

H₂O および D₂O 分子による中性子の散乱

佐藤 正千代・井上 多門

原子炉の中で核分裂によって出来た中性子の減速機構を完全に理解するためには、減速材を構成する分子との弾性衝突だけでなく、分子の回転および振動運動を励起する非弾性散乱をも考慮する必要がある。その理論的取扱いの典型的な二種の方法として、H₂O 分子を扱った Goryunov の方法、ならびにもっと一般的な Zemach-Glauber の方法を、D₂O 分子に適用して紹介する。

序 原子炉の炉心部で U²³⁵ の核分裂から生じた中性子は、約 1 MeV 前後のエネルギーを持ち、この中性子がそのまま別の U²³⁵ 核と衝突しても核分裂は起こらない。分裂反応が連鎖的に起こるためには、中性子のエネルギーを熱エネルギー領域 (~0.025 eV) にまで低下させる必要がある。このためいわゆる減速材が用いられ、軽水、重水、グラファイトなどが最もよく利用されている。その減速の機構はおもに、減速材の分子を構成する原子核と中性子との弾性衝突によるものである。すなわち中性子のエネルギー E_n が、分子内に束縛された原子核の分離エネルギー ε にくらべて十分大きい間は、かりにその原子が水素とすれば、水素原子核(陽子)との1回の衝突ごとに中性子は、そのエネルギーのおよそ半分を失うことになり、こうした過程の統計学的研究は Fermi, Placzek¹⁾ 等によって行なわれた。しかし E_n が減少して ε と同程度になると、単に原子核と中性子の衝突ではなく、分子全体と中性子との衝突として考えねばならなくなり、特に分子の振動ならびに回転状態の励起を伴うような非弾性散乱が問題となってくる。

この問題はすでに戦前から、中性子陽子散乱に対する化学結合の影響という観点から論議されていたが、戦後は原子炉の開発にともなって、特に盛んになってきた。米・ソ・英・加・仏などの国立原子力研究機関ではもちろんのこと米国ではまた GE の Knolls Laboratory や Phillips Petroleum Co. などが、それぞれ独自の材料試験炉(MTR)を駆使して実験・理論の両面から、この問題の活発な研究を行なっている。その目的とするところは、中性子線によって惹起される複雑な化学的・核物理的過程の解明により、優良な炉材を開発することにある。また、純学理的には低速中性子の液体による散乱実験が盛んに行なわれ、液体構造論の新しい発展を促す契機となっている。

H₂O 分子に対する理論的な解析は、まず Goryunov²⁾ が行なった。彼は分子相互間の作用を無視し、振動は基底状態にあるとして、回転状態の励起だけを考慮に入れ、分子を非対称な剛体のコマとして取り扱い、Born 近似によって散乱の断面積を求め、Jones³⁾ および Melkonian⁴⁾ の実験結果をかなり良く説明することができた。また Zemach および Glauber⁵⁾ は、分子をさらに大胆な模型で置きかえ、グリーン関数の方法を用いて、振

動ならびに回転状態の励起をも含ませ得る理論を展開し、Griffing⁶⁾ はこの方法を CH₄ 分子に適用して実験との良い一致を得ている。

この小論ではまず、§1において Goryunov の理論を紹介するとともに、これを D₂O 分子に適用して得られたわれわれの計算結果を述べ、§2では Zemach-Glauber の方法を同じく D₂O の場合に於てはめて説明することにしよう。

1. Goryunov の方法

H₂O 分子の振動の第1励起準位のエネルギー E_1 は 0.19 eV であり、通常の室温 ($T \sim 300^\circ\text{K}$) に対して $kT \ll E_1$ である。したがって室温に近い低エネルギーの中性子に対しては、水分子を剛体のコマとして取り扱うことができる。

分子を構成する原子核と中性子の相互作用ポテンシャルを U 、衝突前後の全体系の波動関数を Ψ_i, Ψ_f ; 中性子の運動量を p_0 および p 、原子核および中性子の質量を M および m とすれば、散乱の微分断面積は重心系において、

$$d\sigma = \frac{p}{p_0} \left(\frac{1}{2\pi m^* \hbar^2} \right)^2 |\langle \Psi_f, U \Psi_i \rangle|^2 d\Omega \quad (1)$$

で与えられる。ただし m^* は換算質量 $m^* = mM/m + M$ である。

中性子と核との相互作用ポテンシャル U は、低エネルギー領域では通常、Fermi の pseudo-potential すなわち中性子と核が接触した時にだけ力が働くという δ -関数型のものが用いられる。その際、核のスピン S と中性子のスピン $\sigma_n/2$ との方向にも関係するので、 U を

$$U = -\frac{2\pi\hbar^2}{m^*} (P_+ a_{S+\frac{1}{2}} + P_- a_{S-\frac{1}{2}}) \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_n)$$

と表わそう。ここで P_+ および P_- は、合成スピン $\hat{S} = S + \frac{1}{2}\sigma_n$ の値が、 $\hat{S} = S + \frac{1}{2}$ (平行) のとき $P_+ = 1$, $P_- = 0$; $\hat{S} = S - \frac{1}{2}$ (反平行) のとき $P_+ = 0$, $P_- = 1$ となるような射影演算子で、それぞれつぎのように表わされる。

$$P_+ = \frac{1}{2S+1} (S+1 + \sigma_n \cdot S) \quad P_- = \frac{1}{2S+1} (S - \sigma_n \cdot S)$$

また、 $a_{S+\frac{1}{2}}$ および $a_{S-\frac{1}{2}}$ はそれぞれ両スピンの平行および反平行のときの散乱長 (scattering length) を表

わし、 \mathbf{r} および \mathbf{r}_n は核および中性子の位置ベクトルである。

このポテンシャルを H_2O 分子にあてはめよう。2 箇の陽子および O 核の位置とスピンをそれぞれ $\mathbf{r}_1, \sigma_1/2$; $\mathbf{r}_2, \sigma_2/2$ および \mathbf{r}_3 (O 核のスピンはゼロ) とし、陽子-中性子の散乱長を 3 重状態 (スピン平行) のとき a_1 , 1 重状態 (スピン反平行) のとき a_0 , そして O 核-中性子の散乱長を a とすれば、

$$U = -\frac{\pi\hbar^2}{m}[(3a_1+a_0) + (a_1-a_0)\sigma_1 \cdot \sigma_n]\delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_1) - \frac{\pi\hbar^2}{m}[(3a_1+a_0) + (a_1-a_0)\sigma_2 \cdot \sigma_n]\delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_2) - \frac{2\pi\hbar^2}{m\mu}(\mu+m)a\delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_3) \quad (2)$$

と表わされる。ただしここで μ は O 核の質量。さらにこの U を、陽子スピンの交換に対して対称な部分 U_s および反対称な部分 U_a の和として表わそう。 U_s は分子スピンの変化を伴わない散乱に寄与し、 U_a は分子スピンを変化させる場合に関係する。

これらはそれぞれ

$$U_s = -\frac{\pi\hbar^2}{m}[(3a_1+a_0) + (a_1-a_0)\sigma_n \mathbf{S}][\delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_1) + \delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_2)] - \frac{2\pi\hbar^2}{m\mu}(\mu+m)a\delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_3) \quad (3a)$$

$$U_a = -\frac{\pi\hbar^2}{2m}(a_1-a_0)\sigma_n(\sigma_1-\sigma_2)[\delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_1) - \delta(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_2)] \quad (3b)$$

と表わされる。ただしここで $\mathbf{S}=(\sigma_1+\sigma_2)/2$ は分子のスピンのである。

つぎに波動関数を考えよう。衝突の前には、分子の重心 C および中性子 n の運動は、重心系においてそれぞれ \mathbf{p}_0 および $-\mathbf{p}_0$ の運動量を持つ平面波で表わされ、分子の重心 C に対する剛体コマの波動関数を Ψ_{em}^j , 核および中性子のスピン関数を χ_{sm_s} , χ_{m_n} とすれば、

$$\Psi_i = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{\frac{i}{\hbar}(\mathbf{p}_0 \cdot \mathbf{r}_c - \mathbf{r}_n)} \Psi_{em}^j \chi_{m_n} \chi_{sm_s} \quad (4)$$

と書かれる。同様に、衝突後は中性子の運動量を \mathbf{p} とし、対応する諸量をすべて大文字で示すことにすれば、

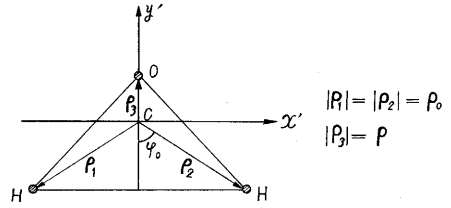
$$\Psi_f = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{\frac{i}{\hbar}(\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}_c - \mathbf{r}_n)} \Psi_{EM}^J \chi_{M_n} \chi_{SM_s} \quad (5)$$

で与えられる。さらに H_2O 分子はすでに述べたように非対称なコマと考えることができ、その定常状態の波動関数 Ψ_{em}^j は、対称なコマの波動関数 Φ_{mk}^j を用いて

$$\Psi_{em}^j = \sum_k B_{ek}^j \Phi_{mk}^j \quad (6)$$

と表わされる。ここで B_{ek}^j は分子の慣性率で記述される係数であり、 m および k はそれぞれ空間固定軸および分子固定軸に対する j の射影成分である。

さて、これだけ準備が整えば、後は (2), (4), (5),



第 1 図

(6) をそれぞれ (1) 式に代入して計算を行なえばよく、応用数学的なテクニックだけが問題となる。ただし (1) のマトリクス要素を求めるには、衝突前の量子数 m, m_n, m_s について平均をとり、衝突後のもの M, M_n, M_s について総べて加え合わさねばならないが、Schwinger-Teller の方法にならって実行すれば

$$d\sigma_s = d\Omega \frac{p}{p_0} \left(\frac{M}{m+M}\right)^2 \frac{1}{2j+1} \sum_{m, M} \left[\frac{1}{4} \{ (3a_1+a_0)^2 + 2s(a_1-a_0)^2 \} |I_1|^2 + \left(\frac{m+\mu}{\mu}\right)^2 |I_2|^2 + \frac{1}{2} a(3a_1+a_0) \frac{m+\mu}{\mu} (I_1^* I_2 + I_1 I_2^*) \right] \quad (7a)$$

$$d\sigma_a = d\Omega \frac{p}{p_0} \left(\frac{M}{m+M}\right)^2 \frac{1}{2j+1} \sum_{m, M} \frac{1}{4} (a_1-a_0)^2 \times (3-2s) |I_3|^2 \quad (7b)$$

となる。ただしここで

$$I_{1,3} = \int \Psi_{EM}^{J*} \Psi_{em}^j e^{i\mathbf{q}\rho_1} \pm e^{i\mathbf{q}\rho_2} dO \quad (8a)$$

$$I_2 = \int \Psi_{EM}^{J*} \Psi_{em}^j e^{i\mathbf{q}\rho_3} dO \quad (8b)$$

であり、 ρ_i は分子の重心 C に対する各原子核の位置ベクトル ($\rho_i = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_c$), dO は Euler 角で表わした立体角要素である (第 1 図参照)。また \mathbf{q} は中性子の運動量増加を表わし、 $\mathbf{q} = (\mathbf{p} - \mathbf{p}_0)/\hbar$ である。

一般に、 ρ の方向を (θ, φ) , \mathbf{q} の方向を (θ_0, φ_0) で表わせば

$$e^{i\mathbf{q}\rho} = \sum_i i^n (2\pi)^{3/2} \frac{1}{\sqrt{q\rho}} J_{n+\frac{1}{2}}(q\rho) Y_{nl}^*(\theta, \varphi) Y_{n,l}(\theta_0, \varphi_0) \quad (9)$$

と表わされ、 $J_{n+\frac{1}{2}}$ は半整数次のベッセル函数、 $Y_{n,l}$ は n 次の球面函数である。ここで

$$q_n(q\rho) = i^n (2\pi)^{3/2} J_{n+\frac{1}{2}}(q\rho) / \sqrt{q\rho}$$

とおき、 \mathbf{q} の方向を改めて z 軸方向に選び、 ρ_1 と ρ_2 の方向をそれぞれ $(\theta, \beta-\varphi_0)$, $(\theta, \beta+\varphi_0)$ とすれば (ただし $\beta = \varphi - \frac{\pi}{2}$, 第 1 図参照), (8) の積分のうちたとえば I_3 の被積分函数は

$$e^{i\mathbf{q}\rho_1} - e^{i\mathbf{q}\rho_2} = -2i \sum_{n,l} q_n(q\rho_0) Y_{nl}^*(\theta, \varphi) Y_{n,l}(0, -\frac{\pi}{2}) \sin l\varphi_0 \quad (10)$$

と表わされる。

また (8) の積分に含まれる対称なコマの波動関数は、

3次元回転の表現函数として知られている $D_{m,k}^j$ を用いて、

$$\Phi_{m,k}^j = \sqrt{(2j+1)/8\pi^2} D_{m,k}^j \quad (11)$$

で与えられ、この函数2箇の積は Clebsch-Gordan 係数を用いて

$$D_{MK}^J D_{m_k}^j = \sum_{\kappa=|J-j|}^{J+j} (JMjm|\kappa, M+m) \times D_{M+m, K+k}^{\kappa} (JKjk|\kappa, K+k) \quad (12)$$

のように簡約され、また球面函数との間には、

$$D_{m0}^j(\theta, \varphi, 0) = \sqrt{4\pi/2j+1} Y_{jm}^*(\theta, \varphi) \quad (13)$$

なる関係がある。

これらを利用すると

$$I_3 = \sqrt{(2J+1)(2j+1)/\pi} \sum_{\kappa, k, K} (-)^{s+K} B_{EK}^J B_{ek}^j (J-Mjm|\kappa 0) (J-Kjk|\kappa \nu) \cdot Y_{\kappa}^{\nu} \left(0, -\frac{\pi}{2}\right) \sin \nu \varphi_0 \frac{g_{\kappa}(q\rho_0)}{\sqrt{2\kappa+1}} \quad (14)$$

となる。これから $|I_3|^2$ を作り m および M について和をとれば、C-G 係数の直交性を利用して、

$$\frac{1}{2j+1} \sum_{m, M} |I_3|^2 = \frac{2J+1}{\pi^2} \sum_{\kappa} |g_{\kappa}(q\rho_0) F_{EK}^J \sin \varphi_0|^2 \quad (15)$$

の形にまとめられる。ただしここで

$$F_{EK}^J \sin \varphi_0 = \sum_{k, K} (-)^{s+K} B_{EK}^J B_{ek}^j (J-Kjk|\kappa \nu) \times \Theta_{\kappa}^{\nu} \sin \nu \varphi_0 \quad (16)$$

$$k = -j, \dots, j; K = -J, \dots, J$$

$$\Theta_{\kappa}^{\nu} = \sqrt{\frac{(\kappa-\nu)!}{(\kappa+\nu)!}} P_{\kappa}^{\nu}(0) \quad (17)$$

であり、 P_{κ}^{ν} は Legendre の倍函数である。他の積分 I_1, I_2 も同様な方法で計算できる。けつきよく

$$d\sigma_{jes}^{JE_s} = d\Omega \frac{\rho}{\rho_0} \left(\frac{M}{m+M}\right)^2 \frac{2J+1}{\pi^2} \left[\frac{1}{4} \{ (3a_1+a_0)^2 + 2s(a_1-a_0)^2 \} \sum_{\kappa} |g_{\kappa}(q\rho) F_{EK}^J \cos \varphi_0|^2 + \left(\frac{m+\mu}{\mu}\right)^2 \frac{a^2}{4} \left| \sum_{\kappa} g_{\kappa}(q\rho_0) F_{EK}^J \cos 0 \right|^2 + \frac{1}{2} a(3a_1+a_0) \frac{m+\mu}{\mu} \sum_{\kappa} g_{\kappa}^*(q\rho_0) g_{\kappa}(q\rho) F_{EK}^J \cos \varphi_0 F_{EK}^J \cos 0 \right] \quad (18a)$$

$$d\sigma_{jes}^{JE_{1-s}} = d\Omega \frac{\rho}{\rho_0} \left(\frac{M}{m+M}\right)^2 \frac{2J+1}{\pi^2} \frac{1}{4} (a_1-a_0)^2 \times (3-2s) \sum_{\kappa} |g_{\kappa}(q\rho_0) F_{EK}^J \sin \varphi_0|^2 \quad (18b)$$

ただしこの場合、分子が衝突によって (j, e, s) の状態から (J, E, S) の状態に移移する場合には、つぎの選択則に従うことを注意する必要がある：

$$\Delta e + (-)^e \left[(-)^{s+j} \Delta s + \frac{1}{2} \{ 1 - (-)^{s+j} \} \right] = 4k, \quad (k=0, \pm 1, \dots) \quad (19)$$

記号の意味は、 $\Delta e = E - e$, $\Delta j = J - j$, $\Delta s = S - s$ である。

こうして、散乱の全断面積は (18a) および (18b) を $d\Omega$ について積分して得られる。その結果は以下の通り

である。

$$\sigma_{jes}^{JE_s} = \frac{1}{\rho_0^2} \left\{ \frac{4\pi \hbar M}{\rho_0(m+M)} \right\}^2 (2J+1) \left[\frac{1}{4} \{ (3a_1+a_0)^2 + 2s(a_1-a_0)^2 \} \sum_{\kappa} I_{\kappa}^{(1)} |F_{EK}^J \cos \varphi_0|^2 + \left(\frac{m+\mu}{2\mu\alpha}\right)^2 a^2 \sum_{\kappa} I_{\kappa}^{(2)} |F_{EK}^J \cos 0|^2 + \frac{m+\mu}{2\mu\sqrt{\alpha}} a(3a_1+a_0) \sum_{\kappa} I_{\kappa}^{(3)} F_{EK}^J \cos \varphi_0 F_{EK}^J \cos 0 \right] \quad (20a)$$

$$\sigma_{jes}^{JE_{1-s}} = \frac{1}{\rho_0^2} \left\{ \frac{4\pi \hbar M}{\rho_0(m+M)} \right\}^2 (2J+1) \frac{1}{4} (a_1-a_0)^2 (3-2s) \sum_{\kappa} I_{\kappa}^{(1)} |F_{EK}^J \sin \varphi_0|^2 \quad (20b)$$

この式の中には数値計算の上で最も複雑な積分が、つぎのような形で含まれている。

$$I_{\kappa}^{(1)} = \int_{x_1}^{x_2} J_{\kappa+\frac{1}{2}}^2(x) dx$$

$$I_{\kappa}^{(2)} = \int_{x_1}^{x_2} J_{\kappa+\frac{1}{2}}^2(\alpha x) dx$$

$$I_{\kappa}^{(3)} = \int_{x_1}^{x_2} J_{\kappa+\frac{1}{2}}(\alpha x) J_{\kappa+\frac{1}{2}}(x) dx \quad (21)$$

ただしここで $\alpha = \rho/\rho_0$, $x_{1,2} = \rho_0 |p_0 \pm p|/\hbar$ である。

さらに実験結果と比較できる量を導くには、衝突後の可能なすべての状態について和をとり、すなわち

$$\sigma_{jes} = \sum_{J, E} \sigma_{jes}^{JE_s}$$

かつ衝突前の状態については、Maxwell の分布函数 $e^{-\frac{E_j^e}{kT}}$ と多重度 $(2s+1)(2j+1)$ を乗じて平均をとらねばならない。すなわち

$$\sigma = A \sum_{jes} \sigma_{jes} e^{-\frac{E_j^e}{kT}} (2s+1)(2j+1) \quad (22)$$

ただし

$$A^{-1} = \sum_{jes} e^{-\frac{E_j^e}{kT}} (2s+1)(2j+1) \quad (23)$$

こうしてともかく、中性子と H_2O 分子との散乱断面積は (22) 式によって求めることができる。しかし (22) 式を実際に数値を入れて計算することは容易ではない。Goryunov は、 $j \leq 3$ の範囲だけに限定し、分子の構造常数は $\alpha = 0.0685$ 、散乱長は

$$a_0 = 2.34 \times 10^{-12} \text{ cm}, \quad a_1 = -0.52 \times 10^{-12} \text{ cm}, \\ a = 1.0 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

と取り、中性子の入射エネルギー $0.02 \text{ eV} \sim 0.05 \text{ eV}$ に対して第1表のような結果を得た。計算値と実験値の差は10%程度であり、この差はおそらく $j \leq 3$ に限定したことに起因するものであろう。

われわれは Goryunov の方法にならって重水 D_2O 分子に対して散乱断面積を計算した。用いた散乱長は

$$a_{3/2} = 6.4 \times 10^{-13} \text{ cm}, \quad a_{1/2} = 0.7 \times 10^{-13} \text{ cm},$$

$$a = 1.0 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

であり、計算結果は第 2 表に示してある。なお j の範囲は、Goryunov にならって $j \leq 3$ の範囲に限定した。さらに現在、 CH_4 分子に対して同様な解析を試みており、必要な積分 (21) は IBM 7090 を用いて十分、精度の高い表を作成した。

第 1 表 (H_2O)

$E(\text{eV})$	0.05	0.045	0.05	0.035	0.03	0.025	0.02	
$\sigma(\text{cal})$	74.4	81.2	83.6	88.0	96.0	100.4	107.6	$\times 10^{-24} \text{ cm}^2$
$\sigma(\text{exp})$	84		92		104		118	$\times 10^{-24} \text{ cm}^2$

第 2 表 (D_2O)

$\sigma(\text{cal})$	12.4		12.5			12.8		$\times 10^{-24} \text{ cm}^2$
$\sigma(\text{exp})$	13.4		13.5			14.0		$\times 10^{-24} \text{ cm}^2$

以上で述べた方法は、(22) 式を導くまでは、なんら特別な技巧を必要とするものでもなく、さながら量子力学または応用数学の演習問題の感がある。しかしながら実際の分子について、選択則 (19) に従う状態の数は老大なものとなり、これを完全に計算することはたいへんにわずらわしい。また、最後の結果を物理的に解釈する上に必ずしも便利な形にはなっていない。次節で述べる Zemach-Glauber の方法はやや高踏的であり、散乱体としての分子は極めて簡単な模型で置きかえられているが、より豊かな物理的内容を含むものである。

2. Zemach-Glauber の方法

今度は実験室系、すなわち衝突の標的としての分子の重心は静止しており、中性子が運動量 \mathbf{p}_0 で入射して散乱された後は \mathbf{p} の運動量を持つものとする。さらに簡単のため、波数ベクトル $\mathbf{k}_0 = \mathbf{p}_0/\hbar$, $\mathbf{k} = \mathbf{p}/\hbar$ を導入し、 $\hbar = 1$ とするような単位系を用いることにする。ここでもまた Born 近似を用い、衝突前後の中性子の波動関数は平面波で表わされ、分子と中性子の相互作用ポテンシャルを $U(\mathbf{r}_n)$ と表わせば、微分断面積は、

$$\sigma_{fi}(\theta) = \left(\frac{m}{2\pi} \right)^2 \frac{k}{k_0} \left| \langle \phi_f | \int \exp[-i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}_n] U(\mathbf{r}_n) d\mathbf{r}_n | \phi_i \rangle \right|^2 \quad (24)$$

と表わされる。ここで ϕ_i および ϕ_f は衝突前後の分子の波動関数、 m および \mathbf{r}_n はそれぞれ中性子の質量および位置ベクトルである。中性子と分子の相互作用は前節と同じく Fermi の pseudo-potential を用い、今度は簡単に

$$U(\mathbf{r}_n) = \sum_{\nu} \frac{2\pi}{m} a_{\nu} \delta(\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_{\nu}) \quad (25)$$

と表わしておこう。 \mathbf{r}_{ν} は分子の重心 C に対する各原子核の位置、 a_{ν} はそれぞれの散乱長である。(25) を (24) に代入すれば、

$$\sigma_{fi}(\theta) = \sum_{\nu, \nu'} \left\{ a_{\nu, \nu'} \left(\frac{k}{k_0} \right) \langle \phi_i | \exp\{i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}_{\nu'}\} | \phi_f \rangle \langle \phi_f | \exp[-i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}_{\nu}] | \phi_i \rangle \right\} \quad (26)$$

となる。ここで $a_{\nu, \nu'} = A_{\nu} A_{\nu'} + \delta_{\nu, \nu'} C_{\nu} C_{\nu'}$ であり、 A_{ν} および C_{ν} は位置 \mathbf{r}_{ν} に束縛された原子核による coherent ならびに incoherent な散乱長である。

ここで再び前節と同じく、衝突後の状態 f について和をとり、衝突前の状態 i について平均をとるわけであるが、まず f についての和をとるためにつぎのような変形を行なうことにする。

$$\sigma_i(\theta) = \sum_f \sigma_{fi}(\theta) = \sum_f \int_{-\epsilon_0}^{\infty} \sigma_{fi} \delta(E_i - E_f - \epsilon) d\epsilon \quad (27)$$

ただしここで、 $\epsilon = (\hbar^2 - k_0^2)/2m$ (中性子のエネルギー増加)、 $\epsilon_0 = k_0^2/2m$ (入射中性子のエネルギー) である。

今 (27) 式の中の δ 関数を Fourier 変換しておき、(26) を代入すれば

$$\begin{aligned} \sigma_i(\theta) &= \frac{1}{2\pi} \sum_f \int_{-\epsilon_0}^{\infty} d\epsilon \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\epsilon t) \exp\{i(E_i - E_f)t\} \sigma_{fi}(\theta) \\ &= \frac{1}{2\pi} \sum_{\nu, \nu'} a_{\nu, \nu'} \iint \frac{k}{k_0} \exp(-i\epsilon t) \langle \phi_i | \exp(iHt) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}) \exp(-iHt) | \phi_f \rangle \\ &\quad \cdot \langle \phi_f | \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu'}) | \phi_i \rangle dt d\epsilon \end{aligned} \quad (28)$$

となる。ここで $\mathbf{k} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$ (中性子の運動量増加) であり H は分子のハミルトニアンである。いま、かりに、衝突後の分子波動関数 ϕ_f が完全系を構成するものと仮定すれば、(28) 式は

$$\sigma_i(\theta) = \frac{1}{2\pi} \sum_{\nu, \nu'} a_{\nu, \nu'} \iint \frac{k}{k_0} \exp(-i\epsilon t) \langle \phi_i | \exp(iHt) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}) \exp(-iHt) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu'}) | \phi_i \rangle dt d\epsilon \quad (29)$$

と表わされ、この式にはもはや、衝突後の状態 f についての和をとるという複雑な操作は含まれていない。さらに今、 \mathbf{r}_{ν} に対する Heisenberg 表示;

$$\mathbf{r}_{\nu}(t) = \exp(iHt) \mathbf{r}_{\nu} \exp(-iHt) \text{ を用いるならば、} \quad (29) \text{ は}$$

$$\sigma_i(\theta) = \frac{1}{2\pi} \sum_{\nu, \nu'} a_{\nu, \nu'} \iint \frac{k}{k_0} \exp(-i\epsilon t) \langle \phi_i | \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}(t)) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu'}(0)) | \phi_i \rangle dt d\epsilon \quad (30)$$

と表わされ、 $\langle \quad \rangle$ の中は van Hove⁷⁾ によって定義された、'time dependent' な 2 体分布函数 (グリーン函数) に対応するものである。

また (30) 式のうち $\nu = \nu'$ の項 (直接散乱) はつぎのように変形できる。すなわち、分子ハミルトニアン H の中で、 ν 番目の核だけに注目すれば、

$$\begin{aligned} H'(\nu) &= \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}) H(\mathbf{p}_{\nu}, \mathbf{r}_{\nu}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}) \\ &= H(\mathbf{p}_{\nu} - \mathbf{k}, \mathbf{r}_{\nu}) \end{aligned} \quad (31)$$

と書けるので、

$$\begin{aligned} \langle \phi_i | \exp(iHt) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}) \exp(-iHt) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{\nu}) | \phi_i \rangle \\ = \langle \phi_i | \exp(iHt) \exp(-iH'(\nu)t) | \phi_i \rangle \end{aligned} \quad (32)$$

と表わすことができる。

さて以上の理論を D_2O の回転励起に適用しよう。前

第 3 表

$E(\text{eV})$	0.005	0.006	0.007	0.008	0.009	0.010	0.015	0.020	0.025	0.030	
$\sigma(\text{cal})$	25.6	23.3	22.4	21.3	20.4	19.7	17.9	17.2	17.0	17.1	$\times 10^{-24} \text{ cm}^2$
$\sigma(\text{exp})$	20.7	19.8	19.1	18.6	18.1	17.7	16.4	15.6	15.1	14.7	$\times 10^{-24} \text{ cm}^2$

節では分子内での核の配位を正確に記述したが、今度は、散乱体としての分子を極めて単純化された模型で置きかえてしまおう。すなわち半径 b の球面上を質量 m の粒子散乱体が運動するものとするのである。今これに対して慣性能率に相当するパラメーター I を与えれば、分子ハミルトニアンは、

$$H = -\frac{1}{2I} (\sum \mathbf{b}_\nu \times \mathbf{p}_\nu)^2 = \frac{1}{2I} L^2 \quad (33)$$

となる。また波動関数 ψ_i は球面関数 $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ である。

(31) より直接散乱の項は、粒子 ν に対して

$$H'(\nu) = \{\mathbf{b}_\nu \times (\mathbf{p}_\nu - \boldsymbol{\kappa})\}^2 / 2I = \{\mathbf{L}_\nu^2 + \boldsymbol{\kappa} (\mathbf{b}_\nu \times \mathbf{L}_\nu - \mathbf{L}_\nu \times \mathbf{b}_\nu) + (\mathbf{b}_\nu \times \boldsymbol{\kappa})^2\} / 2I$$

と変形され、これを用いると

$$\frac{1}{2l+1} \sum_m \langle Y_{lm} | \exp(iHt) \exp(-iH'(\nu)t) | Y_{lm} \rangle$$

が計算される。その具体的な計算法は Zemach-Glauber にならない、右辺を $\sum c_n (it/I)^n$ の形に展開すれば、

$$1 - \left(\frac{it}{I}\right) \frac{b_\nu^2 \kappa^2}{3} + \left(\frac{it}{I}\right)^2 \left\{ \frac{b_\nu^4 \kappa^4}{15} + \frac{b_\nu^2 \kappa^2 (l^2 + l + 1)}{6} \right\} + \dots$$

と表わされる。

他方、干渉項に対しては、

$$\frac{1}{2l+1} \sum_m \langle Y_{lm} | \exp(iHt) \exp(i\boldsymbol{\kappa} \mathbf{b}_\nu) \exp(-iHt) \exp(-i\boldsymbol{\kappa} \mathbf{b}_{\nu'}) | Y_{lm} \rangle = \frac{1}{2l+1} \sum_m \langle Y_{lm} | \exp(i\boldsymbol{\kappa} \mathbf{b}_{\nu\nu'}) \exp\{-it(H'(\nu') - E_i)\} | Y_{lm} \rangle$$

となる。ただしここで $\mathbf{b}_{\nu\nu'} = \mathbf{b}_\nu - \mathbf{b}_{\nu'}$ である。これに対しても直接散乱の項と同様にして計算することができる。

その結果、角運動量 l の散乱体による微分断面積はつぎのようになる。

$$\begin{aligned} \sigma_i(\theta) = & \sum_\nu a_{\nu\nu} \left\{ 1 - \frac{mb_\nu^2}{I} \left(\frac{4}{3} - \frac{4}{3} \cos \theta \right) \right\} \\ & + \left(\frac{mb_\nu^2}{I} \right)^2 \left\{ (1 - \cos \theta) \left(\frac{4}{3} - \frac{4}{5} \cos \theta \right) + \frac{1}{3} \frac{(l^2 + l + 1)}{(kb_\nu)^2} \right\} \\ & - \dots + \sum_{\nu \neq \nu'} a_{\nu\nu'} j_0 \left(2k_0 b_{\nu\nu'} \sin \frac{\theta}{2} \right) \\ & - \frac{m}{2I} \frac{1}{k_0^2} \frac{d}{dk} \left[\frac{k\kappa^2 (\mathbf{b}_\nu \times \mathbf{b}_{\nu'})^2}{b_{\nu\nu'}} j_0(\kappa b_{\nu\nu'}) \right. \\ & \left. + \frac{k\kappa}{b_{\nu\nu'}} \left\{ 2(\mathbf{b}_\nu \mathbf{b}_{\nu'}) - \frac{3(\mathbf{b}_\nu \times \mathbf{b}_{\nu'})^2}{b_{\nu\nu'}} \right\} j_1(\kappa b_{\nu\nu'}) \right]_{k=k_0} \end{aligned}$$

となり、ここで j_0, j_1 はそれぞれ 0 次および 1 次の球面ベッセル関数である。 l に関係するものは直接散乱では第 3 項目であり $(mb_\nu^2/I)^2 \approx (m/M)^2 \approx 1/400$ (M は D_2O の質量) であるから実際には無視してよい。したがって衝突前の状態 i について平均をとり、微分断面積

はけつきよく

$$\begin{aligned} \sigma(\theta) = & \sum_\nu a_{\nu\nu} \left\{ 1 - \frac{mb_\nu^2}{I} \left(\frac{4}{3} - \frac{4}{3} \cos \theta \right) \right\} + \dots \\ & + \sum_{\nu \neq \nu'} a_{\nu\nu'} \left\{ j_0 \left(2k_0 b_{\nu\nu'} \sin \frac{\theta}{2} \right) \right\} \\ & - \frac{m}{2I} \frac{1}{k_0^2} \frac{d}{dk} \left[\frac{k\kappa^2 (\mathbf{b}_\nu \times \mathbf{b}_{\nu'})^2}{b_{\nu\nu'}} j_0(\kappa b_{\nu\nu'}) \right. \\ & \left. + \frac{k\kappa}{b_{\nu\nu'}} \left\{ 2(\mathbf{b}_\nu \mathbf{b}_{\nu'}) - \frac{3(\mathbf{b}_\nu \times \mathbf{b}_{\nu'})^2}{b_{\nu\nu'}} \right\} j_1(\kappa b_{\nu\nu'}) \right]_{k=k_0} \end{aligned}$$

として求められる。最後に立体角で積分して全断面積を求めれば、

$$\sigma = 4\pi \sum_\nu a_{\nu\nu} \left(1 - \frac{4}{3} \frac{mb_\nu^2}{I} \right) + 4\pi \sum_{\nu \neq \nu'} a_{\nu\nu'} \{ j_0(k_0 b_{\nu\nu'}) \}^2$$

となる。この式により、前節の D_2O の散乱長から導かれる A_ν, C_ν を用いて計算した結果は、第 3 表に示されている。なお $b_{\nu\nu'}$ は第 1 図に示されると同じ D_2O の配位から容易に計算され、 I の値はほとんど影響がない。

この結果は、散乱体としての分子を極めて簡単な模型で置きかえたにもかかわらず、実験結果と比較的良好に合致した傾向を示している。計算値の方が実験値よりも常に大きく出ているのは、おそらく衝突後の状態 f の処理方法による結果であろう。Griffing が CH_4 分子に適用した結果も、 σ の絶対値は別としてその傾向としては実験結果と極めて良く合致している点は興味深い。

3. 結 語

この小論では、水分子による低エネルギー中性子の非弾性散乱、特に分子の回転励起を伴う散乱断面積の計算法を紹介した。初めの Goryunov による方法は、分子を非対称なコマと考え、Born 近似の範囲で正確に応用数学的手法を駆使して結果に到達する。これを実際の分子について数値計算することは厄介であるが、労を惜しまなければ十分に実験値に近づくことができる。これに対して Zemach-Glauber の方法は、分子を簡単な模型で置きかえ、分子を構成する個々の核による直接散乱と、数箇の核の配列によって初めて現われる干渉散乱に分けて議論を進め、実験結果の定性的な説明に成功している。この方法は van Hove の 2 体分布関数の手法を基盤として多体問題的な手法を数多くとり入れている。最近、熱中性子の液体による散乱断面積が相転移点の付近で急変することが見出され興味を持たれているが、こうした問題の解明にも有力な方法となるであろう。

(1963 年 1 月 16 日受理)

- 文献 1) Weinberg-Xigner; Physical Theory of Neutron Chain Reactors, Chap. X
 2) Goryunov. Atomnaya Energiya 1, No. 3, (1956) 45
 3) Jones; Phys. Rev. 74, (1948) 364
 4) Melkonian; Phys. Rev. 76, (1949) 1750
 5) Zemach-Glauber; Phys. Rev. 101, (1956) 118
 6) Griffing; Phys. Rev. 124 (1961) 1489
 7) van Hove; Phys. Rev. 95 (1954) 249