

中性子ビーム増強のための非対称反射を用いた  
ゲルマニウム結晶モノクロメータの開発

Development of Asymmetric Reflection-type Germanium Monochromator  
for Neutron Beam Enhancement

山内 宏樹 石井 慶信\* 井川 直樹 深澤 裕  
内海 渉

Hiroki YAMAUCHI, Yoshinobu ISHII\*, Naoki IGAWA, Hiroshi FUKAZAWA  
and Wataru UTSUMI

量子ビーム応用研究部門  
新エネルギー材料研究グループ  
Advanced Materials for Energy Group  
Quantum Beam Science Directorate

October 2008

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

## 中性子ビーム増強のための非対称反射を用いた ゲルマニウム結晶モノクロメータの開発

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 中性子物質科学研究ユニット

山内 宏樹, 石井 慶信\*, 井川 直樹, 深澤 裕, 内海 渉

(2008年7月16日 受理)

原子力研究開発機構が所有する中性子粉末回折装置 HRPD は、高分解能の粉末回折データを効率良く得ることができ、これまで多くのユーザーの要望を満たしてきた。その一方で、検出器前の受光コリメータが6'の固定式であるため、測定対象に応じた適切な分解能選択が出来ず、高効率・高強度測定には適さない。このことが爆発的に増加している外部利用者の希望を十分に受け入れる上で大きな障害となっている。原子力機構では、測定効率の改善を旗印として独自の手法を用いた線源側強度の増強案が企画されていた。その中で、筆者は非対称反射による中性子線束強度の向上を目指すモノクロメータの改良に取り組んだ。これは非対称反射を利用すると単色化ビームが空間的に圧縮され、単位面積当たりの線束密度が増加するという完全結晶、あるいは、それに近い結晶における表面反射での事象に基づいており、放射光X線では古くから利用されているものの、モザイク結晶をモノクロメータに用いる中性子散乱ではあまり報告例がない。我々はモノクロメータ結晶としてホットプレス加工で20'程度のモザイク分布を導入したゲルマニウム単結晶を用いることにした。ビームの圧縮率と中性子吸収量の考察から回折面と実際に結晶を切り出す切削表面のなす非対称角度を $\beta = 40^\circ$ とし、非対称 Bragg ケースで Ge(331)反射を取り出せるようにした。

粉末Si標準試料の中性子粉末回折パターンを非対称反射型および対称型モノクロメータで比較した結果、新しいモノクロメータにおいて、ピーク強度は約1.2倍と改善したものの分解能も向上したため、積分強度では対称型の場合と同等となり、事前のビーム圧縮率と中性子吸収を考慮した計算結果から期待されたほどの強度増加は得られなかった。これは、(1) モザイク結晶におけるビーム圧縮ケースの非対称反射では対称反射よりも中性子反射率が抑制され、線束密度向上による強度増強とちょうど相殺すること、(2) 反射率向上のために導入したモザイクによりビームが分散し、十分に圧縮効果が得られないことが原因と考えられる。

## Development of Asymmetric Reflection-type Germanium Monochromator for Neutron Beam Enhancement

Hiroki YAMAUCHI, Yoshinobu ISHII\*, Naoki IGAWA, Hiroshi FUKAZAWA and Wataru UTSUMI

Neutron Materials Research Unit, Quantum Beam Science Directorate  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 16, 2008)

The angle-dispersive neutron powder diffractometer, HRPD, installed at the JRR-3 in Japan Atomic Energy Agency (JAEA), can provide high-resolution data that meet the many users' needs until now. On the other hand, the demand of high-efficiency and high-intensity of measurements is growing in the recent years. However, HRPD is not suitable for high-intensity experiments because fine Soller slit-type collimators in front of detectors are fixed in an angular divergence of  $6'$ , so that users cannot choose the appropriate resolution for high-efficient measurements. In order to improve the source intensity of the monochromatic neutron beam, the authors tried to develop asymmetric reflection-type germanium monochromators. According to theoretical considerations, the asymmetric reflection in compression geometry has an effect on spatial condensation of the neutron beam, which leads to the enhancement of the flux density per unit area. We used germanium single crystals as neutron monochromators, introducing the crystal mosaic of  $20'$  in the horizontal direction by hot pressing method. The mosaic crystals were cut at an angle of  $\beta = 40^\circ$  relative to the  $\text{Ge}(3\ 3\ 1)$  reflecting planes.

The diffraction results of standard powder samples reveal that peak intensities by the asymmetric reflection-type monochromator are improved 1.2 times larger than those by the existing symmetric type one, but integrated intensities are almost comparable each other. For mosaic crystals, asymmetric reflections in compression geometry intensify the current density, but reflectivity is always less than that in symmetric reflections, and thus the suppression of the reflectivity just cancels out the enhancement of the current density. This is the reason why the asymmetric reflection has no practical effect on the beam enhancement.

Keywords: Neutron Diffraction, Monochromator, Asymmetric Reflection, Germanium

---

\* Radiation Application Development Association (RADA)

## 目次

|   |    |
|---|----|
| 1. 序論 .....                             | 1  |
| 2. 高分解能中性子粉末回折装置 HRPD の装置構成 .....       | 2  |
| 3. 非対称反射型結晶モノクロメータの作製 .....             | 4  |
| 3.1 開発の着想点 .....                        | 4  |
| 3.2 単色化結晶の加工 ～ 切り出し角の選定 .....           | 4  |
| 3.3 単色化結晶の加工 ～ モザイクの導入 .....            | 5  |
| 3.4 単色化結晶の取り付け調整 .....                  | 6  |
| 4. 非対称反射型結晶モノクロメータの導入 .....             | 8  |
| 4.1 粉末標準試料による散乱強度評価 .....               | 8  |
| 4.2 中性子イメージングプレートによる単色化ビーム強度分布の評価 ..... | 9  |
| 5. 考察および結論 .....                        | 10 |
| 謝辞 .....                                | 11 |
| 参考文献 .....                              | 11 |
| 付録 .....                                | 25 |

CONTENTS

|  |    |
|--|----|
| 1. Introduction .....  | 1  |
| 2. Main components of present HRPD .....   | 2  |
| 3. Development of an asymmetric-type germanium crystal monochromator .....                       | 4  |
| 3.1 Ideas for development of a new monochromator .....   | 4  |
| 3.2 Speculation of the best angle of an asymmetric cutout .....                                  | 4  |
| 3.3 Hot pressing method of germanium monochromator crystals .....                                | 5  |
| 3.4 Assembling and alignment of the monochromator system .....                                   | 6  |
| 4. Installation of the new monochromator .....   | 8  |
| 4.1 Evaluation of asymmetric reflection effects – diffraction results of a standard sample ..... | 8  |
| 4.2 Evaluation of neutron flux distribution – neutron imaging plates .....                       | 9  |
| 5. Discussion and conclusion .....   | 10 |
| Acknowledgements .....   | 11 |
| References .....   | 11 |
| Appendix .....   | 25 |

## 表リスト

|         |   |   |
|---------|---|---|
| Table 1 | HRPD の回折素子構成 <sup>1)</sup> . .....  | 2 |
| Table 2 | 粉末 Si 標準試料における各回折ピークの強度比 $I_{\text{asymmetric}}/I_{\text{symmetric}}$ . ..... | 8 |

## 図リスト

|         |  |    |
|---------|--|----|
| Fig. 1  | 高分解能中性子粉末回折装置 HRPD の写真. ....   | 12 |
| Fig. 2  | 高分解能中性子粉末回折装置 HRPD の概略図. ....  | 12 |
| Fig. 3  | Bragg ケースの非対称反射におけるビームの働き. ....  | 13 |
| Fig. 4  | 実際の結晶における非対称反射(Bragg ケース)の幾何学的関係. ....   | 13 |
| Fig. 5  | 結晶中での吸収効果. ....  | 14 |
| Fig. 6  | ビーム圧縮による中性子束増加 $W_0(\beta)/W(\beta)$ 、中性子吸収による減衰効果 $I(\beta)/I(0)$ の積から求めたビーム強度の増加率と非対称切り出し角度 $\beta$ の関係. ....                                  | 14 |
| Fig. 7  | Ge 331 反射のピーク強度、積分強度のホットプレス加圧圧力による変化 <sup>3)</sup> . ....  | 15 |
| Fig. 8  | Ge 331 反射の半値全幅のホットプレス加圧圧力による変化 <sup>3)</sup> . ....  | 15 |
| Fig. 9  | ホットプレス加工のための加熱加圧装置の概略図. ....   | 16 |
| Fig. 10 | ホットプレス加工における加熱加圧過程. ....   | 16 |
| Fig. 11 | Ge ingot の切削方法とモノクロメータ用に成形した短冊結晶. ....   | 17 |
| Fig. 12 | ゲルマニウム単結晶におけるホットプレス加工によるモザイク分布の変化. ....  | 17 |
| Fig. 13 | 非対称反射型モノクロメータの結晶取り付けに関する概略. ....   | 18 |
| Fig. 14 | 縦集光効果. 実線は Gaussian による fitting 結果. ....   | 18 |
| Fig. 15 | 粉末標準試料(NIST 640c Si)を用いた散乱パターンの比較. ....  | 19 |
| Fig. 16 | 分解能の散乱角依存性. ....   | 20 |
| Fig. 17 | 標準 Si 試料における 440 Bragg 反射のピークプロファイル比較. ....  | 20 |
| Fig. 18 | 対称反射と非対称反射の中性子 IP 像の比較. 撮影位置はモノクロメータ遮蔽体のビーム出射孔前(Fig. 2 の Monitor Counter 前). モノクロメータからの距離は 1110 mm. コリメーションは 6' - m - open - IP. 露光時間 10 秒. .... | 21 |
| Fig. 19 | 中性子 IP 像 Fig. 18 の横断面パターンの比較. (b)がビーム中心位置に相当する. 実線が非対称反射型、点線が対称反射型モノクロメータの像. ....  | 22 |
| Fig. 20 | 対称反射と非対称反射の中性子 IP 像の比較. 撮影位置は試料台上(Fig. 2 の Sample Position). モノクロメータからの距離は 2450 mm. コリメーションは 6' - m - open - IP. 露光時間 10 秒. ....                 | 23 |
| Fig. 21 | 中性子 IP 像 Fig. 20 の断面パターンの比較. (a) 横断面、(b) 縦断面に対応する. 実線が非対称反射型、点線が対称反射型モノクロメータからの単色ビーム像. ....  | 24 |

This is a blank page.

## 1. 序論

高分解能中性子粉末回折装置 HRPD(High Resolution Powder Diffractometer)は、広い散乱角に渡る高分解能の中性子粉末回折データを効率良く得ることを目的として、1990年に JRR-3 炉室の 1G 孔に建設、設置された(Fig. 1)。その構成の特徴として、

- (1) モノクロメータ前の入射コリメータ(第 1 コリメータ)、検出器前の受光コリメータ(第 3 コリメータ)の水平発散角が小さい点、
- (2) モノクロメータ散乱角  $2\theta_M$  を大きくして角度高分解能をできるだけ広い回折角で確保している点、

さらに、厳しいコリメーションの採用やモノクロメータ位置が炉心から遠ざかった為にもたらされた中性子線束強度の低下を補うため、

- (3) 垂直方向の擬湾曲型ゲルマニウム結晶モノクロメータを用いて中性子をサンプル位置で集光させている点、
- (4) 中性子検出器 64 本を  $2.5^\circ$  毎に配置して測定効率を上げている点、

が挙げられる<sup>1)</sup>。その結果、角度分散型中性子粉末回折装置としては、世界と比肩する高分解能測定を実現し、これまで、構造物性、材料科学、化学などの幅広い分野で利用され、多くの成果を上げている。しかし、建設当初と現在ではユーザーの興味も大きく変化し、所内ユーザーのみならず施設共用、及び、トライアルユースを通して外部利用者数が爆発的に増加していることもあり、高効率・高強度測定を望む声は一層増している。一般に、散乱強度と分解能は相反する要素であるため、HRPD は高強度測定に適した装置構成ではない。更に、入射ビームの分散を大きくして分解能を落としても、受光側で  $6'$  という固定式の非常に厳しいコリメータを採用しているため、十分な強度増加を確保できない。このような状況ゆえに、原子力機構では独自の手法を用いた線源側強度の増強による測定効率の向上法が企画されていた。その中で、筆者は結晶モノクロメータの改良による手法に関わることになった。モノクロメータ結晶の材質選択、モザイクの導入方法、集光法等、結晶モノクロメータによる単色化技術は既に完成の域にあると言われており、既存技術のみでの大きな強度改善は望めないため、新たに非対称反射を利用した中性子線束の圧縮による強度増強を試みた。その結果をここに報告する。

## 2. 高分解能中性子粉末回折装置 HRPD の装置構成

HRPD の概略図を Fig. 2 に、回折素子構成を Table 1 に示す。モノクロメータ前の第 1 コリメータは、測定で要求される角度分解能、散乱強度に応じて 6', 12', open のいずれかを選択可能であり、機械的な可変機構で容易に交換できる。モノクロメータ～試料間の第 2 コリメータは、20', 40' のいずれかを選択可能だが、手動で交換する必要があるため、分解能に大きく影響しないことから、通常は散乱強度を優先して 40' が使用されている。試料～検出器間の第 3 コリメータは、64 本の中性子検出器に対して各々独立に用意されている。64 本のコリメータの品質一様性、中性子透過率の保証には高精度の調整と多くの時間を要するため、第 3 コリメータについては交換機構が用意されていない。中性子の単色化は、Ge(3 3 1)面の対称反射で行われ、モノクロメータ散乱角  $89^\circ$  で波長 0.1823 nm の単色中性子ビームが得られる。このように HRPD は高分解能を得るため、モノクロメータ上流でも厳しい入射コリメータを選択し、非常に平行性の良い中性子ビームをモノクロメータに照射する。この場合、試料に入射する単色中性子ビーム強度は  $10^5$  n/s $\cdot$ cm $^2$  と非常に小さく、コリメータを使用しない場合の HRPD モノクロメータ付近での白色中性子束  $10^9$  n/s $\cdot$ cm $^2$  と比較して中性子利用効率が極端に低い。また、高分解能を得るためにモノクロメータを炉心から約 5 m と離し、ビーム発散を最大 20' 程度に抑えている。モノクロメータが炉心から約 5 m 離れた他の装置では  $3 \times 10^9$  n/s $\cdot$ cm $^2$  の中性子フラックスが得られているため、そもそも HRPD ではモノクロメータ上流の白色中性子フラックスが他の装置の 1/3 程度と弱い。一方、散乱強度確保のために、ゲルマニウム単結晶は、高温中で加圧し、モザ

Table 1: HRPD の回折素子構成<sup>1)</sup>.

|                           |   |
|---------------------------|---|
| 原子炉～モノクロメータ間距離            | : 4950 mm   |
| 第 1 コリメータ水平発散角 $\alpha_1$ | : 6', 12', open   |
| 垂直発散角                     | : $22^\circ$  |
| モノクロメータ                   | : h 20 mm $\times$ w 75 mm $\times$ t 10 mm の短冊状結晶 11 枚、縦方向に擬湾曲集光 |
| モザイク分布幅 $\eta$            | : 20'   |
| モノクロメータ散乱角 $2\theta_M$    | : $89^\circ$  |
| 波長 $\lambda$              | : (Ge 3 3 1) 0.1823 nm  |
| 第 2 コリメータ水平発散角 $\alpha_2$ | : 20', 40'  |
| 垂直発散角                     | : $27^\circ$  |
| モノクロメータ～試料間距離             | : 2450 mm   |
| サンプル容器                    | : パナジウム製, $\phi 10 \times 40$ mm                                  |
| 第 3 コリメータ水平発散角 $\alpha_3$ | : 6'  |
| 垂直発散角                     | : $15^\circ$  |
| 高さ                        | : 100 mm  |
| 試料～検出器間距離                 | : 1035 mm   |
| 中性子検出器                    | : 6 atm $^3\text{He}$ カウンター, $\phi 1$ inch                        |
| 散乱角範囲                     | : $5^\circ < 2\theta_s < 165^\circ$                               |

イク分布幅を約  $2\theta'$  まで増加させ中性子反射率を上げている。また、モノクロメータは 11 枚の短冊状結晶を垂直方向に湾曲状に配し、試料位置で縦集光している。11 枚のモノクロメータ結晶群の縦方向総寸法は約 220 mm となり、白色中性子の縦方向寸法 200 mm を全て活用している。さらに、測定効率を上げるため、64 本の中性子検出器を  $2.5^\circ$  毎に配置しており、 $0.05^\circ$  ステップで測定した場合、50 点の測定で  $5^\circ < 2\theta_s < 165^\circ$  の広い回折角範囲に渡って散乱パターンを一度に得ることができる。

### 3. 非対称反射型結晶モノクロメータの作製

#### 3.1 開発の着想点

高効率測定を考える場合、前章で示したように第3 コリメータが交換できない装置の制約上、分解能を落として散乱強度を確保する方法は現状以上を望めない。そこで、試料前の入射単色中性子については、水平方向の集光が成されていない点が注目された。標準試料容器の直径 10 mm に対し、単色化後の中性子ビーム窓は 40 mm の幅があり、試料に当たらず無駄になる中性子が多い。つまり水平方向における集光が可能ならば実効的な入射中性子強度の増加が見込めることになる。水平方向の集光手段として、結晶ベントによる方法やスーパーミラーを用いる方法があるが、いずれも波長分解能に対する影響が大きく、高分解能回折装置を標榜する HRPD には適さない。そこで、モノクロメータの非対称反射を利用した空間的な中性子線束の圧縮による集光が検討されることになった。反射率やモザイクによるビーム発散において、非対称反射と対称反射とで違いがないという前提に立てば、非対称反射では中性子線束密度の増加が多少なりとも強度増強に結びつくと考えられたからである。

#### 3.2 単色化結晶の加工 ～ 切り出し角の選定

完全結晶での非対称反射の概略を Fig. 3 に示す。結晶表面と Bragg 反射面がある角度  $\beta$  をなすとき、入射ビームと反射ビームの有効幅  $W_0, W$  は、散乱角  $2\theta$  を用いた次の関係を満たす。

$$b = \frac{|\sin(\theta + \beta)|}{|\sin(\theta - \beta)|} = \frac{W_0}{W}$$

ここで、 $b$  は非対称因子と呼ばれる。一般的な対称反射では、 $\beta = 0^\circ$  なので  $b = 1$  となり、入射ビームと反射ビームの幅は変化しない。非対称反射で  $b > 1$  のとき、 $W_0 > W$  となるので、入射ビームに対して反射ビームは空間的に圧縮され、線束密度の増加が期待できる。

本開発の最初として、非対称反射型結晶の切り出し角  $\beta$  の最適値を見積もるにあたって第ゼロ近似としてビーム圧縮による強度増加と中性子吸収による強度減衰のみを考え、散乱強度の  $\beta$  依存性を導出した。ビーム圧縮による強度増加率は Fig. 4 から、

$$W_0 = w \cos(\theta_M - \beta) + t \cos(\theta_M + \beta)$$

$$W = w \cos(\theta_M + \beta) + t \cos(\theta_M - \beta)$$

が成り立つので、既存の対称反射型モノクロメータ結晶と同じ寸法  $w = 5 \text{ cm}$ ,  $t = 1 \text{ cm}$  とモノクロメータ散乱角  $2\theta_M = 89^\circ$  を用い、 $\beta$  の関数  $W_0/W$  として与えた。一方、Fig. 5 に示すような線吸収係数  $\mu$  を持つ無限平板面を仮定すると、厚み  $dx$  の微小片で散乱される中性子強度  $I_0$  は吸収の影響により減衰され  $dI$  の強度を示す。したがって、厚み  $t$  をもつ結晶全体による散乱強度  $I$  は、

$$dI = \frac{I_0}{\sin(\theta_M + \beta)} \exp(-\mu Cx), \quad C = \frac{1}{\sin(\theta_M + \beta)} + \frac{1}{\sin(\theta_M - \beta)}$$

$$I = \frac{I_0}{\mu C \sin(\theta_M + \beta)} [1 - \exp(-\mu Ct)]$$

で表される。ゲルマニウムの線吸収係数が、中性子吸収断面積  $\sigma_a(0.18 \text{ nm}) = 2.2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ 、単位格子

中の原子数  $n = 8$ 、格子定数  $a = 0.56575 \text{ nm}$  を用いて、 $\mu = n\sigma_a/a^3 = 0.097 \text{ cm}^{-1}$  と与えられるので、散乱強度  $I$  もまた  $\beta$  の関数となる。よって、中性子吸収による強度減衰率は、対称反射 ( $\beta = 0^\circ$ ) のときの散乱強度  $I(0)$  を用いて  $I(\beta)/I(0)$  と表される。ビーム圧縮と中性子吸収による散乱強度変化率の切り出し角  $\beta$  依存性を  $W_0(\beta)/W(\beta) \cdot I(\beta)/I(0)$  として Fig. 6 に示す。 $\beta = 38^\circ$  付近にピークを持ち、それ以上では急激に強度減少する傾向を示し、この計算からは最大で約 1.7 倍程度の強度増加が期待されることになる。実際のモノクロメータ結晶平板は有限の大きさを持つので、図の傾向とは異なって  $\beta = 45^\circ$  で強度ゼロにはならず、吸収効果もこの近似より弱いことが容易に想像できるので、切り出し角の最適値として  $\beta = 40^\circ$  を選択した。

### 3.3 単色化結晶の加工 ～ モザイクの導入

中性子モノクロメータ結晶の反射率は、第二次消衰効果の影響のため、結晶に加えた加工の影響を受ける。特にゲルマニウム単結晶は、高純度でほとんど格子欠陥を含まない、極めて完全結晶に近いものしか入手できないため、そのままでは消衰効果による散乱強度の大幅な低下が起こる。したがって、適当なモザイク分布を導入し中性子の反射率を上げるため、高温加熱しつつ加圧するホットプレス加工が必須となる。ところが、モノクロメータ結晶のホットプレス加工は、大抵が経験に基づくものであり、加工が反射率に及ぼす影響を系統的に調べた報告例は極めて少ない。これは、ゲルマニウム単結晶自体が高価(331)面を出した  $\phi 100 \text{ mm} \times t 6 \text{ mm}$  の円板 1 枚で 10～12 万円)であること、ゲルマニウム結晶全体でモザイク分布の均一性を得るのが容易ではないことが理由と考えられる。幸い JRR-3 ガイドホール T1-4 ポートに建設された東北大学金属材料研究所の高効率中性子粉末回折装置 HERMES<sup>2)</sup>は、その回折素子構成が HRPD と近しく、筆者はその建設過程を目にしていた。かつ、モノクロメータ建設時のデータも残されていたので、本開発におけるホットプレス加工に際する加熱加圧装置の作製、温度条件、加圧条件の選定にあたって参考とさせていただいた<sup>3)</sup>。

ホットプレス加工における圧力が反射率に及ぼす影響を Fig. 7 に示す<sup>3)</sup>。データは、 $h 40 \text{ mm} \times w 40 \text{ mm} \times t 6 \text{ mm}$  のゲルマニウム板を試料とし、波長  $0.1527 \text{ nm}$  の中性子を用いて得られる 331 反射のロッキングカーブから求められ、高配向黒鉛(HOPG: highly oriented pyrolytic graphite)の 002 反射に対する比として表している。ホットプレスは、 $850^\circ\text{C}$  で [3 3 1] 方向に 1 分間加圧する処理を  $40 \sim 130 \text{ kgf/cm}^2$  ( $1 \text{ kgf/cm}^2 = 98.0665 \text{ kPa}$ ) の圧力範囲で施している。図から判るように、ピーク強度については  $80 \text{ kgf/cm}^2$  以上でほぼ一定となるが、積分強度については圧力上限まで緩やかな増加傾向が見られる。積分強度の増加傾向は、Fig. 8 に示すホットプレス加工の圧力とロッキングカーブの半値全幅 (FWHM: full width at half maximum) の関係<sup>3)</sup>と良く対応している。これは、半値全幅の増加、すなわち、モザイク幅の拡大とともにコリメーションの悪い反射中性子によって積分強度が増していることを意味する。この結果をもって東北大学の HERMES では  $80 \sim 100 \text{ kgf/cm}^2$  を加圧の最適値とし、約 8' 程度のモザイク幅のモノクロメータ結晶を用いている。

モノクロメータとして使用する場合、コリメーションの悪い中性子を増やすことは分解能の悪化を招くが、HRPD では分解能決定の大部分を厳しいソーラーズリット型コリメータに依っているので、モノクロメータは可能な限り反射率を高める方が反射強度の面で有利と考えられる。上記の結果から、 $130 \text{ kgf/cm}^2$  以上の加圧範囲でも反射率増加の余地を残しているため、本開発ではピーク強度最大を維

持しつつ、よりモザイク幅の大きい結晶が得られる加圧条件を模索することにした。条件の模索にあたって、(3 3 1)面に対する加圧値として 80, 200, 300 kgf/cm<sup>2</sup> の 3 つを比較することにした。非対称反射型結晶は、(3 3 1)面が切削結晶表面に対して  $\beta = 40^\circ$  の角度を成すので、(3 3 1)面に垂直に加わる圧力が 80, 200, 300 kgf/cm<sup>2</sup> となるよう、切削表面に対してそれぞれ  $1/\cos 40^\circ = 1.31$  倍の 105, 261, 392 kgf/cm<sup>2</sup> を加圧した。これらの圧力から予想されるモザイク幅は Fig. 8 に示す比例関係が成り立つと仮定して、それぞれ 8', 20', 30' となる。ホットプレス加工の加熱・加圧は Fig. 9 のような自作の加熱炉を用いて大気中で行い、Fig. 10 にまとめた過程に沿って行った。ホットプレスするゲルマニウム結晶は、既に原子力機構で所有していた円柱状のインゴットを Fig. 11 に示すように(3 3 1)回折面と切削面が  $\beta = 40^\circ$  になるよう t 10 mm の楕円状板に切り出し、ホットプレス加工後、モノクロメータ結晶として使用する h 20 mm × w 50 mm × t 10 mm の短冊形に成形した。なお、短冊結晶の切削面の研磨は行わなかった。短冊形に切削した完全結晶、モザイク結晶(105, 261 kgf/cm<sup>2</sup>加圧)のロッキングカーブを Fig. 12 に示す。測定はガイドホール T2-4 に設置された TAS-2 の Si(3 1 1)モノクロメータを用い、波長 0.16 nm、コリメーション 80' - s - 80' - 80'、ビーム窓 h 20 mm × w 50 mm で行った。ホットプレス後のモザイク幅は、ほぼ想定通りであり、261 kgf/cm<sup>2</sup> の加圧条件がピーク幅、ピーク強度ともに最も大きい。一方、392 kgf/cm<sup>2</sup> を加圧した場合、ホットプレス後の結晶にヒビ割れ、変形といった弾性限界点を超える加圧の兆候が認められた。ロッキングカーブも理想的なガウス分布から大きく外れた形状を示し、ピーク強度が 800 counts/10 sec 程度と 261 kgf/cm<sup>2</sup> 加圧の場合に比べて大幅に落ち込む結果となった。さらに、同じ 261 kgf/cm<sup>2</sup> 加圧で幾つかの結晶をホットプレス加工した場合、18' ~ 20' のモザイク幅を境にこれより大きいモザイク幅の結晶は、ピーク強度が減少する傾向を示した。よって、本開発におけるゲルマニウム結晶の最適加圧値は、「(3 3 1)面に対して 200 kgf/cm<sup>2</sup> = 切削表面に対して 261 kgf/cm<sup>2</sup> (モザイク幅 ~ 18')」程度と判断した。

### 3.4 単色化結晶の取り付け調整

モノクロメータの集光機構の構築にあたって、ホットプレス加工を施した短冊形のモザイク結晶を 11 枚準備し、縦方向の集光が可能なモノクロメータ台に取り付けた後、様々な調整を行った。モノクロメータ台は既存のものを流用し、縦方向のチルト回転軸が Ge 3 3 1 回折面と平行になるよう、Fig. 13 に示すようなクランク状の結晶ステージを別途作製した。モノクロメータ台は中心の結晶のみチルト角が固定される一方、上下各 5 枚の結晶が各々独立にステッピングモーターによる  $\pm 6^\circ$  のチルト角可動範囲を持つので、試料位置に合わせて集光調整が可能である。また、全ての結晶に対して、微調スクリューによる結晶角の手動調整機構が独立に備えられている。縦集光調整は、実際に HRPD のモノクロメータハウジングへ導入して行うので、予め結晶角の精密手動調整を行った。調整のためのロッキングカーブ測定は、ガイドホール T2-3 に設置された MUSASI-high<sup>4)</sup> の Si 3 1 1 面水平ベントモノクロメータを用いて、波長 0.22 nm、コリメーション m - open - s - 20'、ビーム窓 h 20 mm × w 40 mm で行った。ここで 11 枚の結晶は、ロッキングカーブを比較してピーク強度の強い結晶から順にモノクロメータ台の中心に近い位置に配した。結晶角は、中心の結晶を基準として  $\pm 0.05^\circ$  の精度でロッキングカーブのピーク位置が揃うよう残り 10 枚を調整した。中心結晶 1 枚だけのロッキングカーブ、および、結晶角調整後の全結晶 11 枚のロッキングカーブの和を Fig. 14 に示す。結晶間のモザイク幅にばらつ

きがあるため、最もピーク強度が強い、理想的なモザイク幅をもつ中心結晶のモザイク幅～18' に比べて、総和のモザイク幅は約22' と若干広めではあるが、ほぼ想定通りの値が得られた。

## 4. 非対称反射型結晶モノクロメータの導入

### 4.1 粉末標準試料による散乱強度評価

結晶角調整を済ませた非対称反射型モノクロメータを JRR-3 炉室 1G 孔の既存の対称反射型モノクロメータに換えて導入し、実際の効果を検証した。はじめに、中心部の 1 枚結晶だけのダイレクトビームを用いてモノクロメータ台全体の rotation, tilt, translation 調整を行った。次に 11 枚の全結晶による focusing 調整を行うため、モニターカウンターを試料位置に置き、各結晶の tilt 角を変えたときの強度変化を測定した。強度変化を精度良く計測するため、カドミウム板を用いてビームセンター部分だけ h 10 mm の開口窓を設けビームを絞った。測定で得られた強度変化曲線を Gaussian でフィッティングし、そのピーク値を最適フォーカス位置とした。以上の調整後、粉末標準 Si 試料の回折プロファイルを直接比較し、散乱強度、分解能による性能評価を行った。

Fig. 15 に非対称反射型(実線)、および、対称反射型(点線)モノクロメータで測定した粉末標準 Si 試料( $\phi$  6 mm x h 40 mm)の散乱パターンを示す。上から順に第 1 コリメータ 6', 12', open の場合に対応している。データはすべてモニターカウントで規格化しており、見易くするため対称反射型モノクロメータの散乱パターンのみ散乱角 +2° のオフセットを設けている。また、分解能の目安としてこれらの散乱ピークから得られた FWHM の散乱角依存性を Fig. 16 に示す。第 1 コリメータ 6', 12' の場合、ピーク強度では約 1.2 倍と増したものの、分解能も向上したため、積分強度では対称型の場合とほぼ変わらない結果となった。ピークプロファイルを詳細に比較すると、第 1 コリメータを導入している場合には Gaussian 型の良好な単一ピークを示し、RIETAN-2000<sup>5)</sup> による散乱パターン全フィッティングの一致精度も非対称反射型モノクロメータの方が良い。しかし、第 1 コリメータ open のケースでは、(1) 低角の散乱ピークのみ極端に強度比の大きなずれを示す、(2) 散乱ピークに割れが見られ、分解能の悪化に繋がっている、といった深刻な問題がみられた。実際、RIETAN-2000 によるパターンフィッティングの一致精度も悪く、精密構造解析に耐えるデータとはなり得ない。例として 440 反射のピークプロファイルの比較を Fig. 17 に示す。図中に Gaussian によるフィッティングの結果も併せて実線で記した。いずれにしても、3.2 節で示したビーム圧縮率と中性子吸収のみを考慮した計算から期待

Table 2: 粉末 Si 標準試料における各回折ピークの強度比  $I_{\text{asymmetric}}/I_{\text{symmetric}}$  .

| 指数              | 111  | 220  | 311  | 400  | 331  | 422  | 511, 333 | 440  |
|-----------------|------|------|------|------|------|------|----------|------|
| 第 1 コリメータ: 6'   |      |      |      |      |      |      |          |      |
| ピーク強度比          | 1.36 | 1.23 | 1.18 | 1.06 | 1.09 | 1.15 | 1.18     | 1.26 |
| 積分強度比           | 0.95 | 0.95 | 0.95 | 0.96 | 0.92 | 0.94 | 0.92     | 0.94 |
| 第 1 コリメータ: 12'  |      |      |      |      |      |      |          |      |
| ピーク強度比          | 1.34 | 1.19 | 1.07 | 1.03 | 0.95 | 1.03 | 1.11     | 1.13 |
| 積分強度比           | 0.91 | 0.93 | 0.92 | 0.90 | 0.92 | 0.95 | 0.91     | 0.89 |
| 第 1 コリメータ: open |      |      |      |      |      |      |          |      |
| ピーク強度比          | 1.47 | 1.02 | 0.96 | 0.90 | 0.99 | 0.99 | 1.04     | 1.08 |
| 積分強度比           | 1.07 | 1.11 | 1.10 | 1.08 | 1.10 | 1.09 | 1.11     | 1.06 |

される 1.7 倍の散乱強度増加は見られず、本来目的の達成に至らぬ結果となった。

#### 4.2 中性子イメージングプレートによる単色化ビーム強度分布の評価

粉末標準試料の散乱プロファイル比較から明らかのように、非対称反射の利用では期待通りの強度増強効果が得られなかっただけでなく、ピークプロファイルの割れ問題も浮上している。そこで、中性子イメージングプレート(IP)を用いて対称反射型、および、非対称反射型モノクロメータそれぞれの単色化ビーム強度分布を比較し、それらの原因を探った。

はじめにモノクロメータ遮蔽体のビーム出射孔前で撮影した中性子 IP 像を Fig. 18 に示す。撮影位置は Fig. 2 中の Monitor Counter 前に相当し、モノクロメータから 1110 mm の距離にあり、コリメーション 6'-m-open-IP、露光時間 10 秒の条件で撮影した。Fig. 18 中の(b)がビーム中心に対応する。図から判るようにビーム出射孔前の位置では、非対称反射の IP 像は対称反射の IP 像よりビーム幅が狭く、圧縮による横集光効果が確認できる。しかし、像自体のぼやけ方から、ビーム発散の兆候が同時に現れていると考えられる。強度分布をより詳細に見るため、IP 像の断面強度分布パターンを Fig. 19 に示した。(a)~(d)は Fig. 18 中に記した位置での横断面にそれぞれ対応する。縦軸は中性子 IP 読み取り時の輝尽性蛍光(PSL: photo-stimulated luminescence)強度で表している。目安として試料中心位置と試料容器の  $\phi$  10 mm 幅に相当する灰色帯も図示した。断面パターンからも判るように対称反射の場合、強度分布は天辺がほぼ平坦で幅広なのに対し、非対称反射の場合は高いピークを示し線幅がより狭いことから、確かにビーム圧縮効果が認められる。しかし、形は矩形状でなく、幾何学的関係から計算される圧縮幅  $W \sim 15$  mm より広がっていることもビーム発散を強く示唆している。そして最も問題なのは非対称反射の強度分布が明瞭な双ピーク形状を示していることである。前節 4.1 に記した第 1 コリメータが open のときに見られる回折プロファイルの割れの要因は、この単色化ビーム強度の空間不均一性である可能性が高い。モノクロメータ結晶のモザイク分布不均一性、モノクロメータ結晶の表裏面の未研磨による表面反射率増加、モノクロメータ前の白色中性子ビームの空間不均一性等、双ピーク出現の要因となりそうな可能性は幾つか挙げられるが、モノクロメータ台の放射化やマシントイムの過密日程、遮蔽体の大規模な移動作業の必要性など様々な障害や困難があり、その特定には至っていない。

次に試料位置で撮影した中性子 IP 像を Fig. 20 に示す。試料位置は Fig. 2 中の Sample Position に相当し、モノクロメータから 2450 mm も離れている。撮影はコリメーション 6'-m-open-IP、露光時間 10 秒の条件で行った。Fig. 20 中の(a)がビーム中心に対応する。モノクロメータから 1100 mm の位置で既にビーム発散の兆候が IP 像で確認されたが、試料位置に至ってはこの傾向が更に強まり、強度スポットの大きさ、濃度において非対称反射像、対称反射像ともにほぼ変わらないことが Fig. 20 から判る。Fig. 21 は強度分布をより詳細に示した IP 像の断面強度分布パターンである。(a), (b)は Fig. 20 中に示した横方向、縦方向の断面にそれぞれ対応している。図の縦軸は中性子 IP 読み取り時の PSL 強度で表している。また、試料中心位置と試料容器の標準的な寸法  $\phi$  10 mm  $\times$  h 40 mm に相当する有効ビーム領域を併せて灰色帯として図示した。

## 5. 考察および結論

当初、非対称反射を用いた反射ビームの空間的圧縮による線束密度増加は、3.2節で示したようにモノクロメータ結晶による中性子吸収を差し引いても十分な効果が得られると考えられていた。そもそも中性子の反射率やモザイクによるビーム発散は、非対称反射と対称反射とで相違ないという前提で開発が進められていた。しかし、過去の文献<sup>6),7)</sup>を詳細に辿ってみると、モザイク結晶においてビーム圧縮される非対称反射のケースでは反射率が対称反射とは異なることが判明した。

Werner & Arrott は、理想的なモザイク結晶における中性子の Bragg 散乱の伝搬について詳細に議論している<sup>6)</sup>。まず、Fig. 2 に示したような無限厚みを持ち、中性子の吸収がなくモザイク分布が均一な理想的モザイク結晶を考える。このような結晶での中性子散乱強度  $I$  の最大値は、入射強度  $I_0$  と次のような関係にあることが導かれる。

$$I = I_0 \quad \text{for } b < 1$$

$$I = \left| \frac{\sin(\theta - \beta)}{\sin(\theta + \beta)} \right| I_0 \quad \text{for } b > 1$$

上がビーム拡大、下がビーム圧縮のケースに相当する。ここで下式の右辺における  $I_0$  の係数は  $1/b$  に他ならず、反射率は  $R = I/I_0 = 1/b$  と書ける。すなわち、非対称反射でビームが圧縮されるケースでは対称反射に比べて反射率が抑制されることを意味する。一方、非対称反射によるビーム強度の圧縮比は 3.2 節に示したとおり次式で表される。

$$\frac{W_0}{W} = \left| \frac{\sin(\theta + \beta)}{\sin(\theta - \beta)} \right| = b$$

この式から、ビーム圧縮される非対称反射では  $b$  の比率に等しい中性子線束密度の増加による強度増強が得られそうに思える。しかし、先に示した反射率  $R = 1/b$  での損失と相殺するので、線束密度は通常の対称反射と変わらない、と結論づけられている。

ゲルマニウムの単結晶をモノクロメータとして用いる場合、中性子の反射率を上げるためのホットプレス加工によるモザイク導入は必須であり、結果としてモザイクによるビームの分散が避けられない。しかも、モザイク結晶におけるビーム圧縮ケースの非対称反射では非対称度に伴う反射率の抑制が中性子線束密度の増加と相殺し増強効果が得られない。したがって、対称反射と同等の強度しか得られないというのが理論予測となるが、実際の導入検証はこれとほぼ矛盾無かったというのが結論である。今後もし非対称反射型モノクロメータの更なる検討、ひいては、強度増強を実行しようとするのであれば、結晶の材質選択、反射率を確保する手段、モノクロメータ-サンプル間距離の短縮など本質的な部分での大幅な条件変更、装置改良が必要だろう。

## 謝辞

本開発を進めるにあたり、多くの方々にご協力いただいた。ここに心より感謝の意を表す。モノクロメータ結晶の評価、加工、取り付け調整等の実作業において、アドバンスト・マシン・工場の皆川宣明氏、先端基礎研究センターの目時直人氏、金子耕士氏、中性子残留応力解析研究グループの盛合敦氏、鈴木裕士氏、町屋修太郎氏、下条豊氏には多大なるご助言、ご協力を頂いた。また、モノクロメータ結晶のホットプレス加工に関して、東北大学金属材料研究所の大山研司准教授、山口泰男名誉教授には多くのご助言を頂き、さらに HERMES の貴重な開発データや実際のサンプルピースまでご提供いただいた。最後に、ご多忙中にもかかわらず、快くご尽力下さった皆様に改めて深く感謝し筆を擱くことにする。

## 参考文献

- 1) 森井幸生: “3. 角度分散型中性子粉末回折 [特集 粉末回折法の新しい展開]”, 日本結晶学会誌 34, pp. 62-69 (1992).
- 2) K. Ohoyama, T. Kanouchi, K. Nemoto, M. Ohashi, T. Kajitani and Y. Yamaguchi: “The New Neutron Powder Diffractometer with a Multi-Detector System for High-Efficiency and High-Resolution Measurements”, Jpn. J. Appl. Phys. 37, pp. 3319-3326 (1998).
- 3) 叶内朋則: 修士論文, 東北大学 (1996).
- 4) 目時直人, 金子耕士: “JRR-3 ガイドホールにおける T2-3 多目的単色熱中性子ビームポート「武蔵」(Multi-Purpose Thermal Neutron Application and Science)の新設 -Technical Note-”, 日本中性子科学会誌「波紋」 16, pp. 120-122 (2006).
- 5) F. Izumi and T. Ikeda: “A Rietveld-Analysis Program RIETAN-98 and its Applications to Zeolites”, Mater. Sci. Forum 321-324, pp. 198-203 (2000).
- 6) S. A. Werner and A. Arrott: “Propagation of Bragg-Reflected Neutrons in Large Mosaic Crystals and the Efficiency of Monochromators”, Phys. Rev. 140, pp. A675-A686 (1965).
- 7) G. Albertini, A. Boeuf, S. Lagomarsino, S. Mazkedian, S. Melone and F. Rustichelli: “Evidence for the Fankuchen Effect in Neutron Diffraction by Curved Crystals”, Acta. Cryst. A33, pp. 360-365 (1977).

図表

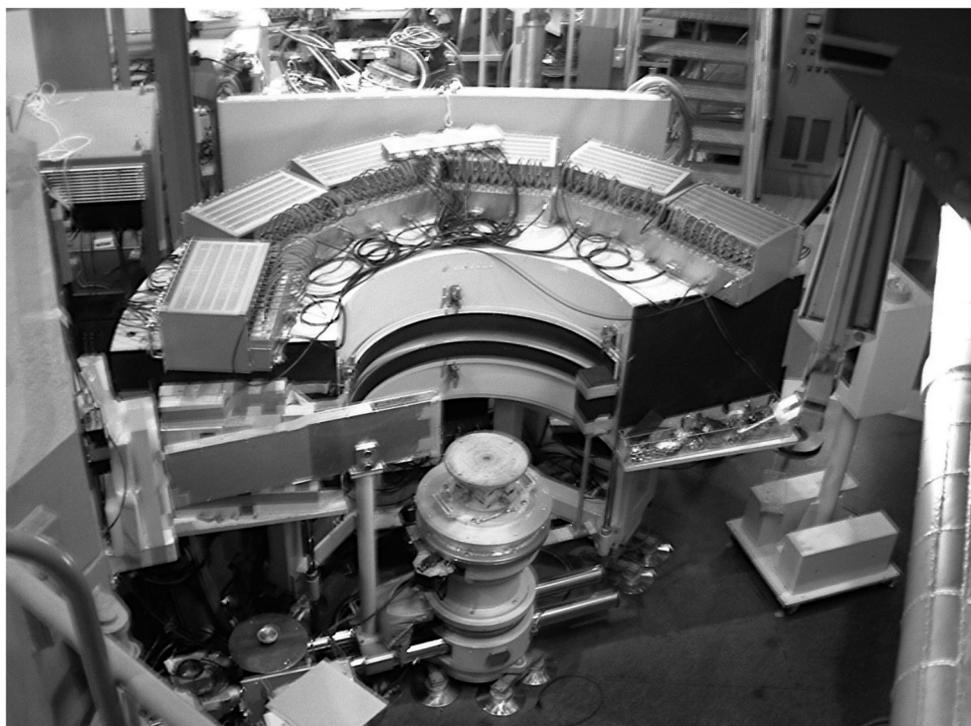


Fig. 1: 高分解能中性子粉末回折装置 HRPD の写真(JRR-3 の1G 孔にて).

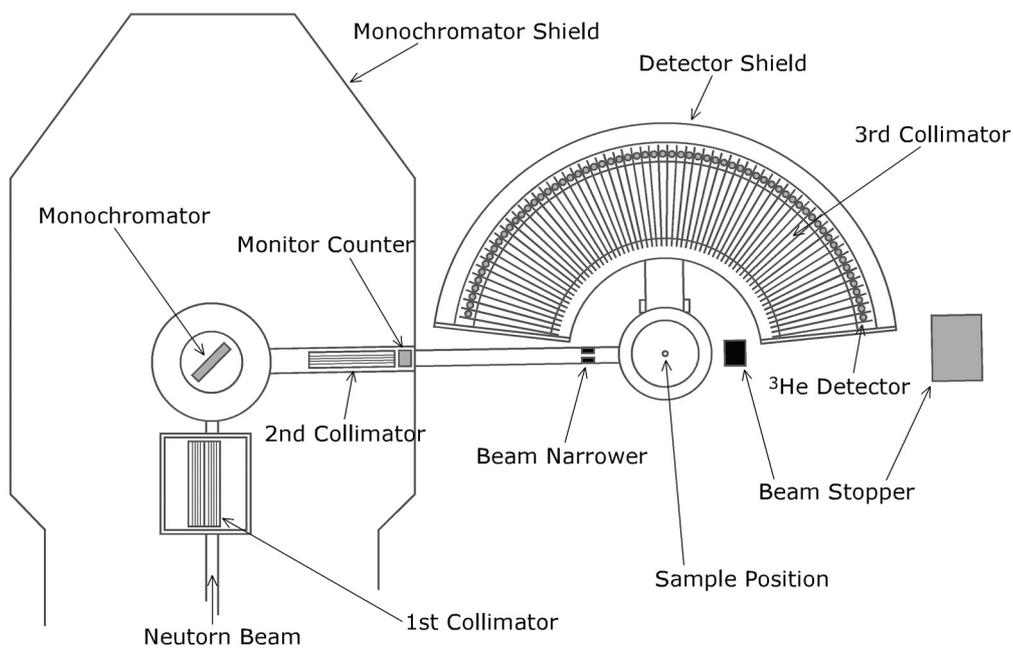


Fig. 2: 高分解能中性子粉末回折装置 HRPD の概略図.

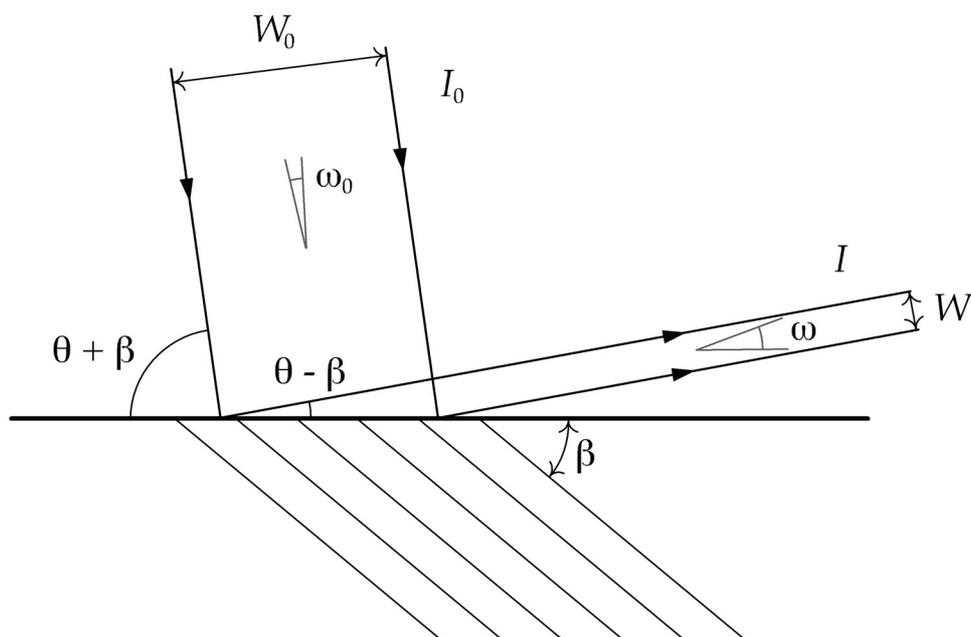


Fig. 3: Bragg ケースの非対称反射におけるビームの働き.

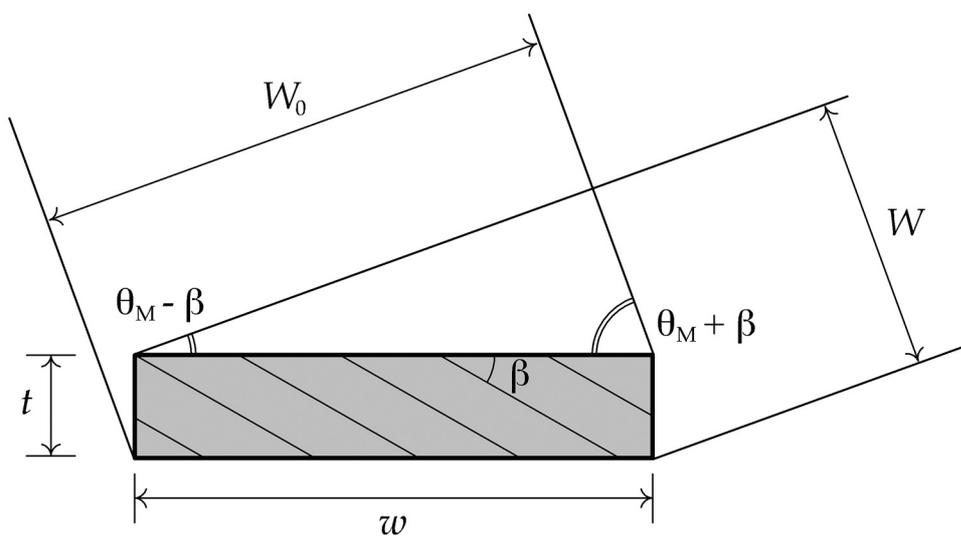


Fig. 4: 実際の結晶における非対称反射(Bragg ケース)の幾何学的関係.

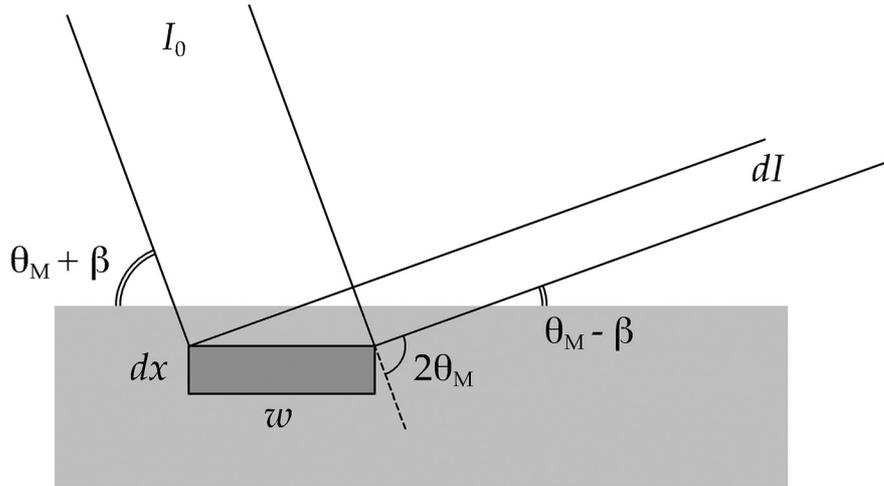


Fig. 5: 結晶中での吸収効果.

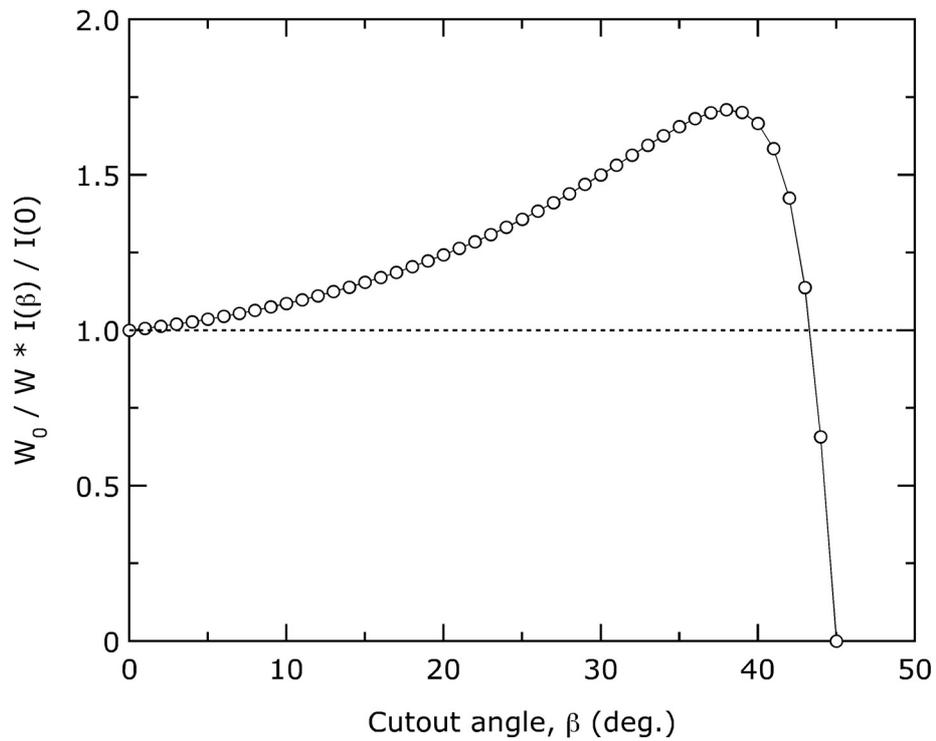


Fig. 6: ビーム圧縮による中性子束増加  $W_0(\beta)/W(\beta)$ 、中性子吸収による減衰効果  $I(\beta)/I(0)$  の積から求めたビーム強度の増加率と非対称切り出し角度  $\beta$  の関係.

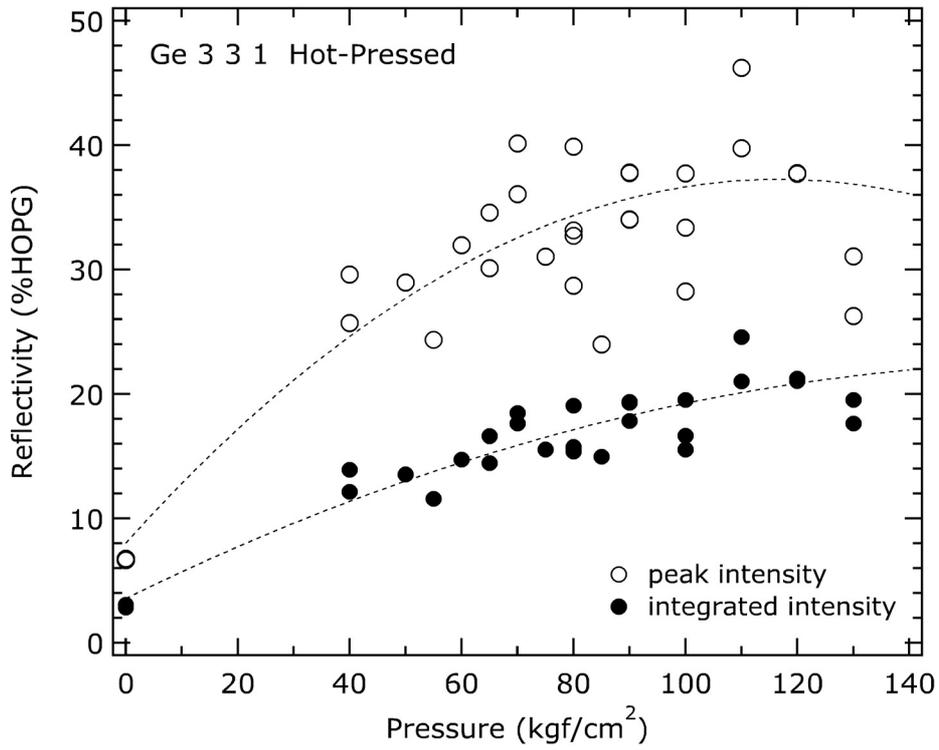


Fig. 7: Ge 331 反射のピーク強度、積分強度のホットプレス加圧圧力による変化<sup>3)</sup>.

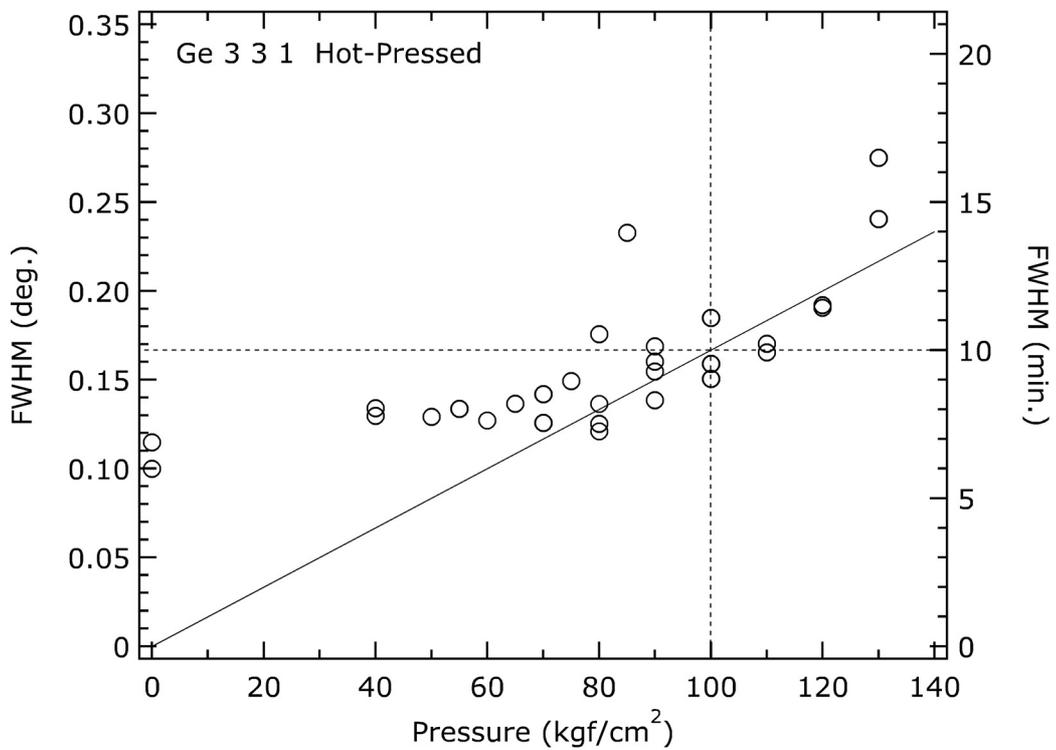


Fig. 8: Ge 331 反射の半値全幅のホットプレス加圧圧力による変化<sup>3)</sup>.

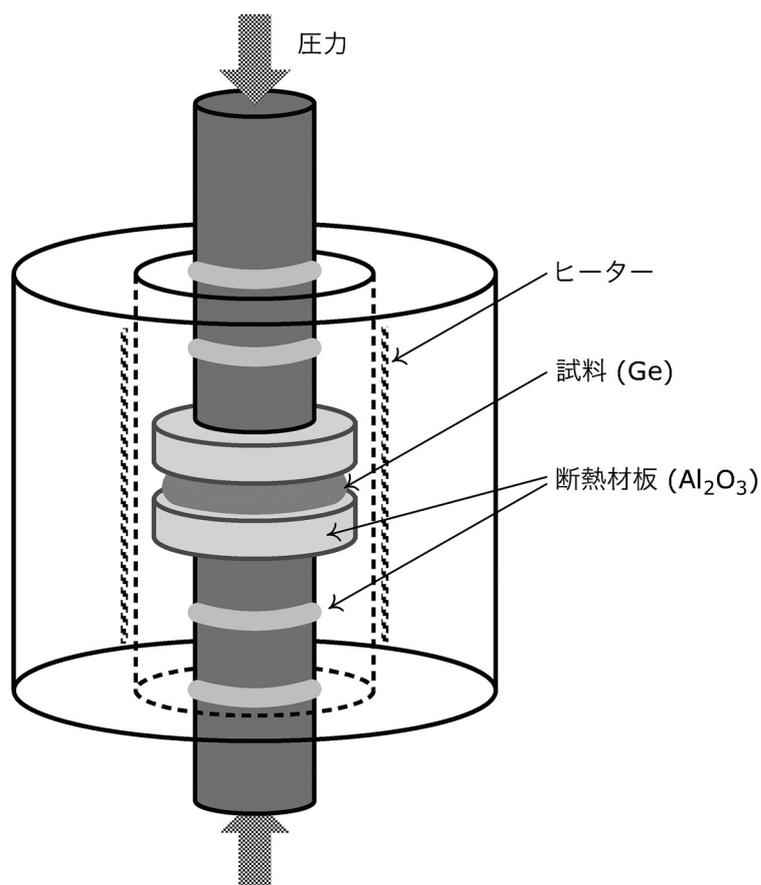


Fig. 9: ホットプレス加工のための加熱加圧装置の概略図.

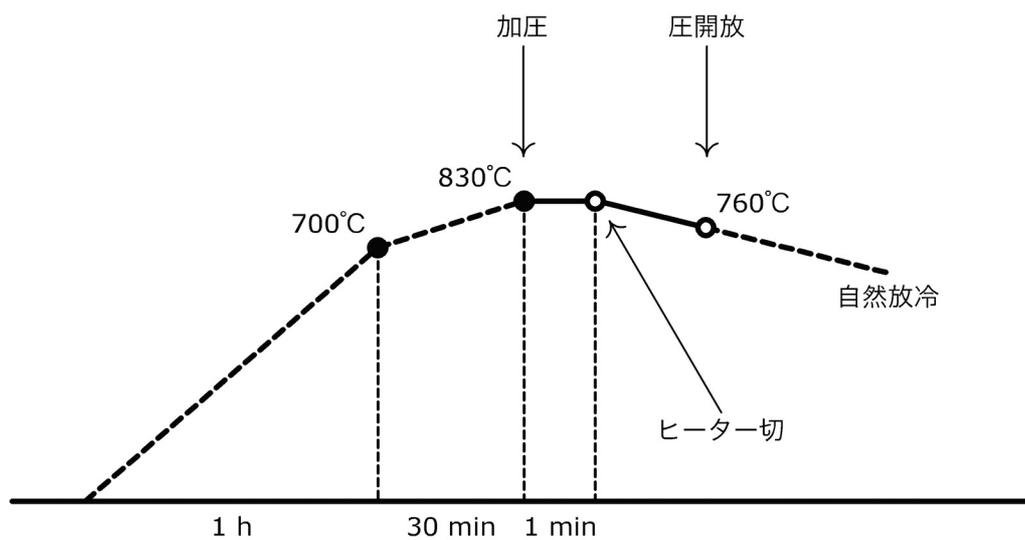


Fig. 10: ホットプレス加工における加熱加圧過程.

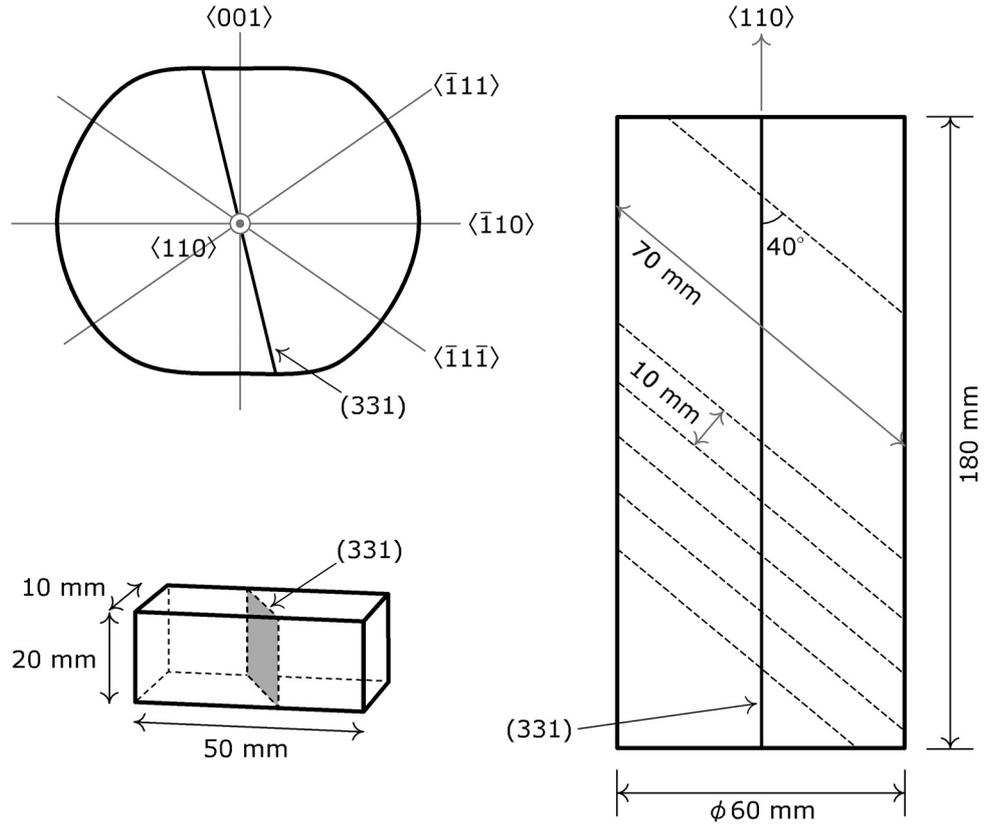


Fig. 11: Ge ingot の切削方法(左上、右)とモノクロメータ用に成形した短冊結晶(左下).

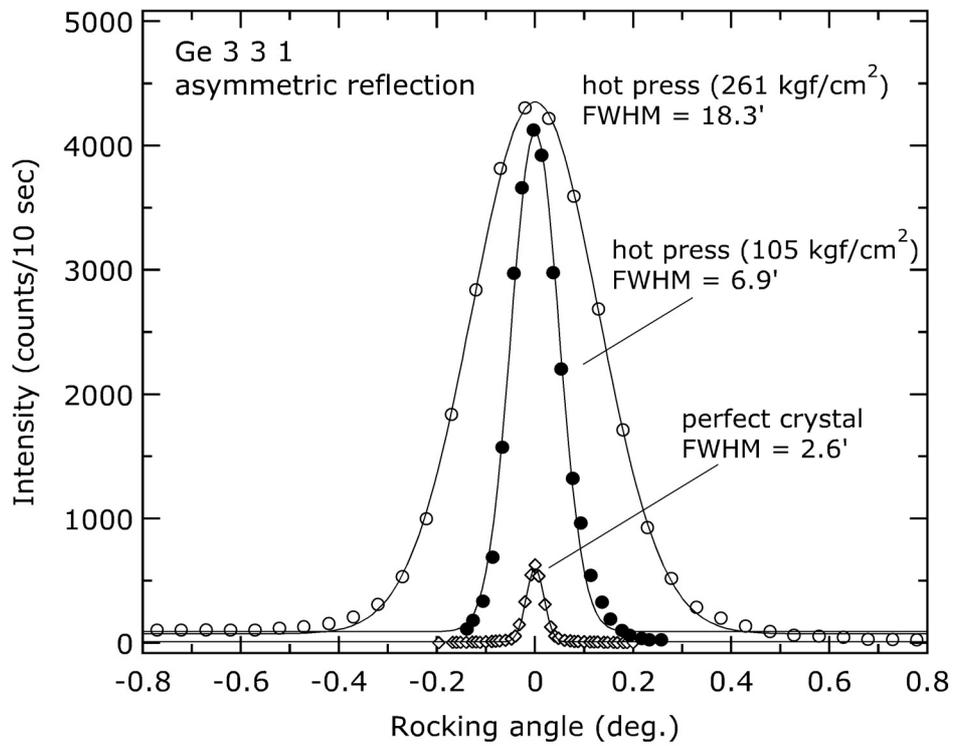


Fig. 12: ゲルマニウム単結晶におけるホットプレス加工によるモザイク分布の変化.

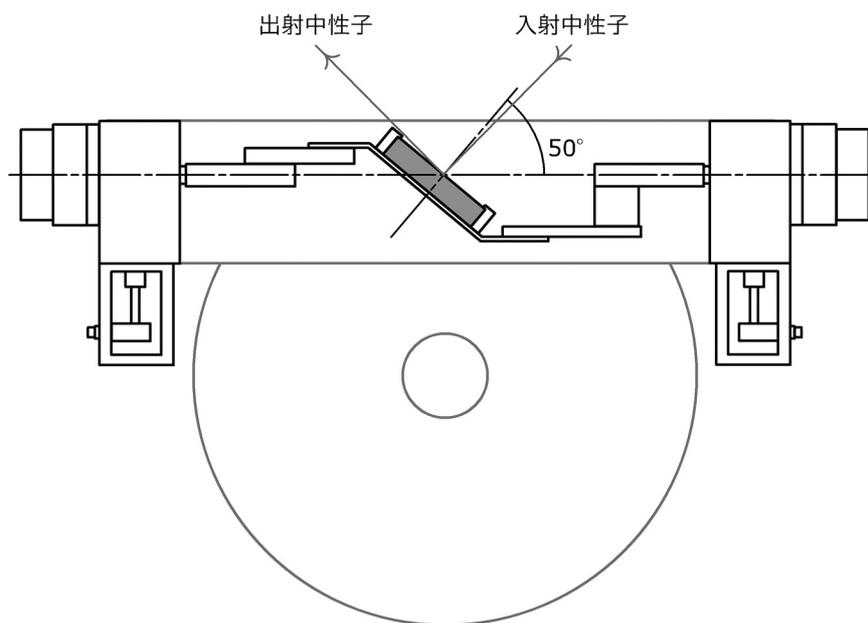


Fig. 13: 非対称反射型モノクロメータの結晶取り付けに関する概略.

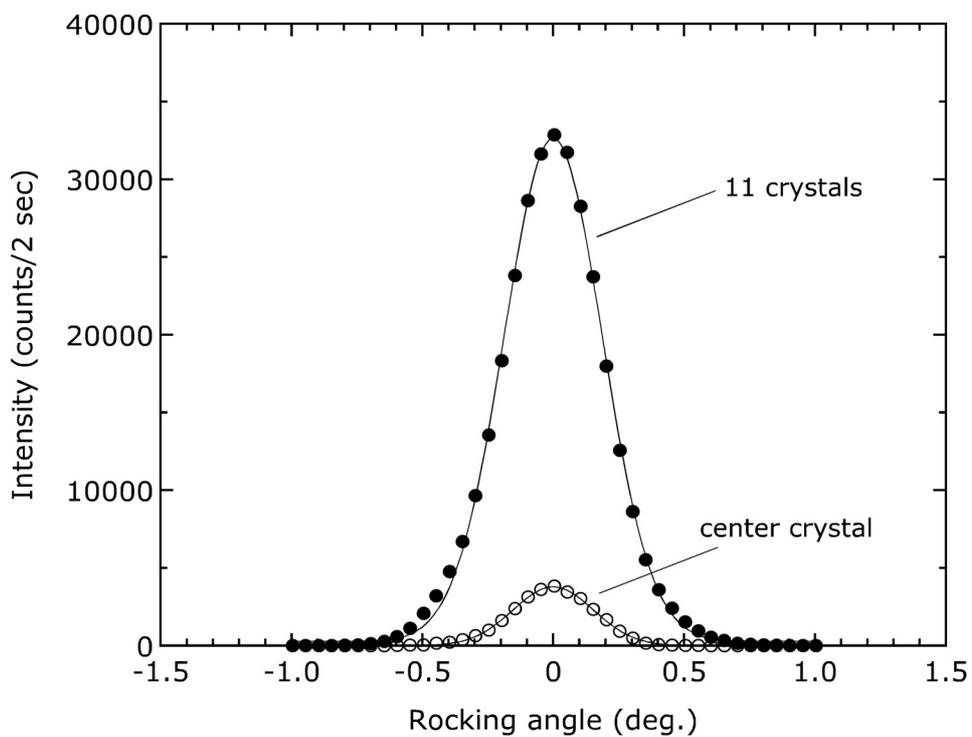


Fig. 14: 縦集光効果. 実線は Gaussian による fitting 結果.

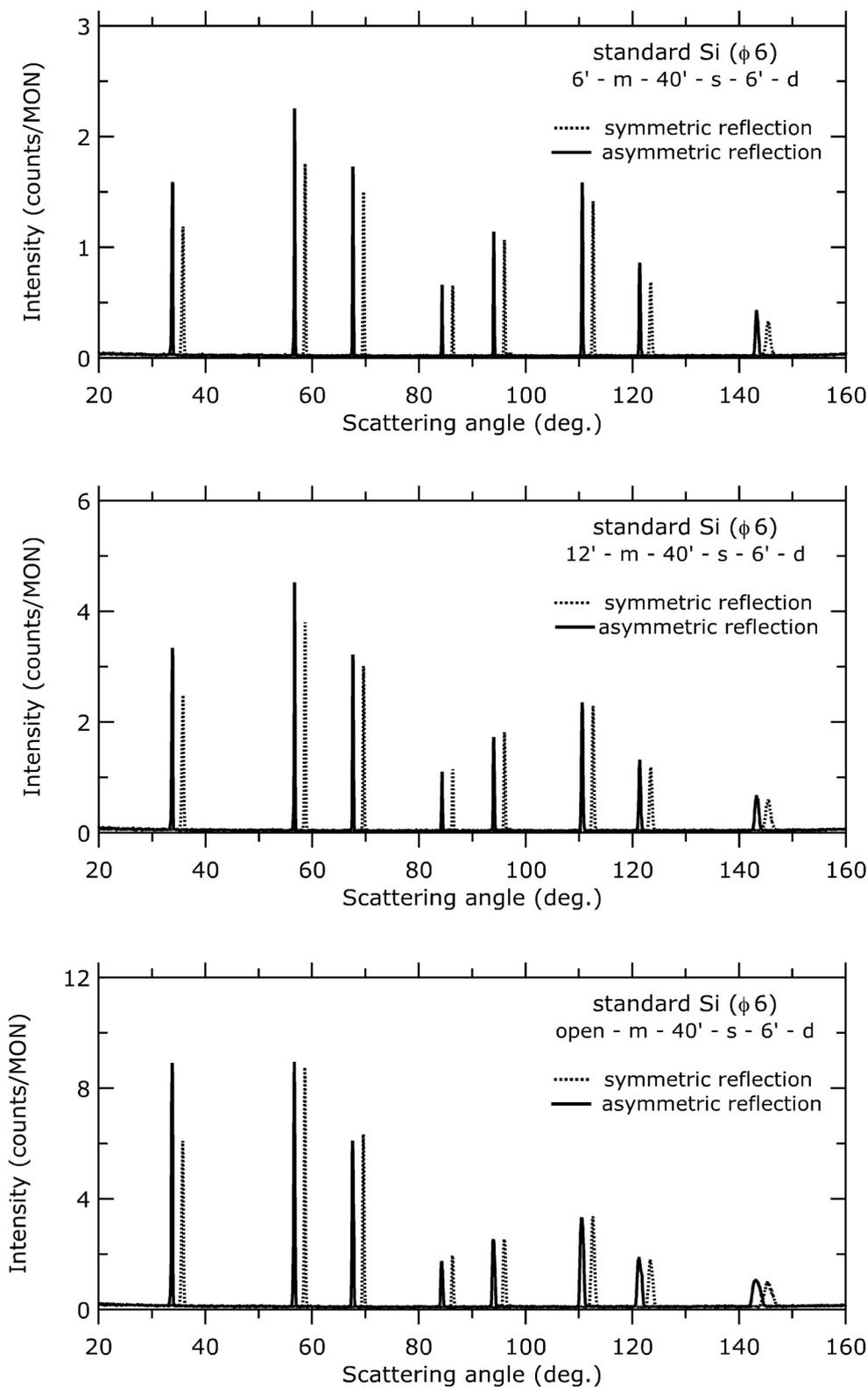


Fig. 15: 粉末標準試料(NIST 640c Si)を用いた散乱パターンの比較.

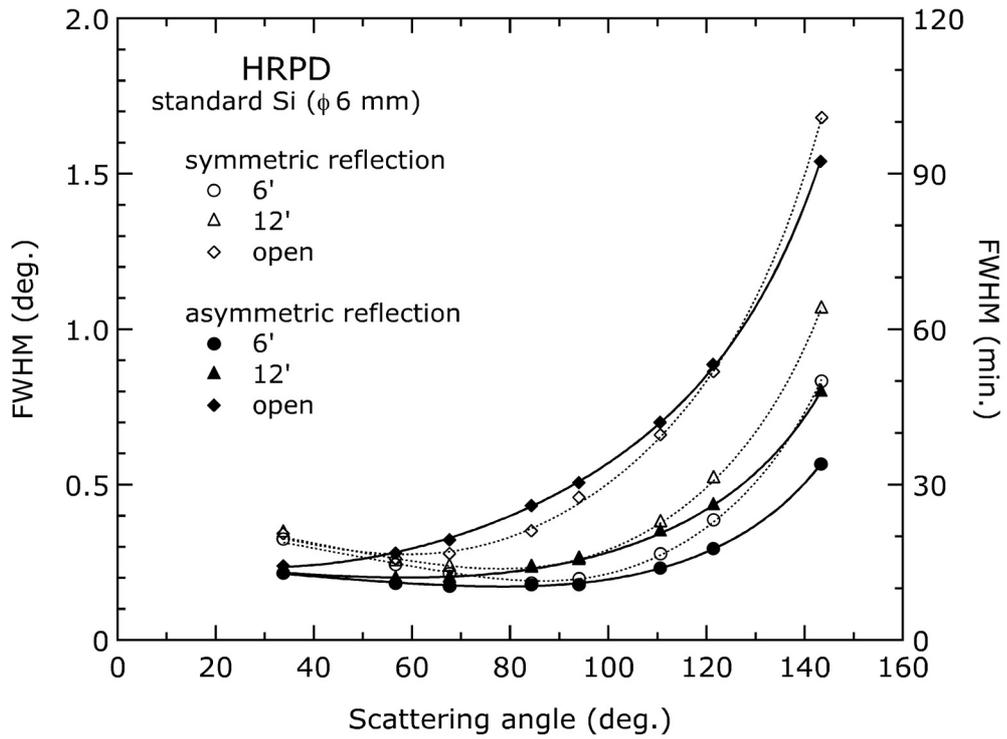


Fig. 16: 分解能の散乱角依存性.

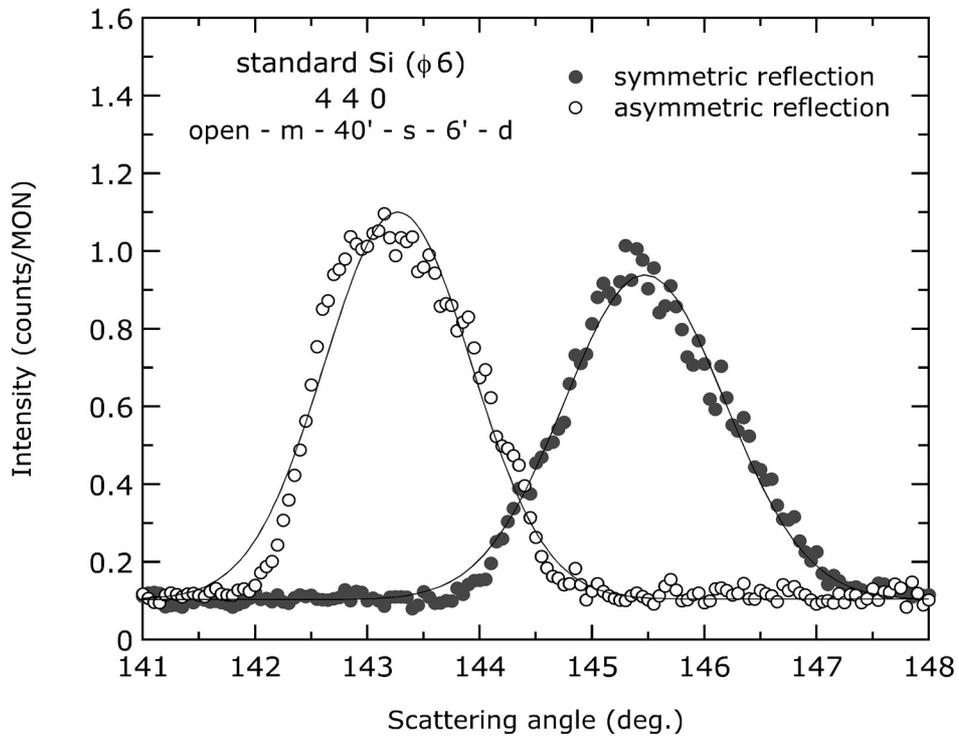


Fig. 17: 標準 Si 試料における 4 4 0 Bragg 反射のピークプロファイル比較.

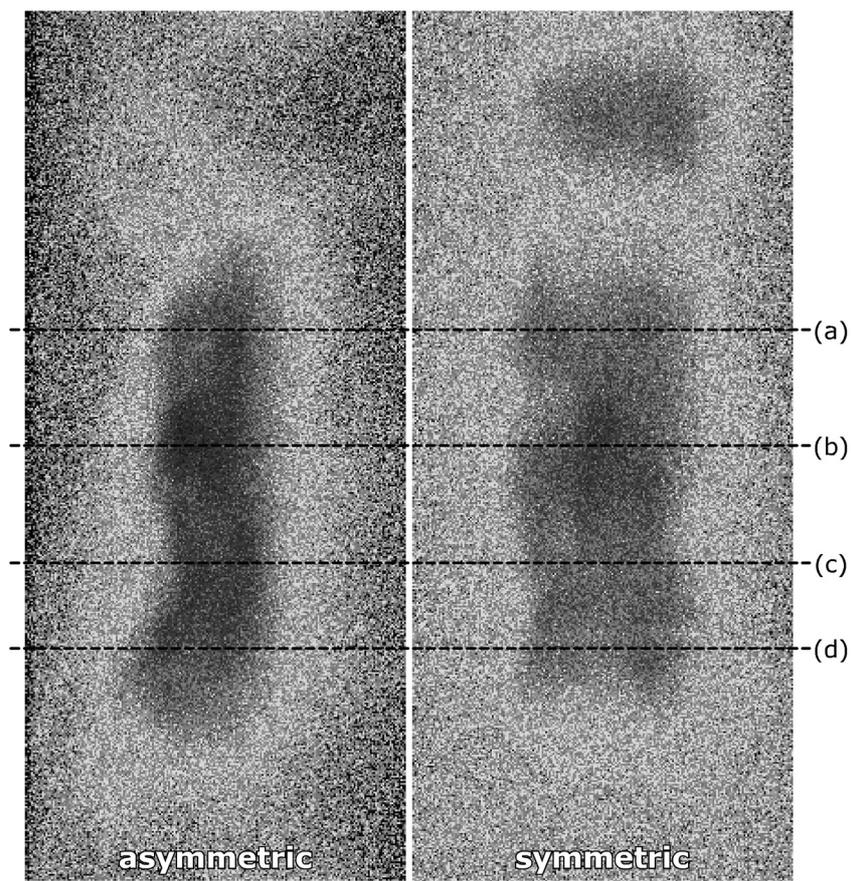


Fig. 18: 対称反射と非対称反射の中性子 IP 像の比較. 撮影位置はモノクロメータ遮蔽体のビーム出射孔前(Fig. 2 の Monitor Counter 前). モノクロメータからの距離は 1110 mm. コリメーションは 6'-m-open-IP. 露光時間 10 秒.

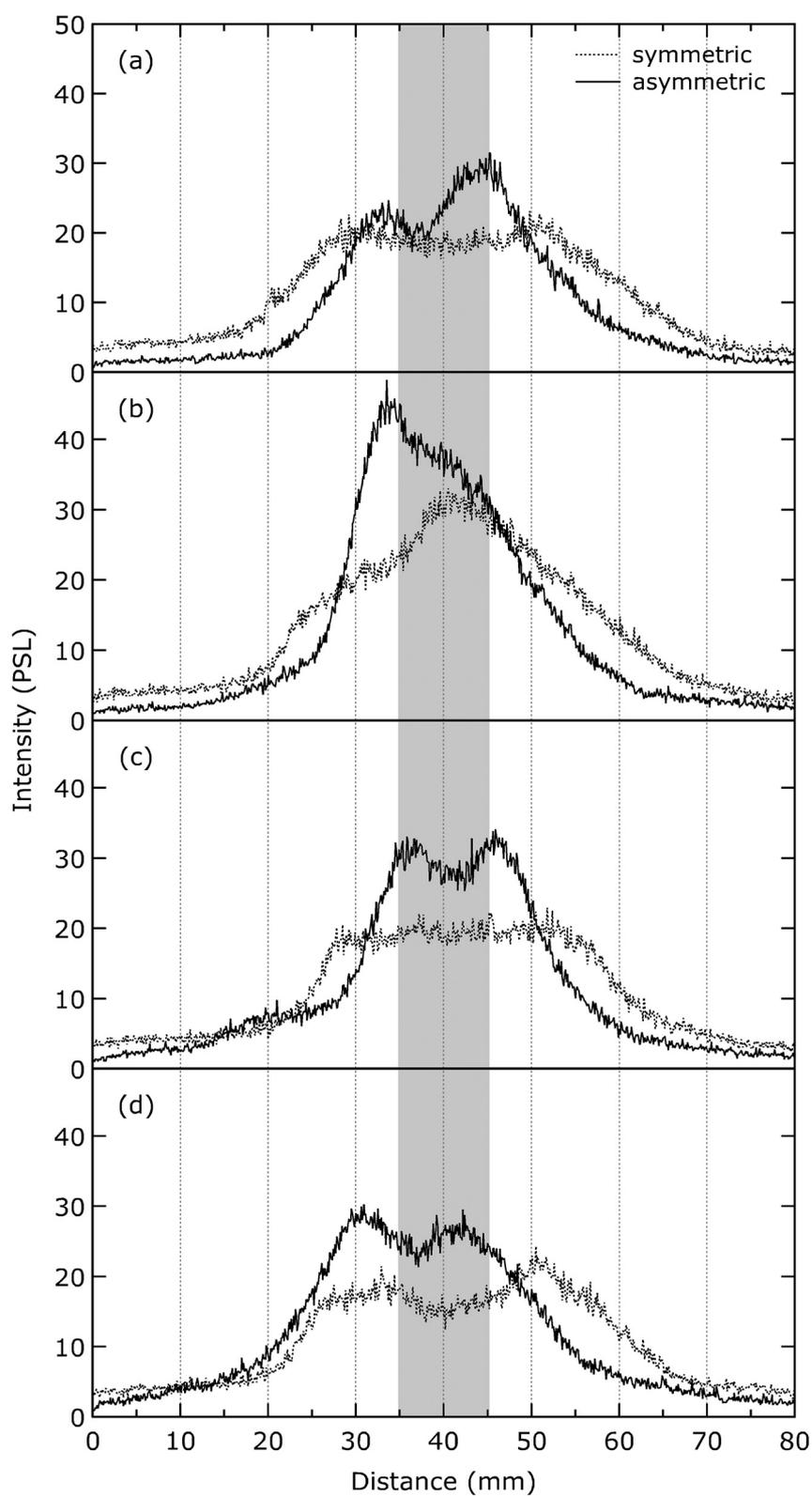


Fig. 19: 中性子 IP 像 Fig. 18 の横断面パターンと比較. (b)がビーム中心位置に相当する. 実線が非対称反射型、点線が対称反射型モノクロメータの像.

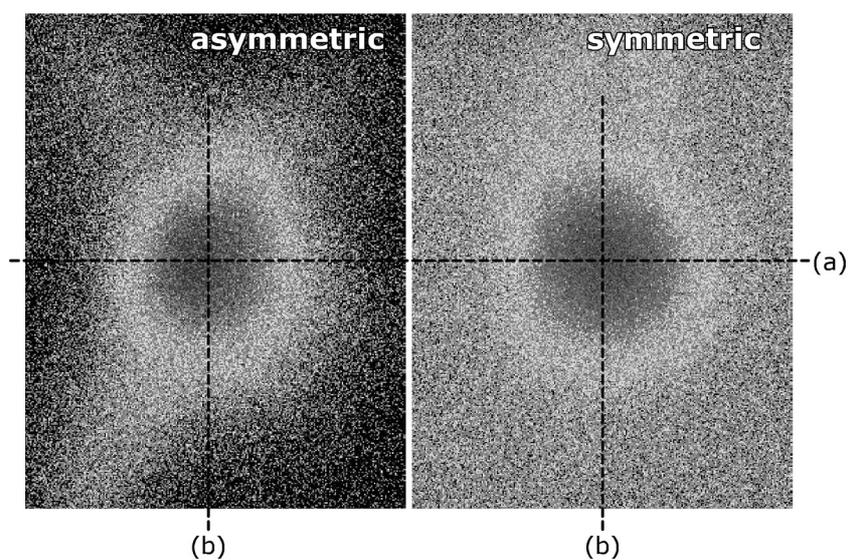


Fig. 20: 対称反射と非対称反射の中性子IP像の比較. 撮影位置は試料台上(Fig. 2のSample Position). モノクロメータからの距離は2450 mm. コリメーションは6'-m-open-IP. 露光時間10秒.

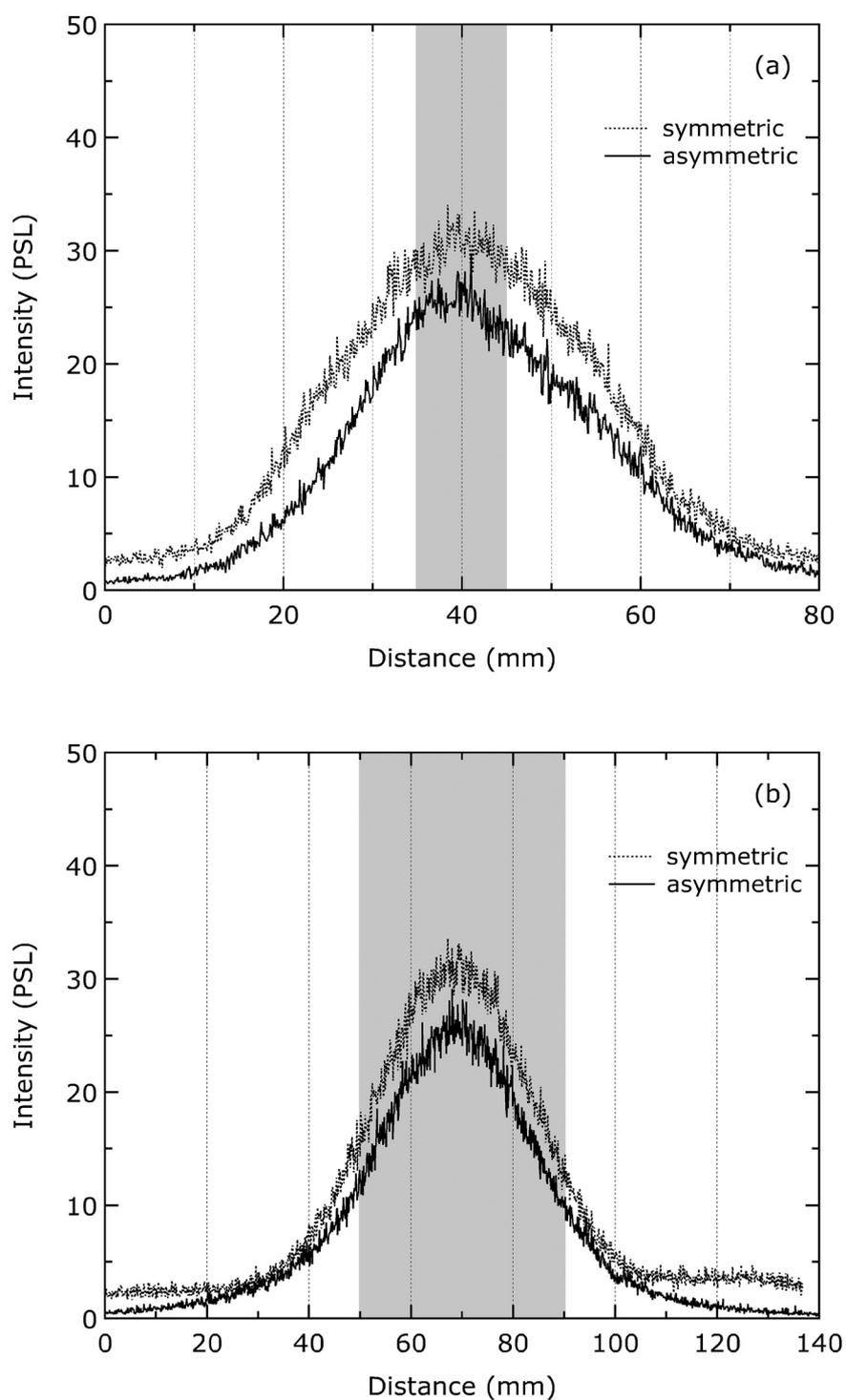


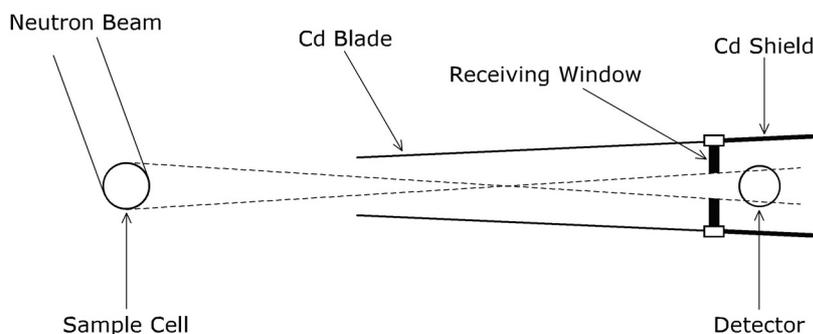
Fig. 21: 中性子 IP 像 Fig. 20 の断面パターンの比較. (a) 横断面、(b) 縦断面に対応する. 実線が非対称反射型、点線が対称反射型モノクロメータからの単色ビーム像.

## 付録

原子力機構の研究炉 JRR-3 では中性子粉末回折装置として原子力機構の HRPD と東北大学金属材料研究所の HERMES の 2 台が運用されている。両者は似通った装置構成を持っているが、HRPD は主に精密構造解析を目的とした高分解能測定を、HERMES は磁気散乱や少量試料など散乱強度の弱い試料での高効率測定を得意としており特性は異なる。Table A1 に各装置の回折素子における主要部分の比較を示す。HERMES は、ビーム、試料、検出器のサイズとそれらの間の距離で決まるナチュラルコリメーションで装置分解能を決める仕組みを採用している。高分解能は HRPD に任せ、中分解能と高い測定効率の実現を目標としてガイドホール T1-3 ポートに建設された。検出器前の第 3 コリメータは Fig. A1 に示す window type を採用しており、試料サイズによってユーザーが必要とする分解能と強度を選択することができる。ビーム、試料、検出器サイズのマッチングや中分解能・高測定効率を念

Table A1: HRPD, HERMES の回折素子主要部分の比較(2007 年 7 月現在).

|                        | HRPD (1G)   | HERMES (T1-3)  |
|------------------------|---|--|
| Monochromator          | Ge 3 3 1 × 11 (h 220 mm)<br>vertical focusing<br>$\eta \sim 20'$  | Ge 3 3 1 × 5 (h 100 mm)<br>vertical focusing<br>$\eta \sim 10'$  |
| Wavelength             | 0.1823 nm<br>at $2\theta_M = 89^\circ$  | 0.1826 nm<br>at $2\theta_M = 90^\circ$   |
| Detector               | $^3\text{He}$ detector × 64<br>(6 atm, $\phi$ 1 inch)   | $^3\text{He}$ detector × 150<br>(8 atm, $\phi$ 10 mm)  |
| Interval of detectors  | $2.5^\circ$ of $2\theta_s$  | $1.0^\circ$ of $2\theta_s$   |
| Receiving window       | w 20 mm × h 100 mm  | w 7 mm × h 227 mm  |
| Horizontal collimation | $\alpha_1 = 6', 12', \text{open} (\sim 25')$<br>$\alpha_2 = 20', 40'$<br>$\alpha_3 = 6'$ (Soller slit type) | $\alpha_1 = \text{open} (\sim 17')$<br>$\alpha_2 = \text{open}$<br>$\alpha_3 = 18' \sim 24'$ (window type) |
| Distance               | $L_{\text{monochromator - sample}} = 2450 \text{ mm}$<br>$L_{\text{sample - detector}} = 1035 \text{ mm}$   | $L_{\text{monochromator - sample}} = 2500 \text{ mm}$<br>$L_{\text{sample - detector}} = 1350 \text{ mm}$  |

Fig. A1: HERMES の window type collimation system<sup>2)</sup>.

頭に設計された検出器の距離、多数の小型検出器など、装置グループによる絶妙なデザインによって高い性能が実現されており、今や JRR-3 に設置されている装置の中でもひとときわ利用者数が多い。そこで、HRPD における測定効率改善の参考データを得るため、2007 年第 3 サイクルに同じ試料を用いて HRPD, HERMES で実効測定能率の比較を行ったので、ここにその結果を記す。

はじめに、回折パターン全体を得るまでの総計測時間を揃えた実効測定能率の差を比較した。試料は HERMES で標準試料として用いられている粉末標準試料(NIST 640c Si, 容器寸法  $\phi$  7 mm  $\times$  h 40 mm)を使用した。ビームサイズ、 $2\theta_5$  走査のステップ幅など揃えられる条件は可能な限り揃えた。コリメーションは Table A2 の通り。このセットは、HERMES では最も分解能が高い設定、HRPD では最も測定効率が高い設定に相当する。Fig. A2 に計測総時間が約 3 時間 35 分の回折パターン比較を、Fig. A3 に各散乱ピークの FWHM から見積もった角度分解能の散乱角依存性を示す。Fig. A2 中の HERMES のデータに見られる微小な散乱は Al のピーク位置と一致するので、今回の散乱角の範囲内では試料である Si の Bragg 散乱との重なりは一切無く影響は無視できる。Fig. A3 から判るように、本測定条件のコリメーションでは概ね同程度の分解能を示す。したがって、ピーク強度のみで比較すると HERMES の測定能率は HRPD に対して 4 倍強高い。

Table A2: 測定条件.

|             | HRPD (1G)   | HERMES (T1-3)  |
|-------------|---|--|
| Beam size   | w 15 mm $\times$ h 36 mm  | w 16 mm $\times$ h 36 mm   |
| Collimation | $\alpha_1 = \text{open}$<br>$\alpha_2 = 40'$<br>$\alpha_3 = 6'$ | $\alpha_1 = \text{open}$<br>$\alpha_2 = \text{open}$<br>$\alpha_3 = 18'$ (window type) |
| Scan step   | $0.05^\circ$ of $2\theta_5$ (50 steps)                          | $0.05^\circ$ of $2\theta_5$ (20 steps)   |

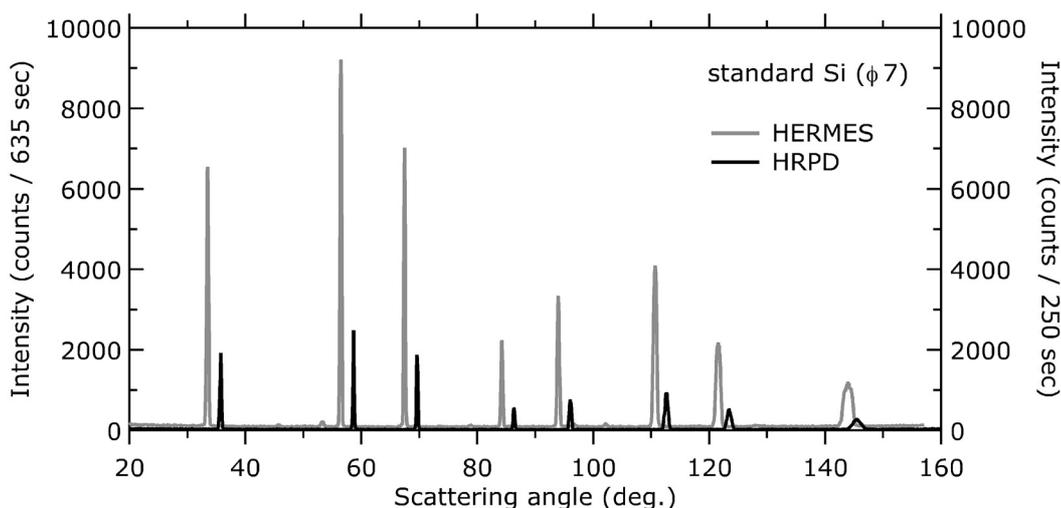


Fig. A2: 回折パターン全体を得るまでの総計測時間を揃えた比較. パターン差を見やすくするため、HRPD のデータに散乱角 $+2^\circ$  のオフセットを設けている.

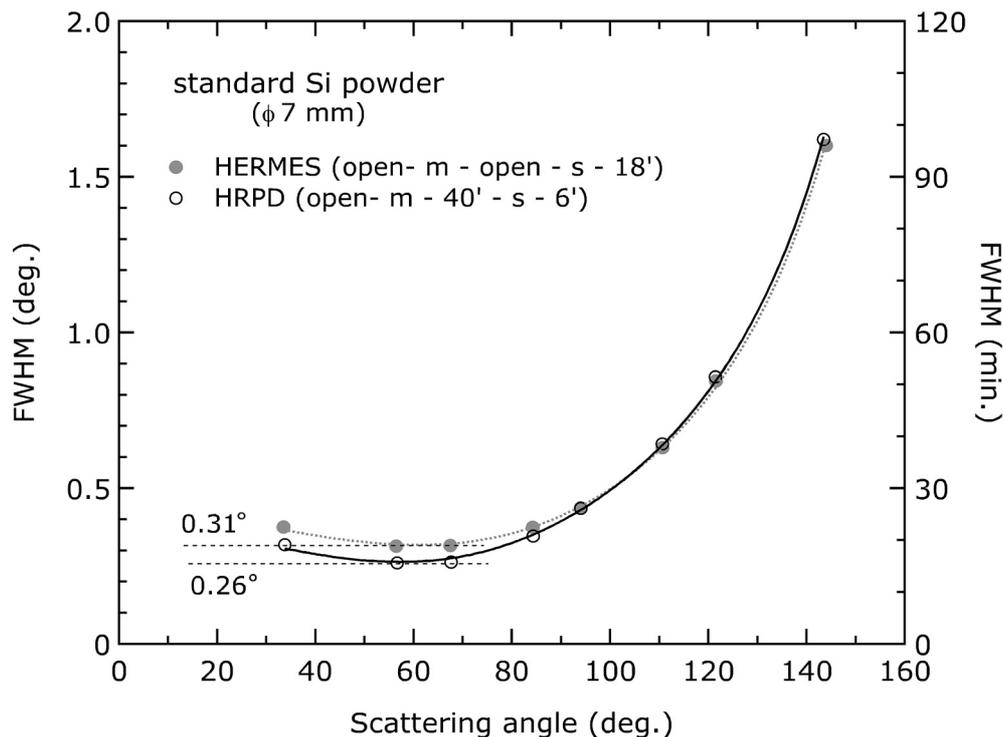


Fig. A3: 角度分解能の散乱角依存性の比較.

次に、一つの計測ステップにおいて計測時間が同じになるよう規格化(635 sec/1 step)した回折パターンを Fig. A4 に示す。Fig. A2 と同様にピーク強度で比較すると、この場合でも HERMES のほうが 1.7 倍程度強い。なお、バックグラウンドを比較すると散乱角  $2\theta_s = 90^\circ$  付近で HERMES が約 100 counts/635 sec に対し、HRPD が約 70 counts/635 sec であった。回折パターンの S/N 比を考慮に入れると、バックグラウンドに関してはほぼ同等と言える。

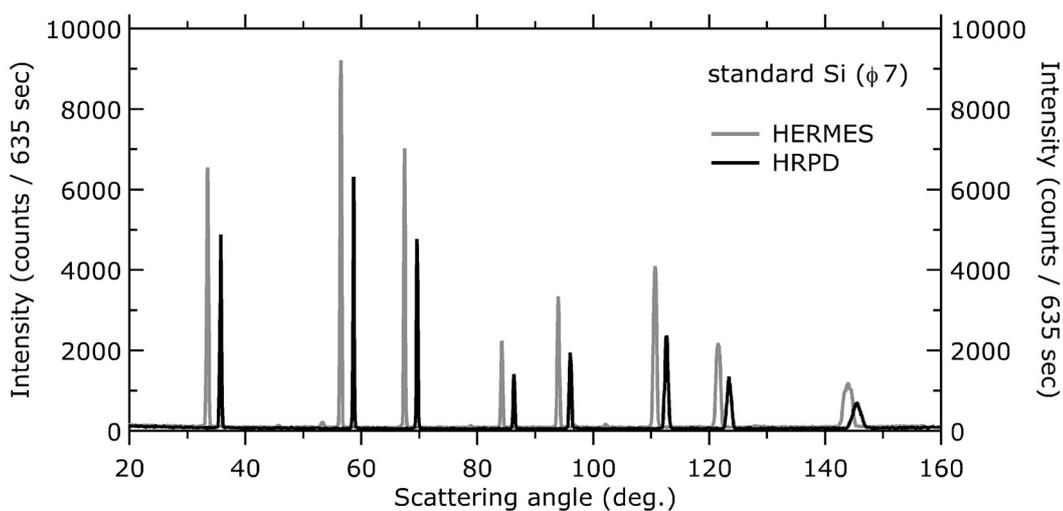


Fig. A4: 一計測ステップの計測時間を揃えた (635 sec/1 step) 回折パターンの比較. 差を見やすくするため、HRPD のデータに散乱角+2° のオフセットを設けている.

HERMES は今回の比較測定よりも分解能を落とせるが故に、 $2\theta_s$  走査のステップ幅を  $0.05^\circ$  より広げられ、更に測定効率を上げられる。一方、HRPD はフォーカス位置での Bragg ピークの線幅が狭いため(6' の第 3 コリメータが主因)、散乱角  $2\theta_s$  の走査ステップ幅を  $0.05^\circ$  ステップより広げるのは困難である(分解能が最も甘い第 1 コリメータ: open ならば  $0.1^\circ$  ステップも試料によっては可能)。したがって、実際に各装置を利用する観点から考えると、実効的な測定能率は HERMES のほうが約 8 倍以上高くなる。一方、HRPD で高分解能データを得るために第 1 コリメータを変更した場合、ピーク強度が同程度の統計となる回折パターンを得るのに第 1 コリメータ: open の測定時間を基準として、12' で約 2.5 倍、6' で約 5 倍とさらに時間を要する。今回の比較以外にも、試料位置の中性子線束は、HRPD のほうが HERMES よりも約 2 倍強いことが確認された。にもかかわらず、測定効率に大きな差が生じるのは、HRPD の第 3 コリメータ = 6' が測定効率に極めて強く影響していることを意味する。したがって今後、測定効率の改善する上で第 3 コリメータに手を加えることが最も有効な手段の一つと言えるだろう。

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

| 基本量   | SI 基本単位 |     |
|-------|---------|-----|
|       | 名称      | 記号  |
| 長さ    | メートル    | m   |
| 質量    | キログラム   | kg  |
| 時間    | 秒       | s   |
| 電流    | アンペア    | A   |
| 熱力学温度 | ケルビン    | K   |
| 物質の量  | モル      | mol |
| 光度    | カンデラ    | cd  |

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

| 組立量        | SI 基本単位      |                    |
|------------|--------------|--------------------|
|            | 名称           | 記号                 |
| 面積         | 平方メートル       | m <sup>2</sup>     |
| 体積         | 立方メートル       | m <sup>3</sup>     |
| 速度         | メートル毎秒       | m/s                |
| 加速度        | メートル毎秒毎秒     | m/s <sup>2</sup>   |
| 波数         | 毎メートル        | m <sup>-1</sup>    |
| 密度 (質量密度)  | キログラム毎立方メートル | kg/m <sup>3</sup>  |
| 質量体積 (比体積) | 立法メートル毎キログラム | m <sup>3</sup> /kg |
| 電流密度       | アンペア毎平方メートル  | A/m <sup>2</sup>   |
| 磁界の強さ      | アンペア毎メートル    | A/m                |
| (物質量の) 濃度  | モル毎立方メートル    | mol/m <sup>3</sup> |
| 輝度         | カンデラ毎平方メートル  | cd/m <sup>2</sup>  |
| 屈折率        | (数の) 1       | 1                  |

表5. SI 接頭語

| 乗数               | 接頭語 | 記号 | 乗数                | 接頭語  | 記号 |
|------------------|-----|----|-------------------|------|----|
| 10 <sup>24</sup> | ヨタ  | Y  | 10 <sup>-1</sup>  | デシ   | d  |
| 10 <sup>21</sup> | ゼタ  | Z  | 10 <sup>-2</sup>  | センチ  | c  |
| 10 <sup>18</sup> | エクサ | E  | 10 <sup>-3</sup>  | ミリ   | m  |
| 10 <sup>15</sup> | ペタ  | P  | 10 <sup>-6</sup>  | マイクロ | μ  |
| 10 <sup>12</sup> | テラ  | T  | 10 <sup>-9</sup>  | ナノ   | n  |
| 10 <sup>9</sup>  | ギガ  | G  | 10 <sup>-12</sup> | ピコ   | p  |
| 10 <sup>6</sup>  | メガ  | M  | 10 <sup>-15</sup> | フェムト | f  |
| 10 <sup>3</sup>  | キロ  | k  | 10 <sup>-18</sup> | アト   | a  |
| 10 <sup>2</sup>  | ヘクト | h  | 10 <sup>-21</sup> | ゼプト  | z  |
| 10 <sup>1</sup>  | デカ  | da | 10 <sup>-24</sup> | ヨクト  | y  |

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

| 組立量  | SI 組立単位               |                   |                      |   |
|--|-----------------------|-------------------|----------------------|---|
|  | 名称                    | 記号                | 他のSI単位による表し方         | SI基本単位による表し方  |
| 平面角  | ラジアン <sup>(a)</sup>   | rad               |                      | m <sup>-1</sup> ・m <sup>1</sup> =1 <sup>(b)</sup>                 |
| 立体角  | ステラジアン <sup>(a)</sup> | sr <sup>(c)</sup> |                      | m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> =1 <sup>(b)</sup>                 |
| 周波数  | ヘルツ                   | Hz                |                      | s <sup>-1</sup>   |
| 力  | ニュートン                 | N                 |                      | m <sup>1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup>                  |
| 圧力, 応力   | パスカル                  | Pa                | N/m <sup>2</sup>     | m <sup>-1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup>                 |
| エネルギー, 仕事, 熱量  | ジュール                  | J                 | N・m                  | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup>                  |
| 工率, 放射束  | ワット                   | W                 | J/s                  | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup>                  |
| 電荷, 電気量  | クーロン                  | C                 |                      | s <sup>1</sup> ・A   |
| 電位差 (電圧), 起電力  | ボルト                   | V                 | W/A                  | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup> |
| 静電容量   | ファラド                  | F                 | C/V                  | m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup> |
| 電気抵抗   | オーム                   | Ω                 | V/A                  | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-2</sup> |
| コンダクタンス  | ジーメン                  | S                 | A/V                  | m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>3</sup> ・A <sup>2</sup> |
| 磁束   | ウェーバ                  | Wb                | V・s                  | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup> |
| 磁束密度   | テスラ                   | T                 | Wb/m <sup>2</sup>    | kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>                 |
| インダクタンス  | ヘンリー                  | H                 | Wb/A                 | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-2</sup> |
| セルシウス温度  | セルシウス度 <sup>(d)</sup> | °C                |                      | K   |
| 光束流  | ルーメン                  | lm                | cd・sr <sup>(c)</sup> | m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・cd=cd                            |
| 照射 (放射性核種の) 放射能  | ベクレル                  | Bq                | lm/m <sup>2</sup>    | m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> ・cd=m <sup>2</sup> ・cd            |
| 吸収線量, 質量エネルギー一分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量 | グレイ                   | Gy                | J/kg                 | m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>                                   |
|  | シーベルト                 | Sv                | J/kg                 | m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>                                   |

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときにいくつかの用例は表4に示されている。
- (b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
- (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
- (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

| 組立量                    | SI 組立単位           |                        |   |
|------------------------|-------------------|------------------------|---|
|                        | 名称                | 記号                     | SI 基本単位による表し方   |
| 粘力のモーメント               | ニュートンメートル         | Pa・s                   | m <sup>1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-1</sup>  |
| 表面張力                   | ニュートン毎メートル        | N・m                    | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup>  |
| 角速度                    | ラジアン毎秒            | N/m                    | kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup>  |
| 角加速度                   | ラジアン毎平方秒          | rad/s                  | m <sup>1</sup> ・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>   |
| 熱流密度, 放射照度             | ワット毎平方メートル        | rad/s <sup>2</sup>     | m <sup>1</sup> ・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>   |
| 熱容量, エントロピー            | ジュール毎キログラム        | W/m <sup>2</sup>       | kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup>  |
| 質量熱容量 (比熱容量), 質量エンタロピー | ジュール毎キログラム毎ケルビン   | J/K                    | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>   |
| 質量エネルギー (比エネルギー)       | ジュール毎キログラム        | J/(kg・K)               | m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>  |
| 熱伝導率                   | ワット毎メートル毎ケルビン     | J/kg                   | m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>  |
| 体積エネルギー                | ジュール毎立方メートル       | W/(m・K)                | m <sup>1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・K <sup>-1</sup>   |
| 電界の強さ                  | ボルト毎メートル          | J/m <sup>3</sup>       | m <sup>-1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup>   |
| 体積電荷                   | クーロン毎立方メートル       | V/m                    | m <sup>1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>   |
| 電気変位                   | クーロン毎平方メートル       | C/m <sup>3</sup>       | m <sup>-3</sup> ・s <sup>1</sup> ・A  |
| 誘電率                    | ファラド毎メートル         | C/m <sup>2</sup>       | m <sup>-2</sup> ・s <sup>1</sup> ・A  |
| 透磁率                    | ヘンリー毎メートル         | F/m                    | m <sup>-3</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>   |
| モルエネルギー                | ジュール毎モル           | H/m                    | m <sup>1</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-2</sup>   |
| モルエンタロピー               | ジュール毎モル毎ケルビン      | J/mol                  | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・mol <sup>-1</sup>   |
| モル熱容量                  | ジュール毎モル毎ケルビン      | J/(mol・K)              | m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup> ・mol <sup>-1</sup>                                |
| 照射線量 (X線及びγ線)          | クーロン毎キログラム        | C/kg                   | kg <sup>-1</sup> ・s <sup>1</sup> ・A   |
| 吸収線量                   | グレイ毎秒             | Gy/s                   | m <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>   |
| 放射強度                   | ワット毎ステラジアン        | W/sr                   | m <sup>4</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> |
| 放射輝度                   | ワット毎平方メートル毎ステラジアン | W/(m <sup>2</sup> ・sr) | m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup> =kg <sup>1</sup> ・s <sup>-3</sup>                 |

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

| 名称   | 記号   | SI 単位による値  |
|------|------|--|
| 分    | min  | 1 min=60s  |
| 時    | h    | 1 h=60 min=3600 s                                      |
| 日    | d    | 1 d=24 h=86400 s                                       |
| 度    | °    | 1°=(π/180) rad   |
| 分    | '    | 1'=(1/60)°=(π/10800) rad                               |
| 秒    | ''   | 1''=(1/60)'=(π/648000) rad                             |
| リットル | l, L | 1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup> |
| トン   | t    | 1 t=10 <sup>3</sup> kg                                 |
| ネーパ  | Np   | 1 Np=1   |
| ベル   | B    | 1 B=(1/2) ln10 (Np)                                    |

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

| 名称       | 記号 | SI 単位であらわされる数値                            |
|----------|----|---|
| 電子ボルト    | eV | 1 eV=1.60217733(49)×10 <sup>-19</sup> J   |
| 統一原子質量単位 | u  | 1 u=1.6605402(10)×10 <sup>-27</sup> kg    |
| 天文単位     | ua | 1 ua=1.49597870691(30)×10 <sup>11</sup> m |

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

| 名称       | 記号  | SI 単位であらわされる数値   |
|----------|-----|--|
| 海里       | 海里  | 1 海里=1852m   |
| ノット      | ノット | 1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s                              |
| アール      | a   | 1 a=1 dam <sup>2</sup> =10 <sup>2</sup> m <sup>2</sup>   |
| ヘクタール    | ha  | 1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>   |
| バール      | bar | 1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa           |
| オングストローム | Å   | 1 Å=0.1nm=10 <sup>-10</sup> m                            |
| バール      | b   | 1 b=100fm <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup> |

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

| 名称     | 記号  | SI 単位であらわされる数値  |
|--------|-----|---|
| エルグ    | erg | 1 erg=10 <sup>-7</sup> J                                    |
| ダイン    | dyn | 1 dyn=10 <sup>-5</sup> N                                    |
| ポアズ    | P   | 1 P=1 dyn・s/cm <sup>2</sup> =0.1Pa・s                        |
| ストークス  | St  | 1 St=1cm <sup>2</sup> /s=10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> /s |
| ガウス    | G   | 1 G ≅ 10 <sup>4</sup> T                                     |
| エルステッド | Oe  | 1 Oe ≅ (1000/4π) A/m  |
| マクスウェル | Mx  | 1 Mx ≅ 10 <sup>-8</sup> Wb                                  |
| スチルブ   | sb  | 1 sb=1cd/cm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> cd/m <sup>2</sup> |
| ホト     | ph  | 1 ph=10 <sup>4</sup> lx                                     |
| ガル     | Gal | 1 Gal=1cm/s <sup>2</sup> =10 <sup>-2</sup> m/s <sup>2</sup> |

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

| 名称        | 記号   | SI 単位であらわされる数値   |
|-----------|------|--|
| キュリー      | Ci   | 1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq                               |
| レントゲン     | R    | 1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg                             |
| ラド        | rad  | 1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy                             |
| レム        | rem  | 1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv                            |
| X線単位      | X    | 1 X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm                         |
| ガンマ       | γ    | 1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T                                |
| ジャンスキー    | Jy   | 1 Jy=10 <sup>-26</sup> W・m <sup>-2</sup> ・Hz <sup>-1</sup> |
| フェルミ      | fm   | 1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m                           |
| メートル系カラット |      | 1 metric carat = 200 mg = 2×10 <sup>-4</sup> kg            |
| トル        | Torr | 1 Torr = (101 325/760) Pa                                  |
| 標準大気圧     | atm  | 1 atm = 101 325 Pa   |
| カロリ       | cal  |  |
| マイクロン     | μ    | 1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m                                 |

