



HOKKAIDO UNIVERSITY

| | |
|------------------|---|
| Title | 中性子モノクロメータのための結晶処理について (I) |
| Author(s) | 大友, 詔雄; Otomo, Norio; 岩佐, 浩克 他 |
| Citation | 北海道大學工學部研究報告, 77, 121-126 |
| Issue Date | 1975-10-04 |
| Doc URL | https://hdl.handle.net/2115/41310 |
| Type | departmental bulletin paper |
| File Information | 77_121-126.pdf |



中性子モノクロメータのための 結晶処理について (I)

大友 詔雄* 岩佐 浩克* 井上 和彦*

(昭和 50 年 3 月 31 日受理)

Treatments of a Single Crystal for Neutron Monochromator with Hot Press Method (I)

Norio OTOMO* Hirokatsu IWASA* Kazuhiko INOUE*

(Received March 31, 1975)

Abstract

Since the luminosity of the pulsed neutron source with the electron linear accelerator is not so large, the increment of the reflectivity of a single crystal which is used for Bragg-reflection-type neutron spectrometer in time-of-flight experiments is necessary. This increment is achieved by treatments of a single crystal with hot press method. The conditions under which optimum reflectivity can be obtained was investigated in a germanium single crystal.

I. 序 言

加速器パルス状中性子源を用いた飛行時間中性子分光装置は、第二分光器の選らび方によって、エネルギー分解能及び感度にかかなりの影響がある。特に、パルス状中性子源の強度は十分に大きくないから、第二分光器の感度を高めて使うことが必要である。

第二分光器としては、フィルター・カウンタ型あるいは単結晶 Bragg 反射型が用いられているが、分解能の面から見れば後者が優れている。従って、第二分光器として、単結晶 Bragg 反射型を用いる場合、許された分解能の範囲で感度を最大にする工夫がいる。このために、大型の単結晶あるいは組み合わせた複数の単結晶を用いる試みが行なわれている。しかし、大型の単結晶は一般に分解能が低下するため、分解能を上げるには、曲率をもつ単結晶にしなければならず、実際に作られているが高価である。従って、感度を上げるための大型の Bragg 反射鏡は、単一の単結晶では実現が容易でなく、小単結晶によるタイル型反射鏡の方が製作は容易であり、はるかに安価である。この場合、もちろん、要素の小単結晶も許された分解能の範囲で最大感度にする必要があり、こうしたタイル型反射鏡では、感度とともに分解能も同時に改善することが出来る。

単結晶の Bragg 反射効率及びエネルギー分解能は、装置の幾何学的条件と、用いる単結晶の固有の中性子散乱断面積及び吸収係数、さらにはその微結晶の状態などの物理的条件によって決まるが、第二分光器として用いる単結晶は、一般の中性子回折に用いる単結晶とは違った考え

* 北海道大学工学部 原子工学科 放射線源工学講座

* Department of Atomic Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University.

方が必要である。即ち、中性子分光器に用いる単結晶には、次のような条件が必要である。第一に、単結晶は、完全に近ければ近いほど一次の消衰効果の影響が強く、又、完全ランダム微小モザイク構造では二次の消衰効果も無視出来ない。このため、あらかじめ単結晶に機械的あるいは熱的処理を行なって、一次の消衰効果が無視出来、且つ、二次の消衰効果の影響も小さい適切なモザイク構造をとる微結晶の状態を作り出すことが必要である^{1),2)}。従って、この様な処理が容易に行なえる単結晶物質であることが必要であり、この熱的処理からは融点の低いこと、機械的処理の面からは金属物質であることが条件の一つになる。第二に、中性子のエネルギー分析に際して、分析可能エネルギー領域が広くとれ、且つ高次散乱の混入が極力避けられることが望ましい。このためには、禁止された二次反射面をもつダイヤモンド構造単結晶を利用するのが好都合である。第三に、結晶固有の反射能の高い物質、即ち、干渉性散乱断面積が大きく、且つ、非干渉性散乱断面積及び吸収断面積が小さいことである。このような諸条件に合致する単結晶として珪素あるいはゲルマニウム単結晶が上げられる。この両者を比較した場合、いずれの点でもゲルマニウムが有利である。

共有結合結晶であるゲルマニウム単結晶は、高純度で高い完全度の単結晶として入手出来る。又、ゲルマニウムは、常温で安定で、空気や酸素及び水に影響を受けないすぐれた特性をもっている。一方、非常にもろく、容易にへき開し、室温では機械的変形に対し可塑的でなく、不可逆的変形を得るには折るか、500°C以上の高温にすることが必要である³⁾。このため、適当な可塑的変形を得るためのいくつかの研究がある。特に、ゲルマニウムの中性子回折強度を高める観点から、処理方法として、Barrettらは、650°Cで加圧し⁴⁾、Nicklowらは、850°Cで約67 kg/cm²で1分間加圧後、加圧状態のまま650°C以下に急冷する方法⁵⁾をとり、又、国富らもNicklowらと同じ方法を用いている⁶⁾。これらの例では最大感度を与える処理条件はそれぞれ異なり、又、得られた結果も大きく違っている。従って我々は、処理温度、圧力及び時間などの処理条件を変えて、ゲルマニウム単結晶の処理を行ない、最大感度を与える条件を求めた。この結果、900°C、400 kg/cm²で約30倍以上の反射強度の増加を得た。この結果は、先のいずれの例とも異っている。ただし、エネルギー分解能は約10数%である。

II. 単結晶の処理

ゲルマニウム単結晶：ゲルマニウム単結晶は、日本電子金属社において帯熔融法によって作られた真性半導体結晶で、不純物濃度は10¹⁴個/cm³の高純度で、且つ、転位は1 cm²当たり1,000~2,000の完全結晶である。これを、(111)面の面積1 cm²、厚さ5 mmの直方体にワイヤー・カッターで切り出した。(111)面と切断面との傾きは±0.5°以内であった。

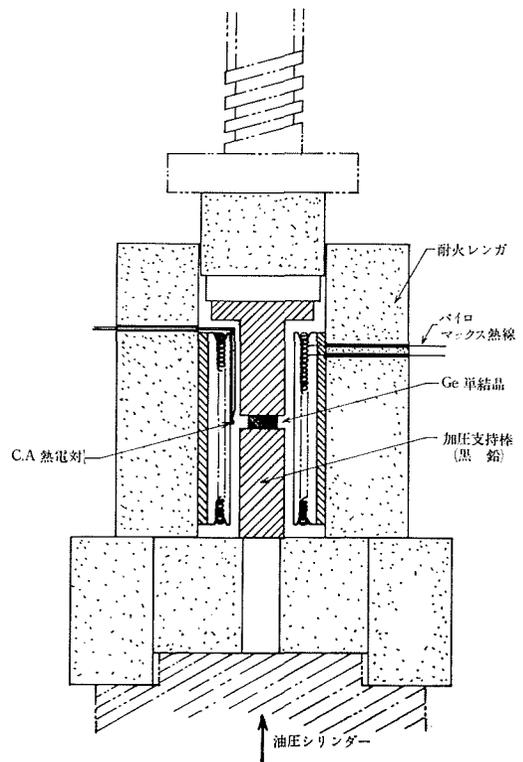


図1 加熱加圧処理用電気炉

電気炉及び加圧機： 前述のように、ゲルマニウム単結晶に可塑的変形を得るには、単結晶を加熱し、高温状態で圧力を加えることが必要である。一般に、 $1,000^{\circ}\text{C}$ 以下の小型の炉の熱遮蔽は容易であるから、このために用いる電気炉は、適当な耐火・保温材を用いた比較的簡易な構造で作ることが可能であり、同時に加圧を行なえる図1に示す構造にした。この電気炉は、内径6 cmで、この中心部が約5 cmにわたって所定の温度平衡に保持される。ゲルマニウム単結晶は、この中央にセットされ、その中心位置とその上下1 cmの位置の側壁に設けてあるアルメルクロメル熱電対によって温度測定を行なっている。発熱体としてはパイロマックス線を用い、これに流れる電流を調節し、 900°C で $\pm 5^{\circ}\text{C}$ の範囲で温度制御を行なった。ゲルマニウム単結晶への加圧は、単結晶を黒鉛棒で上下からはさみ、圧縮試験機*によって荷重を加えて行なった。

処理方法： ゲルマニウム単結晶を室温から徐々に加熱し、ほぼ一定時間で所定の温度点に平衡を保った状態で、(111)面に垂直方向に一定時間加圧し、その後圧力をそのままに保ち、約 650°C まで急冷し、圧力をとり除いた。温度は、800, 850, 900°C の3点、圧力は、 100 kg/cm^2 から 100 kg/cm^2 毎に 600 kg/cm^2 まで6点、加圧時間は、30, 60, 300秒の3点をとった。

ゲルマニウムは $600\sim 700^{\circ}\text{C}$ になると、空気中での酸化が急激に早くなり、 900°C ではゲルマニウムの融点に近く、揮発も少くなく起こる。このため、加熱に際しては、出来る限り短時間に所定の温度平衡に達し、すみやかに処理を行なわなければならない。又、圧力を加える際単結晶表面と黒鉛との接触面の粗さによって、単結晶内部への歪に差が生じ、これが処理条件と最大感度の再現性を低くするから十分注意する必要がある。

III. 反射強度と分解能

反射強度は、北大45 MeV大型電子線型加速器冷中性子源を用い、図2の配置の飛行路及びゴニオメータによって、 $2\theta=70^{\circ}$ に反射される中性子を飛行時間分析法によって測定した。飛行路長は5.5 m、多重時間分析装置のチャンネル幅は $20\ \mu\text{s}$ である。(111)面からの反射ピークは、図3に示すように、エネルギー 0.006 eV で、巨大なパルスとして観測される。この例では、測定時間はわずか70秒である。同じ測定時間では、未処理の完全単結晶からの回折ピークは、エネルギー分解能は高いが、強度はバックグラウンド以下である。チャンネルの若い領域で測定値がかなりバラついてはいるが、これは(111)面に対する高次反射と、周囲からの迷中性子によるバックグラウンドであり、バックグラウンド中性子を除けば高次反射ピークが明瞭に観測される。

ゲルマニウム単結晶の結晶構造は、序言で述べたように、ダイヤモンド型であるから、(111)面反射に対する(222)面反射は禁止されていて、これがゲ

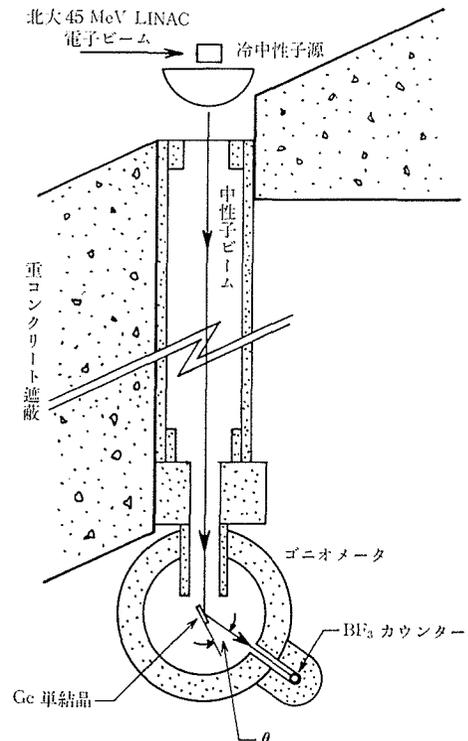


図2 北大45 MeV大型電子線型加速器冷中性子源を用いた飛行時間実験装置の飛行路及びゴニオメータの配置

* 本試験機は、北海道大学工学部資源開発工学科岩石力学研究室に設置されている20トン圧縮機をお借りして使用した。

ルマニウム単結晶を Bragg 反射型分光器に用いる一つの理由であったが、加熱・加圧処理によって、ゲルマニウム結晶内の微結晶生成過程に生ずる歪によって、(222)面反射の禁制が破れ、原子構造因子が零でなくなり、(111)面反射に対する半波長成分が認められるようになる。しかし、図3に見るように、我々の処理では十分無視出来る程小さく、モザイク粒内の歪は小さいことがわかる。

図4に、ゲルマニウム単結晶(111)面反射強度の圧力をパラメータとした温度による変化を示し、図5に、温度をパラメータとした圧力による変化を示す。黒点は、反射強度のピーク値であり、白点は、積分反射強度である。ここでは、積分強度として回折パルスの半値幅内の中性子数をとった。圧力一定で温度を変えた場合、温度の上昇とともに強度の増大が見られるが、ゲルマニウムでは900°Cが上限である。一方温度一定で、圧力を変えた場合は、400 kg/cm²位までは、反射強度のピーク値は、ほぼ直線的に増大しているが、それ以上の圧力では逆に減少する。ところが、積分強度は、減少することなく増加を続けている。このことは、加圧によって結晶内のモザイク粒の形成が、圧力の増加とともに進行し、モザイク粒相互の傾きも増し、Bragg条件を満たすエネルギー領域に広がりが出たことを示すものである。そして、最大積分感度を与える圧力はさらに大きいと推定されるが、ある圧力を越えると、当然、感度の増大は見られなくなるはずである。実際上は、圧力が大きくなると分解能も同時に広がってしまうから、むしろこの分解能の面から圧力の上限が決まる。400 kg/cm²の圧力での処理によるモザイクの広がりによる分解能は数%になるから、この圧力がほぼ上限になる。

加圧時間の長さも、モザイク形成の一つのパラメータである。この点について、900°C、400 kg/cm²について、加圧時間を30、60、300秒の3種類に変えて処理を行った後、回折強度を測定したが、明瞭な差は観測されなかった。ところが一度処理

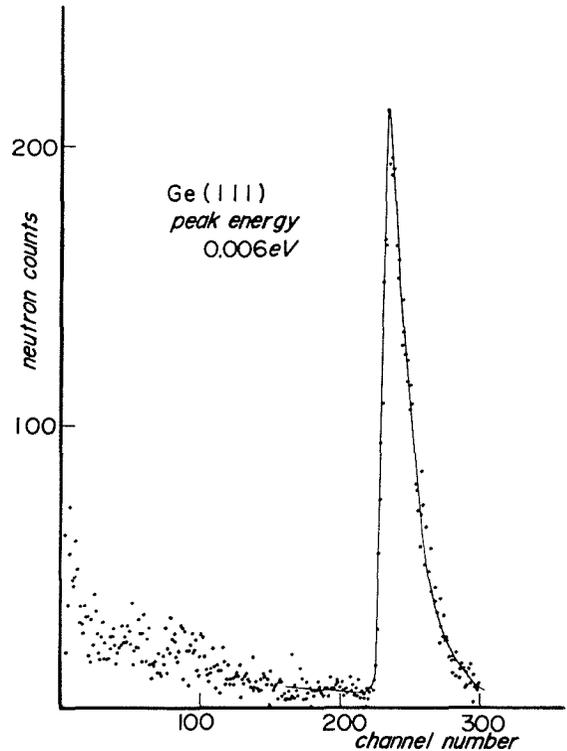


図3 処理されたゲルマニウム単結晶の(111)面から反射された中性子パルス

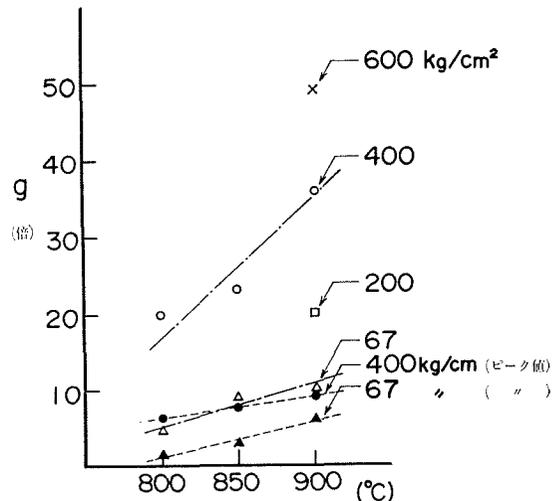


図4 ゲルマニウム単結晶(111)面反射強度の圧力をパラメータとした温度による変化

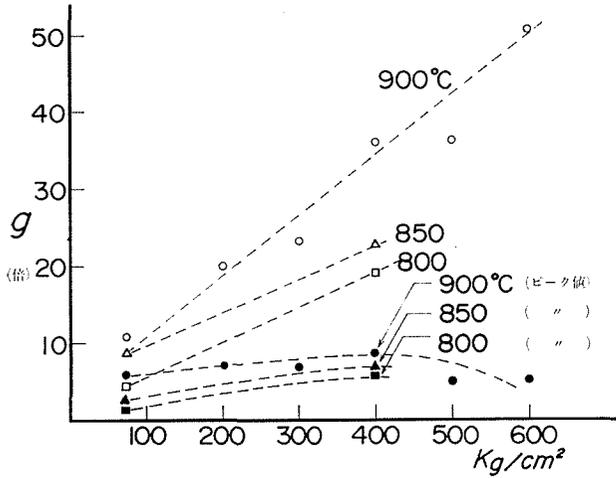


図 5 ゲルマニウム単結晶 (111) 面反射強度の温度をパラメータとした圧力による変化

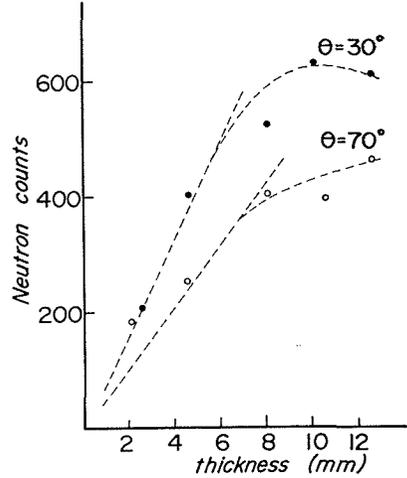


図 6 単結晶の厚さを変えた場合の反射強度の変化

を行なった単結晶を、再度同じ条件で処理を繰返したところ、回折ピーク強度は、約 3 割減少した。単結晶内のモザイク構造の形成状況と、加圧時間との関係を説明するには、さらに精密な測定を行なう必要がある。

図 6 に、単結晶の厚さを変えた場合の反射強度の変化を示す。単結晶の反射強度は、一般に消衰効果及び吸収が無視出来れば、単結晶の厚さに比例する。従って、 $\theta=30^\circ$ について、ほぼ 1 cm 迄比例関係を保っている。しかし、1 cm を越えると飽和している。又、 $\theta=70^\circ$ では、この傾向はさらに単結晶が薄くて現われている。このことから、単結晶の厚さを変えていくと、ある厚さを越すと、逆に中性子に対する自己遮蔽によって感度の増加は見られなくなることがわかる。従って、ゲルマニウム単結晶の厚さは 1 cm が適当である。

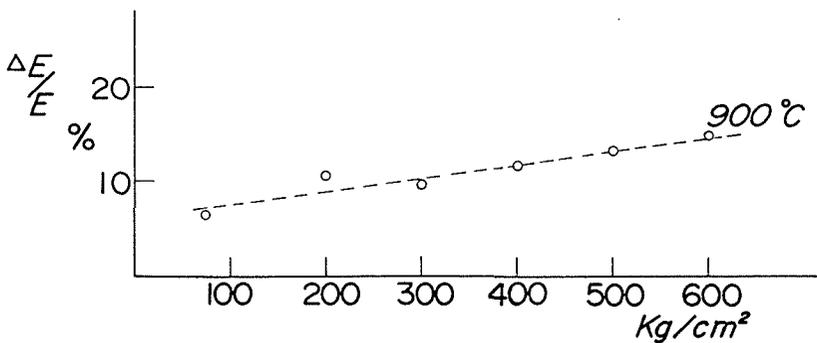


図 7 ゲルマニウム (111) 面反射のエネルギー分解能 $\Delta E/E$ の加圧による変化

図 7 に、温度をパラメータとした加圧によるゲルマニウム (111) 面の反射のエネルギー分解能 $\Delta E/E$ の変化を示す。 ΔE は、回折パルスの半値幅に相当するエネルギー幅である。900°C では、400 kg/cm² の圧力で、 $\Delta E/E$ は約 12%，600 kg/cm² で約 15% である。回折パルスは、立ち上り時間が約 30 μ S，減衰時間が約 150 μ S で、前者はほぼ体系の幾何学的配置によるコリメーションのエネルギー分解能に対応し、後者はパルス状冷中性子源の平均放出時間による分解能に

対応している。図2の実験系のコリメーションによる中性子の広がり約 0.7° であり、パルス状冷中性子源のパルスの時間的広がり約 $120\ \mu\text{S}$ である。これらによるエネルギー分解能を考慮して、ゲルマニウム単結晶の処理によるモザイクの広がり約 $1\sim 3^\circ$ である。

IV. 議論と結言

Bragg 反射型中性子分光器に用いる最適なゲルマニウム単結晶を作り出す処理条件は、 900°C で $400\ \text{kg}/\text{cm}^2$ の荷重を1分間加え、荷重を加えたまま 650°C 以下に急冷することである。これによって、(111) 面反射強度を約30倍以上に増大させることが出来る。このときのモザイクの広がりによる分解能は数%以内になる。

ゲルマニウム単結晶の加熱・加圧処理によって、ある処理条件では、(111) 面反射に対する二次反射である (222) 面反射が現われる。この反射は、分光器の測定可能なエネルギー範囲を決めるものである。従ってこの (222) 面反射を出さない処理条件で処理を行なうことが大切である。又、仮に、(222) 面反射が生じたとしても、この反射を実質的にバックグラウンド程度に低くめて分光器に使用する方法をとらなければならない。これらについての検討を現在行なっている。

ゲルマニウム単結晶は高価であるから、使用する単結晶の厚さと最大感度との関係も重要であり、約1cmの厚さが最適である。

V. 謝 辞

本研究におけるゲルマニウム単結晶の加圧処理のために、圧縮試験機の使用に関して、多大の便宜を計っていただいた、北海道大学工学部資源開発工学科岩石力学研究室・木下重教授および佐藤一彦助手に深く感謝します。又、単結晶の切断器を借していただいた、北海道大学工学部原子工学科量子計測研究室・阿部寛教授に深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) Bacon, G. E.: Neutron Diffraction, Oxford Press (1955).
- 2) 星埜禎男: 新物理学進歩シリーズ 5, 中性子回折 64 (1961).
- 3) Alexander, H. and Haasen, P.: Solid State Physics, 22, Academic Press, 45 (1968).
- 4) Barret, C. S., Mueller, M. H. and Heaton, L.: The Review of Scientific Instruments, Vol. 34, No. 8, 847 (1963).
- 5) Wilkinson, M. K.: Private Communication.
- 6) 国富信彦等: 大阪大学工学部研究報告.