



Title	中性子準弾性散乱における円筒状試料の多重散乱
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, Kazuhiko
Citation	北海道大學工學部研究報告, 124, 49-57
Issue Date	1985-01-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41902
Type	departmental bulletin paper
File Information	124_49-58.pdf



中性子準弾性散乱における円筒状試料の多重散乱

井上 和彦

(昭和59年9月29日受理)

Multiple Scattering of a Cylindrical Sample in Quasielastic Neutron Scattering

Kazuhiko INOUE

(Received September 29, 1984)

Abstract

For data analysis of quasielastic neutron scattering, it is essential that multiple scattering corrections, which include energy transfer information, be as accurate as possible. We have proposed an expression of expansion in the integral representation of scattering operator for neutron transport phenomena which enables us to calculate multiple scattering corrections including energy transfer phenomena, readily and exactly. We have also set forth a method of numerical calculation which is useful for the assessment of multiple scattering in a cylindrical sample. We have also derived a calculation method, i.e. the nest theory to avoid an apparent numerical overflow in the numerical integral representation. In this paper, we have described the expression of expansion for multiple scattering, the numerical method, the nest theory, and the results of their application to some molecular liquid scattering samples.

1. 序 論

多重散乱の正確な評価とそれによるデータの補正は、中性子散乱データ解析における重要な問題の一つである¹⁻³⁾。多重散乱は典型的な中性子輸送現象であり、この計算は輸送理論の応用問題である。実際の計算に際しては、体系と現象の複雑さのために、数値計算を採用する必要がある。最近ではモンテカルロ法が良く用いられる⁴⁻⁶⁾。しかし、現象の過程の詳細な理解を目的とする場合や、問題の種類によっては、モンテカルロ法は必ずしも最適な方法でない。むしろ、大型計算機の高速度と大容量・およびアルゴリズムの融通性を活用して、級数展開による積分型の解を用いた方が適している場合がある。特に、冷中性子準弾性散乱では、多重散乱によるエネルギースペクトルの形の散乱角に依存する変動を正確に計算する必要があり、この種の目的のためには級数展開積分型の方が便利である。本論文では、冷中性子による中性子準弾性散乱における散乱角に依存するエネルギー変化を正確に考慮した円筒状試料の多重散乱の数値計算に適した表式、積分の体積要素の自己散乱における角度変化を正確に取り入れることができる入れ子理論、円筒試料における多重散乱過程の散乱過程の散乱角とエネルギー依存の詳細、

および分子液体試料にこの計算方法を適用した結果について述べる。

2. 散乱中性子スペクトル

ここでは、LAM 型の逆転配置・飛行時間型中性子準弾性散乱分光器における円筒状試料について考える⁷⁾。エネルギーの広がりを持つパルス状の中性子が、図1のように試料に入射し、散乱角 θ 方向に置かれた結晶アナライザーミラーにより単色エネルギーの中性子が検出される。入射中性子の飛行路長 l_1 が著しく長いので、平行ビームの中性子が円筒試料の軸に直角に入射すると考えて良い。また、散乱された中性子のミラーまでの飛行路長 $l_2/2$ も、試料寸法とミラー寸法に比べると充分長いので、試料の軸に直角な平面内を、入射方向に対して θ 方向に散乱され試料を離れて行く中性子が検出されると考えるのが充分良好な近似となる。

時刻 t において観測される散乱角 θ の散乱中性子の飛行時間スペクトルは、次式で表わされるような1回散乱を受けた中性子に対するものである。

$$\begin{aligned} \eta(t; \theta) = & \text{const.} \cdot \left\{ \phi(E_i, t - \frac{l_2}{\sqrt{(2E_f/m)}}) \right. \\ & \times p_i(\Omega_i, r) \Sigma(E_i \rightarrow E_f, \theta) p_f(r, \Omega_f) \\ & \left. \times R(E_f) dE_i dE_f dr. \right. \quad (1) \end{aligned}$$

ここで、 $\phi(E_i, t_i)$ は時刻 t_i にエネルギー E_i で入射するパルス中性子のエネルギー・時間スペクトルを表わし、 $\Sigma(E_i \rightarrow E_f, \theta)$ は散乱角 θ で入射エネルギーが E_i で散乱後のエネルギーが E_f の巨視微分散乱断面積であり、 $R(E_f)$ はアナライザーミラーのエネルギー分解能函数である⁷⁾； r は $\Sigma(E_i \rightarrow E_f, \theta)$ の散乱が起こる試料内の場所を表し、 Ω_i と Ω_f は試料に入射するビームおよび θ 方向に散乱されるビームの方向を表す向きベクトルである； $p_i(\Omega_i, r)$ は入射中性子が r に達するまでの自己遮蔽効果因子で、 $p_f(r, \Omega_f)$ は r の場所で散乱されて θ 方向に試料を離れる中性子が受ける自己遮蔽効果を表す；添字 i と f はそれぞれ試料に入射する前と散乱された後の状態を意味する。上述の向きに関する近似の他に、ここでは、試料に入射してから試料を離れるまでの、試料内における中性子の移動における時間の経過に関しては、その際の中性子通過時間が t に比べて著しく短いので、試料内の中性子輸送過程は瞬時に行われると近似する。この点については、後述の多重散乱に際しても同じ近似を採用する。多重散乱のうちで最も簡単な場合である2回散乱の場合を図2(a)に示す。

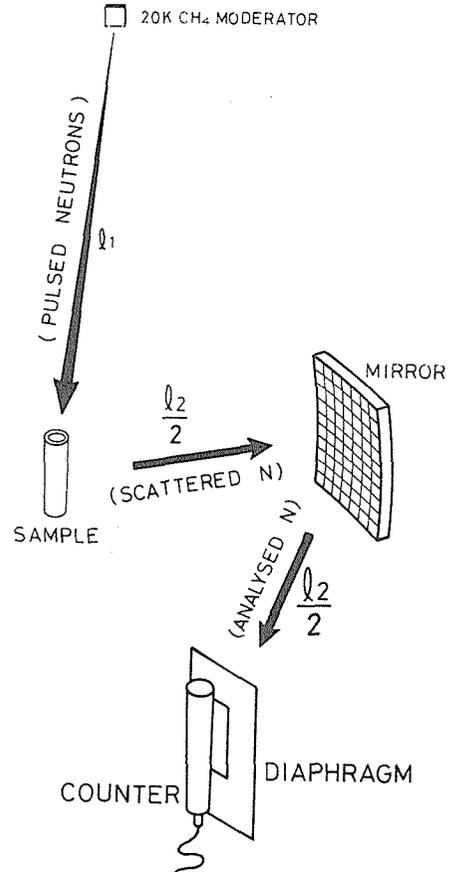


図1 LAM型分光器の配置見取図

3. 多重散乱の表式

中性子散乱実験で観測される中性子時間スペクトル η^+ を多重散乱の回数 ν で次のように展開する。

$$\eta^+ = \sum_{\nu=1}^{\infty} \eta^{(\nu)}, \quad (2)$$

ここで、 $\eta^{(1)}$ は(1)式に等しい；即ち

$$\eta^{(1)} = \eta(t; \theta), \quad (3)$$

である。 $\nu \geq 2$ の $\eta^{(\nu)}$ は次式で与えられる。

$$\eta^{(\nu)}(t; \theta) = \text{const.} \left\{ \phi \left(E_i, t - \frac{\ell_2}{\sqrt{(2E_f/m)}} \right) \times K_\nu(E_i, E_f; \theta) R(E_f) dE_i dE_f, \quad (4)$$

ここで、函数 $K_\nu(E_i, E_f; \theta)$ は、多重散乱の過程の詳細な内容を表す函数であり、次式で定義される。

$$K_\nu(E_i, E_f; \theta) = \int \cdots \int p_i(\Omega_i, r_i) \Sigma(E_i \rightarrow E_1, \theta) \times \delta[\theta_1 - \hat{\theta}(\Omega_i, r_1, r_2)] \times \prod_{m=2}^{\nu} P(r_{m-1}, r_m) \Sigma(E_{m-1} \rightarrow E_m, \theta_m) \delta[\theta_m - \hat{\theta}(r_{m-1}, r_m, r_{m+1})] p_f(r_\nu, \Omega_f) \times d\theta_1 \cdots d\theta_\nu dr_1 \cdots dr_\nu dE_1 \cdots dE_{\nu-1}. \quad (5)$$

散乱角に関する δ 函数内の引数 $\hat{\theta}(r_{m-1}, r_m, r_{m+1})$ 等は図2(b)に示すような角を表し； $r_{\nu+1}$ の代りに Ω_f を、または E_ν の代りに E_f を用いることとする。なお、この(5)式の表式は、どのような形状の試料にも適用できるのみならず、逆転配置・飛行時間型分光器に限らずに一般の散乱試料にも良い近似で成立つものである。

4. 円筒状散乱試料

LAM型準弾性散乱分光器では、散乱角にかかわらず、同一の幾何学的配置条件を保証するためには、円筒状散乱試料を使用している。標準的な寸法は、外径14mm、高さ80mmであり、試料厚は0.1mmまで選べるようになってきている。試料厚が0.1mmまで薄くするのは、含水素試料の測定のためである。図3に、LAM-40分光器によって、水の準弾性散乱スペクトルを測った結果を示す。この場合の試料厚は0.1mmであり、1回散乱を受ける入散中性子の場合には10%を若干上まわる。これよりさらに試料厚を薄くすることは、コンテナ製作上の精度の問題から、困難である。この程度の散乱の割合では、2回散乱を受ける割合はほぼ1回散乱の割合と同程度と考えてよいから、1回散乱に対する2回散乱の散乱スペクトルへの寄与の比率は約10%である。

以上の例では、2回散乱を受ける中性子の寄与はかなり大きいから、極力正確にその強度とエネルギースペクトルおよび散乱角依存性を計算する必要がある。しかし、3回散乱の強度については、1回散乱のものに対しておよそ1%程度となるから、これは通常の散乱スペクトル

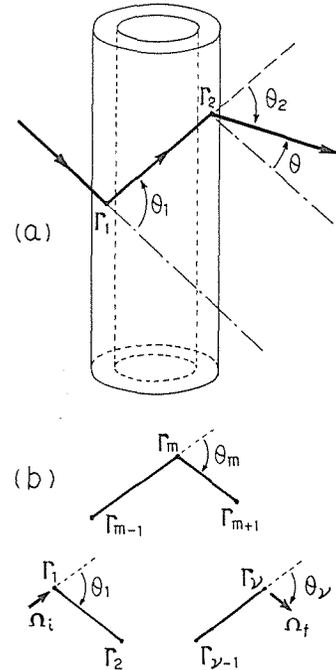


図2 (a) 円筒状試料における2回散乱の見取図。(b) 散乱の場所と散乱角の関係。

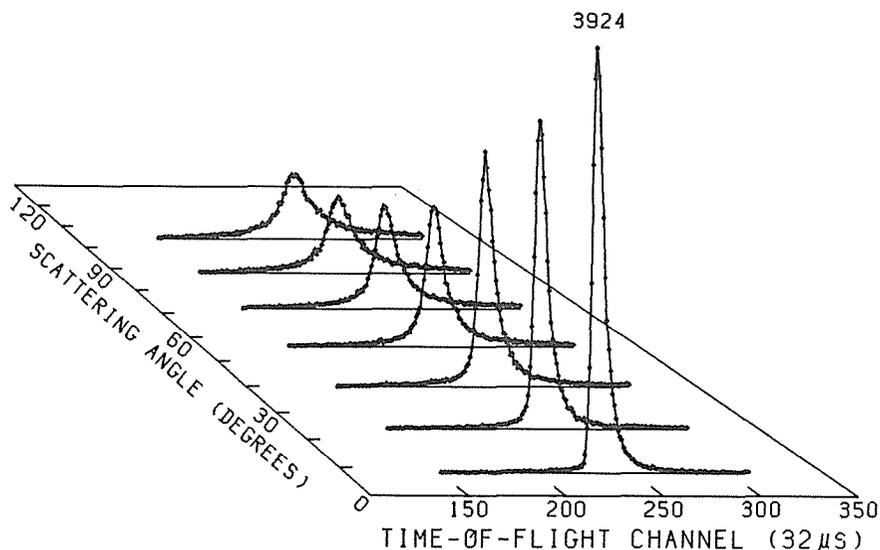


図3 5°Cの水の準弾性散乱スペクトル

の測定における統計誤差と同程度以下の寄与になる。したがって、多重散乱のうちで3回以上を省略するのは妥当である。即ち、普通の測定では、チャンネル当り10,000カウントの測定はめったになく、1,000カウント程度でも多い方である。したがって、統計誤差は2~3%程度か、場合によってはそれ以上になるから、上述の評価が妥当であることがわかる。 $\nu=2$ に対しては、(5)式は次のように書かれる。

$$K_2(E_i, E_f; \theta) = \int \int \Sigma(E_i \rightarrow E, \theta_1) W(\theta_1, \theta_2; \theta) \Sigma(E \rightarrow E_f, \theta_2) d\theta_1 d\theta_2 dE \\ = (E_f/E_i)^{1/2} S_2(E_i, E_f; \theta), \quad (6)$$

ここで、

$$W(\theta_1, \theta_2; \theta) = \int \int p_i(\Omega_i, r_1) \delta[\theta_1 - \hat{\theta}(\Omega_i, r_1, r_2)] \exp(-\Sigma_s \|r_2 - r_1\|) (4\pi \|r_2 - r_1\|^2)^{-1} \\ \times \delta[\theta_2 - \hat{\theta}(r_1, r_2, \Omega_f)] p_f(r_2, \Omega) dr_1 dr_2, \quad (7)$$

である。この量は、中性子が2回散乱されて試料から θ 方向にある検出器に向って入射する際の散乱角 θ_1 と θ_2 の組合せの割合を示す散乱角分布関数である。

5. 入れ子理論

(5)式の $P(r_{m-1}, r_m)$ は、 r_{m-1} で散乱した中性子が次に r_m で散乱する確率であり、次式で与えられる。

$$P(r_{m-1}, r_m) = \exp(-\Sigma_s \|r_m - r_{m-1}\|) / 4\pi \|r_m - r_{m-1}\|^2. \quad (8)$$

ここで、 $\|r_m - r_{m-1}\|$ は r_{m-1} から r_m まで中性子が飛行する際に、散乱試料媒質内を通過する路離を表し、真空中を通過する分を除いた長さである。数値的には(5)式を積分する際に、アルゴリズム上の問題は全くないが、正確に角度依存を取入れて計算しなければならない。その際に、 $r_m \approx r_{m-1}$ の近傍の寄与を極力正しく計算する必要がある。その理由は、体質要素は小

さくなるが、 $r_{m,m-1} = |r_m - r_{m-1}|$ の逆 2 乗因子のために、近傍領域からの寄与がかなり大きく、これを無視することができない。また、当然であるが、 $r_{m,m-1} = 0$ の点を含むように体積要素を選ぶと、その内部では角度依存を正確に考慮することは全くできない。そこで、次のような入れ子理論を考える。これを用いれば、数値計算の精度の範囲で、角度依存を完全に正しく考慮した計算を行うことができる。また、角度依存を正確に取入れようとして、体積要素を $r_{m,m-1} = 0$ の近傍で過度に小さく区切ると、数値計算の過程で現れる大きな数値の問題も、この入れ子理論で回避でき、正確な数値計算を簡単に実行できる。

$r_{2,1}$ が小さい場合には、(7) 式における散乱による減衰を表わす量 $\exp(-\Sigma_s \|r_2 - r_1\|)$ を 1 と近似することができる。この近似が成立つ範囲で、 $r_{2,1} = 0$ を含む小体積要素を考える。次に、この小体積要素と全く相似な形状と空間的向きを持ち、一次元的な大きさが $1/n$ の微小体積を考える。さらに、この微小体積要素中から、再び全く相似な手続きをとって $1/n$ の体積を除くことにする。このように逐次大きさが $1/n$ になる中心部を抜いた入れ子を見ると、それらの入れ子について計算した (7) 式の量の大きさの比率が順次厳密に $1/n$ になることは容易に理解できる。

上述の減衰因子を 1 と近似できる領域内で、入れ子の組の最外殻を考え、その最外殻に対して (7) 式の量を計算したものを $W'(\theta_1, \theta_2; \theta)$ とする。上の議論から、直ちにわかるように、入れ子全体に対する散乱角分布函数 $W(\theta_1, \theta_2; \theta)$ は次式で与えられる。

$$W(\theta_1, \theta_2; \theta) = \frac{n}{n-1} W'(\theta_1, \theta_2; \theta). \quad (9)$$

6. 計算結果

多重散乱補正計算を実行する際に、通常まず問題になることは正確な散乱断面積が知られていないことである。その散乱断面積を測定する際の実験データの補正に多重散乱を必要とするのだから、このことは当然である。しかし、幸いなことに、4 章で述べたように我々が問題とする適用例では、多重散乱の補正の割合は約 10% 前後からたかだか 20% 以下の範囲であるから、反復計算法を採用すれば所要の精度で正しい結果を得ることができる。実際の問題では、最初の試行直に多重散乱を含む測定結果を用いても、実用上は十分な精度の結果が得られる。

次に問題になることは、測定結果の未補正の散乱断面積が (6) 式の計算を数値的に実行する目的にとって、十分な範囲で数値的に求められているかどうかである。ここで述べた方法を適用する LAM 型分光器の場合には、幸い十分な範囲と精度で測定結果の未補正の散乱断面積を測定データから計算できるデータ解析コードシステム (QUESA40) が完備している^{8,9)}。

4 章で述べた試料容器を用いて 0.1 mm 厚の水試料の散乱角分布函数を計算した結果を、図 4 に示す。散乱角 θ の変化に応じて、分布函数の様子は特徴的な変化を示す。目につく一つの特徴は、散乱角の如何んによらず、 θ_1 と θ_2 が共に 90° の附近にピークが存在することである。その理由は図 2 の幾何学的条件を考えれば容易に理解できる。円筒状試料の軸に並行な、即ち、鉛直な面内に $\theta_1 \approx 90^\circ$ で初回の散乱を行った中性子は、次の散乱で θ 方向に出て行く際に、 θ の如何んにかかわらず、 $\theta_2 \approx 90^\circ$ となるからである。ここの計算例では、中心附近ピークからの寄与は全体の約 20% 程度である。また、 $\eta^{(2)}$ の $\eta^{(1)}$ に対する積分強度比は 12.6% である。

図 5 は、図 4 に示した場合について、2 回散乱における見掛けの散乱函数 $S_2(E_i, E_f; \theta)$

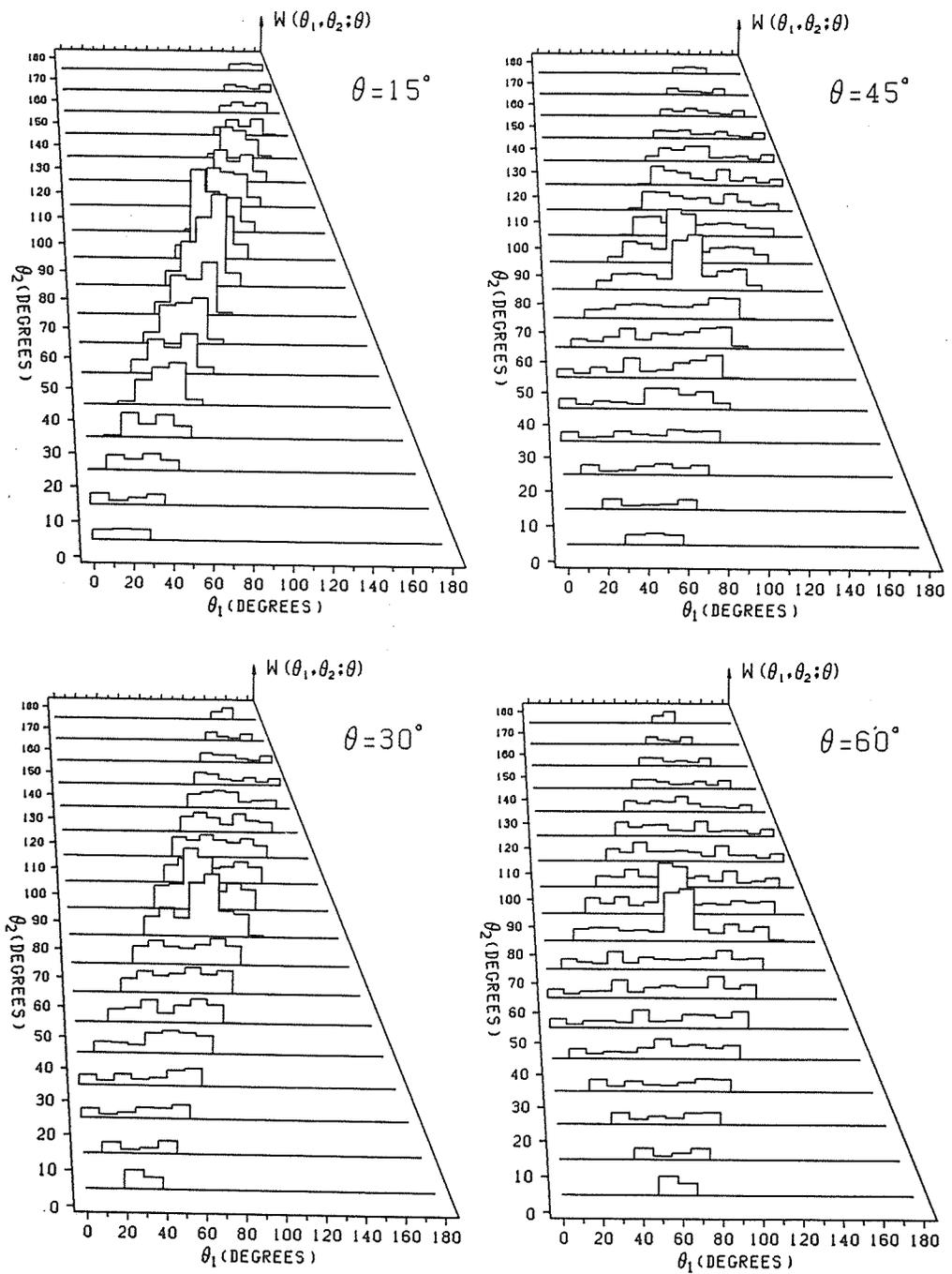
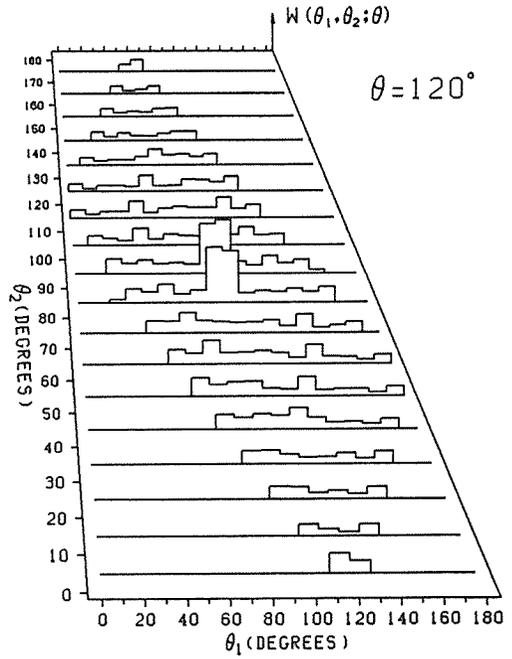
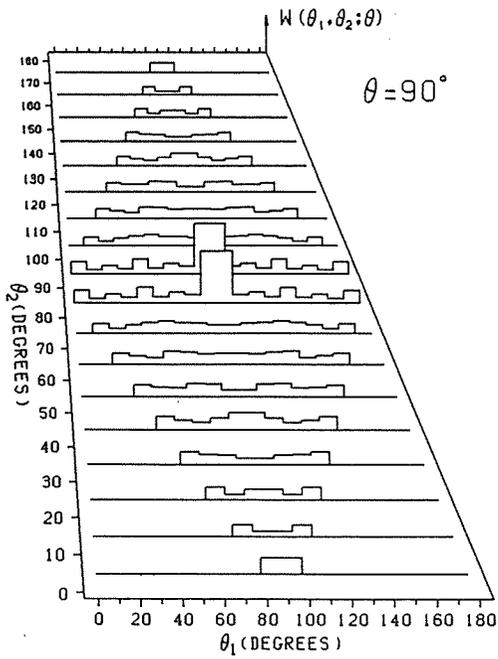
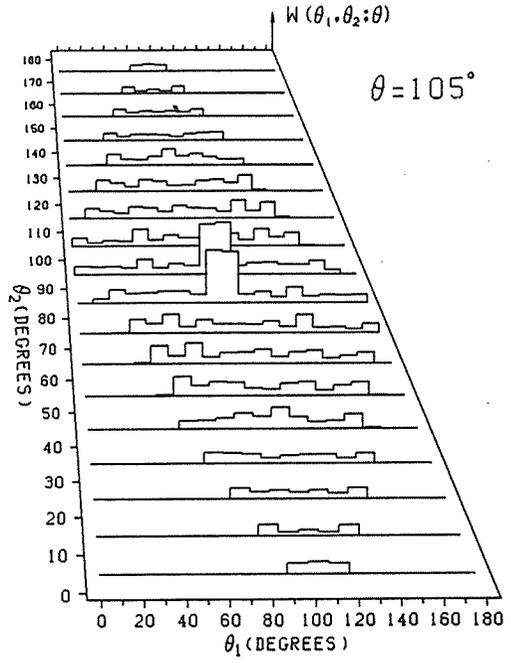
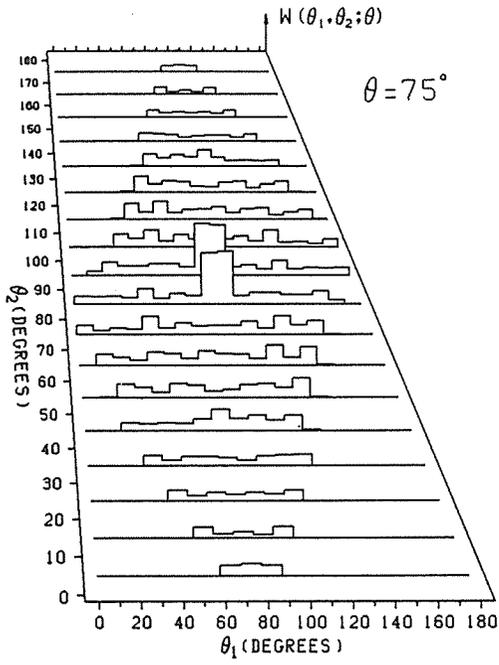


図4 2回散乱における $W(\theta_1, \theta_2; \theta)$ の計算例。



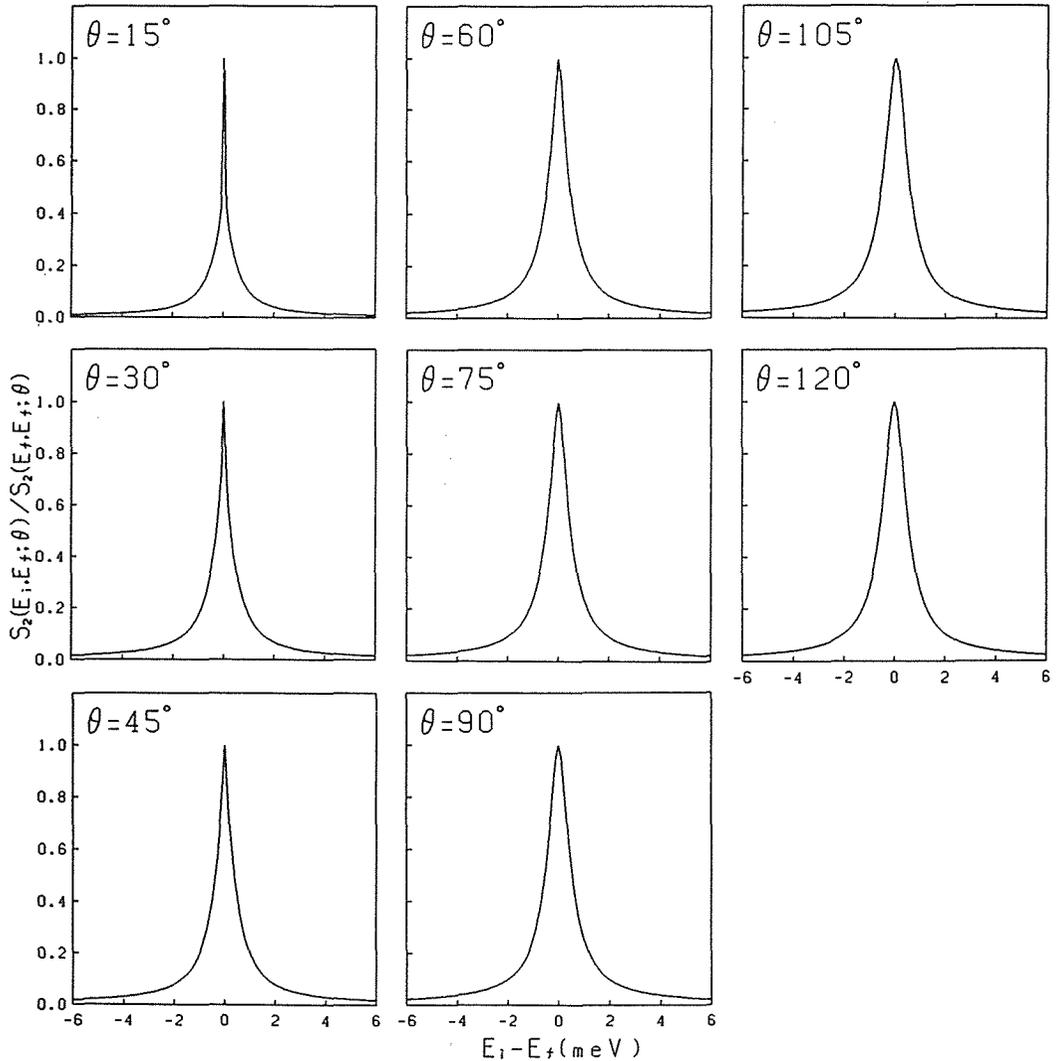


図5 図3の散乱試料における、2回多重散乱の見掛けの散乱函数 $S_2(E_i, E_f; \theta)$ の計算例。

の計算結果を示す。

7. 結 言

計算結果の見掛けの散乱函数の形からわかるように、多重散乱の補正は特に前方散乱において、弾性散乱 incoherent 構造因子 (EISF) に対して、重要になる。計算例では、前方散乱で全散乱強度の1割に達する大きな補正となる。この大きさは、通常の測定に殆んど当てはまるものであり、ここで示した補正を行わない限り、EISF に関して重要な前方散乱の正しい測定データを得ることができない。

また、この補正は局在モードのデータ解析においても極めて重要である。この場合も、前方散乱においてこの補正なしには、局在モードの時定数に関して正確な結果を得ることは全くできない。

本論文で示した計算方法は、アルゴリズムを工夫することによって、現在の高速大型計算機を用いれば、極めて短時間で所要の精度で計算結果が得られる。例えば、結果を示した計算例では、一つの散乱角に関する散乱角分布関数の所要計算時間は、北大大型計算機を用いて10数秒以内である。

参 考 文 献

- 1) G. H. Vineyard: Phys. Rev., **96**, 93 (1954).
- 2) I. A. Blech and B. L. Averbach: Phys. Rev., **137**, A113 (1965).
- 3) V. F. Sears: Advances in Physics, **24**, 3 (1975).
- 4) F. G. Bischoff, M. L. Yeater and W. E. Moore: Nucl. Sci. Eng., **48**, 266 (1972).
- 5) J. R. D. Copley, D. L. Price and J. M. Rowe: Nucl. Instr. and Meth., **107**, 501 (1973).
- 6) J. R. D. Copley: Comput. Phys. Commun., **7**, 289 (1974).
- 7) 井上和彦: 北大工学部研究報告, **117**, 62 (1984).
- 8) 同上 : 同上 , **98**, 77 (1980).
- 9) 同上 : 同上 , **112**, 83 (1983).