



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	極低温メタンによる中性子の減速・冷却
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, Kazuhiko
Citation	北海道大學工學部研究報告, 63, 99-104
Issue Date	1972-03-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41075
Type	departmental bulletin paper
File Information	63_99-104.pdf



極低温メタンによる中性子の減速・冷却

井上 和彦

(昭和46年8月30日受理)

Thermalization of Neutron in Very Cold Methane

Kazuhiko INOUE

Department of Atomic Engineering, Faculty of Engineering,
Hokkaido University, Sapporo

Abstract

A scattering cross section is obtained for very cold solid methane. The hindered molecular rotation is assumed to be as harmonic oscillation with single frequency. The result is applied to calculate the cold neutron spectrum in very cold solid methane. The computed cold neutron spectrum shows better agreement with experiment than the one obtained with the assumption of free rotation.

1. 序 論

別の論文で述べた固体メタン内の冷中性子スペクトルの測定では、特徴のあるスペクトルが測定された¹⁾。この測定結果は、極低温メタンによる中性子の減速・冷却の検討に役立つ。分子結晶である固体メタンによる低エネルギー中性子散乱では、メタン分子の並進運動の自由度、すなわち格子振動の自由度とともに、分子回転の自由度を考慮しなければならない。軽水氷では、回転エネルギーの方が格子振動のエネルギーよりも大きいために、低エネルギー中性子から少量のエネルギーを奪う機構として、格子振動の方が重要であった²⁾。ところが、固体メタンでは、この関係が逆転して、回転運動の方が低エネルギー中性子から少量のエネルギーを奪う主な機構になる。

固体メタン内では、メタン分子の慣性能率が比較的小さく、また格子定数が大きいために、分子回転に対する束縛が弱い。したがって、非常な低温以外では束縛回転は調和振動的ではないと考えられている^{3),4)}。Pauling の評価によると、第1励起レベルがすでに振動と回転の境目になっている。また、他方では、Kosály と Solt による 86°K における固体メタンの非弾性散乱の自由回転モデルによる解析では、メタンは自由な回転をしているとは考えられないと結論している⁵⁾。

メタンの温度が非常に低くて、束縛回転のレベルのうちで、第1レベルが主に励起し、高次レベルが殆んど励起しておらず、さらに中性子のエネルギーが充分低い場合には、束縛回転を調和振動で近似することが或る程度許されるであろう。しかし、この点に関しては、固体メタンの束縛回転を量子力学的に考慮した解析に役立つ理論がないために、正確な予測をするのが難しい。

極低温メタンによる数 meV 以下の低エネルギー中性子の散乱、あるいはそのなかの冷中性

子スペクトルは、この問題に或る程度手掛りを与えることが期待される。この場合には、上記のように低いレベルにおける遷移、とくに基底状態から第1レベルへの遷移が主要な過程となるから、第1レベルが調和振動的であるか否かが、冷中性子の減速・冷却の性質、ひいてはスペクトルにかなり強く反映すると予想される。そこで、この論文では、極低温メタンの束縛回転が調和振動的であると仮定して、これに基づいて前記の冷中性子スペクトルの測定結果をどこ迄説明できるか、また自由回転と仮定するとどうなるかを検討する。

2. 極低温メタンの相関函数

含水素分子結晶の中性子散乱は、主に水素によって行なわれ、パラ水素のような例外はあるが、一般に非干渉性散乱が主である。また、極低温メタンでは、核スピン状態により3つの状態が分類されるが、ここでは中性子散乱におけるスピン相関を無視する。

温度 T の体系内の水素によって、中性子が散乱される場合に、散乱前後の中性子エネルギーが E_0 と E で、散乱角が θ であるような、中性子の水素原子当りの微分散乱断面積は、相関函数 $\chi(\vec{k}, T, t)$ のフーリエ変換として、次式で与えられる⁶⁾。

$$\sigma(E_0, \varepsilon, \theta) = \frac{b_{\text{inc}}^2}{2\pi} \frac{k}{k_0} \int_{-\infty}^{\infty} \chi(\vec{k}, T, t) e^{-i\varepsilon t} dt \quad (1)$$

ここで、 $\varepsilon = E_0 - E$ はエネルギー遷移量であり、 \vec{k}_0 と \vec{k} は散乱前後の中性子の運動量であり、 \vec{k} は運動量遷移量であり、 b_{inc} は水素の束縛散乱長である。単位系として、 $\hbar = 1$ と、中性子質量が1を用い、温度をエネルギー単位で測る。

ここでは、メタン分子を固体メタン内の原子運動を考えるさいの運動の基本単位と考えて、メタン分子の運動を分子回転、格子振動および分子内振動に分類する。さらに、これら各運動の自由度は互いに独立であると仮定する。この場合には、 χ 函数は次のように、分子回転、格子振動および分子内振動の3つの因子の積として表わされる。

$$\chi(\vec{k}, T, t) = \chi^r(\vec{k}, T, t) \chi^l(\vec{k}, T, t) \chi^p(\vec{k}, T, t) \quad (2)$$

低エネルギー中性子に対しては、基本的な仮定として、分子回転が束縛回転であり、かつ調和振動的であると仮定する。これを1つの振動数 ω_r を持つ等方調和振動で近似すると、束縛回転に関する χ^r 函数は調和振動子の χ 函数で表わして、次式で与えられる⁶⁾。

$$\chi^r(\vec{k}, T, t) = \exp \left[-\frac{\kappa^2}{2\omega_r m_r} \coth \left(\frac{\omega_r}{2T} \right) \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{i n \omega_r t} e^{-\frac{n \omega_r}{2T}} I_n \left(\frac{\kappa^2}{2\omega_r m_r \sinh(\omega_r/2T)} \right) \right] \quad (3)$$

ここで、 m_r は実効質量であり、 I_n は n 次の変形ベッセル函数である。

中性子のエネルギーが高くなると、高いレベルの励起が起こるようになり、 χ 函数は散乱体の力学模型の詳細にはあまり依存しなくなる。この場合には、Krieger と Nelkin⁷⁾ の式

$$\chi^r(\vec{k}, T, t) = \exp \left[-\frac{\kappa^2}{2m_r} (it + Tt^2) \right] \quad (4)$$

を用いる。

格子振動の χ^l 函数は次式で与えられる。

$$\chi^l(\vec{k}, T, t) = \exp \left[\frac{\kappa^2}{2m_l} \left\{ \gamma(t) - \gamma(0) \right\} \right] \quad (5)$$

ここで、 m_l は実効質量である。 $\gamma(t)$ は格子構造によって定まる量であるが、ここでは近似的に次式の単純立方格子のものを用いる。

$$\gamma(t) = \int_0^{\infty} \frac{\cos\left(t - \frac{i}{2T}\right)}{\sinh\left(\frac{\omega}{2T}\right)} \frac{g(\omega)}{\omega} d\omega \quad (6)$$

ここで、 $g(\omega)$ は格子ホノンの振動数分布函数である。固体メタンでは、10°K 附近における格子構造は不明であるが、20°K 附近では炭素原子が面心立方格子を作っている。ここでは、一応単純立方格子と仮定したが、断面積の計算にとっては、この仮定は充分良い近似である。さらに、固体メタンでは、格子振動からの非弾性散乱への寄与があまり大きくないので、 χ^l 函数の誤差は結果に大きくは影響しない。

分子内振動に関しては、温度が振動エネルギーに比べて著しく小さいから、振動が凍結していると仮定し、 $T \rightarrow 0$ の近似を用いる。なお、メタンの水素に関する分子内振動には4つのモードがあるが、ここでは簡単のために1つにまとめて考える。この場合の χ^v 函数は、近似的に次式で表わされる。

$$\chi^v(\vec{k}, T, t) = \exp\left[\frac{\kappa^2}{2m_v} \frac{(e^{i\omega_v t} - 1)}{\omega_v}\right] \quad (7)$$

ここで、 m_v は実効質量で、 ω_v は4つの基準振動数を荷重平均したものである。中性子のエネルギーが低くて、分子内振動が励起しない場合には、(7)式はさらに簡単になり、 χ_v 函数は次式で与えられる。

$$\chi^v(\vec{k}, T, t) = \exp[-\kappa^2 \gamma_v] \quad (8)$$

ここで、 $\gamma_v = (2\omega_v m_v)^{-1}$ である。

3. 断面積の計算

エネルギー領域に応じて、各 χ 函数を用いてエネルギー遷移微分断面積を計算することができる。入射中性子のエネルギーが数 meV 以下の場合には、調和振動的束縛回転と凍結した分子振動を仮定して、格子振動に関してホノン展開を行なうと、断面積は次のようになる。

$$\sigma(E_0, \varepsilon, \theta) = b_{\text{inc}}^2 \frac{k}{k_0} \exp\left\{-\frac{\kappa^2}{2\omega_r m_r} \coth\left(\frac{\omega_r}{2T}\right)\right\} e^{-\kappa^2 \gamma} \sum_{\nu=0}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-\frac{n\omega_r}{2T}} \times \\ I_n\left(\frac{\kappa^2}{2\omega_r m_r \sinh(\omega_r/2T)}\right) \frac{(\kappa^2 \gamma_l)^\nu}{\nu!} Q_\nu(\varepsilon + n\omega_r) \quad (9)$$

ここで、 n は生成消滅する束縛回転の振動量子の数であり、 $\gamma = \gamma_l + \gamma_v$ である。結晶の振動数分布を Debye 分布で近似し、Debye 温度に比べてメタンの温度が非常に小さいので、 $T \rightarrow 0$ の近似を用いると Q_ν は次式で与えられる。

$$Q_\nu(x) = \begin{cases} \delta(x), & \nu = 0 \\ \frac{1}{\omega_l^{2\nu}} \int_0^{\omega_l} \cdots \int_0^{\omega_l} \delta\left(x - \sum_{i=1}^{\nu} \omega_i\right) \prod_{j=1}^{\nu} \omega_j d\omega_j, & \nu \geq 1 \end{cases} \quad (9)$$

ここで、 ν は格子ホノンの個数であり、 ω_l は Debye 温度である。この場合には、 $\gamma_l = 3/(4\omega_l m_l)$ である。

次に、入射中性子のエネルギーが数 meV 以上で分子内振動の閾エネルギー以下の場合には、束縛回転の χ^r 函数に対して(4)式の近似形を用い、格子振動に対しても同形の高エネルギー極限の χ^l 函数を用いると、断面積は次のようになる。

$$\sigma(E_0, \varepsilon, \theta) = b_{\text{inc}}^2 \frac{k}{k_0} \left(\frac{\alpha}{2\pi T^* \kappa^2}\right)^{1/2} e^{-\frac{\varepsilon}{2T^*}} \exp\left[-\frac{\alpha}{2T^*} \left(\frac{\varepsilon}{\kappa} - \frac{\kappa}{2\alpha}\right)^2\right] \quad (10)$$

ここで、

$$\frac{\alpha}{\bar{m}} = \frac{T^*}{T} = (1 + 8T\gamma_v \bar{m})^{-1/2}$$

$$\bar{m}^{-1} = m_r^{-1} + m_i^{-1}$$

$$\delta = (1 + 8T\gamma_v \bar{m})^{1/2} - 1$$

である。(10) 式の断面積の運動量遷移量および角度依存性は自由ガスの場合と同形であるから、角度積分を容易に実行することができる。なお、(10) 式で、 δ を含む指数関数の項は分子内振動の影響を表わす。

最後に、入射中性子エネルギーが分子内振動の閾値以上のときは、分子内振動が励起しないとして、(10) 式をそのまま用いればよい。しかし、中性子エネルギーがメタン温度に比べてはるかに高いので、 $T \rightarrow 0$ 近似を用いると、断面積は次式で与えられる。

$$\sigma(E_0, \varepsilon, \theta) = b_{\text{inc}}^2 \frac{k}{k_0} e^{-\gamma_v \varepsilon^2} \sum_{\mu=0}^{\infty} \frac{(\gamma_v \kappa^2)^{\mu}}{\mu!} \delta\left(\varepsilon + \frac{\kappa^2}{2\bar{m}} + \mu\omega_v\right)$$

ここで、 μ は分子内振動の振動量子の数を表わす。

4. 冷中性子スペクトルの計算および実験との比較

前章までに述べた固体メタンの束縛回転の散乱模型を用いて、冷中性子スペクトルを計算する。また、比較のために、Kosály と Solt が用いた自由回転の散乱模型⁵⁾を用いて計算して見る。これらの結果を実験と比較することによって、束縛回転が調和振動的であるかどうかについての情報を得ることが期待される。

一様な媒質内で、定常状態の中性子スペクトル $\phi(E)$ は次の積分方程式の解として求められる。

$$[\sigma_a(E) + \sigma_s(E)] \phi(E) = \int_0^{\infty} \sigma(E' \rightarrow E) \phi(E') dE' \quad (12)$$

$$\sigma_s(E) = \int_0^{\infty} \sigma(E \rightarrow E') dE' \quad (13)$$

ここで、 $\sigma(E' \rightarrow E)$ はエネルギー遷移微分断面積を散乱角について積分したものであり、 σ_a は吸収断面積である。断面積が複雑な函数形である場合には、(12) 式を数値的に解かねばならないから、大型計算機用のコードを作成して、断面積およびスペクトルの計算を行った。

実験と比較するためには、実験体系が有限の大きさであるために、体系からの中性子漏洩を考慮しなければならない。これは、漏洩項 DB を吸収項 σ_a に加えることによって評価される。ここで、 D は拡散係数であり、 B^2 は体系の形状バックリングである。

図-1は計算結果と実験との比較を示す。

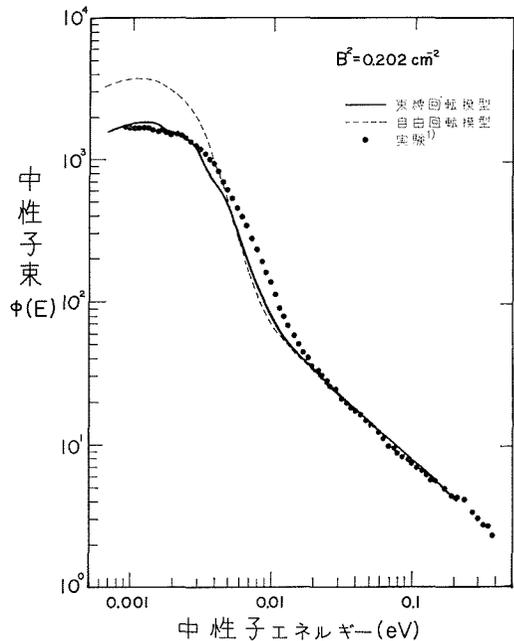


図-1 極低温メタン内の冷中性子スペクトルの理論と実験の比較

計算に用いたパラメータの値は各エネルギー領域に対して共通で、次のものを用いた。

$$\begin{aligned} m_r &= 3.2 \\ \omega_r &= 0.0015 \text{ eV} \\ m_t &= 16 \\ \omega_t &= 0.007 \text{ eV} \\ m_v &= 1.6 \\ \omega_v &= 0.17 \text{ eV} \end{aligned}$$

図-1の実線が、束縛回転による計算結果である。10°Kにおける実験では¹⁾、冷凍機の能力の限界で使用したために、γ線照射による加熱のためにメタン温度が若干上昇した。そこで、この計算では、メタン温度を13°Kとした。点線は、比較のための自由回転模型による計算結果である。自由回転模型の計算式は、KosályとSolt⁵⁾のものと、格子振動の扱い以外は同じである。なお、計算に使用した回転定数の値は0.0008 eVである。

理論では、スペクトルのピーク附近に、レベルの励起に基因する微細構造が現われているが、実験では確認できていない。その理由としては実さいのレベルに幅があるためと考えられる。

5. 議 論

束縛回転模型による計算結果は、0.009 eV 附近における或る程度の不一致はあるが、実験とかなり良く合っている。これに対して、自由回転模型によるものの方は、スペクトルピーク附近で、実験との不一致が特に著しい。既に述べたように、この領域では、低エネルギーの回転レベルへの励起が、散乱に対して最も主要な過程となり、回転模型の差異が顕著になる。以上の結果から、調和振動的束縛回転が事実に近いと判断することができる。

なお、0.009 eV 附近の不一致については、その理由として、実験の面ではカウンター感度の補正の不備、メタン温度測定の誤差、あるいは理論の方では量力学的扱いから半古典的方法への移り変りの部分での不連続な扱いなどが考えられるが、確認していない。今後の検討が必要である。

図-2は、メタン温度をさらに低くしたさいの、冷中性子スペクトルの変化の様子を示す。温度の低下とともに、極めて特異な形状の冷中性子スペクトルが現われるとともに、スペクトルの低エネルギー側が増加することがわかる。このようなスペクトルが現われるのは、回転レベルのエネルギーよりもメタン温度が低くなるために、中性子がエネルギーを得る散乱が殆んど行なわれなくなり、全非弾性散乱断面積の形状の特徴が、あらわにスペクトルの形に反映するためである。

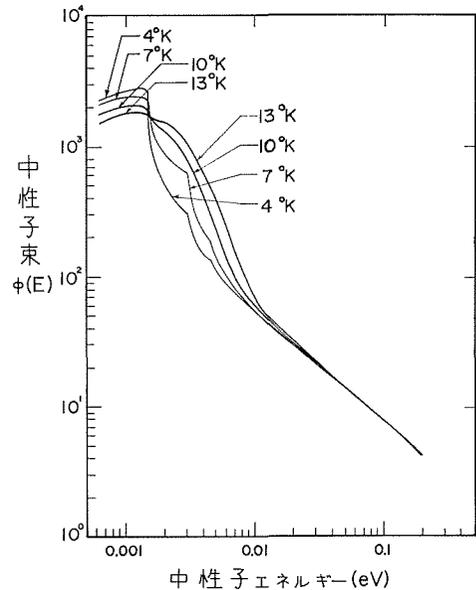


図-2 極低温メタン内の冷中性子スペクトルの温度による変化

参考文献

- 1) 井上和彦, 他: 北大工学部研究報告, 第 63 号.
- 2) Inoue, K.: J. Nucl. Sci. Technol 7 [11], 580 (1970).
- 3) Pauling, L.: Phys. Rev., 36, 430 (1930).
- 4) Dorner, B., Stiller, H.: Inelastic Scattering of Neutrons (International Atomic Energy Agency, Vienna 1965), Vol. II, 291.
- 5) Kosály, G., Solt, G.: Physica 32, 1571 (1966).
- 6) Zemach, A. C., Glauber, R. J.: Phys. Rev., 101, 118 (1956).
- 7) Krieger, T. J., Nelkin, M. S.: Phys. Rev., 106, 290 (1957).