



Title	中性子準弾性散乱による固体内ランダム運動の研究 : 電子線型加速器パルス冷中性子源反射鏡型分光装置と散乱スペクトルの測定解析について
Author(s)	井上, 和彦; Inoue, Kazuhiko
Citation	北海道大學工學部研究報告, 90, 69-77
Issue Date	1978-11-29
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41512
Type	departmental bulletin paper
File Information	90_69-78.pdf



中性子準弾性散乱による固体内ランダム運動の研究

——電子線型加速器パルス冷中性子源反射鏡型分光装置と
散乱スペクトルの測定解析について——

井 上 和 彦

(昭和53年6月30日受理)

Neutron Quasielastic Scattering Study of Randy Motions in Solids

—A New Pulsed Cold Neutron Source Hybrid Spectrometer and
Results of Preliminary Experiments—

Kazuhiko INOUE

(Received June 30, 1978)

Abstract

Quasielastic scattering of neutrons is useful as a technique for the study of random motions in solids for the characteristic time of 10^{-12} to 10^{-9} sec. A new cold neutron spectrometer has been installed at the 45 MeV electron LINAC at Hokkaido University for the main purpose of measurements of quasielastic scattering. The facility consists of a LINAC cold neutron source, four high sensitivity crystal monochromator assemblies, and a four-detector time-of-flight system. This paper gives a brief discussion of the quasielastic scattering and a description of the spectrometer. Results of preliminary measurements are also reported.

I. 序 論

固体内における 10^{-12} ないし 10^{-9} 秒の特性時間を持つランダム運動の時間的・空間的・情報は中性子準弾性散乱スペクトルの特徴的な形に反映して現われる¹⁾。ランダム運動あるいは緩和現象の研究には、誘電緩和、超音波緩和、NMR などの手法が利用されているが、これらの適用は 10^{-9} 秒より長い特性時間の現象に限られている。これより短い特性時間の現象に対しては中性子準弾性散乱が新しい有力な研究手段となる。中性子準弾性散乱実験を行なうためには、 $10^{14} \sim 10^{15}$ n/cm²・sec の高中性子束原子炉を必要とする。しかし、このクラスの研究用原子炉は現在でも数が極めて限られており、その使用は時間的にも場所的にも制約があまりにも大きい。もしも、手元にある適当な中性子源を利用して、 $10^{14} \sim 10^{15}$ n/cm²・sec 級の研究炉におけるものに匹敵する感度と分解能をもって中性子準弾性散乱を実行できるようになれば、その意義は極めて大きい。そこで加速エネルギー 45 MeV 級の電子 LINAC をパルス中性子源として、中性子線源およびエネルギー分析装置に種々の工夫を行なうことによって総合感度で 3000 倍の増強を達成して、所要の感度と分解能をもって中性子準弾性散乱実験を行なうことができる中性子飛行時間分光装置 (LANDAM) を設計・製作した[†]。

† LANDAM は Linear Accelerator Neutron-source Dai Menseki (Area) Monochrometer の略

本論文では、まず固体内ランダム運動と中性子準弾性散乱の関係、所要のエネルギー分解能、エネルギーと波数領域について述べる。次に、LANDAM 分光装置の概要について述べ、さらにある種の分子結晶およびゴム状高分子について行なった予備実験とその解析結果について述べる。

II. 中性子準弾性散乱

結晶による遅い中性子の散乱は弾性散乱と非弾性散乱に比較的明確に区別することができる。単色の中性子を結晶に当てると、弾性散乱スペクトルは図 1(a) に示すように幅のないシャープなラインになる。もちろん分光装置の分解能による幅があるが、図 1 では簡単のためにこれによるラインの広がりを無視して話を進める。散乱体系が自由な原子あるいは拡散運動をしている原子の場合には、弾性散乱スペクトルは図 1(b) のように若干幅があるピークとなる。この場合にはエネルギー変化がない真の意味での弾性散乱は起こらず、原子の反跳によって弾性散乱中性子のエネルギーが若干変化する。これは準弾性散乱と呼ばれる。他方、結晶では上述のように弾性散乱は無反跳でラインに幅がなく、こちらを純弾性散乱と呼ぶ。

入射および散乱中性子エネルギーが E_i と E_f で、散乱長が b_{inc} で、エネルギーと運動量変化が $\hbar\omega$ と $\hbar\vec{Q}$ であるような非干渉性中性子微分散乱断面積は次式で与えられる。

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\vec{Q}dE}\right)_{\text{inc}} = k^{-1} \left(\frac{E_f}{E_i}\right)^{1/2} b_{\text{inc}}^2 S_{\text{inc}}(\vec{Q}, \omega) \quad (1)$$

ここで $S_{\text{inc}}(\vec{Q}, \omega)$ は中性子散乱関数で、中間散乱関数 $I_s(\vec{Q}, t)$ の時間フーリエ変換である。

$$S_{\text{inc}}(\vec{Q}, \omega) = (2\pi)^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} I_s(\vec{Q}, t) \quad (2)$$

さらに中間散乱関数は時間・空間自己相関関数 $G_s(\vec{r}, t)$ と次の関係にある。

$$G_s(\vec{r}, t) = \int d\vec{Q} e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{r}} I_s(\vec{Q}, t) \quad (3)$$

固体内水素の古典的な自己相関関数を次のように書くことができる。

$$G_s(\vec{r}, t) = G_{\infty}(\vec{r}) + G_D(\vec{r}, t) + G_{\text{osc}}(\vec{r}, t) \quad (4)$$

$G_{\infty}(\vec{r})$ は $t \rightarrow \infty$ における平均値の漸近分布を表わし、 $G_D(\vec{r}, t)$ は $t \rightarrow \infty$ で零に減衰する成分であり、 $G_{\text{osc}}(\vec{r}, t)$ は $t \rightarrow \infty$ でも有限で振動する成分である。 G_{∞} は純弾性散乱となり、 G_D は準弾性散乱となり、 G_{osc} は非弾性散乱となる。 G_{∞} は液体では現われないが、このことは物理的意味を考えれば当然である。 G_{osc} の寄与は弾性散乱を考える小さなエネルギー変化量領域では一般には小さいが、ある種の固体では後述のように大きな寄与となり、無視できない場合がある。

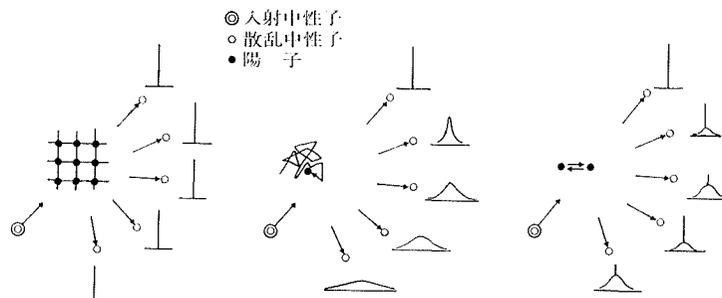


図 1 各種の規則的および不規則的運動の弾性散乱スペクトルの特徴

拡散運動による準弾性散乱を利用した液体の研究は早くから行なわれてきた。固体においてもランダム運動があると特徴的な準弾性散乱スペクトルが現われるが、図1(c)は固体内の2点間でジャンプしている水素による弾性散乱スペクトルの特徴を示したものである。固体内ランダム運動の解析手法としての中性子準弾性散乱の有用性が評価されるようになったのは最近である。中性子のエネルギーおよび波数ベクトルの変化量の関係から、特性時間が 10^{-12} ないし 10^{-9} 秒のランダム運動の時間的・空間的情報を調べるのに適している。大部分の準弾性散乱の研究は水素を含む物質について行なわれているが、これは水素が著しく大きな非干渉性散乱断面積を持つためである。

測定する波数領域は広い方が望ましいが、数 \AA^{-1} 程度までである。上限は中性子エネルギーとエネルギー分解能の方から制約を受ける。このため通常はエネルギーとしては数 meV を採用する。必要なエネルギー分解能は、調べようとする研究対象の特性時間に応じて決めなければならない。特性時間が 10^{-12} 秒オーダーの時には数分の1 meV 以内の分解能が必要であり、 10^{-9} 秒オーダーに対しては $1\mu\text{eV}$ 以内の分解能が必要となる。これらのエネルギー分解能を一つの分光装置でカバーするのは至難のわざである。また、高分解能の装置では必然的にカバーできるエネルギー領域が狭くなる制約がある。

III. 分光装置とデータ処理システム

LANDAM の設計における最大の問題はあまりにも過小な中性子源を用いて、いかにして所期の感度と分解能を達成するかということであった。数 10 MeV の加速エネルギーで数 KW のビーム出力を有する電子 LINAC は中性子散乱実験では $10^{12}\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 級の原子炉相当であるというのが通念である²⁾。従って 45 MeV で 1 KW の電子 LINAC を使用するのでは、所期の中性子準弾性散乱実験を行なうためには線源強度がおよそ数 1000 分の 1 しかないことになる。中性子回析などであれば、この程度の容量の LINAC でもある程度のデータが得られる。しかし、 $10^{14} \sim 10^{15}\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 級原子炉の場合に匹敵する感度と分解能で非弾性散乱の一種である準弾性散乱を行なうためには、この数 1000 分の 1 ハンディキャップを克服しなければならない。幸い準弾性散乱は他の中性子分光法に比べて、波数測定の精度をゆるめることができる。また、結果としての総合感度で数 1000 倍の増強を行えばよいわけであるから、もしも線源強度で数 10 倍を増強し、さらにエネルギー分析系で数 10 倍の感度増強ができれば、所要の目的を達成できるわけである。

システムのある単一の機能因子で一挙に大きな倍率を得るのは困難であっても、多くの機能因子で着実に少しずつかせいで、累積で大きな倍率を得ることを考える方が実現性が高い。表 1 にこの設計方針を実行した結果を示す。パルス線源としての電子 LINAC の普通の使用条件に比べて累積 3000 倍強の線源強度・検出感度の増大を達成することができた。後述の測定データで示すようにほぼ $10^{14}\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 級原子炉の場合と同程度の測定時間で、同程度の統計を得て、ピコ秒領域の測定にとって同じかそれより高い分解能を実現した。装置の構成と総合感度向上の各因子について簡単に説明する。

(a) パルス冷中性子源で、 20°K 固体メタン冷減速材を用いて、5 meV 中性子に対して 6 倍の冷中性子利得を得た³⁾。

表 1. LANDAM 効率増大の各因子

装 置	倍率
冷 中 性 子 源	6
大面積アセンブリー	6
高 速 反 射 体	2
大面積モノクロメータ	11
複数モノクロメータ	4
累 積	~3200

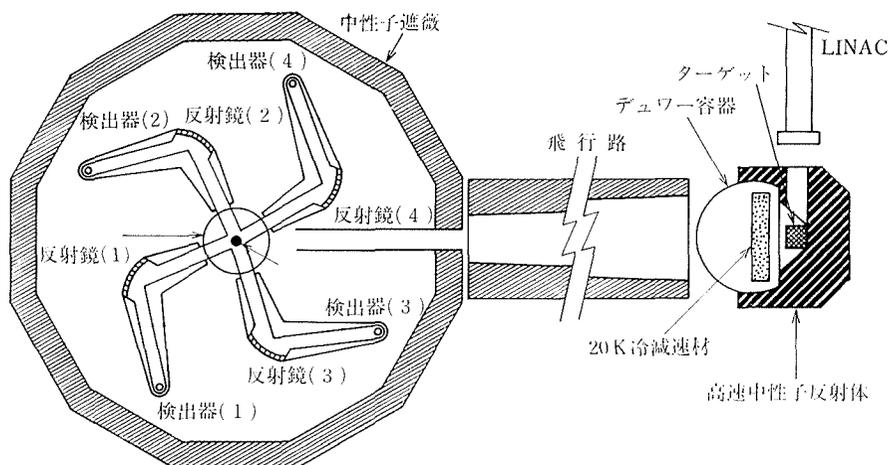


図2 LANDAM スペクトロメータの構成

(b) 通常の中性子散乱実験ではビームをコリメートして揃えて散乱角の精度を保つ必要があるが、準弾性散乱ではこれを犠牲にできる。そこで、冷減速材の中性子放出面を著しく大きく取ることによって、6倍以上の中性子収率を得た。

(c) 高速中性子反射体によって減速途中の中性子の漏洩損失を軽減し、かつ低エネルギー中性子パルス幅を増すことなく、低エネルギー中性子利得を得た。ベリリウムを用いると3倍になるが、ベリリウムは高価格であるので、黒鉛を用いて2倍の利得を得た。

(d) 試料で散乱された中性子を結晶モノクロメータで単色化して、入射エネルギーとの差からエネルギー変化を測る。ところが上述のように散乱角の精度を犠牲にできるから、結晶 Bragg 反射モノクロメータを大面積反射鏡型にして検出感度を上げた。

(e) 異なる散乱角のデータが必要であるので、4方向について同時測定を行なう。

図2に LANDAM 分光装置の概要図を示す。また、図3はナフタリンの弾性散乱スペクトルであり、 $1.0\text{ cm} \times 2.5\text{ cm}$ で 1.5 mm 厚の試料により、1個の反射鏡で数時間で測ったものである。この場合には純弾性散乱が主であるから、この結果からエネルギー分解能を評価できる。パルス線源であるために、パルスの長波長側の減衰がどうしても遅くなるが、立ち上がり側はかなり速い。断面積データは立ち上がり側の解析から得ることができる。図3のパルスではこの実効分解能が 0.2 meV であることを示している。この分解能の値は相当する他の分光装置の良いものに匹敵するが、LANDAM ではさらに、簡単にこれを 0.1 meV まで上げることができる。

中性子散乱実験のデータ処理は一般に複雑であるが、LANDAM の場合もその例にもれない。時間分析器の L 番目チャンネルの計数 C_L は次式で表わされる分析過程を経た結果で与えられる。

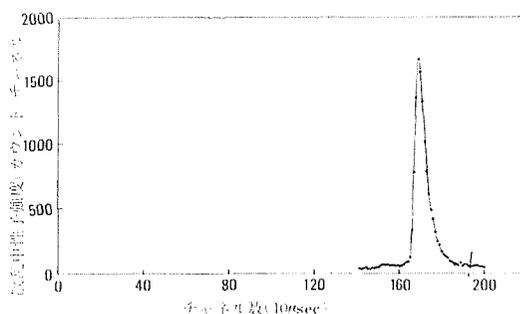


図3 ナフタリン試料の飛行時間スペクトル、スペクトルピークは純弾性散乱のもので、立上り側が時間分解能を表わす。減衰側は入射中性子パルスの減衰時間を表わす。

$$C_L = A \Delta t \int \int t E_1 dE_2 \phi(E_1, t_L - t_2(E_2)) \sigma(E_1 \rightarrow E_2, \theta) M(E_2) \quad (5)$$

ここで、 E_1 と E_2 は入射および散乱中性子エネルギーで、 t_L は T 番目のチャネルの代表時刻で、 t_2 は散乱中性子の飛行時間で、 A と Δt はシステムの感度とチャネル幅である。 $\phi(E_1, t_L - t_2(E_2))$ はエネルギーおよび入射時刻 $t_L - t_2(E_2)$ の函数としての入射中性子パルス函数であり、 $M(E_2)$ はモノクロメータの通過函数である。

理論モデルの散乱函数を用いて (5) 式の重積分を行ない、その結果と実験スペクトルを最小 2 乗法でフィッティングして、散乱函数の純弾性散乱と準弾性散乱の各成分の比率を決定するために、データ処理コード LICCIT を作成した[†]。なお、この計算コードは、統計誤差によるスペクトルデータのバラツキの平滑化、およびスペクトルピーク点を仮復計算で追跡して実行飛行路長を決定するなどの機能も有している。

中性子パルス函数 $\phi(E_1, t_1)$ をあらかじめ正確に知っておく必要がある。このためにまず高分解能の後方散乱モノクロメータを用いて、数点のエネルギー点においてパルスの時間特性を正確に測った²⁾。次にこの結果を利用して、減速熱化理論を参照して中間エネルギー点について内挿し、パルス線源の中性子放出面におけるエネルギー E' と放出時間の函数としての中性子パルス $\phi(E', \tau)$ のレリーフを作りその欠点を修正する。実際の計算ではこれを入力データとして、飛行時間のエネルギー毎の差を補正して所要のパルス函数として使用する。

モノクロメータ通過函数 $M(E_2)$ はほぼ 2 等辺 3 角形に近い形をしている。これを正確に定めるために純弾性散乱が主であるような試料のスペクトルについて LICCIT によるデータ処理を行なって、正確に一致するまで試行函数を修正する。 $M(E_2)$ の形は散乱試料の形に依存するから、この処理操作は必要である。

IV. 陽子転移および状態間遷移

分子結晶内の 1 個の陽子の古典的な自己相関函数

$$G_S(\vec{r}, t) = \int d\vec{r}' \langle \rho(\vec{r} - \vec{r}', 0) \rho(\vec{r}', t) \rangle \quad (6)$$

について考える。ここで $\rho(\vec{r}, t)$ は時刻に原点にあった粒子が時刻に \vec{r} にある確率分布函数であり、 $\langle \rangle$ はアンサンブル平均を表わす。確率分布函数を次のように書く。

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_{\alpha} P_{\alpha}(t) n_{\alpha}(\vec{r} - \vec{R}_{\alpha}) \quad (7)$$

ここで、 $P_{\alpha}(t)$ は時刻 t に α 状態にある確率演算子であり、 $n_{\alpha}(\vec{r} - \vec{R}_{\alpha})$ は \vec{R}_{α} に平衡点を有する陽子の α 番目振動状態の平均密度演算子である。(7) 式が表わしているように、このモデルでは陽子の振動状態をその平均振幅のみで区別し、振動状態の時間的変動を考えている。

(7) 式を (6) 式に代入して、その結果と (3) 式の逆変換から中間散乱函数が次のように得られる。

$$I_S(\vec{r}, t) = \sum_{\alpha, \beta} p(\alpha | \beta; t) p(\beta) \vec{F}_{\alpha}(\vec{Q}) \vec{F}_{\beta}(\vec{Q}) \quad (8)$$

ここで $\vec{F}_{\alpha}(\vec{Q})$ は拡張された散乱形状因子で次、式で与えられる。

$$\vec{F}_{\alpha}(\vec{Q}) = \int d\vec{r} e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}} n_{\alpha}(\vec{r} - \vec{R}_{\alpha}) \quad (9)$$

$p(\alpha | \beta; t)$ は初め状態 β にあって、時刻 t に α にある条件つき確率である。 $p(\alpha)$ は状態 α にあ

[†] LICCIT は Linear Count Component Inverse Transform の略である

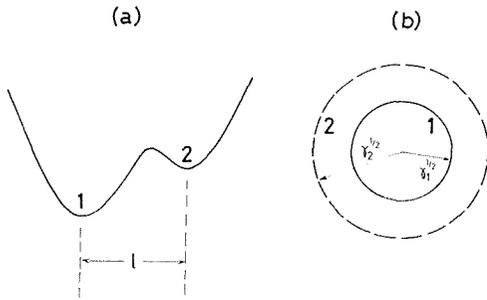


図4 水素結合における陽子に作用する2極小ポテンシャルおよび2つの振動状態の熱振動雲

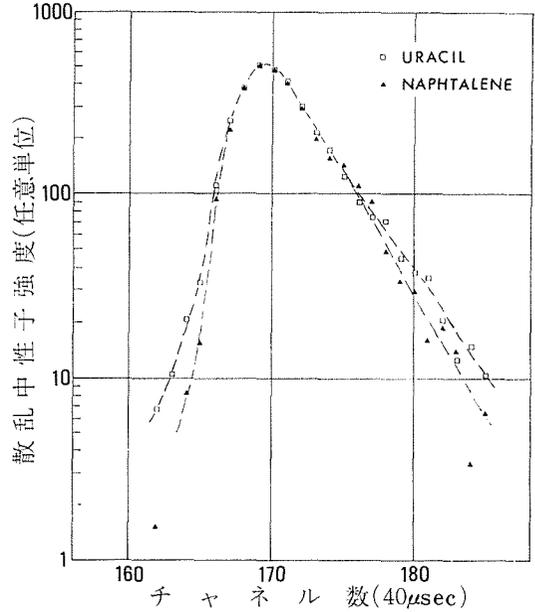


図5 ウラシルおよびナフタリンの散乱角 120° 、室温における弾性散乱スペクトル測定結果

る先験的確率である。

陽子が2つの状態1と2の間をランダムに移り変わる場合を考える。陽子の平均密度関数は次式で与えられる。

$$n_\alpha(\vec{r}) = (2\pi\gamma_\alpha)^{-3/2} \exp(-r^2/2\pi\gamma_\alpha) \quad (10)$$

ここで γ_α は α 番目振動状態の平均2乗振幅である。(8) (9) (10) 式および (1) (2) 式から、中性子散乱関数が次のように得られる。

$$S_{inc}(\vec{Q}, \omega) = (\tau_1 + \tau_2)^{-2} [\{\tau_1^2 F_1^2(\vec{Q}) + 2\tau_1\tau_2 F_1(\vec{Q})F_2(\vec{Q})\cos(\vec{Q}l) + \tau_2^2 F_2^2(\vec{Q})\} \delta(\omega) + \tau_1\tau_2 \{F_1^2(\vec{Q}) - 2F_1(\vec{Q})F_2(\vec{Q})\cos(\vec{Q}l) + F_2^2(\vec{Q})\} L(\lambda, \omega)] \quad (11)$$

ここで、 τ_1 と τ_2 は状態1と2の滞留時間であり、 $F_\alpha(\vec{Q})$ は通常の散乱形状因子であり、 $L(\lambda; \omega)$ は Lorentz 関数 $= (\lambda/\pi)/(\omega^2 + \lambda^2)$ であり、 $\lambda = \tau_1^{-1} + \tau_2^{-1}$ である。

水素結合では陽子に対するポテンシャルは図4(a)のように2極小ポテンシャルとなっており、極小点の間で陽子転移が起こることがあると考えられている⁹⁾。この場合には(11)式の散乱関数を適用することができる。しかし、ドナー原子とアクセプター原子が異なる場合には、ポテンシャルの非対称性が大きく、位置1と位置2の間のポテンシャルエネルギー差は熱エネルギーに比べてかなり大きいと考えられている。そのような場合には τ_1 が長くなって、(11)式からわかるように、準弾性散乱の項は著しく小さくなってしまふ。

別のランダム運動の可能性として、陽子は1つの平衡位置に存在しているが、振動状態が変わる場合を考える。水素結合の強い非調和性などのために振動励起状態が急速に脱励起すると仮定する。励起エネルギーが熱エネルギー程度かあるいはそれ以下のモードの場合には、熱励起の確率が大きい。従って励起状態の基底状態に対する比率が数分の1かそれ以上になる。そのような場合にはある分子の基底状態は附近の分子の脱励起エネルギーをもらって励起する割合が多くなり、基底状態にも見かけの滞留時間が存在することになる。

表 2. 実験スペクトルと理論モデルの最小 2 乗フィッティングの結果

振動状態	平均滞留時間 τ (秒)	平均 2 乗振幅 (\AA^2)
1	11.6×10^{-12}	0.06
2	5.0×10^{-12}	0.30

2 つの振動状態の平衡点が同じ場合には、(11) 式で $l=0$ であり、散乱函数は次のようになる。

$$S_{inc}(\vec{Q}, \omega) = (\tau_1 + \tau_2)^{-2} [\{\tau_1 F_1(\vec{Q}) + \tau_2 F_2(\vec{Q})\}^2 \delta(\omega) + \tau_1 \tau_2 \{F_1(\vec{Q}) - F_2(\vec{Q})\}^2 L(\lambda; \omega)] \quad (12)$$

(12) 式からわかるように、 $F_1(\vec{Q}) = F_2(\vec{Q})$ の場合には準弾性散乱は消滅する。すなわち、例え陽子がランダムに異なる状態間を変動していても、それらの状態の散乱形状因子が同じならば、中性子は状態の差異を識別できないから、散乱スペクトルにはランダム運動の影響は現われない。今考えている振動励起は分子の外部モードであり、励起状態における陽子の平均 2 乗振幅は、基底状態のものよりかなり大きい。従って、滞留時間 τ_1 と τ_2 が適切な長さであれば準弾性散乱が現われる。

図 5 は核酸塩基の一つであるウラシルの弾性散乱スペクトルとナフタリンのものを測定した結果を示す。ピークの裾がウラシルで持ち上がっているのが認められる。(12) 式のモデルを用いて最小 2 乗法でフィットしてパラメータを定めた結果を表 2 に示す。基底状態を 1 として、その時の陽子の平均 2 乗振幅 γ_1 を 0.06\AA^2 に固定してフィッティングを行なった。定まった γ_2 の値は励起状態のものとして妥当なものである。また、 τ_1 と τ_2 の値も妥当なものであるが、この振動緩和モードの確認のために、はさらに実験を行なう必要があり、準備を進めている。

V. ゴム状高分子の局在ランダム運動

高分子の鎖セグメントの局在ランダム運動を調べることは、分子配向と分子間力の間の関係を調べる上で重要である。ゴム状高分子では架橋点間の長い分子鎖がかなり活発な熱運動をしていると考えられている。従って、この長い分子鎖内の鎖セグメントはランダムなミクロブラウン運動をしているわけであるから、特性時間が適切な長さであれば中性子準弾性散乱スペクトルに特徴が反映するはずである。この種の研究は始まったばかりで、増々重要になろうとしている¹⁾。

巨視的にはゴム状高分子は固体であるから、水素原子の自己相関函数が液体分子の場合のように $t \rightarrow \infty$ で零になることはなく、 $G_{\omega}(t)$ が有限な値で残る。従って、ゴム状高分子では幅がない純弾性散乱ピークと幅がある準弾性散乱ピークが重畳して現われるはずである。数種のゴム状高分子と典型的な結晶性高分子について予備実験を行なった。図 6 は 5 種類の高分子の弾性散乱スペクトルの測定結果を示す。

散乱函数のエネルギー積分は中間散乱函数と次の関係にある。

$$\int_{-\infty}^{\infty} S_{inc}(\vec{Q}, \omega) d\omega = I_S(\vec{Q}, 0) \quad (13)$$

また $I_S(\vec{Q}, 0)$ は定義により 1 に等しい。弾性散乱成分の強度比を考える場合には、狭いエネルギー領域で積分すればよいから、(13) 式の性質を利用することができる。各運動モードの間に相関がないと仮定すると、ゴム状高分子の中間散乱函数を次のように書くことができる。

$$I_S(\vec{Q}, t) \approx I^{(R)}(\vec{Q}, t) \cdot I^{(T)}(\vec{Q}, t) \cdot I^{(V)}(\vec{Q}, t) \quad (14)$$

ここで、 $I^{(R)}$ は鎖セグメントのランダム運動に関する中間散乱函数で、 $I^{(T)}$ は鎖のねじれ振動に関するもので、 $I^{(V)}$ は C-H の振動に関するものである。結晶性高分子では、 $I^{(R)}(\vec{Q}, t) = 1$ と置

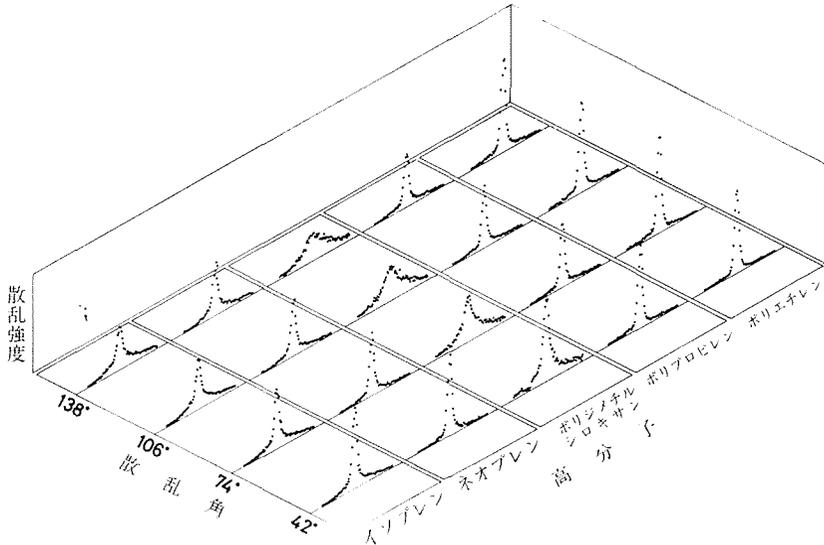


図6 ゴム状高分子および他の高分子の準弾性散乱スペクトル測定結果

けばよい。各中間散乱関数は、 $t=0$ でそれぞれ1であるから、この性質を利用して各モード内成分の積分強度を論じることができる。

ねじれ振動の $I^{(T)}(\vec{Q}, t)$ を純弾性散乱を与える部分と非弾性散乱を与える部分に分割して書く。

$$I^{(T)}(\vec{Q}, t) = I_{pe}^{(T)}(\vec{Q}, t) + I_{in}^{(T)}(\vec{Q}, t) \quad (15)$$

ランダム運動の $I^{(R)}(\vec{Q}, t)$ は純弾性散乱を与える部分と準弾性散乱を与えるものに分かれる。 $I^{(V)}$ に関しては励起エネルギー準位が一般に高いから、Debye-Waller 因子 $e^{-\langle v^2 \rangle Q^2}$ だけを考慮すればよい。

結局、中間散乱関数の性質を利用して、弾性散乱における各モードの寄与を調べる近似式として次式が得られる。

$$\int_{-\infty}^{\infty} S_{inc}(\vec{Q}, \omega) d\omega \approx e^{-\langle v^2 \rangle Q^2} I_{pe}^{(R)}(\vec{Q}, 0) I_{pe}^{(T)}(\vec{Q}, 0) + e^{-\langle v^2 \rangle Q^2} I_{pe}^{(T)}(\vec{Q}, 0) I_{qe}^{(R)}(\vec{Q}, 0) + e^{-\langle v^2 \rangle Q^2} I_{pe}^{(R)}(\vec{Q}, 0) I_{in}^{(T)}(\vec{Q}, 0) + e^{-\langle v^2 \rangle Q^2} I_{in}^{(T)}(\vec{Q}, 0) I_{qe}^{(R)}(\vec{Q}, 0) \quad (17)$$

右辺第1項は純弾性散乱強度を表わす。第2項は純弾性散乱ラインの両翼に狭いが広がった準弾性散乱を与える。第3項は広い裾野となり、 $\omega=0$ を離れてもあまり減衰しないが、この項は鎖関の分子間力の性質を反映して、高分子の構造によって大きく変化する。第4項は通常はかなり小さく、またエネルギーによる変化も小さい。図6のスペクトルにおいて裾野の大きさを比較すると、ゴム状高分子と結晶性のものとで明瞭に前者の方が大きい。また、純弾性散乱成分がゴム状高分子において、散乱角の増大と共に急速に減衰している。これ(17)は式を用いて定性的に次のように説明される。まず、ゴム状高分子で裾野が大きいのは、ねじれ振動の非弾性散乱成分が結晶性のものに比べて大きいためである。これは、ゴム状高分子のねじれ振動の平均振動数が相対的に低いことで説明される。このことは鎖の内部回転に対する周囲の鎖からの回転束縛の障壁が、ゴム状高分子において小さいことに対応しており、一種の回転変態と考えられる。次に、純弾性散乱成分がゴム状高分子で急速に減衰するのは、散乱角の増大と共にランダム運動による準弾性散乱成分が増加するために、単にDebye-Waller因子による減衰よりも速く減衰するからである。散乱モデルによる定量的な検討を進めている。

VI. 結 言

中性子準弾性散乱は固体内ランダム運動の研究手法として増々活用されるようになるが、中性子準弾性散乱実験のために 45 MeV 電子 LINAC を中性子源としたハイブリッド方式中性子分光装置を設置した。本装置では、線源強度とエネルギー分析感度において累積 3000 倍の効率増大を達成して、ほぼ 10^{14} n/cm²·sec 級原子炉におけるものに匹敵する統計と分解能を得た。水素結合を含む分子結晶、ゴム状高分子、金属内水素、液晶、プラスチック結晶などの水素のランダム運動を調べる研究が開始された。

参 考 文 献

- 1) Springer, T.: Quasielastic Neutron Scattering for the Investigation of Diffusive Motions in Solids and Liquids. Springer Tracts in Modern Physics (Springer) Vol. 64 (1972).
Springer, T.: Dynamics of Solids and Liquids by Neutron Scattering. Topics in Applied Physics (Springer) Vol. 3 (1977).
- 2) 石川義和, 他; パルス中性子源とその中性子回析への応用科学研究費「中性子回析」総合班報告(1968).
Day, D. H. and Scinclair, R. N.: Nuclear Instruments and Method, **72**, 237 (1969).
Day, D. H. and Scinclair, R. N.: J. Chem. Phys., **55**, 2807 (1971).
石川義和; 加速器によるパルス中性子源と中性子散乱への応用, 日本原子力学会誌, **8**, 401(1976).
- 3) Inoue, K., et al.: J. Nucl. Sci. Technol., **13** [7], 389 (1976).
- 4) 井上和彦; 複合結晶型飛行時間中性子分光装置の感度と分解能, 北大工研究報告 78 号, 99(1975).
- 5) Inoue, K., et al.: J. Nucl. Sci. Technol., **14** [3], 195 (1977).
- 6) Hamilton, W. and Ibers, J.: Hydrogen Bonding in Solids, (Benjamin) (1968).