



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	パルス中性子源結晶アナライザー型下方散乱分光器
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, K; 梶, 慶輔 他
Citation	北海道大學工学部研究報告, 128, 85-94
Issue Date	1985-10-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41954
Type	departmental bulletin paper
File Information	128_85-94.pdf



パルス中性子源結晶アナライザー型下方散乱分光器

井上 和彦 梶 慶輔* 鬼柳 善明
金谷 利治* 岩佐 浩克 西田 幸次*

(昭和 60 年 6 月 30 日受理)

Crystal Analyser Mirror Type Down-scattering Spectrometer Using Spallation Neutron Source

K. INOUE, K. KAJI*, Y. KIYANAGI, T. KANAYA*,
H. IWASA and K. NISHIDA*

(Received June 30, 1985)

Abstract

A crystal analyser having a mirror type down-scattering neutron spectrometer was developed and installed at a spallation pulsed neutron source. By using the pulsed source and the crystal analyser mirror, the spectrometer has a performance feature with a capability of measuring the density of states over a wide region from several cm^{-1} to 3000cm^{-1} . Its usefulness was demonstrated in dynamical structure studies for molecular crystals, molecular liquids, polymers, magnetic substances, and other materials.

1. 序 論

加速器パルス中性子源を利用する中性子分光器には、種々の形式が考えられる。当然、それらは、研究目的に応じて、適切に選択されなければならない。しかし、パルス中性子源の広い応用は最近数年間ようやく始まったばかりであるので¹⁾、上記の目的と選択の相関について情報の集積が未だ充分になされていないのが実状である。他方、これまで原子炉中性子源を利用して中性子非弾性散乱による液体・高分子・固体・磁性体などの凝集体に関する多くの研究がなされてきた。そのために、3軸型分光器あるいはベリリウムフィルター検出器型分光器などの定常線源に適した分光器が開発・利用されてきた。本論文では、上記の研究分野における利用を前提とした、パルス線源を利用した下方散乱型分光器の研究開発の結果について述べる。2章では、設計の目的と理念および具体的な内容について、3章では、分光器の構造について述べる。4章では、実際の装置について測定された特性試験の結果を、5章では、今後なされるべき改良点について述べる。

凝集体研究に応用される中性子非弾性散乱測定は、分散則測定を目的とするものと、振動数分布測定を目的とするものに大別される。前者は結晶の動的構造研究に不可欠なものである。後者は結晶以外にもアモルファス固体・非晶高分子・液体など利用範囲が広く、特に今後は化学とそ

北海道大学工学部原子工学科放射線源工学講座

* 京都大学化学研究所繊維化学研究部門

の関連分野における利用が多くなるものと予想されている。本研究の分光器は後者を目的としており、特にパルス線源の特長を活用して、少量試料で測定を行えるように高感度を狙った。

パルス線源を利用した下方散乱分光器の場合には、原子炉中性子源では測ることができない $2000 \sim 3000 \text{ cm}^{-1}$ 附近の高い励起状態の測定が可能である。また、振動数分布測定では、散乱ベクトル Q の精度をある程度犠牲にすることが許されるから、散乱中性子を立体角的に収束させる集束型アナライザーを使って感度を大幅に向上させることが可能となる。このことは、同時にアナライザーのエネルギー集束を行えるから、分光器の総合分解能の向上も併せて可能となる。本論文で述べる分光器は、初め北大の電子線型加速器パルス中性子源を用いて研究開発され、次いで高エネルギー物理学研究所 KENS スパレーション線源に実用装置として設置され、現在稼動しているものである。また、これまでの開発と使用における経験に基き、大幅の改良が現在計画されている。

2. 設計理念と分光器の構成

パルス線源に結晶アナライザーミラーを組み合わせた図1に示すような逆転配置型分光器には、次のような利点がある。

- (1) 下方散乱により数 1000 cm^{-1} の高エネルギーから、アナライザーミラーの使用による数 cm^{-1} の小エネルギーまで、広い領域について散乱スペクトルを測定できる。
- (2) 上記領域において、多結晶フィルターを使用する型式に比べて、はるかに良好なエネルギー分解能が得られる。
- (3) 検出効率が高いために、少量の試料で測定ができる。
- (4) 多結晶フィルター型に比べて比較的良好的な Q 分解能が得られる。
- (5) 以上の特性が分光器本体にチョッパーやゴニオメーターなどのような何らかの回転装置を設けることなく、可動部分なしで達成される。したがって、機構と調整が極めて簡単である。

2.1 散乱中性子スペクトル

パルス中性子源から長さ l_1 の飛行路を経た中性子を散乱試料に入射させ、散乱された中性子を結晶アナライザーミラーで単色化して、それを検出し、最後に結果を時間分析器で分析する方式では、散乱角 θ における中性子の時間スペクトルは次式で与えられる²⁾。

$$\eta(t; \theta) = \text{const.} \iint \phi(E_1, t - l_2/\sqrt{2E_2/m}) \sigma(E_1 \rightarrow E_2, \theta) R(E_2) dE_1 dE_2, \quad (1)$$

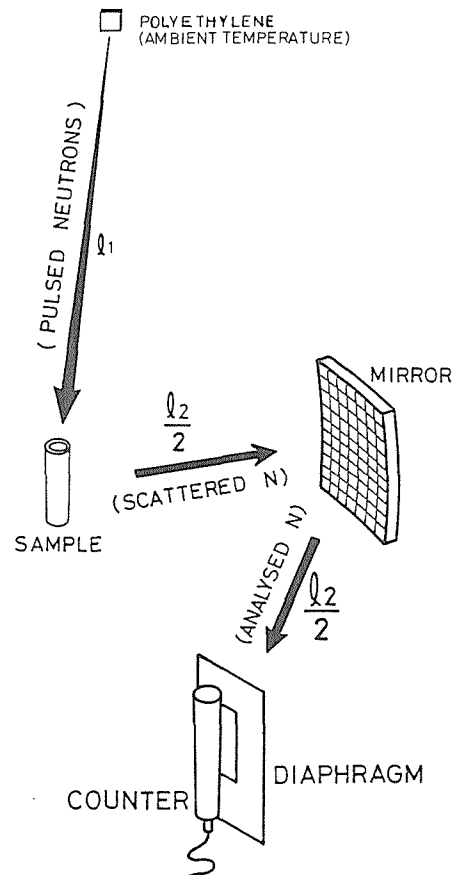


図1 逆転配置結晶アナライザーミラー分光器の装置配置の原理図

ここで、 $\phi(E_1, t_1)$ は時刻 t_1 に試料に入射するエネルギー E_1 の中性子束であり、 $\sigma(E_1 \rightarrow E_2, \theta)$ は微分散乱断面積であり、 $R(E_2)$ はアナライザーミラーのエネルギー分解能であり、 m は中性子質量であり、 l_2 は散乱中性子の平均飛行路長である。

測定されるエネルギー変化量 ε と、散乱ベクトル Q は次式で与えられる。

$$\varepsilon = E_1 - E_2, \quad (2)$$

$$Q = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2, \quad (3)$$

ここで、 \mathbf{k}_1 と \mathbf{k}_2 は入射および散乱中性子の波数ベクトルである。 Q^2 は次式で与えられる。

$$Q^2 = (2m/\hbar^2)[E_1 + E_2 - 2\sqrt{E_1 E_2} \cos \theta] \quad (4)$$

LAM 型の結晶アナライザーミラーの Bragg 角に関する分解能関数 $\hat{R}(\theta_B)$ は次式で与えられる²⁾。

$$\hat{R}(\theta_B) = \iiint p(\mathbf{r}, \Sigma, S) |\mathbf{r} - \Sigma|^{-2} |\Sigma - S|^{-2} \delta[\theta_B - \hat{\theta}_B(\mathbf{r}, \Sigma, S)] d\mathbf{r} d\Sigma dS, \quad (5)$$

ここで、 $\hat{\theta}_B(\mathbf{r}, \Sigma, S)$ は、試料内の位置 \mathbf{r} と、ミラー上の位置 Σ と、カウンター窓面上の位置 S で決定する Bragg 角であり、 p は検出効率に関する因子である。

2.2 分解能の表式

ここで考える方式の分光器のエネルギー分解能 $\Delta\varepsilon$ は、(1) (2)式および(5)式から、次式によって与えられることが直ちに理解される。

$$\Delta\varepsilon = 2E_1 [(\Delta t_2^2 + \Delta t_1^2 + \Delta t_2^2)/t_1^2 + (E_2/E_1)^2 \{(\cot \theta_B \Delta \theta_B)^2 + (\Delta \tau/\tau)^2\}]^{1/2}, \quad (6)$$

ここで、 Δt_1 は入射飛行路長のばらつきによる飛行時間の誤差であり、 Δt_2 は中性子線源のパルス幅であり、 $\Delta \theta_B$ は(5)式の分解能関数の半値幅であり、 $\Delta \tau$ は結晶の逆格子ベクトル τ の広がりである。本論文で考える分光器ではこの最後の $\Delta \tau$ による寄与は小さく、省略することができる。 Δt_2 は E_2 のゆらぎによる t_1 測定の誤差であり、 $\Delta t_2/t_1$ は次式で与えられる。

$$\Delta t_2/t_1 = \frac{1}{2}(l_2/l_1)(E_1/E_2)^{1/2}(\Delta E_2/E_2). \quad (7)$$

2.3 中性子源のパルス幅

パルス中性子源のパルス幅は、減速材内の中性子の減速時間と熱化時間および体系からの漏洩と吸収で決定される。含水素減速材を用いたパルス熱中性子源では、約 400 meV 以上ではパルス幅 Δt_2 は次式で近似的に与えられる。

$$\Delta t_2 = \alpha/\sqrt{E} \quad (8)$$

係数 α の代表的な値は、 E を meV 単位で表わした場合に、 $63 \mu\text{s}\cdot\text{meV}^{1/2}$ である¹⁾。

中性子エネルギーが約 300 meV 以下では、熱化現象のために、 Δt_2 の値は(7)式から大きくはなずけて、熱中性子エネルギー ($\sim 25 \text{ meV}$) では 50~70 μs 程度まで増大する。その実際の値は、減速材の形状・寸法および吸収体の有無で若干変動する。

2.4 分解能のエネルギー依存型

パイロリティック黒鉛を貼り合せたアナライザーミラーに円筒状の試料を組み合わせた場合の $\Delta\varepsilon$ の各誤差成分のエネルギー依存の様子を図2に示す。ここで使用したパラメータの値は次の通りである。

$$l_1 = 4.3 \text{ m}$$

$$l_2 = 0.6 \text{ m}$$

$$\bar{E}_2 = 4.4 \text{ meV}$$

$$\theta_B = 40^\circ$$

$$\Delta\theta_B = 1.9^\circ$$

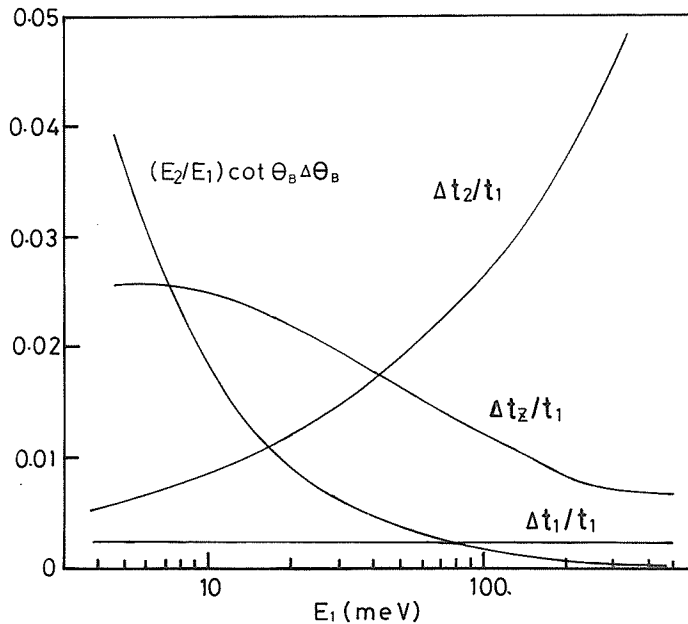


図2 分解能へ寄与する各誤差成分のエネルギー依存の様子

ここで、 \bar{E}_2 は E_2 の平均値である。これらの結果を用いて求めた総合エネルギー分解能 $\Delta\varepsilon$ と E_1 の比のエネルギー依存の様子を図3に示す。 l_1 が 8.6 m と 12.6 m の場合も示してある。

3. 分光器の構造

3.1 スパレーション中性子源

パルス中性子源は、高エネルギー物理学研究所 500 MeV ブースター陽子シンクロトロン加速器に設置されている KENS スパレーション中性子源である。このパルス中性子源は、毎秒約 25 パルスで、熱中性子のピーク中性子強度が約 $5 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{eV}$ で運転される。現在、強度増強のための改良中であり、近い内に数倍の強度増加を予定している。

ターゲットと減速材は約 4 m の厚さの鉄とコンクリートの遮蔽に囲まれており、ビーム実験孔を通して中性子を取り出される。分光器 (LAM-D, Latticed-crystal Analyser Mirror : Down-scattering) は H 6 実験孔に設置されている。線源から分光器内散乱試料までの第一飛行路長は約 4.3 m である。

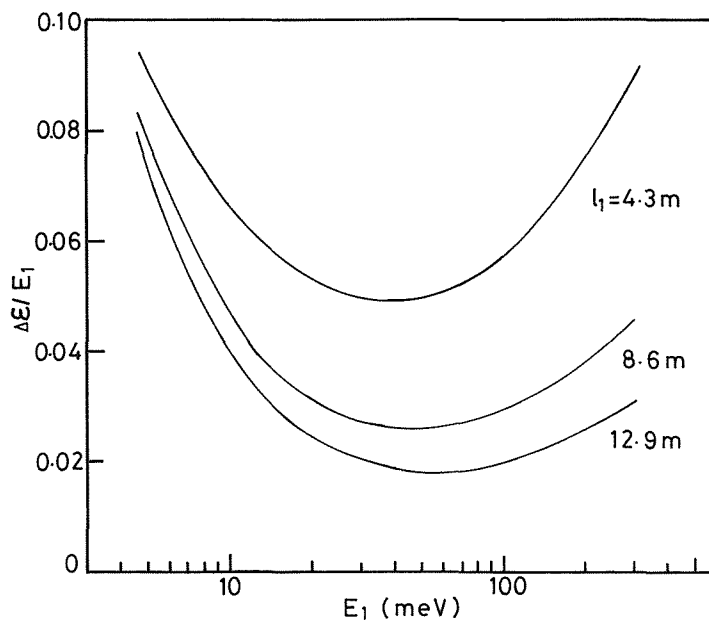


図3 総合分解能 $\Delta\varepsilon$ と入射中性子エネルギー E_1 の比のエネルギー依存の様子

3.2 装置の配置

LAM-D 分光器の本体平面図を図4に示す。結晶アナライザーミラーは、144個の $1.2\text{ cm} \times 1.2\text{ cm}$ のパイロリティック黒鉛結晶を、縦18枚・横8枚で、中性子ビームが集束するように、かつ、ほぼ同一の Bragg 角を保って、それぞれの飛行路長もほぼ同一になるように工夫した曲面上に配列した構造である。標準散乱試料は円筒状であり、散乱試料からミラーを経て検出器窓面ま

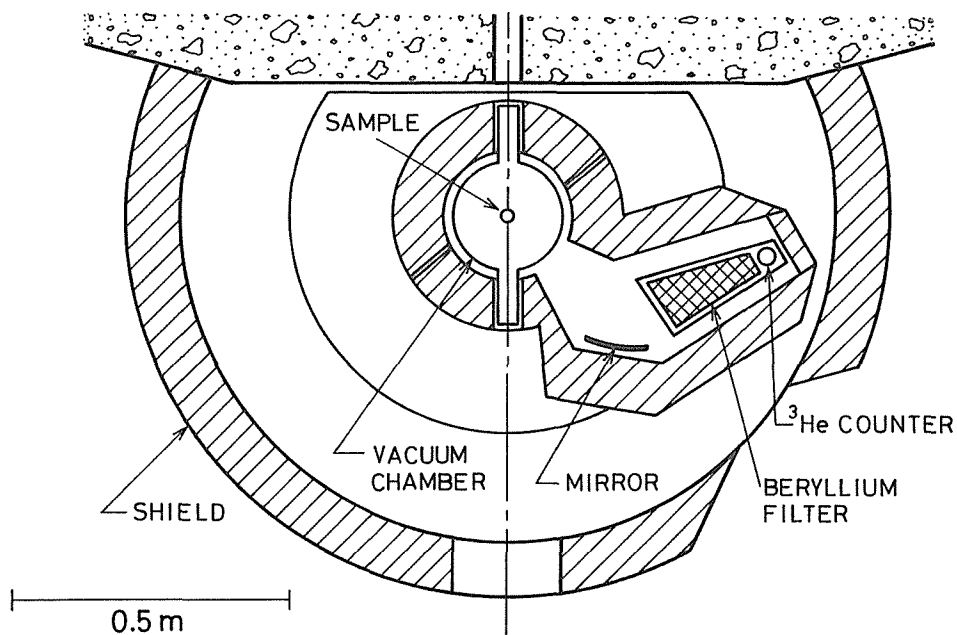


図4 LAM-D 分光器の平面図

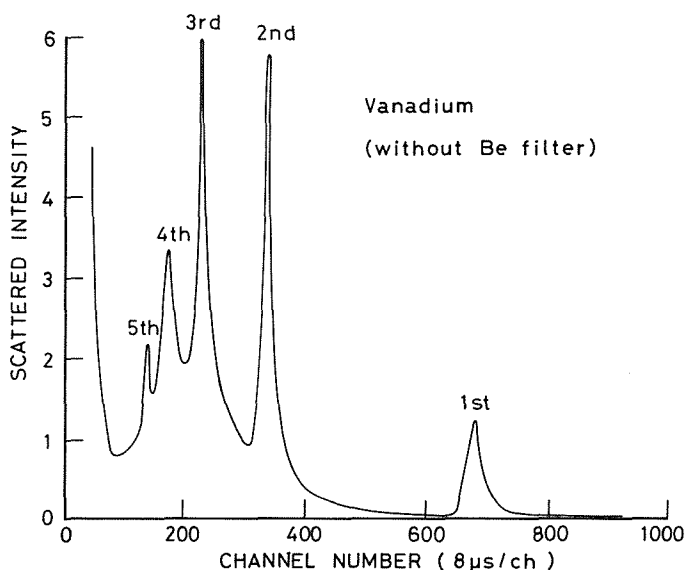


図5 Be フィルターがない場合のバナジウム散乱試料に対する高次反射ピークの測定結果

第二飛行路長は 0.6 m である。散乱試料は、空気散乱を避けるために、アルミニウム製の排気容器内に収められている。

ミラーと検出器の間には、中性子通過長が約 20 cm の Be フィルターがある。これは黒鉛結晶の高次反射を除去する目的のフィルターで、液体窒素で 77 K に冷却されている。図 5 はフィルターの必要性和効果を示すために、フィルターを除いた場合の高次射ピークを示す。

装置本体は図 4 に示すように約 45° から 100° までの任意の散乱角が選べるように、回転テーブルの上に設置されている。

3.3 検出器と電子回路

検出器は ^3He カウンターであり、直径 1 インチ・有効長 6 インチのものを使っている。 ^3He カウンターを、LAM-D のように、強パルス線源で非弾性散乱実験に使用する際には、偽信号ピーク発生の問題が生じる。この困難の原因は、強スパレーション線源では多くの高エネルギー中性子が遮蔽を通過してカウンターに入射検出されることと、 ^3He カウンターのパルス波高電圧分布に低い波高の信号成分が多く含まれていることにある。このために、普通の中性子検出用電子回路に使用されているリニアアンプを使用すると、図 6(a) に示すような偽信号ピークが発生する。これを回避するためには、超高カウントレイトのエネルギー分折に耐える設計のリニアアンプを使う必要がある。図 6(b) はそのようなアンプを使った場合のバックグラウンド測定データであり、偽信号ピークは完全に除去されている。

3.4 遮蔽

パルス線源を使う下方散乱型分光器は、高いエネルギーの励起状態を測れる特長を有することを既に述べたが、これを実現するためには遮蔽に十分な配慮が必要である。特に、スパレーション線源では数 10 MeV の高エネルギー中性子成分が相対的に多く発生するので、それらの高エネルギー中性子に対する遮蔽が重要である。LAM-D では図 4 に示すように二重の遮蔽が設けてあ

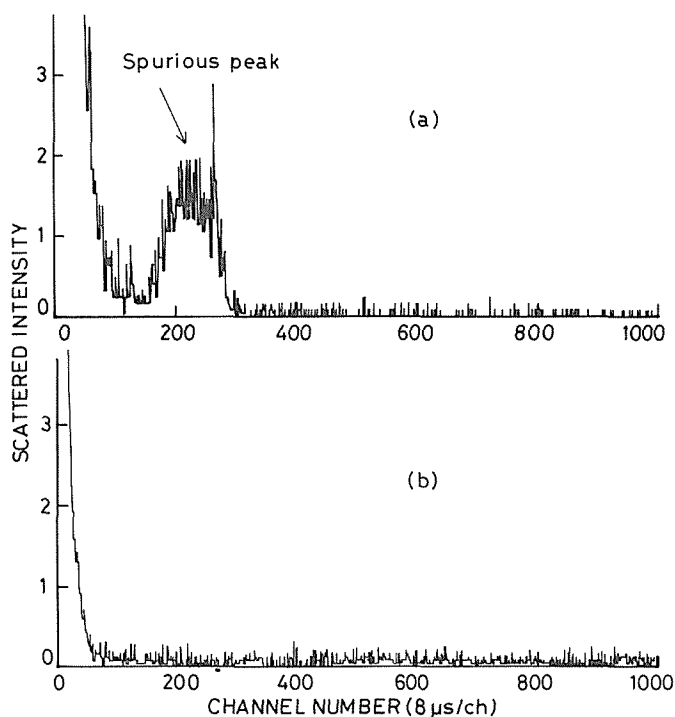


図6 (a)通常のリニアアンプを使った場合の偽信号ピークを示す。200チャンネル付近の幅広いピークが偽信号ピークである。(b)DDLアンプを使うことによって偽信号ピークが除去されている。

り、これらは硼酸レジンとCdで作製されている。

硼酸レジンが高エネルギー中性子および低エネルギー中性子の双方に対して極めて良好な遮蔽として機能するが、それは水素を多量に含み、かつ硼酸が効果的な $1/v$ 吸収体であるためである。ところが、中性子が飛行する経路の内面に硼酸レジンを露出させると、表面に存在する束縛水素による散乱が本来の散乱スペクトルに混入する。そこで、そのような面は全てCdで被う必要がある。しかし、良く知られているように、CdはCd切断エネルギー(約0.5 eV)以上の中性子を遮蔽することは全くできない。LAM-Dでは、これらのことに注意して遮蔽が設計されており、 3000 cm^{-1} の高いエネルギー変化測定に対して、バックグラウンドの強度が後述のように、低エネルギー変化測定の場合と同程度に押えられている。

3.5 試料の量と容器

適当な検出感度を得るためには、散乱試料の量として、その巨視散乱断面積と体積の積が、水に換算して約1ないし 4 cm^3 のものと同程度かあるいはそれ以上あれば充分である。また、多重散乱を軽減するために、試料は円筒状にするのが望ましく、その場合の外径は14 mmで、高さは約80 mmが適切である。

LAM-Dでは液体試料を使うことが多いので、耐真空の薄肉のアルミニウム製二重円筒試料容器が開発されている³⁾。試料の厚さは0.1 mmまで選ぶことができる。

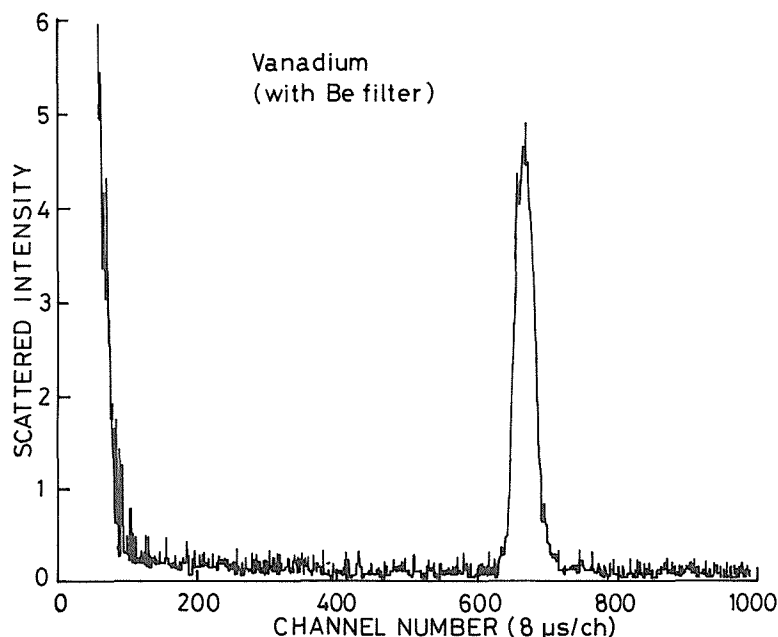


図7 LAM-Dで測定したバナジウムの散乱スペクトル。

4. 特 性

4.1 分解能

図7にバナジウム散乱試料の散乱スペクトルを示す。このデータから求めた弾性散乱ピーク幅は0.43 meVであり、この値は2章の計算値を良く合っている。したがって、 ϵ が熱エネルギー程度およびそれより小さなエネルギー領域のLAM-Dの分解能は設計通りである。

高いエネルギー領域の ϵ に対しては、直接に分解能を測るのは難しい。しかし、図2からわかるように、大きな ϵ に対しては $\Delta E_2/E_1$ が支配的である。また(7)式からわかるように、 $\Delta E_2/E_1$ の評価において問題になる量は ΔE_2 だけで、他の量はいずれも充分正確にわかっている。したがって、 ΔE_2 を正確に求めることができれば $\Delta E_2/E_1$ それと同じ精度で評価することができるから、 ΔE_2 を(6)式で充分正確に計算できることになる。また、他方では上述のように ΔE_2 と $\Delta E_2/E_1$ のコンボリューションが主項となる弾性散乱ピーク幅の計算値は、測定と良く合っていた。結局、熱エネルギー以上の ϵ に対しては、分解能は(6)式によって充分正しく計算されていることがわかる。

4.2 感度とバックグラウンド

図8にメタノールと重水素置換体の散乱スペクトルの測定結果を示す。試料の量は約3gで、測定時間は約6時間である。1000 cm^{-1} 以下では、メチル基のねじれ振動とOHの横ゆれが、2種のスペクトルの比較から明確に同定できる。1000 cm^{-1} 以上では、CHの変角とCHおよびOHの伸縮が観測されている。縦軸の単位は400カウントである。

図8には、同じ測定条件に規格化したバックグラウンド信号が併記してある。これからわかるように、3000 cm^{-1} 付近でもS/N比は極めて良好である。約100チャンネル以下における急速な信号の立ち上りは、上述のCd切断エネルギー以上の速い中性子の遮蔽透過のための信号である。しかし、この余分な信号は3000 cm^{-1} 付近の測定にとっては何ら妨害にもならない。これらの結果は、

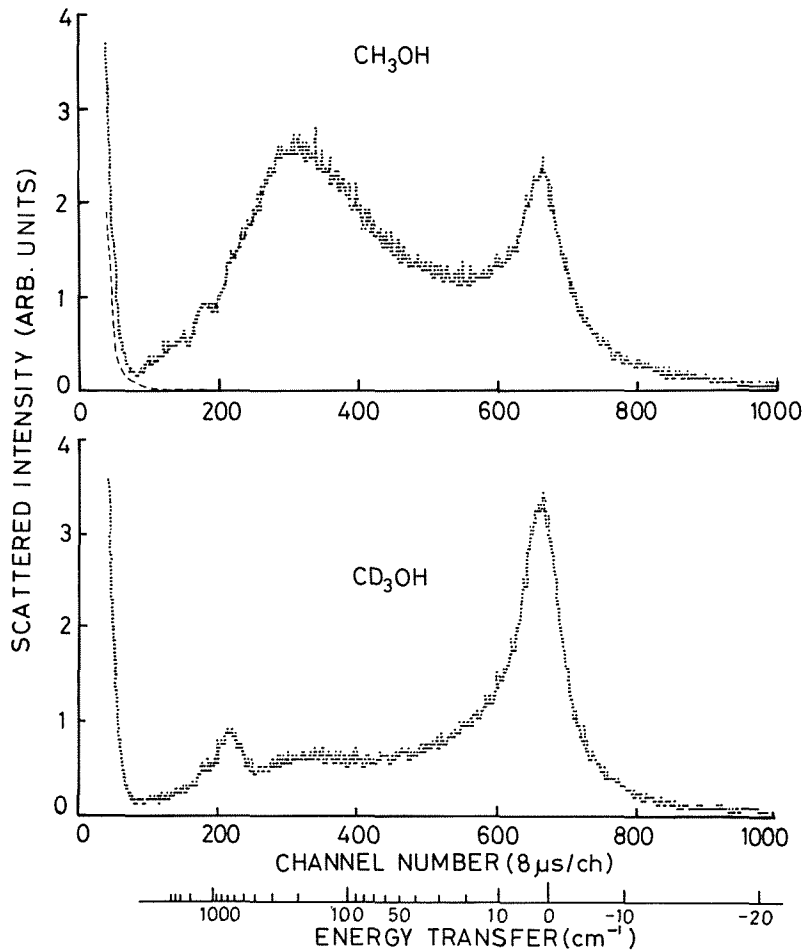


図8 メタノールと重水素置換体の散乱スペクトル

LAM-Dの遮蔽が極めて効果的であること、そして所期の広い ϵ 領域にわたって良好なS/N比で測定ができることを示している。

5. 結 言

特性試験のデータからわかるように、パルス熱中性子源に結晶アナライザーミラーを組み合わせた方式のLAM-D下方散乱分光器は、数 cm^{-1} から約 3000cm^{-1} までの広い ϵ 領域にわたって、充分実用になる装置である。density of stateの測定目的にとっては、この方式の分光器は、通常の3軸型のものに比べて、はるかに効率が良い。

LAM-Dは現状でも充分使用できる特性を有しているが、これまでの経験に基づいて、次のような大幅の改良を計画している。

- (1) アナライザーミラーを4基設置して、1枚のミラー面積を現在のものの半分にする。これにより、感度を2倍増強するとともに、Q依存の情報が増えることになる。
- (2) 測定目的に応じて、 l_1 を現在のものの2倍まで可変にして伸ばせるようにする。また、 l_2 を現在の60 cmから45 cmに短縮する。これにより、分解能を因子2だけ向上させることがで

きて、かつ、感度低下を少な目に押えるようにする。

(3) 進んだ型式の超高カウントレイト型リニアアンプを全面的に使用する。これにより、高目の波高選別で失っていた信号を取り込むことによって、実効感度を増強させる。

(4) データ集積計算機のソフトを改善し、使い勝手を良くする。

これらのレベルアップにより、凝集体の density of state 測定用分光器としての LAM-D の有用性をさらに増大できる。

参考文献

- 1) C. G. Windsor : Pulsed Neutron Scattering, Taylor & Franks Ltd., London (1981).
- 2) K. Inoue et al. : Nucl. Instr. and Meth., **178** (1980) 459.
- 3) K. Inoue et al. : *ibid*, A238 (1985) 401.