



Title	中性子モノクロメータのためのモザイク構造をもつゲルマニウム結晶 (II)
Author(s)	大友, 詔雄; Ohtomo, Norio; 岩佐, 浩克 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 88, 77-88
Issue Date	1978-08-10
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41482">https://hdl.handle.net/2115/41482</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	88_77-88.pdf



## 中性子モノクロメータのためのモザイク構造 をもつゲルマニウム結晶 (II)

大友 詔雄\* 岩佐 浩克\*  
(昭和52年12月26日受理)

### A Germanium Crystal with a Mosaic Structure as a Neutron Monochromator (II)

Norio OHTOMO and Hirokatsu IWASA  
(Received December 26, 1977)

#### Abstract

The mosaic structure of a great number of hot-pressed Germanium crystals was studied by a detailed X-ray diffraction technique and discussed based on the theory of dislocation in crystals. The characteristics of the mosaic crystals as the neutron monochromator have been obtained by means of the neutron diffraction method, and such characteristics connected with the mosaic structure clarify the optimal conditions of the hot-pressed method.

#### 1. はじめに

中性子分光器用モノクロメータ結晶として、Ge や Si 単結晶が用いられているが、これらの結晶に適当なモザイク構造を作る方法は、不純物を加えて結晶の成長条件を変えたり<sup>1)</sup>、熱・圧力を加えたり (hot-press 法)<sup>2)</sup>、曲げたり<sup>3)</sup>、反射面の整合を行ったり<sup>4)</sup>等々がある。我々は、hot-press 法によって、Ge 単結晶内にモザイク構造を作ることを試みた (既報 (I))<sup>5)</sup>。結晶の迂り転位は、金属の種類、純度、結晶方位、変形方法、試験温度、変形速度、結晶の履歴や作製条件、表面状態等に複雑に依存するため、この hot-press 法では、得られるモザイク結晶のモザイク片の傾き、大きさ、格子不整とこれらの空間分布の状況と中性子反射率、分解能、高次散乱の混入等との関係で、次のことを明らかにすることが必要である：i) 容易迂りを起こす転位を発生させる温度と圧力の下限・上限、転位網を形成するに適切な温度・圧力、ii) 昇温-加圧-降温-除圧のサイクルに要する適切な処理時間、iii) 初期条件としての転位密度の多少、表面状態の乱れ及び酸化層の有無による影響、iv) 最も制御に適した因子とその制御方法等。

今回の研究は、前回の処理経験<sup>5)</sup>に基づき、次のように処理装置を改良して行った：i) 電気炉内温度平衡の自動制御化、ii) 油圧ポンプの熱遮蔽体を水冷することによる油温度と圧力の安定化、iii) 精密圧力計による圧力制御の精密化 (誤差最大  $\pm 3.5\%$  以内)、iv) 荷重負荷のスムーズ化と自動化等。

\* 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, Sapporo, Japan.

## 2. Ge 単結晶の塑性変形

Ge や Si などの共有結合結晶は、結晶の完全度が高く、常温では一般に転位は狭く、硬い性質をもっている。しかし、温度上昇とともに急速に軟化し、融点の 60% を越す温度以上になると、結晶格子の熱振動の促進により、局所的に Peierls-Nabarro 力を陵がする応力によって迂りを起こし、迂り転位の核生成・成長を誘起させる。さらに外部応力によって、結晶の欠陥のない領域にも転位を比較的すみやかに成長させることが出来る<sup>6)</sup>。Ge の場合、700°C 以上の高温で応力を加えると容易に変形し、この時生ずる転位配列は、明らかに Peierls-Nabarro 力をしのぐ広い乱れた転位線として観測される<sup>7)</sup>。この広いぼやけた迂り帯の形成については、未だ十分に明らかにされてはいないが、転位の増殖の一般論で一応説明される。これによると、転位の増殖は次の三段階に分けられる。第一段階では、基本迂り系のみが作動し、(111) 面上の転位は  $\langle 110 \rangle$  方向に移動し、Frank-Read 源が次々に新しい転位を放出する。この段階は、面心立方構造結晶では 40% 迄の剪断歪に対応し、出来る転位は非常に鋭い迂り帯となる。ところが、Ge の場合は、積層欠陥エネルギーが高く容易に交叉迂りが生じ、5% 迄の塑性歪で終り、作られる転位は広いぼやけた迂り帯である。第二段階では、基本迂り系が主であるが、二次の迂り系も活発化し、これが基本転位の増殖に対する障害物 (Lomer-Cottrell 障害) となる。即ち、比較的安定な不動転位と転位網の形成がなされる。この一、二段階では、転位分布は非常に非等方性であるがかなり均一である。そして、多くの転位はお互に方向が揃っていて、基本迂り面上に迂り方向と垂直な方向に並んでいる。第三段階では、Lomer-Cottrell 障害を切って、螺旋転位の交叉迂りが起こり、全ての迂り系が活発になる。この結果出来る転位分布はかなり不均一である。

Ge 単結晶に均一なモザイク構造を形成させるには、この一、二段階の転位を大量に作り出すことが必要である。これは、Frank-Read 源の作動による再生産的増殖とそれ以外の付加的転位源の活動および多重交叉迂りの発生等による転位網を作り上げることである。しかし、hot-press 法では、結晶の大きな面の粘着が、結晶全体の迂りを均一に行うのを妨げる傾向にあるため、迂りは応々にして局所のみを生じ、結晶はお互にかなり大きな角度で向きが不揃いの領域に碎かれる。このため一様なモザイク構造を得ることは、かなり偶然的な結果になる。さらに、表面転位源が内部の転位源に優先して活動する。しかし、表面の迂り転位の増殖は、逆に転位の増殖を妨げることにもなるから、必ずしも表面の迂りが小さな応力で可能である訳ではない。また、不純物も迂り転位の増殖を複雑にする。例えば、表面の酸化等の汚染による不純物の混入は、表面の臨界剪断応力を増加させる。特に、hot-press 法では高温による表面の酸化が著しく、結晶表面と内部では、結晶の「硬さ」に差が生じる。これらのことが、結晶全体としての一様・均一モザイク構造の形成を複雑にし困難にしている。従って、hot-press 法によって形成されるモザイク構造の描像を理論的に予見することは難かしい。

## 3. Hot-press 法によるモザイク構造

Hot-press 処理によって形成されるモザイク構造は、モザイク片の傾き、大きさ、格子不整およびこれらの空間分布の一様性、均一性によって特徴づけられる。これらは、処理条件によって変化し、中性子モノクロメータとしての特性も変えている。hot-press 処理によって得られた Ge 単結晶のモザイク構造を決めるこれらの因子を X 線回折法によって調べた。

### モザイク片の傾き

モザイク片の傾き  $\eta$  は、小さいと消衰効果と関係して反射強度を低め、大きいと分解能を広

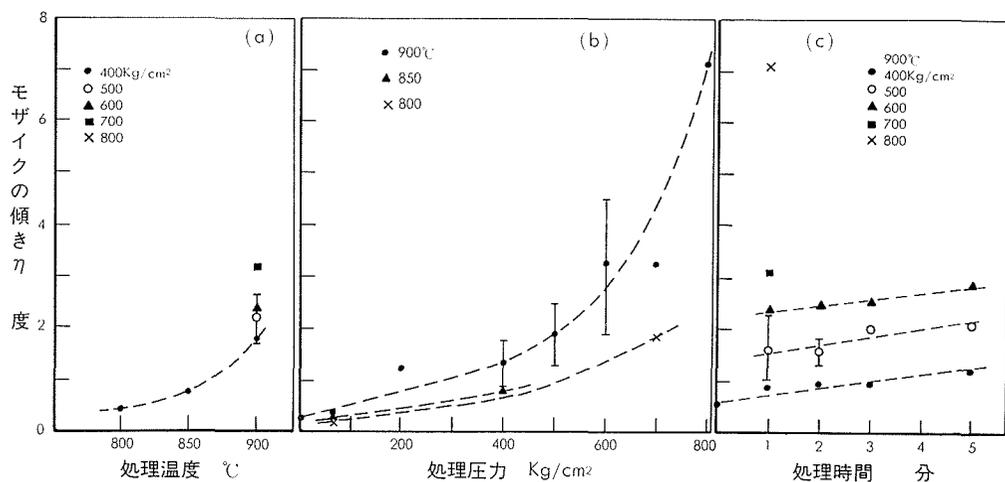


図1 種々の処理条件によるモザイクの傾き  $\eta$  ( $^{\circ}$ ): 処理条件 (a) 温度 ( $^{\circ}\text{C}$ ), (b) 圧力 ( $\text{kg}/\text{cm}^2$ ) 及び (c) 時間 (分)

げる。このため、ある許された分解能の範囲内で最大反射強度を与える  $\eta$  の範囲が存在する。 $\eta$  は、X線回折法によるロッキング曲線の半値幅から近似的に求められる。図1はこうして求めた  $\eta$  の分布である。(a)は、処理温度を800, 850, 900 $^{\circ}\text{C}$ に変えた場合、(b)は、処理圧力を100から800  $\text{kg}/\text{cm}^2$  迄変えた場合、(c)は、加圧時間を1から5分迄変えた場合の試料について得られた  $\eta$  を示してある。

(a) について: 処理温度を融点に近づける程、 $\eta$  は大きくなり、400  $\text{kg}/\text{cm}^2$ 、1分間加圧処理では、900 $^{\circ}\text{C}$ で  $\eta \sim 2^{\circ}$  になる。Geの融点は936 $^{\circ}\text{C}$ であるから<sup>8)</sup>、900 $^{\circ}\text{C}$ では著しく軟化し、これ以上温度を上げて処理することは難しい。たとえ処理を行ったとしても、得られるモザイク構造は適切な状態にはない。例えば、920 $^{\circ}\text{C}$ で処理したものは、 $\eta$  はかなり大きくなっているが、中性子反射強度は著しく低下する。

(b) について: 処理圧力を変えることは、処理温度を変える場合の様な制限ははるかに少ない。従って、パラメータを温度として、処理圧力を変えることによって  $\eta$  の変化を見るのがよい。得られた結果は、例えば、900 $^{\circ}\text{C}$ 、100  $\text{kg}/\text{cm}^2$  では  $\eta \sim 0.5^{\circ}$  程度であるが、400  $\text{kg}/\text{cm}^2$  で  $\eta \sim 1.5^{\circ}$ 、500  $\text{kg}/\text{cm}^2$  で  $\eta \sim 2^{\circ}$  となり、さらに圧力を増すと急速に  $\eta$  が増大し、800  $\text{kg}/\text{cm}^2$  で  $\eta \sim 8^{\circ}$  に達する。図中の縦の棒線は、同じ処理条件で処理されたいくつかの試料について得られた  $\eta$  のバラツキを示す。例えば、900 $^{\circ}\text{C}$ 、500  $\text{kg}/\text{cm}^2$  では  $\pm 0.6^{\circ}$ 、600  $\text{kg}/\text{cm}^2$  では  $\pm 1.3^{\circ}$  である。これらの処理時間は全て1分である。

(c) について: 転位の増殖は時間の関数であり、処理時間の長さは、迂り転位によるモザイク構造の形成に影響するはずである。この点について見ると、例えば、900 $^{\circ}\text{C}$ 、400  $\text{kg}/\text{cm}^2$  で、処理時間1分では  $\eta \sim 0.8^{\circ}$ 、5分で  $\eta \sim 1.2^{\circ}$  で約5割の増加となっている。600  $\text{kg}/\text{cm}^2$  にした場合、1分で  $\eta \sim 2.4^{\circ}$ 、5分で  $\eta \sim 2.8^{\circ}$  であり、いずれのデータからもこの程度の処理時間による  $\eta$  の大幅な変化は期待出来なかった。また、昇温時間および降温時間の長さについても調べたが、これらによる  $\eta$  への影響はほとんど見られなかった。

以上の結果から、 $\eta$  を変えるには処理圧力を変えることが最も効果的であることが明らかになった。この理由は、圧力の増加によってはじめて迂り転位の増殖が可能であることと、増加した転位は、お互に転位の成長の障害物になるため、一定圧力下では転位の増殖は漸次減少することによる。

### モザイクの大きさ

モザイクの大きさ  $d$  について、大きいものは一次消衰効果が強く、小さくなると、例えば  $10^{-4} \sim 10^{-5}$  cm 程度になると一次消衰効果はないことが知られている。また  $10^{-6}$  cm 以下では、結晶粒子が小さいために反射強度が低下し、回折ピークの幅も広がる。さて、直径が約  $10^{-5}$  cm 以下のモザイク粒からなる結晶では、広がった X 線回折ピーク幅を生じ、粒子が球状で等軸晶系に属し、大きさが一様るときは、回折ピークの半値幅  $\beta$  (radian) と  $d$  (Å) との間には次式が近似的に成り立つ<sup>9)</sup>。

$$d = c\lambda / (\beta \cos \theta)$$

ここで、 $\lambda$  (Å) は X 線の波長、 $\theta$  (°) は Bragg 角、 $c$  は定数で経験的に 0.9 の値を用いる。

図 2 に、X 線回折ピーク幅から求めた  $d$  の値を示してある。(a) は、処理温度を変えた場合で、400 kg/cm<sup>2</sup> を 1 分間加圧について、800°C で  $d \sim 1,500$  Å、900°C で  $d \sim 1,200$  Å になり、圧力を増加させると 500~800 Å に粉碎されることがわかる。(b) は、処理圧力を変えた場合

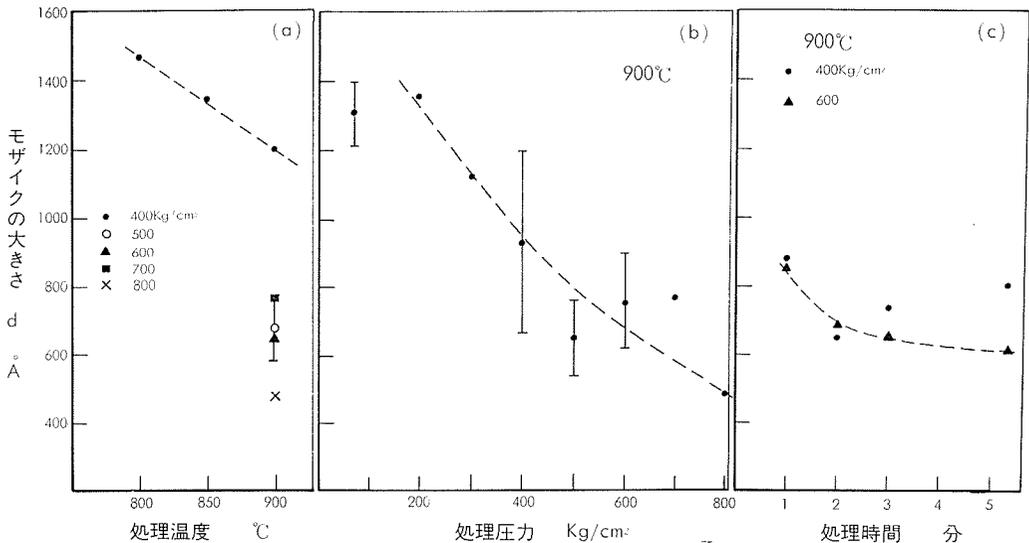


図 2 種々の処理条件によるモザイクの大きさ  $d$  (Å): 処理条件 (a) 温度 (°C), (b) 圧力 (kg/cm<sup>2</sup>) 及び (c) 時間 (分)

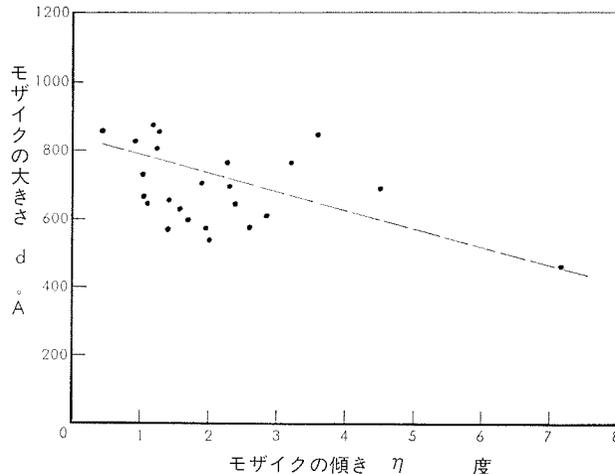


図 3 モザイクの傾き  $\eta$  (°) とモザイクの大きさ  $d$  (Å) の関係

で、 $900^{\circ}\text{C}$ 、 $400\text{ kg/cm}^2$  で  $d \sim 950\text{ \AA}$  になり、容易に  $1,000\text{ \AA}$  以下になる。試料によるバラツキは  $\pm 35\%$  である。(c) は、処理時間の変化についてであるが、 $d$  はあまり変化をもたらしていない。この理由は、図 1 (c) で見たことと同じであると考えられる。

これらの結果から、 $\eta$  と同様、 $d$  を変える場合も処理圧力を変えることが最も適当であり、 $900^{\circ}\text{C}$  において  $400 \sim 600\text{ kg/cm}^2$  の圧力で  $800\text{ \AA}$  程度のモザイク粒子を作ることが出来る。この大きさは、一次消衰効果がなくなる大きさである。

$\eta$  を増すことなく  $d$  を  $10^{-4} \sim 10^{-5}\text{ cm}$  程度にする場合、一次消衰効果はなく回折ピーク幅も狭いが、二次消衰効果が著しく感度の増大はあまり望めない。また逆に  $d$  を小さくすることなく  $\eta$  のみを増せば二次消衰効果は消えるが、一次消衰効果と回折ピーク幅の広がりが生じる。こうして、結晶にモザイク構造を作る場合、 $\eta$  の増加と  $d$  の減少とが適度に関係していることが望ましい。図 3 はこの  $\eta$  と  $d$  の関係を見たものである。 $\eta$  が  $30'$  程度では  $d$  が  $10^{-4}\text{ cm}$  以上のモザイク結晶では、一次、二次の消衰効果の影響があるし、 $10^{-4} \sim 10^{-5}\text{ cm}$  では二次消衰効果が残る。 $\eta$  が  $1^{\circ}$  以上では、 $d$  が  $10^{-4}\text{ cm}$  以上と同様であるが、 $10^{-4} \sim 10^{-5}\text{ cm}$  では一次、二次の消衰効果ともなくなると見てよい。従って、図 3 から  $\eta = 1 \sim 2^{\circ}$  で  $d \sim 700\text{ \AA}$  になっていて、この程度のモザイク構造をもつものが一応最大感度を与えると考えられる。

### 格子不整

Ge 結晶は、迂り面上下の結晶がずれることによって強い共有結合状態からはずれるため、最近接原子間の距離が増加する。また、実際の塑性変形では単純な迂りではないから、個々のモザイク粒に非常に複雑な力が働き、結晶内での不均一変形による格子不整が生ずる。この格子不整は完全結晶の格子定数  $a$  に対する処理された試料の格子定数の偏差  $\Delta a$  との比  $\Delta a/a$  で示される。図 4 はこの格子不整である。(a) と (b) から、処理温度が高く、また圧力も高い場合には明らかに  $\Delta a/a$  が大きくなる。 $900^{\circ}\text{C}$  処理では、 $400\text{ kg/cm}^2$  付近から圧力の増加とともに急激

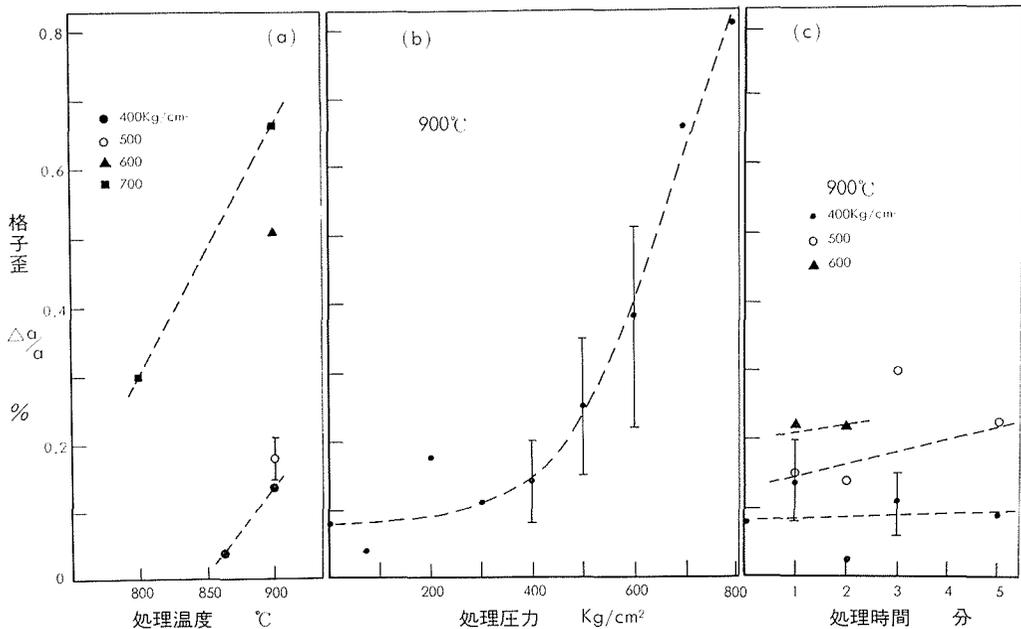


図 4 種々の処理条件による格子歪  $\Delta a/a$  (%): 処理条件 (a) 温度 ( $^{\circ}\text{C}$ ), (b) 圧力 ( $\text{kg/cm}^2$ ) 及び (c) 時間 (分)

に歪が増大する。例えば、 $400 \text{ kg/cm}^2$  で  $\Delta a/a \sim 0.15\%$  であるが、 $800 \text{ kg/cm}^2$  では  $\Delta a/a \sim 0.8\%$  に増大している。(c) から、処理時間による依存は、これ迄と同様、平坦な関係であり、この理由は、処理時間を長くしても転位の増加は見られず、従って格子歪も一定であるためである。ダイヤモンド構造の Ge 単結晶の (111) 面を回折面として利用する場合、この格子歪は、禁止された (222) 面反射を生ずる。これは分光器の測定可能なエネルギー領域を制限することになる。これについては後で述べる。

### モザイク片の空間分布

結晶の各部におけるモザイク片の平均方向がお互にずれている場合、結晶全体積が反射に用いられると、反射中性子ビームの角度と空間分布に反射強度の弱い局所を作り、また、モザイク片の大きさが不揃いであったりすると、大きなモザイク片の消衰効果により反射強度を弱め、結局、全体の反射強度を低下させることになる。図5は、 $900^\circ\text{C}$ 、 $700 \text{ kg/cm}^2$ 、1分間処理の結晶を6分割して (a 図)、各部分について、表、裏および垂直方向の X 線回折の結果を示してある (b 図, A, B および C)。この結晶の大きさは、約  $2.8 \times 2.5 \times 1.0 \text{ cm}^3$  で、6分割したピースは約  $0.9 \times 1.1 \times 1.0 \text{ cm}^3$  である。X 線回折のロッキング曲線の半値幅の広がりとそのピーク的位置を×印で示してある。4の位置を除き、結晶全体として  $\eta \sim 5^\circ$  であり均一であるが、曲線の形状はピーク位置を中心として非対称分布をなし、モザイク片を作った応力分布が等方ではなかったことを示している。この結果から、結晶全体の反射面と結晶表面との傾きが結晶の中央で大きくなり全体として凹面をなしている。これは結晶の周囲の表面層が  $900^\circ\text{C}$  の高温下で酸化し硬化したため、中央部分がより多く歪を起こしたことを示している。垂直方向の変形についても同様なことが言える (b 図, C)。

転位密度が高いことは、モザイク構造を作るのに必ずしも適当なことではない。これについて、転位密度  $2,000 \text{ cm}^2$  程度の完全結晶を処理する場合と、転位密度のはるかに高いモザイク結晶を処理した場合を比べた。 $900^\circ\text{C}$ 、 $400 \text{ kg/cm}^2$  で1分間処理の場合、 $\eta \sim 1.2^\circ$ 、 $d \sim 900 \text{ \AA}$  であったが、この試料を同じ条件で再処理したところ、 $\eta \sim 1.4^\circ$ 、 $d \sim 900 \text{ \AA}$ 、 $\Delta a/a$  は  $0.08\%$  から  $0.22\%$  に増加した。同様に、 $900^\circ\text{C}$ 、 $400 \text{ kg/cm}^2$ 、1分間処理で  $\eta \sim 0.9^\circ$ 、 $d \sim 950 \text{ \AA}$ 、 $\Delta a/a \sim 0.08\%$  のモザイク結晶を、 $900^\circ\text{C}$ 、 $600 \text{ kg/cm}^2$  で再処理したところ、 $\eta \sim 2.1^\circ$ 、 $d \sim 800 \text{ \AA}$ 、 $\Delta a/a \sim 0.30\%$  にそれぞれ変化を見せているが、この結果は、 $600 \text{ kg/cm}^2$ 、1分間加圧処理して得られ

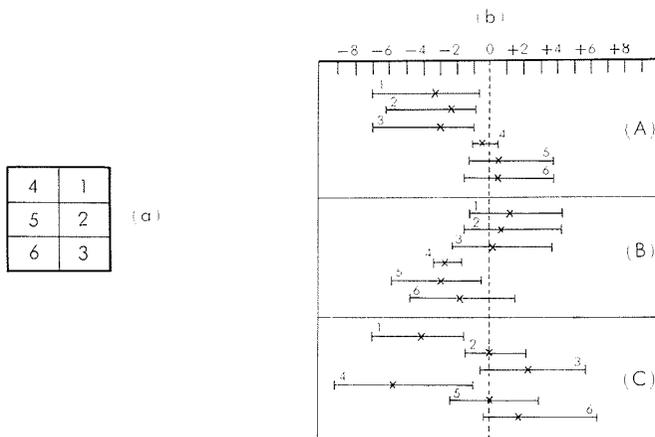


図5 モザイク結晶の異なる部分 (a) から得られた X 線回折ピーク的位置と幅 ( $\eta$ )(b): (A) 水平方向, 表, (B) 水平方向, 裏及び (C) 垂直方向, 表

たモザイク結晶と同じ状態にあり、転位密度の高いことは必ずしも効果的ではない。これは、ある条件で形成された転位網が、同じ条件下では、次の転位の発生を妨げる障害物として作用し、転位の増殖の促進はさらに大きな応力の増加をまってはじめて行われるためである。

#### 4. 中性子モノクロメータとしての特性

中性子モノクロメータの特性は、前述した  $\eta$ ,  $d$ ,  $\Delta a/a$  およびそれらの空間分布などに依存した量である。反射強度には消衰効果の影響によって  $\eta$ ,  $d$  およびそれらの空間的一様性が関係する。また、分解能には  $\eta$  が主に関係する。 $\Delta a/a$  は高次散乱の混入に関係する。全体的な結晶格子の不均一迂りによる不規則性はバックグラウンドを高める。これらのモノクロメータの特性を検討するため、北大 45 MeV 電子線形加速器パルス状冷中性子源とそれに付設してある実験系<sup>3)</sup>を用いて、いろいろな処理条件で得られた試料の中性子回折実験を行った。図6に種々のモザイク結晶からの中性子の(111)面反射ピーク波形を示してある。 $\eta$ が増加するとともにピーク強度は減少するが、回折ピーク波形の幅は広がり、積分反射強度は増加する。この測定では、結晶への入射ビームの幾何学的広がり約  $40'$  であり、反射中性子ビームは最大見込み角  $3^\circ$  で検出器に至る。従って、 $\eta$  の大きいものについては、強度とピーク幅が検出器を見込む角度の広がり制限を受けている。

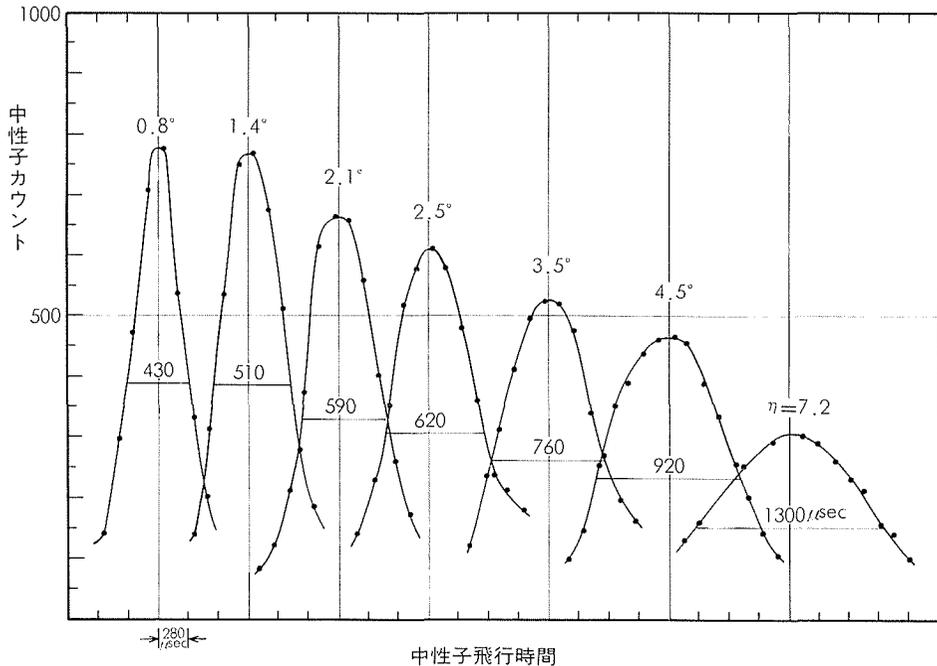


図6 種々のモザイクの傾き  $\eta$  ( $^\circ$ ) に対する中性子回折ピークの変化

#### 反 射 強 度

図7に、各試料について得た反射強度を、完全結晶の反射強度を基準にしたときの利得  $g$  で表わしている。(a)には、ピーク反射強度に対する利得  $g_p$  を×印、積分反射強度に対する利得  $g_r$  を黒丸印で示してある。 $g_p$  は、 $\eta=1\sim 2^\circ$  付近で、消衰効果の影響を受けずに極大値をとる。 $\eta$  の大きな極限は、図3から  $d$  が最も小さくなる極限に対応し、これは粉体に相当して、回折ピーク幅は広がり且つ  $g_p$  は減少する。一方、 $g_r$  は、 $\eta$  の増加とともに直線的に増大する。こ

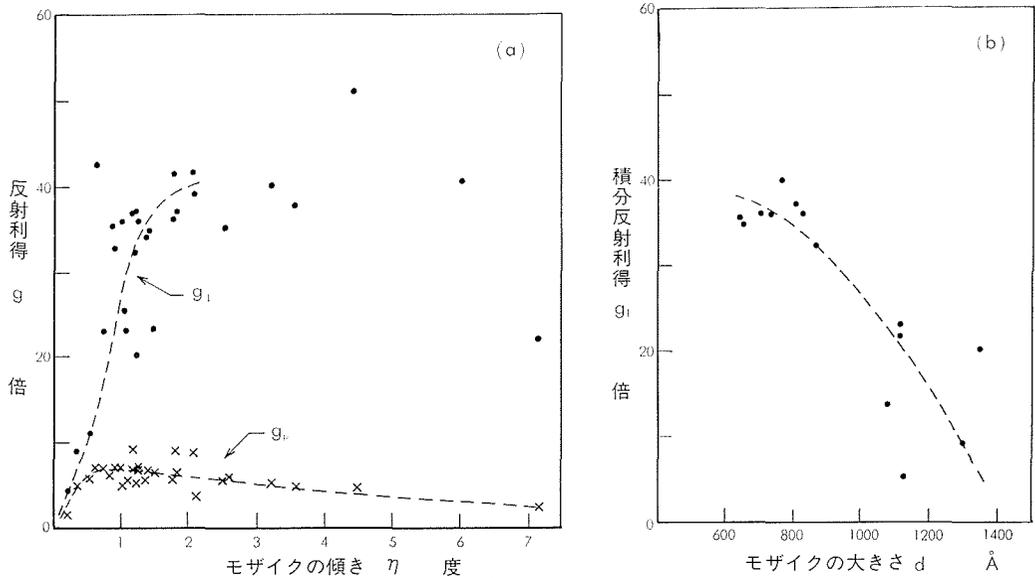


図7 モザイクの傾き  $\eta$  ( $^{\circ}$ ) 及び大きさ  $d$  ( $\text{\AA}$ ) と中性子反射強度の関係: (a) モザイクの傾きに対する反射利得  $g$  (倍), (b) モザイクの大きさに対する積分反射利得  $g_r$  (倍)

の結果では、 $\eta=2^{\circ}$  付近に極大値をもっているが、これは、前述した様に、検出器の幅の広がりがあるためであり、検出器の幅を広げて行けば、 $g_r$  は、さらに大きな  $\eta$  の値迄、直線的に増大するはずである。(b) に示されている  $g_r$  と  $d$  との関係では、当然、第一次消費効果のなくなる大きさで反射強度は大きくなる。700  $\text{\AA}$  以下で、強度の増加を見ていないのは、前述の検出器幅が有限であることの結果である。

積分反射強度を増す見地からは、 $\eta$  の大きい程良いことになるが、検出器幅で分解能が支配される場合には、むしろその分解能に合った  $\eta$  をもつモザイク結晶を用いるべきであり、一般には、 $1\sim 2^{\circ}$  の  $\eta$  のもので十分である。例えば、検出器幅を  $3^{\circ}$  に選べば、 $\eta=1\sim 2^{\circ}$  のモザイク結晶によって、最大ピーク反射強度をもって  $g_r$  を 30~40 倍にすることが出来る。このとき、 $d\sim 700\text{\AA}$  であり、X 線回折法による結果から予想されたことに一致する。

利得で説明された反射強度を、反射率で表わすと図 8 の結果となる。ここで、ピーク反射率  $R^{\max}$  は、吸収を無視した理想的不完全結晶について、次の様に理論的に計算される (Bacon-Lowde)<sup>10)</sup>: ロッキング曲線の半値幅  $\beta$  は経験的に  $\eta=0.424\beta$  で関係づけられ、モザイク片の傾き  $\eta$  (radian) が、ガウス分布しているとして、

$$R^{\max} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{Qt_0}{\eta \sin \theta} \left/ \left[ 1 + \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{Qt_0}{\eta \sin \theta} \right] \right.$$

となる。ここで、 $t_0$  は結晶の厚さ (cm)、 $\theta$  は Bragg 反射角 ( $^{\circ}$ )、 $Q$  は次式による結晶の幾何学的因子である。

$$Q = \lambda^3 N_c^2 F^2 / \sin 2\theta$$

ここで、 $\lambda$  は中性子波長 ( $\text{\AA}$ )、 $N_c$  は  $1\text{ cm}^3$  当りの単位胞の数、 $F$  は構造因子である。Ge について  $Q$  (個<sup>2</sup>/cm) は

$$Q = 1.744 \times 10^{-4} \lambda^3 / \sin 2\theta$$

となる。この公式によって計算した結果が図 8 に実線で示されている。

(a) から、 $\eta$  が大きくなると結晶は理想的な不完全結晶に近づくから、測定値と計算値は一致してくるが、 $\eta$  の小さい領域で差は大きい。 $\eta=1\sim 2^{\circ}$  の結晶の反射率は、測定値と計算値の両

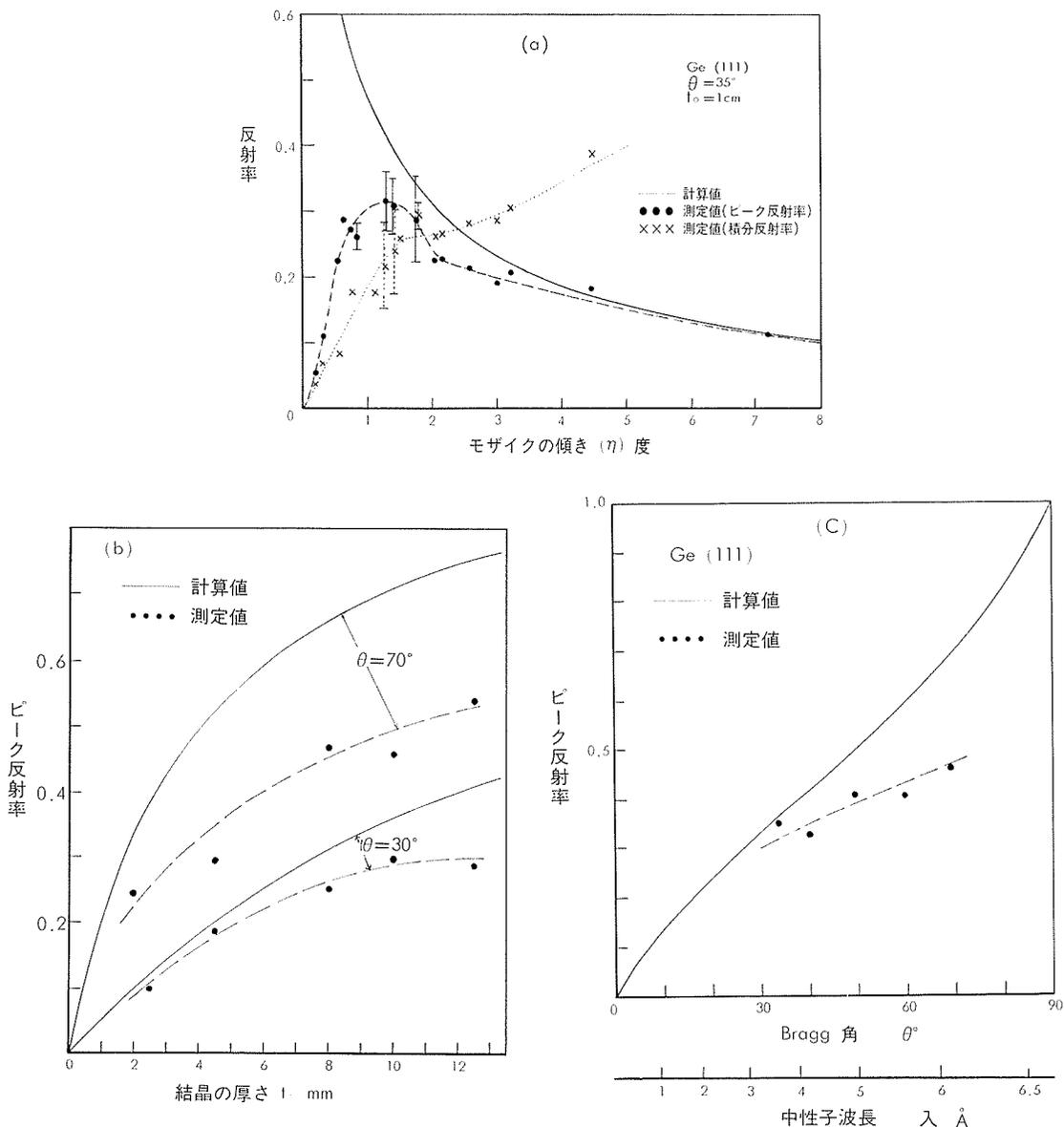


図8 中性子反射率の測定値と計算値の比較: (a) モザイクの傾き  $\eta$  ( $^\circ$ ) に対する反射率, (b) 結晶の厚さ  $t_0$  (mm) に対する反射率, (c) Bragg 角  $\theta$  ( $^\circ$ ) に対する反射率

者から見て、約 0.3 程度であることがわかる。(b) は、 $\eta=1^\circ$  について  $R^{\max}$  と結晶の厚さ  $t_0$  との関係を見たものである。測定値と計算値は、 $\theta=30^\circ$  ではかなり良い一致を見ている。(c) は、 $\eta=1^\circ$  について、中性子波長  $\lambda$  に対して  $R^{\max}$  の値を見たものである。Bragg 角が大きくなるに従って、測定値と計算値に差が見られる。

### 分解能

図 9 に、 $\eta$  の変化によるエネルギー分解能  $\Delta E/E$  を示してある。この値には、冷中性子源の平均放出時間<sup>11)</sup>によるエネルギー分解能 $\sim 5\%$ と体系の幾何学的広がりによる分解能 $\sim 2\%$ を含んでいる。これらを差し引くと、 $\eta$  による分解能は、 $\eta=1^\circ$  で約  $6\%$ 、 $\eta=2^\circ$  で約  $13\%$  である。 $\eta$  が

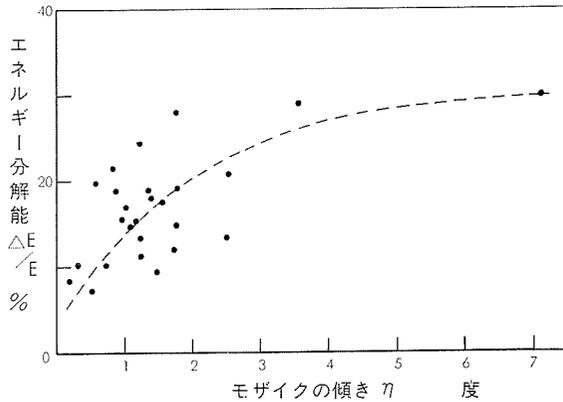


図9 モザイクの傾き  $\eta$  ( $^{\circ}$ ) とエネルギー分解能  $\Delta E/E$  (%) の関係

さらに大きい場合、検出器幅によって分解能が飽和する傾向にあるが、20%近い値になっていると考えられる。さて、図5で見たように、結晶が凹形に歪んでいる場合、この影響も考慮しなければならぬ。この結果、 $\eta=2^{\circ}$  で  $\eta$  による分解能は数%となり妥当な値になる。

#### (222) 反射

格子歪  $\Delta a/a$  による (222) 反射の強さは、結晶構造因子  $F_{hkl}$  の簡単な考察から説明出来る。即ち、Ge の場合、ダイヤモンド構造をとるから、格子座標が微小変位  $d$  の移動を等方的に起こしたとき、 $F_{hkl}$  は、

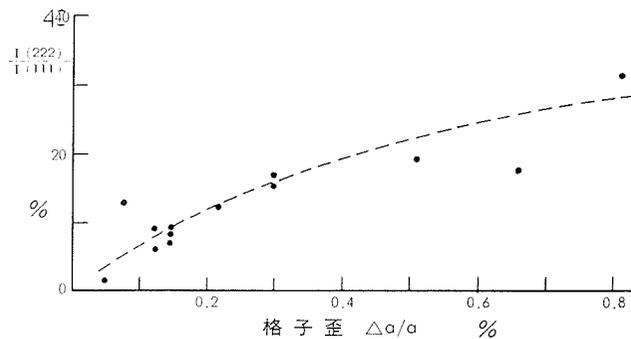


図10 格子歪  $\Delta a/a$  (%) によって生ずる禁止 (222) 反射

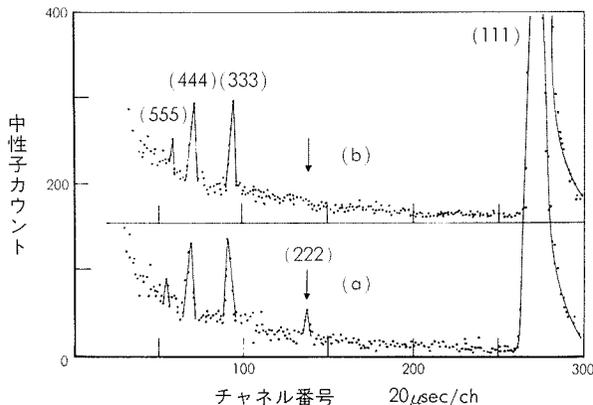


図11 格子歪によって生じた (222) 反射の再消去の例

$$F_{hkl} = f[1 + e^{i(\pi/2)(h+k+l)} e^{i2\pi d(h+k+l)}]$$

と記述される。そこで、 $d=0$ を除き  $|d| \ll 1/8$ であれば、(444)反射を禁止することなく、(222)面による反射が現われることになる。図10は、中性子回折によって得た(111)面反射ピーク強度を基準にした場合の(222)面反射ピーク強度の比と格子歪との関係を示したものである。この結果は、(222)面反射の強さが、格子歪の増加とともに増していることを示している。

さて、Ge単結晶では最近接原子間距離の増大する方向にのみ変形するから、モザイク粒子内の面間距離は必ず増加しているはずであるから、その面間距離に適合させてBragg反射を起こせば、(222)反射の禁止条件が再び満足されるはずである。図11はこれを試みた結果である。まず、(a)は、完全結晶の格子定数に適合したBragg反射による(111)面反射とその高次反射ピークの観測結果で、明らかに(222)反射ピークが現われている(矢印)。次に、(b)に、反射面の極角の微小角変位によってBragg条件を微小変化させた結果が示してあるが、予想通り(222)面反射のみが消失している。このとき、面間隔は増加する方向に変位しているから、(111)面反射ピークの位置は1チャンネルだけ低エネルギー側へシフトしている。結晶に入射する中性子線が、数分の精度でコリメートされている場合、このような方法で(222)面反射を除くことが可能である。

#### バックグラウンド

Hot-press処理された結晶は、結晶構造に複雑な歪を形成しているから、当然、回折ピーク以外の領域の散乱が多くなり、これがバックグラウンドとして計数される。図12は、 $\eta$ の変化に対してシグナル  $S$  とバックグラウンド  $N$  の比  $N/S$  を示したものである。 $\eta$ の増加は、 $N/S$ を増加させている。

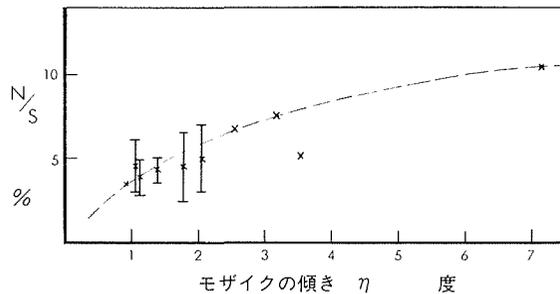


図12 モザイクの傾き  $\eta$  (°) と中性子のバックグラウンド反射の関係

### 5. モザイク構造の制御と最適処理条件

Ge単結晶に、一様・均一な転位網を作ることは容易ではないが、hot-press法の処理条件を適当に選ぶことにより、かなり任意のモザイク構造を得ることが出来る。得られたモザイク構造は、 $\eta$ について最大 $\sim 8^\circ$ 、 $d$ について最小 $\sim 500 \text{ \AA}$ 、 $\Delta a/a$ は0.8%以内のものである。 $\eta$ と $d$ とは逆比例、 $\eta$ と $\Delta a/a$ とは比例関係にあり、 $\eta$ だけを大きくして $\Delta a/a$ を小さくおさえることは出来ない。最適モザイク構造は、これらの因子と中性子反射強度、分解能、高次散乱等との関係を見た上で決められる。

最大感度を与えるモザイク構造は、 $\eta=1\sim 2^\circ$ 、 $d\sim 700 \text{ \AA}$ である。このとき、 $g_b=7\sim 8$ 、 $g_r=30\sim 40$ の利得を得、 $\Delta E/E\sim 10$ 数%、 $\Delta a/a\sim 0.2\%$ である。これを実現する処理条件は、 $900^\circ\text{C}$ で $300\sim 500 \text{ kg/cm}^2$ を1分間加圧した後、 $650^\circ\text{C}$ 以下の温度に急冷し除圧することである。この時、処理時間についてはかなり余裕度が認められるが、処理温度と圧力については、十分な精

度で制御されることが必要である。

## 6. お わ り に

Hot-press 法によって得られた Ge 単結晶内に作られるモザイク構造を X 線回折法と転位論によって明らかにし、中性子モノクロメータとしての特性を中性子回折法によって調べた。その結果、hot-press 法による処理では、圧力がモザイク構造の制御パラメータとして最適であること、モザイクの傾きは容易に数度に出来ること、モザイク構造の空間的一様・均一性についても知見が得られたこと等、適当な中性子モノクロメータを得る処理条件が、モザイク構造の詳細とむすびついた形で明らかになった。

## 7. 謝 辞

Ge 単結晶の X 線回折法に関して、北海道大学工学部応用物理学科応用数理物理学研究室、石橋輝雄氏に適切な助言をいただき、さらにゴニオメータ・ヘッドをお借したことに深く感謝いたします。また、X 線回折装置の使用にあたって、北海道大学工学部原子工学科高真空工学研究室の阿部哲也博士（現在日本原子力研究所核融合研究部）に操作と測定に対する多大な協力をいただいた。さらに、hot-press 処理においては、著者らの研究室の院生山野直樹氏（現在住友原子力工業）に甚大な労力をおかけした。これらの諸氏に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) Patel, J. R. and Chaudhuri, A. R.: Phys. Rev., **143**, 601 (1966).
- 2) Barrett, C. S., Mueller, M. H. and Heaton, L.: Rev. Sci. Instr., **34**, 847 (1963).
- 3) Egert, G. and Dachs, H.: J. Appl. Cryst., **3**, 214 (1970).
- 4) Frey, F.: Nucl. Instr. Meth., **125**, 9 (1975).
- 5) 大友詔雄, 岩佐浩克, 井上和彦: 北海道大学工学部研究報告第 77 号 (1975).
- 6) Cottrell, A. H.: "The Mechanical Properties of Matter," Willey, New York (1964).
- 7) Alexander, H. and Haasen, P.: Solid State Physics, **22**, 45 (1968).
- 8) 工藤恵栄: 基礎物性図表, 共立出版 (1972).
- 9) 仁田 勇: X 線結晶学上, p. 140, 丸善出版 (1959).
- 10) Bacon, G. E. and Lowde, R. D.: Ata Cryst., **1** 303 (1918).
- 11) 大友詔雄, 井上和彦: 北海道大学工学部研究報告第 73 号 (1974).