



Title	束縛原子核および拡散原子核混合物による中性子弾性散乱スペクトルプロフィール分析
Author(s)	坂本, 幸夫; Sakamoto, Yukio; 井上, 和彦 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 97, 51-55
Issue Date	1980-02-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41596
Type	departmental bulletin paper
File Information	97_51-56.pdf



束縛原子核および拡散原子核混合物による中性子 弾性散乱スペクトルプロファイル分析

坂本 幸夫* 井上 和彦*

(昭和 54 年 9 月 29 日受理)

Spectral Profile Analysis of Elastically Scattered Neutrons from a Mixture of Bound and Diffusing Nuclei

Yukio SAKAMOTO Kazuhiko INOUE

(Received September 29, 1979)

Abstract

Neutrons are quasielastically scattered from nuclei performing diffusive motions and are accompanied with small energy change. On the other hand, neutrons are purely elastically scattered from strongly bound and periodically oscillating nuclei and energy change does not occur. These phenomena have an interesting application to the non-destructive and quantitative analysis of the mixture of bound nuclei and diffusing nuclei. The purely elastic scattering spectrum reveals a Gaussian function-like shape due to the resolution of the instrument. The spectral shape of quasielastic scattering has a shape which folds the resolution function into a Lorentzian function having a considerably wide half width at half maximum. The peak positions of these two spectra are in the same energy range, and the experimentally observed spectra are superpositions of these two types of spectra including statistical errors. In the present paper the decomposition procedure will be described in the case of a mixture of bound nuclei and free water.

1. 序 言

中性子散乱では、散乱原子核の結合状態によって散乱の様子が異なる。原子核が強く束縛されて周期運動を行なっている場合には、エネルギー変化がない弾性散乱が起こり、散乱スペクトルは幅のないシャープなラインとなる。また、束縛が弱く原子核が拡散などの揺動運動を行なっている場合には、若干のエネルギー変化を伴う準弾性散乱が起こり、散乱スペクトルは Lorentz 函数的な形を示す。散乱角が変化すると、弾性散乱スペクトルは依然シャープなラインであるが準弾性散乱スペクトルはピークの広がりが増える。

化学的あるいは物理的な結合状態に差異がある原子核が混在している場合には、散乱スペクトルはそれぞれの結合状態に対応したスペクトルの重ね合わせとなる。観測した散乱スペクトルを、それぞれの結合状態のスペクトルの差異を利用して成分分解を行ない、結合状態の異なる原子核を非破壊的に定量分析することができる。実際に測定されるスペクトルでは、測定装置の分

* 原子工学科 放射線源工学講座

解能のためにエネルギーの広がりが見られる。弾性散乱スペクトルでは若干のエネルギー広がりを持つ Gauss 函数的な形を示し、準弾性散乱スペクトルでは本来の Lorentz 函数的な形に分解能の影響が加わりさらにピークの幅が広がる。弾性散乱と準弾性散乱の各スペクトルは同じピーク位置を有する。観測される散乱スペクトルには、統計誤差によるばらつきが加わっている。

束縛された水素原子核と自由な水の水素原子核の混合物について散乱スペクトルを測定し、観測データの成分分解の方法を検討した。

2. 実験装置と測定

2.1 中性子分光装置

測定は北大 45 MeV 電子線型加速器を速中性子源としたパルス冷中性子源と高感度結晶アナライザーミラーを組み合わせた、中性子準弾性散乱専用の分光装置を用いて行なった。装置の概略を図-1に示す。冷減速材より放出される冷中性子パルスは、散乱試料に入射し、散乱後の中性子は結晶アナライザーミラーで反射され検出される。散乱前後の中性子のエネルギー分析は、入射中性子については高速電子線がターゲットに入射してから散乱中性子が検出されるまでの飛行時間によって、散乱中性子についてはアナライザーミラーの結晶の回折を利用して行なう。結晶の二次以上の回折による中性子は、検出器の前に置かれた小さなベリリウム多結晶フィルターで取除かれる。

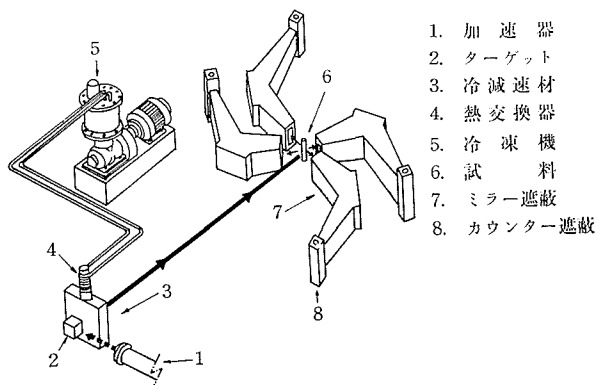


図-1 中性子準弾性散乱分光装置配置図

2.2 散乱試料

含水素弾性散乱試料として水素化ジルコニウム (ZrH_2) の粉末を用いた。室温において ZrH_2 内の水素原子の拡散は著しく小さく、弾性散乱と見なせる。2成分スペクトルを模擬するために ZrH_2 と水を混合しても、水とジルコニウムの化学反応の速度は小さい。試料中の束縛された水素原子の濃度を調整するためジルコニウム (Zr) 粉末を用いた。

試料は内径 5 mm のアルミニウム試料容器に詰めた。

2.3 測定

束縛原子核による弾性散乱スペクトルの測定は ZrH_2 -Zr 試料で行ない、Zr 原子による散乱は Zr だけの試料の測定で評価した。水の準弾性散乱スペクトルは、体積で約 50% の水を含むアルミニウム片と水の混合物、約 20% の水を含む銅線と水の混合物の試料で測定した。束縛原子核と水の拡散水素原子核混合物の 2 成分スペクトルの測定は、 H_2O - ZrH_2 -Zr 試料と H_2O -Zr 試料の 2 つの場合について行なった。試料中に含まれるそれぞれの分子数、またはその比の正確な決定は困難であった。

各測定では、70 度の散乱角に 2 つのアナライザーミラーを置いた。

3. 測定結果

測定で得られた弾性散乱スペクトル、水の準弾性散乱スペクトルと 2 成分スペクトルを図-2 にピーク値を揃えて示す。散乱角は 70 度、 $Q^2=2.80 \text{ \AA}^{-2}$ である。(a) は ZrH_2 -Zr 試料の弾性散乱

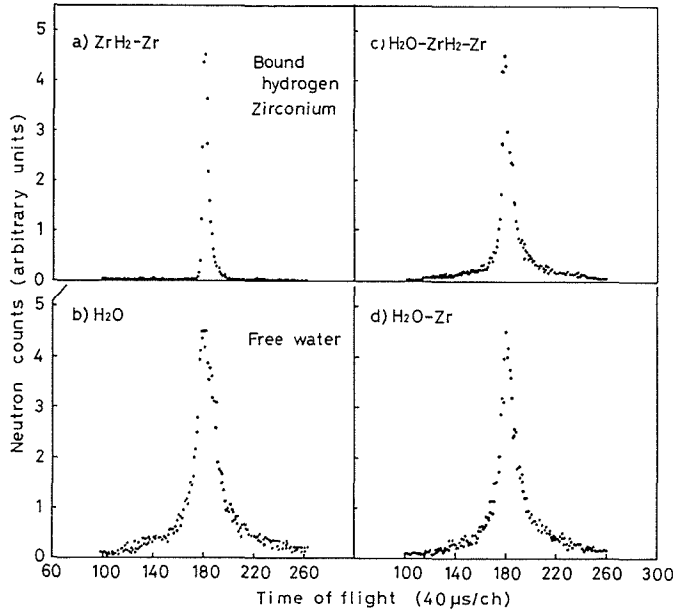


図-2 弾性散乱スペクトル

スペクトルである。ピークの立上りは鋭く、半値幅は狭い。ピークの裾の成分はほとんどない。(b)は自由な水の準弾性散乱スペクトルである。ピークの半値幅は(a)の弾性散乱スペクトルより広がっており、ピークの裾が大きい。(c)と(d)は束縛原子核と自由な水の水素原子核の混合物による2成分スペクトルで、弾性散乱成分の強度によってスペクトルプロファイルが変化している。(c)では束縛水素原子核を含むので弾性散乱成分が大きく、ピークが狭い。(d)の場合には弾性散乱成分に寄与するのがZrのみであるから、弾性散乱成分の強度は小さく、自由水のスペクトルに似ている。

70度の散乱角に2台のアナライザーミラーを置き同時に測定しているので、2つのミラーの各データをピーク位置を揃えて加算した。次に統計誤差によるばらつきを小さくするため、データの平滑化を行なった。

4. 散乱スペクトルプロファイル分析

散乱角 θ 、時刻 t で観測される散乱スペクトル $C(t, \theta)$ は、散乱断面積 $\sigma(E_1 \rightarrow E_2, \theta)$ と装置函数のコンボリューションであらわされ、次式で与えられる。

$$C(t, \theta) = \text{const.} \iiint \phi(E_1, \tau) \sigma(E_1 \rightarrow E_2, \theta) M(E_2) \delta\left(t - \tau - l_1 \sqrt{\frac{m}{2E_1}} - l_2 \sqrt{\frac{m}{2E_2}}\right) \times dE_1 dE_2 d\tau \quad (1)$$

ここで E_1 と E_2 は散乱前後の中性子エネルギー、 τ は冷減速材からの放出時間である。 $\phi(E_1, \tau)$ は冷減速材表面での入射中性子の時間・エネルギー・スペクトル、 $\sigma(E_1 \rightarrow E_2, \theta)$ は試料の微分散断面積、 $M(E_2)$ はアナライザーミラーの分解能函数である。 m は中性子質量、 l_1 は冷減速材から試料までの第1飛行距離、 l_2 は試料から検出器までの第2飛行距離である。

試料の散乱断面積が、束縛原子核による弾性散乱と拡散している原子核による準弾性散乱の2成分からなるときは、それぞれの散乱スペクトルの1次結合となる。従って束縛水素原子核と

自由な水の水素原子核の混合物試料の散乱スペクトル $C(t)$ は

$$C(t) = \alpha p(t) + \beta q(t) \quad (2)$$

となる。ここで $p(t)$ は束縛水素原子核の散乱スペクトルで、金属水素化物の観測スペクトルを平滑化したものである。 $q(t)$ は自由な水の水素原子核の散乱スペクトルで水の観測スペクトルを平滑化して求めた。各成分スペクトルのピークの高さを合わせてあり、 α と β は各成分の係数である。各成分スペクトルの1次結合と実験値 $\hat{C}(t)$ との2乗偏差を S とすると

$$S = \sum_i \{C(t_i) - \hat{C}(t_i)\}^2 \quad (3)$$

2乗偏差が最小になる係数 α と β を求める。

図-3は H_2O-ZrH_2-Zr と H_2O-Zr の2つの混合試料の散乱スペクトルの成分分解を示している。この解析では Zr 原子による散乱を補正していないので、弾性散乱に Zr 原子の散乱も寄与している。黒点は実験点、実線は最小2乗法で求めた弾性散乱成分の係数 α と水の準弾性散乱成分の係数 β を使って合成したスペクトルである。その合成スペクトルの中の弾性散乱成分は一点鎖線で示し、水の準弾性散乱成分は破線で示す。2つの混合試料とも最小2乗法で得られた合成スペクトルと実験結果の一致は良い。 H_2O-Zr 試料のように弾性散乱成分が小さい場合でも、散乱スペクトルの成分分解は可能である。

束縛原子核と自由な水の水素原子核の成分スペクトルが既知であるから、2成分スペクトルの実験データを最小2乗法で再現する散性散乱成分の係数 α と水の準弾性散乱成分の係数 β が一義的に決まる。この2乗偏差が最小となる係数 α と β 付近で、係数 α と β の組み合わせが変化したときの2乗偏差の様子を、 H_2O-ZrH_2-Zr 試料のデータについて数値的に調べた。

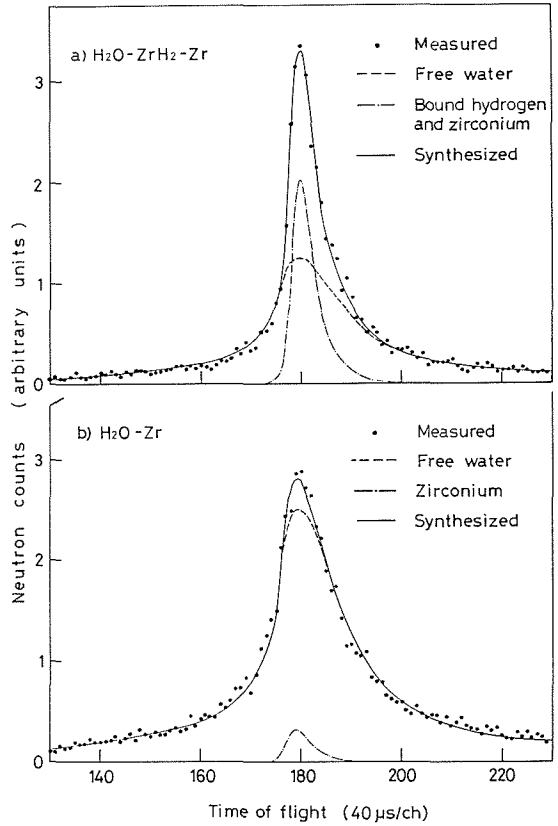


図-3 混合試料スペクトルの測定結果と最小2乗適合による成分分解

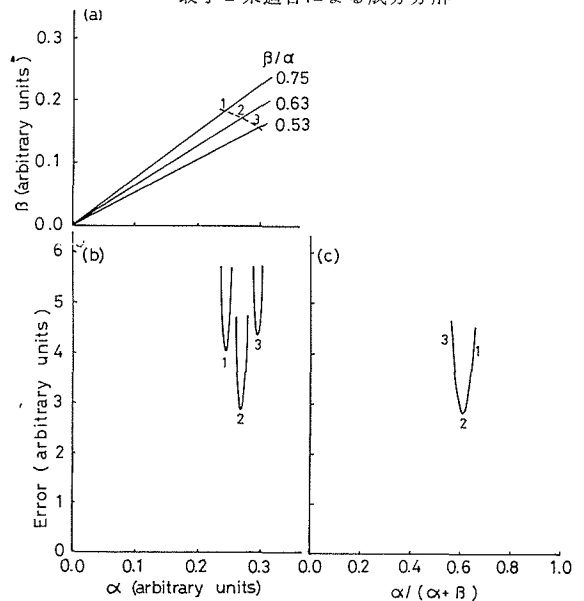


図-4 成分係数の変化と2乗偏差

- (a) 成分係数の変化
- (b) スペクトル強度変化
- (c) スペクトル形状変化

(2)式を次のように書きかえると

$$C(t) = \alpha \left\{ p(t) + \frac{\beta}{\alpha} q(t) \right\} \quad (4)$$

係数 α と β の比率 β/α は2成分スペクトルのプロファイルを決める因子となり、 α は2成分スペクトルの強度を決める因子となる。

係数の比率 β/α を一定にして、2成分スペクトルのプロファイルを維持し、 α を変化させることによってスペクトル強度を変化させた。係数の比率を変化させることは、図-4(a)の係数 α と β の座標上で原点を通る傾き β/α の直線上を α が変化することになる。このときの2乗偏差の変化を図-4(b)に示す。2乗偏差が最小となる α 付近で、 α が変化したとき2乗偏差は急に大きくなる。既知の成分の1次結合から作られたスペクトルプロファイルを使って、実験データを再現するのに適切な α あるいはスペクトル強度は狭い範囲にある。

次に係数の比率を変化させたときの2乗偏差を図-3(c)に示す。2成分スペクトルの適合の合否は明らかに係数の比率に敏感に左右される。

5. 結 言

束縛された水素と自由な水の混合物の中性子弾性散乱スペクトルは、既知であるそれぞれのスペクトルで成分分解でき、実験を良く再現できる。束縛された水素と自由水の2つのスペクトルの差異によって、スペクトル成分分解の係数の比率は精度よく決定できる。

成分スペクトルの形が既知でないときのスペクトル成分分解は、成分分解の係数が一義的に決定されないなど問題が多く今後検討する。