度の評価誤差で求まっていることがわかる。従って、考案した解析法により、リチウムの抽出評価が行えることが確認できた。

この抽出評価を行う解析法は、3 章で述べた検出器の測定強度変動による系統誤差のように、エネルギー依存性のない一定の系統誤差が透過率スペクトルに混入する場合に、エネルギー依存性が大きな物質を評価したい場合にも有効である。すなわち、定数パラメータに系統誤差の影響を吸収させるという考え方である。例えば、系統誤差の補正が行えない場合に、

エネルギー依存性が大きな物質の抽出評価が行いたい場合には、この解析法の利用を検討するべきである。

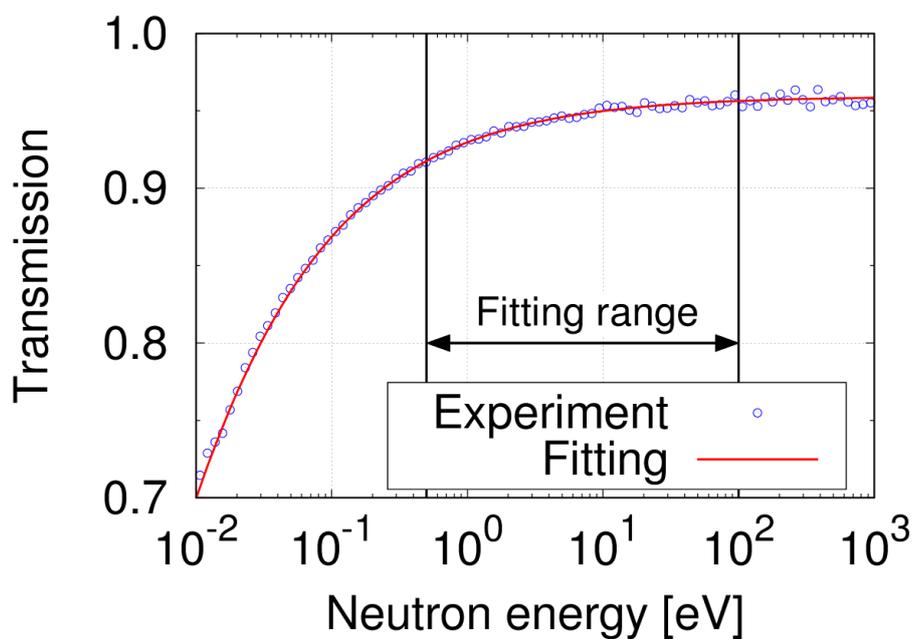


図 B-1. 考案した手法によるフィッティングの一例 (階段状試料の厚さ 4.8 mm の段)。

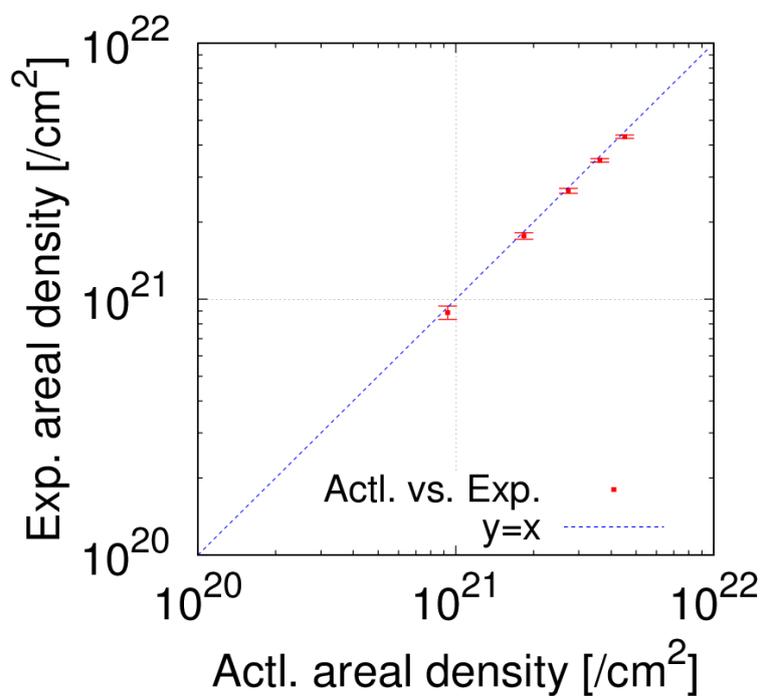


図 B-2. 階段状試料の各段の中性子透過率スペクトルに対する考案した解析法の評価結果と実際の面密度の比較。

表 B-1. 階段状試料の中性子透過率スペクトルに対する考案した解析法で求められた定数パラメータと Li 面密度の評価結果、実際の値、及びその差。

Thickness [mm]	Constant (c) [-]	Analyzed areal density of Li ( $N_i$ ) [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Actual areal density of Li [ $10^{21}/\text{cm}^2$ ]	Difference [%]
1.6	0.018	0.886	0.929	-4.6
3.2	0.027	1.77	1.835	-3.7
4.8	0.038	2.65	2.729	-2.8
6.4	0.056	3.49	3.617	-3.5
8.0	0.069	4.32	4.517	-4.4

#### B.1.4. 抽出評価法のまとめ

評価対象となる目的物質が全断面積のエネルギー依存性の大きなものであり、それ以外の物質が全て一定の全断面積エネルギー依存性を持つという条件を満たすならば、目的物質の抽出評価が行える解析法を考案・実証した。

この解析法は、例えば多数の物質により構成される試料の中から、エネルギー依存性が大きな物質を抽出して評価可能である。また、系統誤差の補正が行えない場合にも、有効となる。

## B.2. 化合物の組成分析

ENTAX は、軽元素を含む複数物質の評価が可能である。従って、ENTAX は、化合物の組成分析が行える可能性を持つ。そこで、3.3 節で測定した酸化チタンの評価結果から、組成分析が行えるかを検討した。

3.3 節で測定した酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ ) 試料のフィッティング結果 (図 3-35) を図 B-3 に改めて示す。このフィッティングによる面密度評価結果は、表 3-8 に示されている。表 3-8 を組成分析という観点で書き直すと、表 B-2 のようになる。表 B-2 より、解析された組成比は、Ti を 1 とすると、Ti:O=1:2.2 となり、実際の組成比 Ti:O=1:2 に対し、かなり近い組成比が得られた。従って、実際の組成比に比べ 10%程度の差を伴ったものの、ENTAX は組成分析に応用できる可能性を持っている。

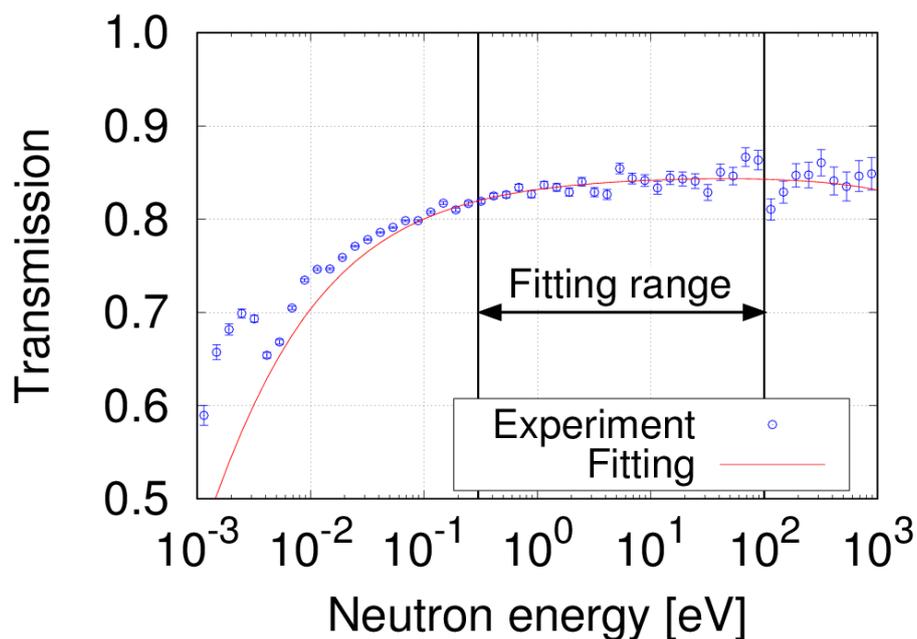


図 B-3. 3.3 節で測定した酸化チタン試料の中性子透過率スペクトルの再掲。

表 B-2. 酸化チタン (TiO<sub>2</sub>) 試料の面密度評価結果と評価結果から計算した組成分析結果、また実際の組成比。

Sample	Analyzed areal density [10 <sup>22</sup> /cm <sup>2</sup> ]	Actual areal density [10 <sup>22</sup> /cm <sup>2</sup> ]	Analyzed composition	Actual composition
Ti in TiO <sub>2</sub>	1.41	1.52	1	1
O in TiO <sub>2</sub>	3.06	3.05	2.2	2

### B.3. ENTAX の応用法の最後に

ENTAX を実際の試料に適用する際に検討すべき事項を述べる。また、ENTAXI は基本的に大型中性子源施設向きであるが、小型中性子源において ENTAXI を行うために検討すべき事項を述べる。

#### B.3.1. 実際の試料に ENTAX を応用する際の検討事項

ENTAX を、実際の試料に応用する際には、多数の物質により構成された試料に適用することが予想される。その際には、ENTAX で解析するパラメータをなるべく減らすべきであり、以下のような検討を行うべきである。

1. 試料の透過率スペクトルを測定する場合に、なるべく中性子透過方向に存在する物質の数を減らす。(例えば物質の出し入れが可能ならば、物質を出入しれしてスペクトルを測定する。)
2. 試料の図面等が存在し、試料を構成する物質 (例えば容器) の面密度が既知ならば、

測定した透過率スペクトルからその影響を補正する。(5.1.2.4 節で述べた不純物の影響の補正を行ったようにする。)

3. 試料中の物質の全断面積エネルギー依存性や評価したい物質を考慮して、B.1 節で説明した抽出評価法の適用を検討する。
4. その他の手法、例えば N-RAS 等と組み合わせて、試料中物質の一部の面密度を決定し、2 と同様にその影響を補正する

ENTAX を実際に適用する際には、以上のような方策により、なるべくパラメータ数を減らすべきである。

### B.3.2. 小型中性子源において ENTAXI を行うための検討事項

ENTAX を行う際には、検出器に試料からの散乱線が混入しないよう、試料—検出器間距離を十分にとる必要がある。そのため、ENTAX によるイメージング (ENTAXI) を行うためには、高 L/D の中性子ビームが必要となり、ENTAXI は、基本的に大型中性子源施設向きとなる。しかし、小型中性子源において ENTAXI を行うために、以下のような検討が考えられる。

1. 散乱断面積が小さい試料や非常に薄い試料の場合には、試料からの散乱線が弱くなり、必要な試料—検出器間距離は小さくなると考えられる。そのため、試料によって、試料—検出器間距離をモンテカルロシミュレーション等で最適化する。
2. ENTAXI を行うためには、試料からの散乱線が検出器に混入しなければよいので、試料を透過した成分のみを取り出すためのソーラーコリメータやマルチピンホールコリメータのようなデバイスを用意する。

以上のような工夫を行うことにより、小型中性子源において ENTAXI を行える可能性がある。

また、ENTAX は小型でも十分に可能であり、試料の簡単な組成分析や物質の定量評価への応用が考えられる。



# 参考文献

## 1章の参考文献

- [1-1] J. T. Watson, O. D. Sparkman, “*Introduction to mass spectrometry: instrumentation, application, and strategies for data interpretation*”, 4th ed., Chichester, England, John Wiley & Sons, Inc. (2007).
- [1-2] L. R. Snyder, J. J. Kirkland, J. W. Dolan, “*Introduction to modern liquid chromatography*”, 3rd ed., Hoboken, New Jersey, John Wiley & Sons, Inc. (2010).
- [1-3] B. Beckhoff, H. B. Kanngießer, N. Langhoff, “*Handbook of practical X-ray fluorescence analysis*”, Berlin, Heidelberg, Springer-verlag (2006).
- [1-4] D. C. Koningsberger, R. Prins, “*X-ray absorption: principles, applications, techniques of EXAFS, SEXAFS, and XANES*”, New York, USA, John Wiley & Sons, Inc. (1988).
- [1-5] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/xray/epma/>.
- [1-6] 一般財団法人材料科学技術振興財団 HP, 2018年11月1日, 引用 URL: <https://www.mst.or.jp/method/tabid/148/Default.aspx>.
- [1-7] M. Matsubayashi, H. Masuzawa, “Application of neutron imaging to inspection of art objects and ancient artifacts”, *Radioisotopes*, 56, pp.763-775 (2007).
- [1-8] A. A. Qureshi, M. Akram, M. A. Khan, et al., “Boron determination in tourmaline by neutron induced radiography”, *Radiat. Meas.*, 34, pp.345-348 (2001).
- [1-9] 一般財団法人日本電気計測器工業会 HP, 2018年11月1日, 引用 URL: <https://www.jemima.or.jp/tech/6-04-02-04.html>.
- [1-10] S. Chhillar, R. Acharya, T. V. Vittal Rao, et al., “Non-destructive compositional analysis of sol-gel synthesized lithium titanate ( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ) by particle induced gamma-ray emission and instrumental neutron activation analysis”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 298, pp.1597-1603 (2013).
- [1-11] J. Riley, R. Lindstrom, “Determination of boron in borosilicate glass by neutron capture prompt gamma-ray activation analysis”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 109, pp.109-115 (1987).
- [1-12] J. E. Eberhardt, S. Rainey, R. J. Stevens, et al., “Fast neutron radiography scanner for the detection of contraband in air cargo containers”, *Appl. Radiat. Isot.*, 63, pp.179-188 (2005).
- [1-13] H. Rauch, D. Petrascheck, “*Dynamical neutron diffraction and its application*”, Berlin, Heidelberg, Springer-verlag (1978).
- [1-14] J. Daillant, A. Gibaud, “*X-ray and neutron reflectivity: principles and applications*”, Berlin, Heidelberg, Springer-verlag (2009).
- [1-15] W. Schmatz, T. Springer, J. Schelten, et al., “Neutron small-angle scattering: experimental

- techniques and applications”, *J. Appl. Cryst.*, 7, pp.96-116 (1974).
- [1-16] M. P. Falley, D. L. Anderson, W. H. Zoller, et al., “Neutron-capture prompt  $\gamma$ -ray activation analysis for multielement determination in complex samples”, *Anal. Chem.*, 51, pp.2209-2221 (1979).
- [1-17] C. Yonezawa, “Prompt  $\gamma$ -ray analysis of elements using cold and thermal reactor guided neutron beams”, *Anal. Sci.*, 9, pp.185-193 (1993).
- [1-18] T. Gnzani, “Novel applications of fast neutron interrogation method”, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, A353, pp.635-640 (1994).
- [1-19] M. A. Hickner, N. P. Siegel, K. S. Chen, et al., “In situ high-resolution neutron radiography of cross-sectional liquid water profiles in proton exchange membrane fuel cells”, *J. Electrochem. Soc.*, 155, pp.427-434 (2008).
- [1-20] M. Kanematsu, N. Tsuchiya, T. Noguchi, “Fundamental research on isotherm capillary absorption of concrete by neutron radiography”, *J. Struct. Constr. Eng.*, 78, pp.1339-1347 (2013).
- [1-21] M. Strobl, I. Manke, N. Kardjilov, et al., “Advances in neutron radiography and tomography”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 42, 243001 (2009).
- [1-22] G. Wichmann, A. Antognini, A. Eggenberger, et al., “Neutron radiography of a static density gradient of  $^3\text{He}$  gas at cryogenic temperature”, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, A814, pp.33-38 (2016).
- [1-23] H. Kobayashi, H. Wakao, Y. Ikeda, et al., “Macroscopic cross section measurements and defect detection in materials using neutron radiography technique”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 29, pp.1045-1053 (1992).
- [1-24] H. Kobayashi, “A correlated study between effective total macroscopic cross sections and effective energies for neutron beams with continuous spectra”, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, A424, pp.151-157 (1999).
- [1-25] R. Hassanein, E. Lehmann, P. Vontovel, “Methods of scattering corrections for quantitative neutron radiography”, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, A542, pp.353-360 (2005).
- [1-26] M. Zawisky, M. Basturk, R. Derntl, et al., “Non-destructive  $^{10}\text{B}$  analysis in neutron transmission experiments”, *Appl. Radiat. Isot.*, 61, pp.517-523 (2004).
- [1-27] R. Nshimirimana, M. Radebe, F. D. Beer, “Precision of porosity calculation from “material stopping power” using neutron radiography”, *Phys. Procedia*, 69, pp.358-365 (2015).
- [1-28] M. Kang, H. Z. Bilheux, S. Voisin, et al., “Water calibration measurements for neutron radiography: Application to water content quantification in porous media”, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, A708, pp.24-31 (2013).
- [1-29] F. Kharfi, M. Bastuerk, A. Boucenna, “Characterization of weak, fair and strong neutron absorbing materials by means of neutron transmission: Beam hardening effect”, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, A565, pp.416-422 (2006).

- [1-30] H. Sato, T. Kamiyama, Y. Kiyonagi, “A Rietveld-type analysis code for pulsed neutron Bragg-edge transmission imaging and quantitative evaluation of texture and microstructure of a welded  $\alpha$ -iron plate” Mater. Trans., 52, pp.1294-1302 (2011).
- [1-31] H. Sato, T. Kamiyama, Y. Kiyonagi, “Pulsed neutron imaging using resonance transmission spectroscopy”, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., A605, pp.36-39 (2009).
- [1-32] H. Hasemi, “Study on quantitative estimation of nuclide using pulsed neutron resonance absorption spectroscopy”, PhD thesis, Hokkaido University, Hokkaido, Japan (2015).
- [1-33] T. Kai, F. Maekawa, H. Oshita, et al., “Visibility estimation for neutron resonance absorption radiography using a pulsed neutron source”, Phys. Procedia, 43, pp.111-120 (2013).

## 2章の参考文献

- [2-1] 原子量表 (2018)、日本化学会 原子量専門委員会 (2018).
- [2-2] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, et al., “JENDL-4.0: A new library for nuclear science and engineering”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, pp.1-30 (2011).
- [2-3] Y. Kiyonagi, “Interaction between neutrons and matter”, Radioisotopes, 56, pp.211-217 (2007).
- [2-4] H. Sato, T. Kamiyama, K. Iwase, et al., “Pulsed neutron spectroscopic imaging for crystallographic texture and microstructure”, Nucl. Instrum. Meth. A, 651, pp.216-220 (2011).
- [2-5] H. Sato, T. Shinohara, R. Kiyonagi, et al., “Upgrade of Bragg edge analysis techniques of the RITS code for crystalline structural information imaging” Phys. Procedia, 43, pp.186-195 (2013).
- [2-6] H. Sato, T. Sato, Y. Shiota, et al., “Relation between Vickers hardness and Bragg-edge broadening in quenched steel rods observed by pulsed neutron transmission imaging”, Mater. Trans., 56, pp.1147-1152 (2015).
- [2-7] M. Furusaka, H. Sato, T. Kamiyama, et al., “Activity of Hokkaido University Neutron Source, HUNS”, Phys. Procedia 60, pp.167-174 (2014).
- [2-8] F. Sauli, “GEM: A new concept for electron amplification in gas detectors”, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., A386, pp.531-534 (1997).
- [2-9] S. Uno, T. Uchida, M. Sekimoto, et al., “Two-dimensional neutron detector with GEM and its applications”, Phys. Procedia, 26, pp.142-152 (2012).

## 3章の参考文献

- [3-1] Aomori Prefecture Quantum Science Center, cited 2018 Oct 4, Available from: <https://www.aomori-qsc.jp/en/>.
- [3-2] Y. Otake, “RIKEN compact neutron systems with fast and slow neutrons”, Plasma Fusion Res.,

13, 2401017 (2018).

- [3-3] S. Tasaki, T. Nagae, M. Hirose, et al., “Properties and possible applications of Kyoto University Accelerator based Neutron Source (KUANS)”, *Phys. Procedia*, 60, pp.181-185 (2014).
- [3-4] Y. Takahashi, Y. Kiyonagi, K. Watanabe, et al., “Development of a neutron source for imaging at the electron linac facility in Kyoto University Research Reactor Institute”, *Physica B*, 551, pp.488-491 (2018).
- [3-5] SHI-ATEX Co.,Ltd, cited 2018 Oct 4, Available from: <https://www.shi-atex.com>.
- [3-6] K. H. Beckurts, K. Wirtz, “Neutron Physics”, Berlin Heidelberg, Springer-verlag (1964).
- [3-7] N. Watanabe, “Outline of spallation neutron source engineering”, *JAERI-Review*, 2000-031 (2000).

#### 4章の参考文献

- [4-1] K. Oikawa, F. Maekawa, M. Harada, et al., “Design and application of NOBORU-NeutrOn Beam line for Observation and Research Use at J-PARC”, *Nucl. Instr. and Meth. A* 589, pp.310-317 (2008).
- [4-2] F. Maekawa, K. Oikawa, M. Harada, et al., “NOBORU: J-PARC BL10 for facility diagnostics and its possible extension to innovative instruments”, *Nucl. Instr. Meth. A* 600, pp.335-337 (2009).
- [4-3] T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, et al., “Particle and heavy ion transport code system PHITS, version 2.52”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 50, pp.913-923 (2013).

#### 付録 A の参考文献

- [A-1] A. W. Coats, J. P. Redfern, “*Thermogravimetric analysis*”, *Analyst*, 88, pp.906-924 (1963).
- [A-2] M. E. Brown, “*Introduction to thermal analysis*”, 2nd ed., New York, Boston, Dordrecht, London, Moscow, Kluwer Academic Publishers (2004).
- [A-3] H. M. McNair, J. M. Miller, “*Basic gas chromatography*”, 2nd ed., Hoboken, New Jersey, John Wiley & Sons, Inc. (2009).
- [A-4] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018年10月29日, 引用 URL: <https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/chromatograph/principle/>.
- [A-5] 大塚電子株式会社 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.otsukael.jp/weblearn/chapter/learnid/66/page/1/category1id/35>.
- [A-6] D. C. Harris, “*Quantitative chemical analysis*”, 7th ed., New York, W. H. Freeman and Company (2007).
- [A-7] K. Tanaka, H. Waki, Y. Ido, et. al., “*Protein and polymer analyses up to m/z 100000 by laser*

- ionization time-of-flight mass spectrometry*”, Rapid Commun. Mass Spectrom., 2, pp.151-153 (1988).
- [A-8] J. B. Fenn, M. Mann, C. K. Meng, et. al., “*Electrospray ionization for mass spectrometry of large biomolecules*”, Science, 246(4926), pp. 64-71 (1989).
- [A-9] R. F. K. Herzog, F. P. Viehboeck, “*Ion source for mass spectrography*”, Phys. Rev. 76(6), pp. 855-856 (1949).
- [A-10] T. W. Burgoyne, G. M. Hieftje, “*An introduction to ion optics for the mass spectrograph*”, Mass Spectrom. Rev., 15(4), pp.241-259 (1996).
- [A-11] H. Wollnik, “*Time-of-flight mass analyzer*”, Mass Spectrom. Rev., 12(2), pp.89-114 (1993).
- [A-12] R. E. March, “*Quadrupole ion trap mass spectrometry: a view at the turn of the century*”, Int. J. Mass Spectrom., 200, pp.285-312 (2000).
- [A-13] Q. Hu, R. J. Noll, H. Li, et al., “*The orbitrap: a new mass spectrometer*”, J. Mass Spectrom., 40, pp.430-443 (2005).
- [A-14] 株式会社島津 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.ssi.shimadzu.com/industry/environmental/icp-aes.html>.
- [A-15] B. Welz, M. Sperling, “*Atomic absorption spectrometry*”, 3rd completely revised ed., Weinheim, Germany, Wiley-VCH (1999).
- [A-16] 株式会社東レリサーチセンターHP, 2018年10月30日, 引用 URL: [http://www.toray-research.co.jp/technical-info/analysis/inorganic/ino\\_002.html](http://www.toray-research.co.jp/technical-info/analysis/inorganic/ino_002.html).
- [A-17] M. F. Mellon, “*Analytical absorption spectroscopy, absorptimetry and colorimetry*”, Appl. Spectrosc., 5(3), pp. 30-32 (1951).
- [A-18] 株式会社ティアンドティ HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <http://www.techtry.co.jp/bunkou/information/sikumi.html>.
- [A-19] ナノフォトン株式会社 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.nanophoton.jp/raman/>.
- [A-20] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/magneticresonance/nmr/>.
- [A-21] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2019年1月16日, 引用 URL: <https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/xray/foundation/>.
- [A-22] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/electronbeam/xps/>.
- [A-23] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: <https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/xray/xrd/>.
- [A-24] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018年10月30日, 引用 URL: [https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/xray/xrr\\_2/](https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/xray/xrr_2/).
- [A-25] 一般財団法人材料科学技術振興財団 HP, 2018年1月16日, 引用 URL:

- <https://www.mst.or.jp/method/tabid/142/Default.aspx>.
- [A-26] 一般財団法人日本分析機器工業会 HP, 2018 年 1 月 16 日, 引用 URL:  
<https://www.jaima.or.jp/jp/analytical/basic/electronbeam/aes/>.
- [A-27] 一般財団法人材料科学技術振興財団 HP, 2018 年 1 月 16 日, 引用 URL:  
<https://www.mst.or.jp/method/tabid/145/Default.aspx>.
- [A-28] 一般財団法人高度情報科学技術研究機構 HP, 2019 年 1 月 16 日, 引用 URL:  
[http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat\\_detail.php?Title\\_No=08-03-03-05](http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_No=08-03-03-05).
- [A-29] 一般財団法人材料科学技術振興財団 HP, 2018 年 1 月 16 日, 引用 URL:  
<https://www.mst.or.jp/method/tabid/169/Default.aspx>.
- [A-30] H. Sato, “Quantitative imaging of crystalline structure information by using a pulsed neutron transmission method”, PhD thesis, Hokkaido University, Hokkaido, Japan (2011).
- [A-31] M. Takeda, “Introduction to surface and interface structural analysis by neutron reflectometry”, *Radioisotopes*, 59, pp.675-692 (2010).
- [A-32] J. Suzuki, “Small-angle neutron scattering”, *J. Crystallogr. Soc. Jpn.*, 46, pp.381-389 (2004).

## 謝辞

本論文の研究を進めるにあたり、平成 29 年度から 30 年度の 2 年間に於いて、日本学術振興会の科学研究費補助金、特別研究員奨励費（研究課題名：ポテンシャル散乱エネルギー領域中性子による元素・核種イメージングの実現、課題番号：17J01054）による支援を受けました。また、日本学術振興会特別研究員制度による生活支援を受けました。特別研究員制度ならびに関係の皆様に対し、ここに感謝申し上げます。

本論文の執筆及び博士課程における研究活動にあたり、先生方からの長きにわたる指導、また多くの方々の協力を賜りました。ここに感謝を述べさせていただきます。

北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、中性子ビーム応用理工学研究室（当研究室）の准教授、また私の指導教官であります加美山隆先生には、長きにわたって多くのご指導を賜りました。まず、私の指導教官を引き受けて下さったこと、大変感謝しております。まだまだ至らない点の多かった私を、加美山先生が寛容な姿勢で受け入れて下さらなければ、ここまで来ることは出来ませんでした。また、お忙しい中でも、いつも研究の相談に乗って下さり、また研究指導をして下さり、ありがとうございました。先生の根気強い指導によって、ようやく学位を取得するまで成長することができたと思っております。至らぬ点ばかりの私を見捨てずに、最後まで指導して下さいました加美山先生への感謝の念が尽きることはありません。ここに深く感謝の意と敬意を表させていただきます。

当研究室ならびに、北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、量子ビーム材料工学研究室の教授である大沼正人先生には、加美山先生とは異なった視点からの指導を多く賜りました。解析手法だけでなく手法の応用先に関するアドバイスや、研究のアプローチ方法など、大局的な視点からの指導を多く頂きました。また、大沼先生の研究に対する姿勢や考え方は、私の中でいつも参考にさせて頂いておりましたし、研究以外の面での姿勢や考え方も、いつも感銘を受けておりました。今後も、大沼先生から教えて頂いたことを活かしていきたいと思っております。ここに深く感謝の意と敬意を表させていただきます。

北海道大学大学院工学研究院附属、エネルギー・マテリアル融合領域研究センター、量子エネルギー変換材料分野の柴山環樹教授、ならびに、北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門プラズマ理工学分野、プラズマ生体応用工学研究室の富岡智教授には、本論文の副査として、多くのご指導を賜りました。先生方からのアドバイスによって、論文の質をより高められたと思っております。ここに深く感謝の意と敬意を表させていただきます。

当研究室の助教である佐藤博隆先生には、加美山先生同様、長きにわたって本当にお世話になりました。佐藤先生からは、研究に対するスタンスや研究者としてあるべき思想等の大局的な部分から、グラフのレイアウトや研究のアピール方法といった細かい所まで、いつも丁寧な指導を賜りました。特に、学振に関しての指導を頂いた時には、佐藤先生に指導して頂いていなければきっと通すことが出来なかったと思うくらい、効果的な指導を頂きました。

た。また、佐藤先生は、私にとって兄貴分といった印象を持っておりまして、研究だけでなく精神的な面でも頼らせて頂いておりました。嬉しいときや辛いとき、また何もない時にも、佐藤先生はよく飲みを誘って下さり、相談や雑談をさせて頂きました。ここに深く感謝の意と敬意を表させて頂きます。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(JAEA)、J-PARC センターの甲斐哲也様には、J-PARC MLF 中性子利用セクションに特別研究員として受け入れて頂いた際の受入担当として、多くの指導を賜りました。また、特別研究員の期間が終了した後も、研究や論文執筆についての相談に乗って下さいました。甲斐様に的確なご指摘とご指示を頂くことで、少しずつではありますが、自分でもどのように研究を進めて行けばいいのかを、学ぶことが出来たと思っています。甲斐様の姿勢から学んだことは、これからも忘れずに意識していきたいと思っております。ここに深く感謝の意と敬意を表させて頂きます。

JAEA、J-PARC センターの篠原武尚様及び及川健一様には、J-PARC での実験準備や特別研究生として研究させて頂いた際に、多くのご指導賜りました。北大の中性子源とは異なる考え方を学ぶことが出来て、自らの視野を広げることが出来たと思っております。ここに深く感謝の意と敬意を表させて頂きます。

JAEA の瀬川真理子様、J-PARC センターの廣井孝介様、關義親様、ならびに、一般財団法人総合化学研究機構(CROSS)の林田洋寿様、J.D. パーカー様、松本吉弘様には、J-PARC で特別研究生として研究させて頂いた折に、研究相談をさせて頂きました。経験の足りない私でしたが、相談させて頂いたことによって、自分にはない考え方を知ることが出来ました。特に關様には、データ解析の件でお世話になりました。また、皆様には、私生活等でも親身に接して頂き、大変心強く思っておりました。ここに感謝の意と敬意を表させて頂きます。

(株)高田機械製作所の高田和幸様には、いつも実験に必要な物品の手配や作成を依頼させて頂きました。お忙しい所にも関わらず、親身になってご対応下さり誠にありがとうございました。高田様の協力が、実験の成功に繋がっていたと思っております。ここに深く感謝の意を表させて頂きます。

(株)アドバンスソフトの長谷美宏幸様には、研究面でも私的な面でも至らない所を多数指摘して頂きました。また、当研究室における博士課程の先輩として、様々な面で参考にさせて頂きました。ここに深く感謝の意と敬意を表させて頂きます。

北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、量子ビーム材料工学研究室の学術研究院(元北海道大学大学院工学研究院、瞬間強力パルス状放射線発生装置研究室の技術職員)である佐藤孝一様には、北大 LINAC で実験を行う際に多くのご指導を賜りました。ここに深く感謝の意を表させて頂きます。

北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、量子ビーム応用医工学研究室の博士研究員である上田英明様には、データ解析のためのプログラムについて、多くのアドバイスを頂きました。ここに深く感謝の意を表させて頂きます。

北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、量子ビーム材料

工学研究室の博士研究員である原かおる様には、実験の際に議論の相手になって頂いたり、先輩としてご指導して頂いたり、大変お世話になりました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、量子ビーム応用医工学研究室の助教である平賀富士夫先生には、発表練習の時等によくアドバイスを頂きました。ここに深く感謝の意を表させていただきます。

当研究室(旧量子ビームシステム工学研究室)のOB含む学生の皆様には、公私にわたり、大変お世話になりました。実験補助から研究室の運営、普段の生活まで様々な面で助けてもらいました。ここに感謝の意を表します。また、当研究室修士2年の浅子穰君には、J-PARCでの実験で非常に助けてもらいました。ここに深く感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院、量子理工学部門応用量子ビーム工学分野、量子ビーム材料工学研究室の学生の皆様には、普段の生活において、様々な面で助けてもらいました。雑談に行っても快く接してもらえて、本当に嬉しく思っていました。ここに感謝の意を表します。

最後に、ここまで支えてくれた両親に最大限の感謝を捧げさせていただきます。

2018年 2月15日

石川 裕卓