HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	複合結晶型飛行時間中性子分光装置の感度と分解能
Author(s)	井上, 和彦
Citation	北海道大學工學部研究報告, 78, 99-106
Issue Date	1976-02-16
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41329
Type	departmental bulletin paper
File Information	78_99-106.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

北海道大学工学部研究報告
第78号（昭和51年）

Bulletin of the Faculty of Engineering,
Hokkaido University, No. 78 (1976)

複合結晶型飛行時間中性子分光装置の感度と分解能

井上和彦*

（昭和50年6月30日受理）

Resolution and Efficiency of Composite-crystal Time-of-flight Neutron Spectrometer

Kazuhiko INOUE

(Received June 30, 1975)

Abstract

To the optimum design of time-of-flight neutron spectrometer using a pulsed neutron source, it is necessary to estimate the resolution and the efficiency of the second neutron energy analysing system. This paper describes the results of calculations for the resolution and the efficiency of analysing single crystal, which is used for a Bragg reflecting-mirror type composite-crystal neutron monochromator.

1. 序　　言

水素原子の中性子 incoherent 散乱断面積は他の原子に比べて著しく大きい。このために，水素原子を多く含む低分子や高分子あるいは生体分子の運動を調べるために中性子散乱は適切な手段となる[1]。水素原子の運動に対する感度が高く，光学的方法におけるような選択則が中性子にはないので，光学的な分光に対する相補的な分光手段として中性子散乱を利用することができる。中性子分光装置としては，中性子源およびエネルギー分析方法の組み合わせ方で，種々の方式が考えられ，また試みられている。

電子 LINAC をパルス状中性子源として，単結晶および多結晶をエネルギー単色化に併用する方式の飛行時間中性子分光装置は incoherent 散乱による downscattering 中性子のエネルギー分析に適している。第2エネルギー分析に単結晶あるいは多結晶を独立に使用する方式はすでにいくつも試みられている。北大 45 MeV LINAC においても，多結晶による予備的な分光装置によりパルス状中性子源の強度のチェックや，その他の設計データを集めてきた[2]。しかし，これらの方式ではそれぞれ結晶の大きさや高次反射による困難あるいは多結晶フィルターの低分解能の困難などがある。しかし，これらの方式はそれぞれ利点を備えている。本論文では，これらを併用して両方の特長を生かし，両方の欠点を相殺させることを目的とした複合結晶型飛行時間中性子分光装置の概念設計を示し，この方式の感度と分解能の評価について述べる。

* 工学部原子工学科　放射線源工学講座

2. 単結晶単色器と高次反射

飛行時間による中性子のエネルギー分析に加えて，第2分析器に単結晶を併用して散乱中性子のエネルギー変化を測る方式の分光器はすでに実用になっているが，いくつかの問題点がある。まず，高感度を得るための大口径の曲率反射面を有する単結晶を作ることは困難なことである。この点については，小さい単結晶片を並べてほぼ解決できるし，またその試みはすでになされている[3]。次の問題点は，高次 Bragg 反射による測定エネルギーの制限である。この二点について若干の検討を行なう。

組み合わせ単結晶反射鏡

小さい単結晶片を多数個並べて，大きな口径の中性子エネルギー単色化用反射鏡を作ることには機構的には本質的な困難はない。むしろ多くの多様性があり，目的に最も適した反射鏡曲面を決定し，多くの相反する条件の調和点を選ぶことが重要である。

(i) 感度をあげるには大口径反射鏡が必要である。

(ii) 大口径反射鏡では，一般に中性子散乱角の幅が広くなり，散乱角の情報があいまいになる。

(iii) 被検出中性子の飛行時間を揃えることが必要である。大口径反射鏡では，曲面の形と散乱試料および検出器の位置と寸法の最適条件は何か。

(iv) 各単結晶の正しい位置と向きの設定と固定の適切な方法の工夫が必要であり，大口径になるほど，あるいは結晶が小さいほど簡単ではない。一般的に言って，結晶片が小さいほど感度は上昇するが，機構が繁雑になる。また，単結晶片の形状と向きにも多様な方式が考えられる。

高 次 反 射

ある結晶面によって反射される中性子の波長 λ と反射角 θ は Bragg の条件

$$n\lambda = 2d \sin\theta \qquad (1)$$

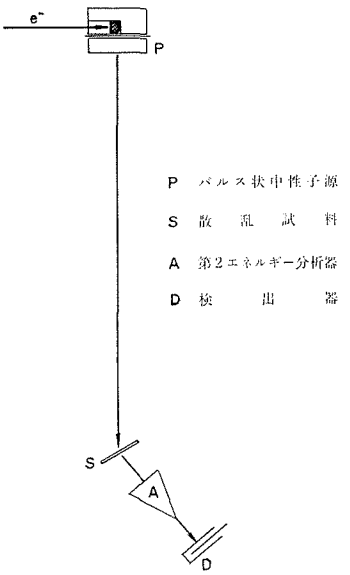

図 1 パルス状中性子源飛行時間中性子分光装置の配置図

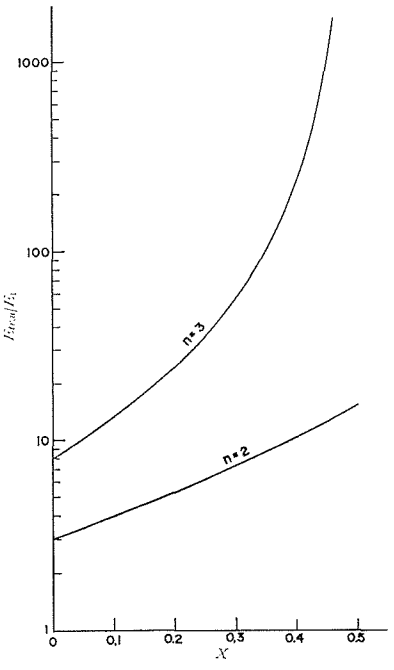

図 2 高次反射による分析エネルギーの上限

で決まる。ここで，nは1以上の整数，dは結晶面間距離である。(1)式より$n=1$の基本反射エネルギーE_1に対して，$4E_1$, $9E_1$, $16E_1$,…の高次反射が起こる。

図1に飛行時間，第2エネルギー分析型分光装置の原理図を示す。Aは第2エネルギー分析器を表わすが，散乱試料Sでdownscatteringにより被検出エネルギーE_1になった中性子が検出器Dに達する時刻に，高速の高次反射中性子がAで反射されて追い付いて検出されることが可能になる。高次反射中性子が追い付くと，本来のエネルギー分析は不可能になる。この現象のために分析し得るエネルギー変化量に上限が現われる。n次の反射によるこの上限の値$E_{tr,u}$とE_1の比は次式で与えられる。

$$\left[\frac{E_{tr,u}}{E_1}\right]_n = \frac{n^2}{\{1-(n-1)x\}^2} - 1 \qquad (2)$$

ここで，$x=l_2/l_1$, l_1は中性子源から散乱試料までの飛行距離，l_2は散乱試料から検出器までの飛行距離である。図2に$n=2$と$n=3$の場合を示す。

xを増せば$E_{tr,u}$は増加するが，l_2が増大して分解能および感度とも低下を招く。また$n=2$に対しては，はなばなしく$E_{tr,u}$が小さくて不都合である。許された反射の指数$h+k+l=4$または$4n\pm1$のダイヤモンド構造の結晶であるGeあるいはSiがしばしば利用される理由の一つがこれであり，例えば(111)反射は存在するが(222)は反射されない。しかし，後述のように感度を上げるために結晶のモザイク広がりを大きくすると(222)反射が出現することが報告されている。仮に，$n=2$が出現しない単結晶を用いても，$n\geq3$反射は不可避的である。

dowdscattering方式の分光では，$n=3$反射を引き起こす中性子スペクトルは一般に大きな中性子束強度であり，これが大きな弾性散乱断面積によって大きな強度で単結晶に入射して反射・検出される。またl_2を大きくするものも望ましくない。したがって，$n=2$以上の高次反射がいずれにせよ検出器に完全に入らないようにすることが望ましい。本論文の方式ではこの高次反射中性子の除去のために，多結晶フィルターを第2エネルギー分析器としてではなく，本来のフィルターとして利用し，さらに分解能の向上に活用する。

3. 多結晶フィルターと透過特性

飛行時間エネルギー分析に追加する第2エネルギー分析器に多結晶フィルターを利用する方式も実用になっているが，このフィルター法の最大の欠点は分解能が劣ることである。図3にフィルターとしてしばしば利用されるベリリウムと黒鉛の全断面積を示す。これらのフィルターでは，切断エネルギー以下の断面積を小さくして，透過率を向上させるために，冷却して使用しなければならない。図4に冷却した黒鉛の透過スペクトルの測定例を示す。

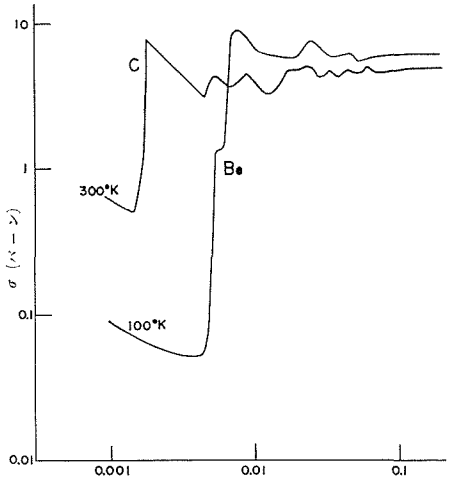

図3　ベリリウムおよび黒鉛の全断面積

多結晶フィルターは，図4に示すように透過中性子のエネネギー幅が大きすぎて，分光装置全体のエネルギー分解能が10～20%程度になる。ただし，単結晶のような高次反射の問題は全くない。また，図3の断面積の特性あるいは図4からもわかるように，透過率カーブの高エネルギー側は比較的鋭く立ち上る。

以上のように，多結晶フィルターは第2エネルギー分析器として満足できる特性を有してい

ないが，前章の単結晶反射鏡と組み合わせれば，後者の高次反射の問題を解消し，次章で述べるようにさらに両者のエネルギー特性を適当に整合することによって，第2エネルギー分析器の分解能を改良する可能性がある。

4. 複合結晶型飛行時間中性子分光装置

前章までに論じた事柄から，単結晶と多結晶の特性を組み合わせた第2エネルギー分析器の考えが出てくる。この方式の原理図を図5に示す。この方式では，まず大きな口径の単結晶反射鏡で l_2 を短かくして，散乱試料を見込む立体角を大きくとって感度を向上させる。次に l_2 の短縮による多くの高次反射の混入は多結晶フィルターで除く。さらに，反射鏡とフィルターのエネルギー特性を図5bに示すように整合させることによって，感度を低下させずに分解能を向上させる。この最後の考えは，すでにチョッパーと組み合わせて Harwell で採用されている[4]。

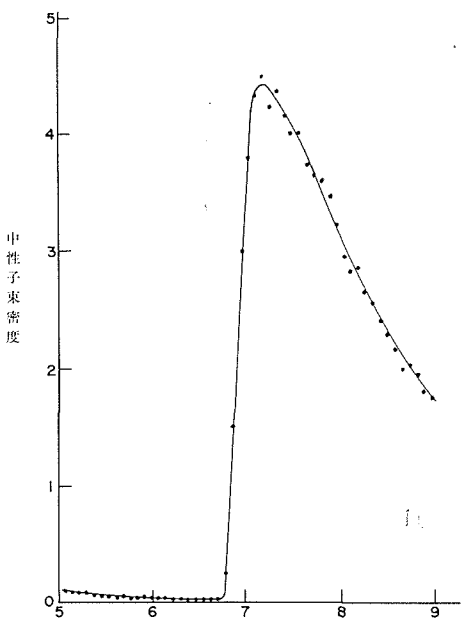

図4 ベリリウムフイルターの透過スペクトル

多結晶フィルターのエネルギー特性を操作することは不可能であるが，単結晶反射鏡のエネルギー特性と分解能特性は設計によって大幅に変化する。このために，単結晶のモザイク広がり，寸法形状，Bragg 角，散乱試料と検出器の寸法がどのように感度と分解能に影響するかを調べる必要がある。

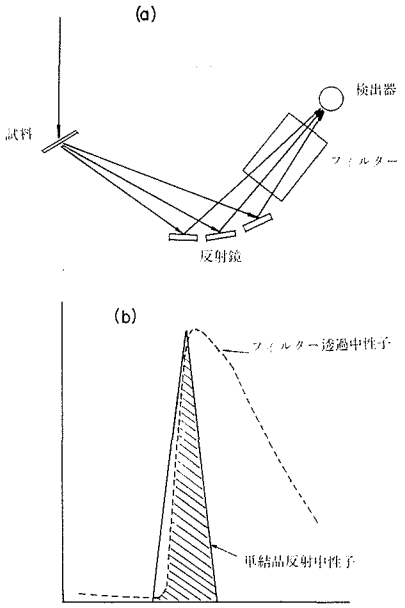

図5 複合結晶型飛行時間中性子分光装置の概念図

5. 感度と分解能

簡単のために，散乱試料から単結晶までの距離と単結晶から検出器までの距離は等しく L としておく。また単結晶から散乱試料を見る開き角および検出器を見る開き角をそれぞれ図6に示すように α と β とする。図6では反射鏡の一つの単結晶のみを示しており，その幅を W としておく。また単結晶のモザイク広がりを φ，Bragg 反射角の中心値を θ_0 とする。この場合には，被検出中性子のエネルギー分布を調べるためには，θ_0 からの変化分 $\Delta\theta=\theta-\theta_0$ の函数としての相対中性子強度を表わす感度・分解能函数 $F(\Delta\theta)$ を求めればよい。若干の近似を用いて $F(\Delta\theta)$ は次式で計算される。

$$F(\Delta\theta)=k\int_{-\frac{W}{2}}^{\frac{W}{2}}d\omega\int_{-\frac{\alpha}{2}}^{\frac{\alpha}{2}}dx\,\frac{(\phi/2)^2}{\delta^2-(\phi/2)^2}\,\varepsilon(y) \qquad (3)$$

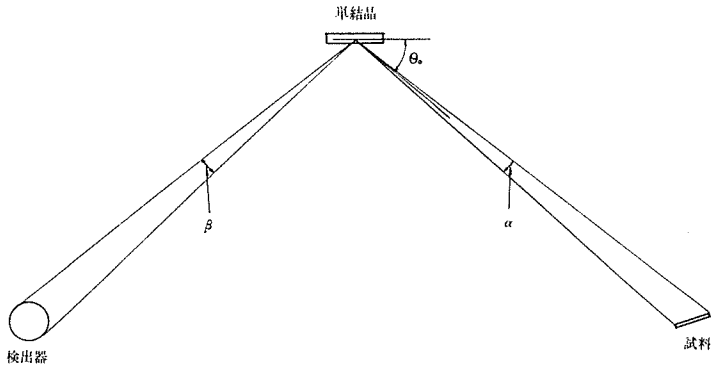

図 6　単結晶，試料，検出器の幅

ここで

$$\delta = x - \Delta\theta - \frac{\omega \sin\theta_0}{L} \tag{4}$$

$$\varepsilon(y) = \begin{cases} 1 & -\frac{\beta}{2} \leqslant y \leqslant \frac{\beta}{2} \\ 0 & y < -\frac{\beta}{2}, \quad y > \frac{\beta}{2} \end{cases} \tag{5}$$

$$y = x - 2\Delta\theta \tag{6}$$

であり，k は単結晶の寸法や反射率，入射中性子強度などに関連した係数である。なお，モザイク広がり分布函数は Lorentz 型を仮定した。

(3) 式の積分は容易に実行されて，次式が得られる。

$-\frac{\alpha+\beta}{4} \leq \Delta\theta \leq \frac{\alpha+\beta}{4}$ に対して：

$$F(\Delta\theta) = \frac{kL\phi^2}{4\sin\theta_0}\left\{g(R_{+u}) - g(R_{-u}) - g(R_{+l}) + g(R_{-l})\right\} \tag{7}$$

$\Delta\theta < -\frac{\alpha+\beta}{4}$，$\Delta\theta > \frac{\alpha+\beta}{4}$ に対して：

$$F(\Delta\theta) = 0 \tag{8}$$

ここで

$$g(R) = R\tan^{-1}R - \frac{1}{2}\ln(1+R^2) \tag{9}$$

$$R_{\pm u} = \frac{x_u - \Delta\theta}{(\phi/2)} \pm \frac{W\sin\theta_0}{L\phi} \tag{10}$$

$$R_{\pm l} = \frac{x_l - \Delta\theta}{(\phi/2)} \pm \frac{W\sin\theta_0}{L\phi} \tag{11}$$

$$x_u - \Delta\theta = \begin{cases} \frac{\alpha}{2} - \Delta\theta & \frac{\alpha-\beta}{4} \leqslant \Delta\theta \leqslant \frac{\alpha+\beta}{4} \\ \frac{\beta}{2} + \Delta\theta & -\frac{\alpha+\beta}{4} \leqslant \Delta\theta < \frac{\alpha-\beta}{4} \end{cases} \tag{12}$$

$$x_l-\Delta\theta=\begin{cases}-\dfrac{\beta}{2}+\Delta\theta & \dfrac{\beta-\alpha}{4}\leqq\Delta\theta\leqq\dfrac{\alpha+\beta}{4}\\ -\dfrac{\alpha}{2}+\Delta\theta & -\dfrac{\alpha+\beta}{4}\leqq\Delta\theta<\dfrac{\beta-\alpha}{4}\end{cases}\tag{13}$$

である。

散乱試料が縦長であり，試料中心，単結晶中心，検出器中心を含む面に対して γ だけ傾いた面内に中性子飛行路がずれた場合の Bragg 角 θ_0 の変化は次式で与えられる。

$$\Delta\theta=\cot^{-1}(\sqrt{\cot^2\theta_0+\tan^2\gamma})-\theta_0\tag{14}$$

γ が小さく，かつ $\cot\theta_0$ が小さくない場合の近似式は

$$|\Delta\theta_0|\doteqdot\frac{90}{\pi}\tan\theta_0\sin^2\theta_0\tan^2\gamma\tag{15}$$

である。(15) 式の $|\Delta\theta_0|$ の単位は度である。

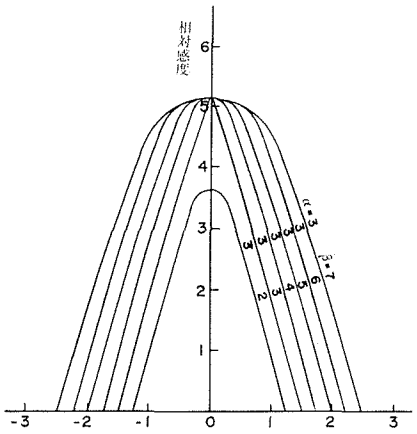

図 7　単結晶幅 2.5 cm における反射中性子の分解能と相対感度

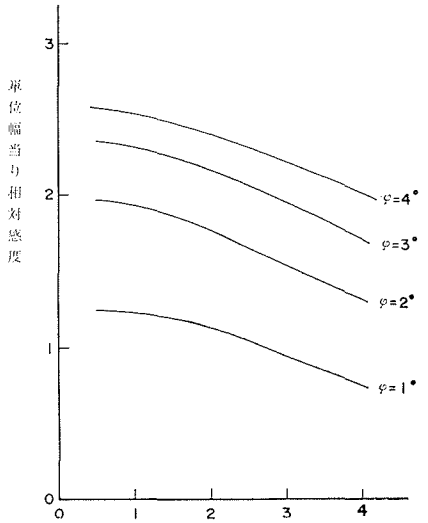

図 9　単結晶幅に対する単位幅当りの相対感度

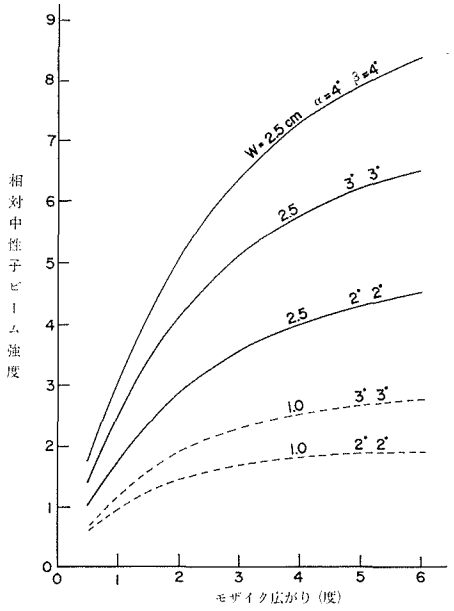

図 8　モザイク広がりに対する感度の変化

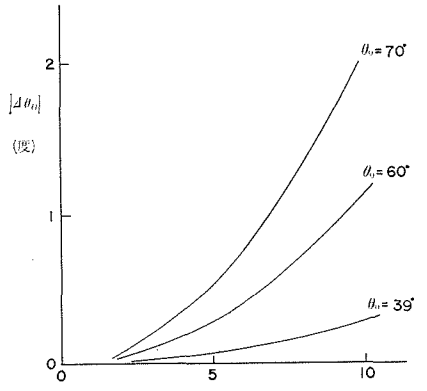

図 10　試料縦方向広がりの影響

図7に θ_0 が 39° と 75° の場合の $F(\Delta\theta)$ の例を示す。モザイク広がり φ, 単結晶幅 W, α と β などの影響を $F(\Delta\theta)$ の形はうけるが, α と β の影響のうけかたが最も大きい。α と β の場合には $F(\Delta\theta)$ の形はほぼ三角の楔形となり, α または β のいずれかが他方より大きくなるとピークの頂上が平坦になる。また, そのピークの高さは, α と β のうちで小さい方のものに等しい同じ α と β の値の $F(\Delta\theta)$ のピークと同じである。したがって, あるピーク値に対して, 半値幅を最小にするには $\alpha=\beta$ とすればよい。

図8には, $\alpha=\beta$ の場合について, モザイク広がりによって $F(\Delta\theta)$ のピーク値がどのように変わるかを示す。図8のカーブは $W=1$ cm と $W=2.5$ cm の場合を示すが, 図9には, さらにこのピーク値について, その単位幅当たりの値が W によってどのように変化するかを示す。これらの結果から, φ は大きい程有利であり, かつ分解能には影響しないことがわかる。また, W は原理的には小さい方が単位幅当たりの感度が大きく, W と試料幅あるいは検出器幅が同程度なら W は分解能にあまり影響しない。

図10には, 試料の縦方向の長さが Bragg 角をどのように変化させるかを示す。θ_0 が小さい場合には θ_0 の変化は小さい。θ_0 が大きくなり, 約 40° を越してくると, θ_0 の変化量は γ の増大とともに急速に増加する。したがって, 後方反射の場合ほど, 試料の縦方向長さの影響が大きい。ただし, この場合には分解能に $\cot\theta_0$ の因子が掛るためにずれの程度は軽減される。

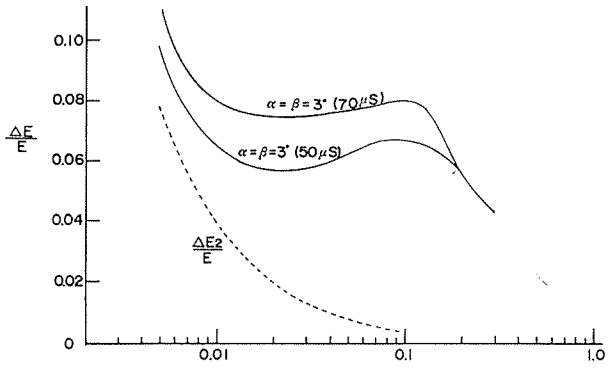

図11　総合分解能

図11には, $l_1=6$ m, $l_2=0.5$ m, $\theta_0=39°$ とし, $\alpha=\beta$ が 3° の場合の総合分解能の計算値を示す。中性子源の平均放出時間のエネルギー依存は軽水型を仮定して, 低エネルギーで 50～70 μS にとっている。なお, フィルターの分解能への寄与は考慮されていない。

6.　散乱中性子時間スペクトルの計算

この方式の分光装置における散乱中性子の時間スペクトルを次式によって計算することができる。

$$N(t)=\int d\tau_1\int d\tau_2\, J(\tau_1, t-\tau_2)\,\sigma(\tau_1\to\tau_2, \theta)\,\varepsilon(\tau_2-\tau_d) \tag{16}$$

ここで各記号の意味は次の通りである。

$N(t)$	時刻 t に検出される中性子スペクトル
τ_1	入射中性子の飛行時間
τ_2	被検出中性子の飛行時間
τ_d	標準 Bragg 角の中性子飛行時間
t_1	入射中性子が試料に到着する時刻
$J(\tau_1, t_1)$	入射中性子スペクトル
$\varepsilon(\tau_2-\tau_d)$	第2分析器分解能函数
$\sigma(\tau_1\to\tau_2, \theta)$	微分散乱断面積

微分散乱断面積が δ 函数型の場合には，(16) 式は次のように書き換えられる。

$$N(t)=\int d\tau_1 \frac{m_0 l_1^2}{\tau_1^3} J(\tau_1,\ t-\hat{\tau}_2)\,\varepsilon(\hat{\tau}_2-\tau_d) \tag{17}$$

$$\hat{\tau}_2=\frac{l_2}{\left\{\left(\frac{l_1}{\tau_1}\right)^2-\frac{2\hbar\omega}{m_0}\right\}^{1/2}} \tag{18}$$

ここで，m_0 は中性子質量，$\hbar\omega$ は分子の固有エネルギーである。

7. 結　　言

以上で示した設計理念，計算式，あるいは計算例によって，単結晶と多結晶を組み合わせて第2エネルギー分析器とする中性子飛行時間分光装置の感度と分解能の相関について定性的にも定量的にも容易に理解することができるようになった。具体的な感度の値については，入射中性子スペクトル強度と単結晶片の反射率の値がわかれば計算することができる。

参 考 文 献

1) H. Boutin, S. Yip: Moleclar Spectroscopy with Neutrons, (1968), MIT Press.
2) 井上和彦，金野秀敏： 北大工学部研究報告 75 号，(昭 50),
3) D. H. Day, R. N. Sinclair: J. Chem. Phys. **55**, p. 2807 (1971).
4) D. H. C. Harris *et al.*: Inelastic Scattering of Neutrons, (I. A. E. A. Vienna 1963), **I**, p. 107.