

熱中性子散乱の理論模型による  
計算結果と検討

---

1965 年 12 月

---

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

## 熱中性子散乱の理論模型による計算結果と検討

### 要 旨

化学結合を考慮した熱中性子散乱断面積を解析するために種々の理論模型が作られてきている。Σ 委員会熱中性子グループはこれら模型による計算コードとして自由ガス模型に対しては FREE コード、分子状減速材特に軽水分子に対する Nelkin 模型には、NELKER コード、等方結晶状及び分子状減速材に対する Egelstaff-Schofield 模型には E. S. コード、黒鉛等非等方結晶減速材に対しては UNCLE コードを作成整備してきた。これらを用いて主に原子炉減速材物質の散乱法則、散乱断面積を理論あるいは実験的に求められた拡張された意味の振動数分布を用いて計算し実験との比較検討をおこなっている。

1964 年 12 月

シグマ研究専門委員会

## Theoretical Calculation for Thermal Neutron Scattering Kernel

### Summary

Various theoretical models have been developed to analyze the effect of chemical binding on neutrons scattering cross sections. The Thermal Neutron Group in the Japanese Sigma Committee has engaged in preparing the codes for these models. The codes named FREE, NELKER, E. S. and UNCLE were made for the Free Gas Model, the Nelkin's Model, the Egelstaff-Schofield's Model and the model for the anisotropic crystalline, respectively. In this paper, the numerical results of the scattering law and scattering cross section for moderator materials, calculated by these codes, are compared with the experimental data.

Dec., 1964

Japanese Nuclear Data Committee

---

この報告は「核物理理論による微視的断面積の数値解析に関する試験研究」の題目のもとに原子力平和利用研究委託費によって、シグマ研究専門委員会がおこなった研究の成果の一部である。

## 目 次

序 論 (高橋 博).....	1
1. 自由ガス模型コードによる計算結果の検討 (石黒幸雄).....	2
2. Nelkin 模型コードによる $H_2O$ , $D_2O$ の散乱法則と散乱断面積の 計算結果の検討 (嶋田昭一郎).....	6
3. ES コードによる散乱法則および散乱断面積の計算結果の検討 (松岡謙一) .....	14
4. UNCLE コードによる結晶からの散乱法則計算結果の検討 (飯島俊吾).....	25

## Contents

Introduction (H. TAKAHASHI) .....	1
1. Study of scattering law by Free Gas code (Y. ISHIGURO) .....	2
2. Study of scattering law of $H_2O$ and $D_2O$ by Nelker code (S. SHIMADA) .....	6
3. Study of scattering law of $H_2O$ , graphite and Be by E. S. code (K. MATSUOKA).....	14
4. Study of scattering law of graphite and Be by UNCLE code (S. IZIMA)...	25

## 序 論

高 橋 博

Σ委員会熱中性子グループは、主に原子炉減速材について化学結合を考慮した熱中性子散乱断面積の数値解析による研究をおこなった。分子状および結晶状減速材中の原子の運動について模型を仮定して散乱断面積計算の電子計算機用コードを作成し、理論あるいは実験的に求められた拡張された意味の振動数分布を入力データとして散乱断面積を計算し測定値との比較検討がなされ、さらに原子炉内中性子スペクトル計算に必要な軽水、重水、黒鉛など減速材物質の散乱断面積が計算された。

化学結合を考慮した熱中性子散乱断面積はフェルミの擬ポテンシャルを相互作用として第一ボルン近似で計算され、原子の運動を含む形で表現される。物質中の原子運動を正確に求める事は困難であり、求められたとしても散乱断面積の数値解析が難かしいので対象に応じた近似化された方式が考えられている。

減速材には軽水、重水のように液体状のもの、黒鉛、ベリリウムのように結晶状のものがあるが、減速材原子の運動を正確に求めるにはむしろ結晶状の方が液体状より容易である。

液体の運動は物性論においても非常にむずかしい分野の一つに属し、その理論は静的なものでしかまだ成功をおさめていない状態である。中性子散乱においては液体の動的な理論が必要であり、これらの運動を記述する満足な理論がない現状である。このために液体状の減速材による中性子散乱は主として構成分子による散乱として近似され、この報告書においては、液体状というよりも分子状減速材による散乱として記述されている。しかし分子状といっても液体状態であることを無視したのではなく、最近の液体分子の力学的理論はできるかぎり取り入れている。

結晶格子の力学的理論は有名な Debye 理論によって簡単に扱われ、Born-von Karman の理論もあまり陽の目を見ない状態におかれてきたが、最近の物性理論および実験の進歩にともないより正確な値が要求されるようになってきてその真価を發揮するようになってきた。熱中性子散乱の研究もこの正確な格子力学の取扱い基礎としてなされてきている。かくて、中性子散乱の断面積を求める事は原子炉内熱中性子スペ

クトルを求めるための炉物理的要求のみならず物性論の発展のためにも重要な道具の一つである。

熱中性子散乱は干渉散乱、非干渉散乱の二つを取扱わねばならぬが、38年度においては干渉散乱も非干渉散乱で近似し、非干渉散乱のみの計算に限定され、自由ガス模型、分子状物質に対する Nelkin の理論模型、非等方結晶に対する Parks の定式化、および分子、結晶の両者に対する Egelstaff Schofield の半経験的理論模型の四つの模型が対象とされた。

作業はまず上記の四つの模型の IBM 7090 用の計算コードを作成、整備する事からはじめられた。計算コードは単に原子炉内スペクトル計算に必要な微分散乱断面積の Legendre 展開係数  $\sigma_L(E_0 \rightarrow E)$  を計算するのみならず、これら模型を実験値と比較し、よりよい模型を得る研究に便利なよう、直接実験から求められる微分散乱断面積  $\sigma(E_0, E, \theta)$  およびその整理された形である所謂散乱法則  $S(\alpha, \beta)$  を計算できるようにした。この  $S(\alpha, \beta)$  は後述するように、微分断面積から求められる温度質量には関係しないユニバーサルな量であり、実験の整理によく用いられてきている。また Egelstaff Schofield の解析にあるようにこの  $S(\alpha, \beta)$  から一般化された振動数分布が求められる。さらに原子炉内スペクトルの計算に必要な熱中性子源スペクトルが計算できるようにした。この熱中性子源スペクトルはボルツマン方程式における散乱核として減速材原子の熱運動を無視して計算する減速核を用いるのが常であったが、今回作成された計算コードでは熱運動および化学結合を考慮した散乱核を用いて熱中性子源スペクトルを計算し正確な熱中性子スペクトルを得るようにしてある。これは四つの模型のコードを用いて各種減速材物質の実験値との比較をおこない、それを参考にして常温および高温状態における各種減速材の散乱核を中性子エネルギー 0.001 eV から 0.9 eV までを等速度分割した 30 群の行列要素として計算をした。これらの結果はカードにパンチされ、次の熱中性子スペクトルの計算にすぐ役立つように用意されている。また同じ物質に対する熱中性子源スペクトルの一部も計算されている。これらの結果および検討はそれぞれの節で述べられている。

# 1. 自由ガス模型コードによる計算結果の検討

石 黒 幸 雄

## 1.1 ま え が き

自由ガス模型は種々の模型に対する基準になるものであり、ほかの化学結合を考慮した模型と比較するためにその計算コードが作られた。さらに化学結合を考慮した模型でも入射してくる中性子のエネルギーが大きく散乱前後のエネルギー差の大きい時にはこの自由ガス模型で使われる温度質量を変える事によって近似できるので、この計算コードは熱外エネルギー領域から熱エネルギー領域に入ってくる熱中性子源スペクトルの計算もおこない得る。

## 1.2 理論の概要

Nuclear potential としてヘルミの pseudo potential を用いると熱中性子散乱断面積は<sup>(1)</sup>

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{\sigma_f}{4\pi} \left(\frac{A+1}{A}\right)^2 \sqrt{\frac{E}{E_0}} S_1(\kappa, \omega) \quad (1)$$

で与えられる。ここで  $E$ ,  $E_0$  はそれぞれ散乱前後の中性子エネルギー、 $A$  は散乱体の質量と中性子質量の比、 $S_1$  は散乱過程を通じて系に与えられるエネルギー  $\omega$ 、運動量  $\chi$  の関数で散乱体の性質に依存する。自由ガス模型に対しては<sup>(2)</sup>

$$S_1(\kappa, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp it(E - E_0) \exp\left\{\frac{1}{A}(E + E_0 - 2\mu\sqrt{EE_0})(it - Tt^2)\right\} = \left(\frac{A}{2\pi T\hbar^2\kappa^2}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left\{-\frac{A\hbar}{2T\kappa^2}\left(\omega + \frac{\kappa^2}{2A}\right)^2\right\} \quad (2)$$

$$\text{ここで、} \frac{\hbar^2}{2}\kappa^2 = E + E_0 - 2\mu\sqrt{EE_0} \\ \hbar\omega = E - E_0$$

$T$  は散乱体の温度を表す。

微分散乱断面積は上式を用いて計算されるが、このコードではその Legendre 展開係数を直接解析的に求めている。

自由ガス散乱法則  $S(\alpha, \beta)$  は

$$S(\alpha, \beta) = \left(\frac{1}{4\pi\alpha}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left[-\frac{\alpha^2 + \beta^2}{4\alpha}\right] \quad (3)$$

より計算され、この関数は Egelstaff Schofield<sup>(3)(4)</sup> の理論に示されているように、一般化された振動数分布  $\rho(\beta)$  と次の式によって関係づけられている。

$$\beta^2 \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{1}{\alpha} S(\alpha, \beta) = \frac{\beta\rho(\beta)}{2\sinh\left(\frac{\beta}{2}\right)} = \rho(\beta) \quad (4)$$

そして自由ガスの場合には  $\rho(\beta) = \delta(\beta)$  となる。

一般化された振動数分布が  $\rho(\beta)$  である場合には  $S(\kappa, \omega)$  は次式のようにになる。

$$S_1(\kappa, \omega) = N \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega t} \exp\left[-\frac{\kappa^2}{4} w_1(t)\right] dt \quad (5)$$

ここで

$$w_1(t) = \frac{2\hbar^2}{M} \int_0^{\infty} \frac{\rho(\omega)}{\hbar\omega} \left[ \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2T}\right) (1 - \cos \omega t) - i \sin \omega t \right] d\omega \quad (6)$$

もし散乱前後の中性子エネルギーの差  $\hbar\omega$  が大きい時には  $t$  での積分は時間  $t$  の短いところだけがきいてくる。これが Short collision time 近似と呼ばれるもので  $w_1(t)$  は  $t$  の中級数で展開され、その次数の小さい項だけがきいてくる。例えば上の  $w_1(t)$  を展開すると

$$w_1(t) = \frac{2}{M} \int_0^{\infty} \rho(\omega) \cot h\left(\frac{\hbar\omega}{2T}\right) \frac{\hbar\omega}{2} d\omega t^2 - \frac{2i\hbar}{M} t \quad (7)$$

となり、これを自由ガス模型の

$$w_1(t) = \frac{2T}{M} \left(t^2 - \frac{i\hbar t}{T}\right) \quad (8)$$

と比較すると、温度  $T$  が次式の  $T_{\text{eff}}$  で置きかえたものに等しくなる。

$$T_{\text{eff}} = \int_0^{\infty} \rho(\omega) \cot h\left(\frac{\hbar\omega}{2T}\right) \frac{\hbar\omega}{2} d\omega \quad (9)$$

すなわち量子効果によってこの散乱前後の中性子エネルギーの差の大きい時には、自由ガス模型の物理温度  $T$  を実効温度  $T_{\text{eff}}$  で置きかえた模型で計算できる。

このために、この自由ガスに対するコードでは、特に熱中性子スペクトルの計算に必要な熱中性子源スペ

クトルが簡単に求められるように留意されている。切断エネルギー以上で中性子束が  $C/E_0$  ( $C$  は常数) で与えられるとすれば熱中性子源スペクトルは次式で与えられる。

$$S(E_0) = C \int_{E_R}^{\infty} \sigma_0(E_0 \rightarrow E) \frac{dE_0}{E_0} \quad (10)$$

ここで  $E_R$  は切断エネルギーであり、 $\sigma_0(E_0 \rightarrow E)$  は次に示めた。

微分散乱式の Legendre 展開の零次モーメント、すなわち等方散乱核である。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \sum_L \frac{2}{2L+1} \sigma_L(E_0 \rightarrow E) P_L(\mu) \quad (11)$$

計算では  $\sigma_0(E_0 \rightarrow E)$  として次の二つの場合について源  $S(E)$  を計算できるようにした。すなわち a) 温度の影響のない場合はよくしられた減速核から、次式によって計算する。

$$S(E) = \begin{cases} C \sigma_0 \left( \frac{A+1}{A} \right)^2 \left( \frac{1}{E} - \frac{\alpha}{E} \right) & \text{for } E > \alpha E_R \\ 0 & \text{for } E \leq \alpha E_R \end{cases} \quad (12)$$

ここで  $\alpha = \left( \frac{A-1}{A+1} \right)^2$  である。

温度の影響を考える場合には前節で求めた  $\sigma_0(E_0 \rightarrow E)$  を用いて計算をおこなっている。数値計算は  $\sigma_{ij}$  ( $= \sigma_0(E_j, E_i)$ ) の行列の次元の大きさに限度があるから、源の式 (10) は次のように二つの項に分けて計算できるようにしてある。

$$S(E) = C \left\{ \int_{E_R}^{E_N} \sigma_0(E_0 \rightarrow E) \frac{dE_0}{E_0} + \int_{E_N}^{\infty} \sigma_0(E_0 \rightarrow E) \frac{dE_0}{E_0} \right\} \quad (13)$$

$$= S_1(E) + S_2(E)$$

ここで  $E_N$  は  $\sigma_{ij}$  を計算した時の上限のエネルギー、第1項の  $S_1(E)$  は上述の  $\sigma_0(E_0 \rightarrow E)$  を用い、第2項の  $S_2(E)$  は  $\sigma_0(E_0 \rightarrow E)$  に対して減速核を仮定した。(12) 式で近似している  $S_1(E)$  の中の積分は次の梯形公式を用いている。

$$S_1(E_i) = \frac{C}{2} \sum_{j=0}^{N_1-1} \left( \frac{\sigma_{ij}}{E_j} + \frac{\sigma_{i(j+1)}}{E_{j+1}} \right) (E_{j+1} - E_j) \quad (14)$$

自由ガスの計算コードを用いての散乱核の計算は質量比 1, 2, 9, 12 など減速材物質、軽水、重水、ベリリウム、黒鉛の構成原子に対して常温および高温の種々の温度についておこなった。

自由ガスの微分散乱断面積についてはこれまで多くの研究があるので、ここでは散乱法則  $S(\alpha, \beta)$  および  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  のみが Fig. 1. 1, 1. 2 に示されている。

$S(\alpha, \beta)/\alpha$  の図よりわかるように  $\lim_{\alpha \rightarrow 0} S(\alpha, \beta)/\alpha$  よ

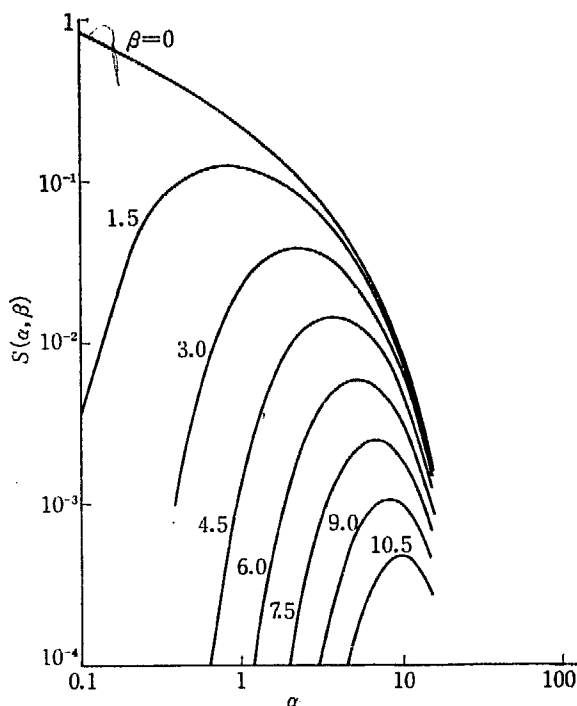


Fig. 1. 1 Scattering Law of Free-Gas Model

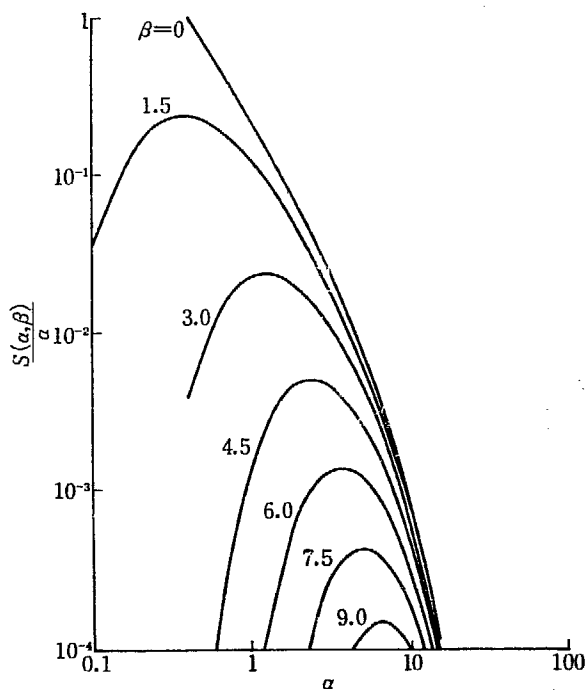


Fig. 1. 2  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  of Free-Gas Model

り求められる。  $p(\beta)$  は  $\beta=0$  のところのみが有限になり、 $\beta \neq 0$  の項は零に収斂している。これは自由ガス模型においては振動数分布は  $\delta(\beta)$  となるため、この図は他の化学結合を考慮したものか  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  の解析に参考となる。

次に熱中性子源スペクトルを水素および重水素原子に対して計算したものが Fig. 1. 3~1. 5 に示されてい

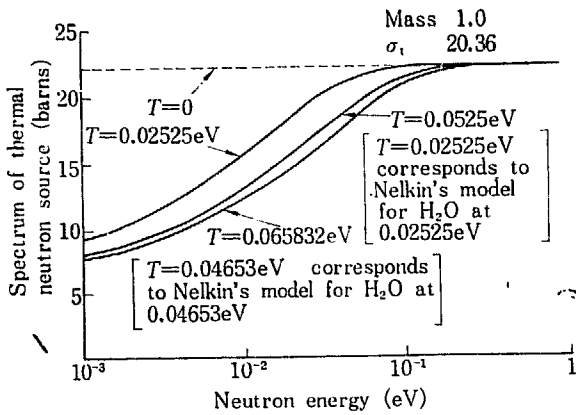


Fig. 1.3 Spectrum of thermal neutron source from hydrogen obtained by Free-Gas Model

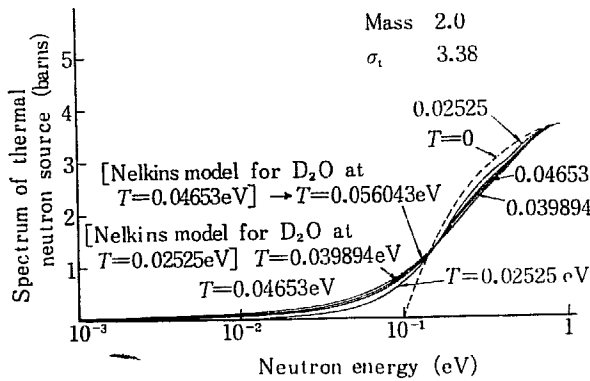


Fig. 1.4 Spectrum of thermal neutron source from deuterium obtained by Free-Gas Model

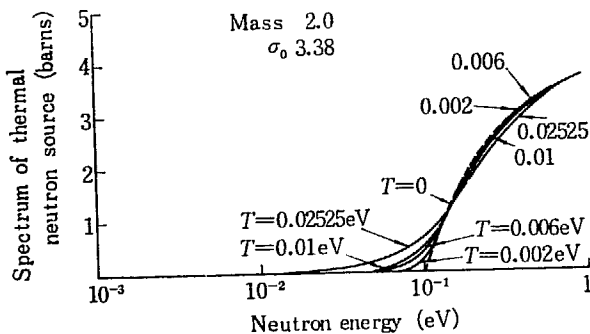


Fig. 1.5 Spectrum of thermal neutron source from deuterium obtained by Free-Gas Model

る。これらは自由ガス模型で計算したが、前述のように化学結合の影響は実効温度を変えるという形で入ってくるため、化学結合を考慮した場合もこれらの図に示されている。

Fig. 1.3 は 0.9eV 以上で  $1/E$  のスペクトルを持った中性子束につき質量比 1 の水素原子からの散乱に

よる等方は熱中性子源スペクトルであり、0.9eV から 4eV までの間の散乱核は正確に水素原子の熱運動をとり入れたものを用い、4eV 以上からのものはただ減速のみによる散乱核をいれて計算している。これらの事は以下にのべる重水素などの場合も同じである。温度  $T$  が零の場合には(12)式よりわかるように  $S(E)$  は常数になる。物理温度よりも小さい入射エネルギーの中性子が散乱によってエネルギーを増加する up scattering の断面積は温度の増加と共に大きくなるために低いエネルギーの領域の熱中性子源スペクトルは小さくなる。この図において  $T=0.0525eV$  の曲線は水素原子が常温 (0.02525eV) の軽水の中のものであった場合でこの実効温度 (0.0525eV) は軽水の化学結合を Nelkin の模型によって計算したものである。これを自由ガスの場合と比較することにより熱中性子源スペクトルに対する化学結合の影響はかなり大きいものである事がわかる。これは後述のより重い原子に対してよりもその影響は大きい。

Fig. 1.4 は質量比 2 の重水素による熱中性子源スペクトルを表わしている。点線は温度が零の場合であり、実線に付けられたパラメーターは物理温度のエネルギー換算量である。これらの図からわかるように、ここでは水素と違って温度により、それ程違いがない。ただし温度が零の場合といちじるしく違うこととして熱中性子源スペクトルは温度が零の場合  $\left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2 E_R = 0.1eV$  以下では零であるのに反し、温度が零でない場合には、0.1eV 以下でも熱中性子源が存在する。これは減速材の重水素が熱運動をしているためにおこるもので、水素の場合で全般的に熱中性子源スペ

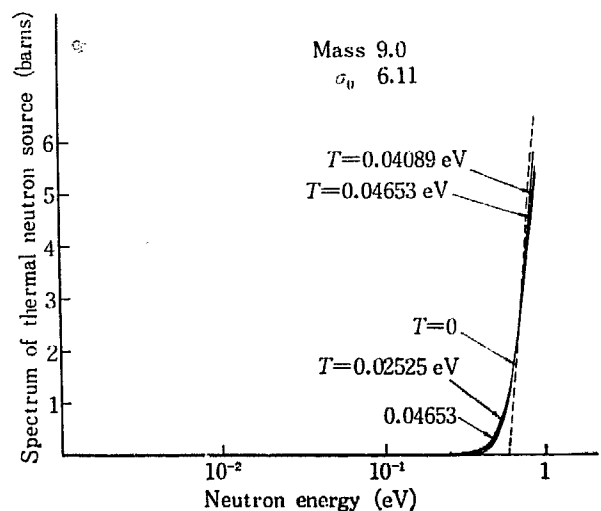


Fig. 1.6 Spectrum of thermal neutron source from beryllium obtained by Free-Gas Model

クトルが低エネルギーで温度増加と共に減少するのに反して逆に増大している点は興味がある。しかしこれを補償するように 1.5eV 以上では温度の増加と共にスペクトルは減少している。これらの曲線が温度にかかわらず 1.5eV 付近ではほぼ温度零の場合と一致していることは興味のあることである。

この図において  $T=0.039894\text{eV}$  および  $T=0.056043\text{eV}$  は重水素が常温 ( $T=0.02525\text{eV}$ ) および  $270^\circ\text{C}$  ( $T=0.04653\text{eV}$ ) の重水中のものであった時の化学結合を Nelkin-Honeck 模型により計算した実効温度である。Fig. 1.3 との比較から化学結合の影響は減速材原子の質量比が大きくなる程小さいことがわかる。

Fig. 1.5 には常温より以下の温度でいかに曲線が温度零の場合の曲線に近づくかを示している。Fig. 1.5, 1.6 の 0.5eV において小さいクニックが曲線のうち

に示されているが、これは 4eV 以下からの中性子束によるものは温度を考慮して散乱核を計算し、それ以上からはただ単に減速のみであるとした計算よりきたものと解釈される。すなわち、このエネルギーをより高くとって正確な散乱核を用いた計算をすればこの曲線はスムーズなものとなる。

### 参考文献

- (1) L. VAN HOVE; *Phys. Rev.*, **95**, 249 (1956)
- (2) A. C. ZEMACH, *et al.*; *Phys. Rev.*, **101**, 118 (1956)
- (3) P. A. EGELSTAFF, *et al.*; *Nuclear Sci. and Eng.*, **12**, 260 (1962)
- (4) P. A. EGELSTAFF; *Nuclear Sci. and Eng.*, **12**, 250 (1962)



## 2. Nelkin 模型コードによる H<sub>2</sub>O, D<sub>2</sub>O の散乱法則と散乱断面積の計算結果の検討

嶋田 昭一郎

Nelkin 模型<sup>(1)</sup> は分子による中性子散乱に対する Zemach-Glauber<sup>(2)</sup> の理論を用いて、主に軽水に対して作られた模型であるが、Honeck<sup>(6)</sup> により干渉散乱の大きい重水にも適用され、これまでこれらの分子状減速材の模型として標準的なものとなってきた。しかしこの模型にはいくつかの欠陥があり、すでに2~3の改良も試みられているが、この模型による計算と実験との比較を通じて、理論の欠点をよりはっきりさせ、今後の改良の指針とすべくいくつかの実験データと比較計算した。

### 2.1 Nelkin 模型の概要

Nelkin 模型については、38年度成果報告書熱中性子グループおよびコード説明書にくわしく解説されているのでここでは簡単に概説するにとどめておく。

Nelkin 模型は水分子の並進、束縛回転、振動運動を含んでおり、この3種の運動はそれぞれ相関がないと仮定している。並進運動は自由運動であると考えており、これは中性子の入射エネルギーが余り小さくない限り (~0.01eV) よい。束縛回転は0.06eVのねじれ振動で近似するが、この際実効質量として質量テンソルより決められた値をとる。振動は水蒸気について観測されている3つのレベル0.205eV, 0.475eV, 0.488eVのうち後の2つはエネルギーが近いので縮退しているとして、いずれも等方調和振動子と考える。このように考えるとZemach, Glauber<sup>(2)</sup>の定式化に従い水の微分断面積を解析的に表示できる。しかし、計算を簡単にするため、中性子の入射エネルギーにより束縛回転と2つの振動のうちいずれか1つだけを正確に扱い他は適当な近似をとっている。そうするといずれの場合も微分散乱断面積が次式で表わされる。

$$\begin{aligned} \frac{\alpha^2 \sigma}{dE d\theta} &= \sigma(E_0, E, \theta) \\ &= \frac{\sigma_b}{4\pi} \left(\frac{E}{E_0}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{m}{2\pi \bar{E} \kappa^2}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(-\frac{\kappa^2}{2A}\right) \\ &\quad \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{n\omega}{2T}\right) I_n\left(\frac{\kappa^2}{2B}\right) \end{aligned}$$

$$\times \exp\left[-\frac{m}{2\bar{E}\kappa^2} \left(E - E_0 - n\omega + \frac{K^2}{2m}\right)^2\right] \quad (1)$$

ここに

$\sigma_b$  = 結合状態の水素の散乱断面積

$E_0$  = 入射中性子のエネルギー

$E$  = 散乱中性子のエネルギー

$\kappa^2$  = 運動量変化の2乗

$T$  = 媒質の温度

であり、

$\omega, m, \bar{E}, A, B$  は中性子の入射エネルギーにより次のように与えられる。

#### (1) 0.01eV < $E_0$ < 0.15eV

並進運動とねじれ振動(回転)が励起されると考えて、

$$m = M$$

$$\bar{E} = T$$

$$A^{-1} = \left[ m_T \omega_T \tanh(\omega_T/2T) \right]^{-1} + \left[ \frac{1}{3\omega_1} + \frac{2}{3\omega_2} \right] \frac{1}{m_v} \quad (2)$$

$$B = m_T \omega_T \sinh(\omega_T/2T)$$

$$\omega = \omega_T$$

ただし  $m_T, m_v$  はそれぞれ回転、振動の実効質量、 $\omega_T, \omega_1, \omega_2$  は回転、振動(0.205eV), 振動(0.48eV)である。

また  $M$  は水分子全体の質量である。

#### (2) 0.20eV < $E_0$ < 0.48eV

0.205eVの振動レベルのみ励起されるとして、

$$m^{-1} = M^{-1} + m_T^{-1}$$

$$\bar{E} = \left[ (T m_T + \bar{E}_T M) / (m_T + M) \right]$$

$$A^{-1} = \frac{1}{m_v} \left[ \frac{1}{3\omega_1} + \frac{2}{3\omega_2} \right] \quad (3)$$

$$B = 3 m_v \omega_1 \sinh(\omega_1/2T)$$

$$\omega = \omega_1$$

#### (3) 0.48eV < $E_0$

0.48eVの振動のみ正確にとり扱うと

$$m^{-1} = M^{-1} + m_r^{-1} + \frac{1}{3} m_v^{-1}$$

$$\bar{E} = \left\{ (T/M) + (\bar{E}_r/m_r) + (\bar{E}_1/3m_v) \right\} m$$

$$A = 3 m_v \omega_2 / 2 \quad (4)$$

$$B = \frac{3}{2} m_v \omega_2 \sinh(\omega_2 / 2T)$$

$$\omega = \omega_2$$

(4) 0.15eV < E<sub>0</sub> < 0.20eV

|E - E<sub>0</sub>| < 0.1eV のときには (2) 式, |E - E<sub>0</sub>| > 0.1eV のときには (3) 式のパラメーターを使用する。

基本になるデータは m<sub>r</sub>, m<sub>v</sub>, ω<sub>r</sub>, ω<sub>1</sub>, ω<sub>2</sub> であるがこれらの値は H<sub>2</sub>O については Nelkin により, 又 D<sub>2</sub>O については Honek<sup>(6)</sup> により与えられており, それを TABLE 1 に示す。

TABLE 1 Frequency and effective mass

	H <sub>2</sub> O	D <sub>2</sub> O
ω <sub>r</sub> (eV)	0.06	0.05
m <sub>r</sub>	2.32	4.11
ω <sub>1</sub> (eV)	0.205	0.15
ω <sub>2</sub>	0.48	0.35
m <sub>v</sub> (eV)	1.92	4.85

次に散乱法則 S(α, β) は σ(E<sub>0</sub>, E, θ) より簡単に

$$S(\alpha, \beta) = \frac{4\pi}{\sigma_b} \sqrt{\frac{E_0}{E}} T \exp\left(\frac{\beta}{2}\right) \sigma(E_0, E, \theta) \quad (5)$$

で与えられる。ここに

$$\beta = (E - E_0) / T$$

$$\alpha = \frac{E + E_0 - 2EE_0 \cos \theta}{M_H T}$$

であり, M<sub>H</sub> は注目している原子の質量である。

2. 2 実験値との比較

(i) H<sub>2</sub>O

Brockhous による微分断面積の実験値と計算値の比較をおこなった。これは既にネルキンによってもおこなわれている。中性子の入射エネルギーは 0.065 eV, 散乱角は 90°, 水の温度は 23°C である。中性子の入射エネルギーの大きさから, 0.06 eV の回転レベルのみ励起されるとして, ネルキン模型のパラメーターは次のようになる。

$$m = 18$$

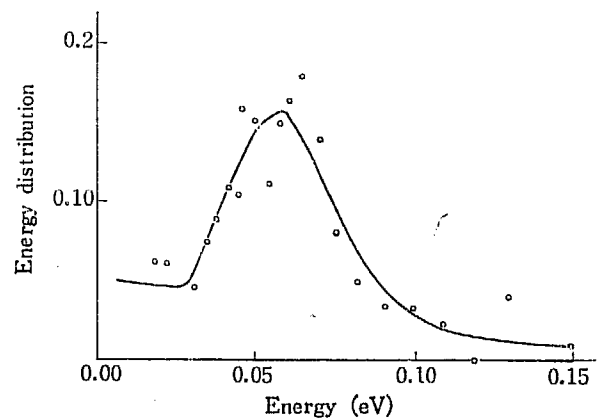
$$\bar{E} = 0.0255 \text{ eV}$$

$$A = 0.097 \text{ eV}$$

$$B = 0.206 \text{ eV}$$

$$\omega = 0.06 \text{ eV}$$

m は実効質量,  $\bar{E}$  は実効温度である。Fig. 2.1 に結果を示しているが, 実験データと大体よい一致をしている。この比較は回転をねじれ振動で近似したこ



H<sub>2</sub>O : 23°C, θ = 90°, E<sub>0</sub> = 0.065 eV  
— : Calculation    ○ : Experiment

Fig. 2.1 The energy distribution of neutrons of incident energy 0.065 eV after scattering through 90 deg by water

TABLE 2 Nelkin's parameter

Incident energy	1 E <sub>0</sub> < 0.15 eV	2 0.15 < E <sub>0</sub> < 0.205	3 0.205 < E <sub>0</sub> < 0.481	4 E <sub>0</sub> > 0.481 eV
m	18	E <sub>0</sub> - E  < 0.1 eV のとき(1)のパラ メーター。	2.06	1.522
$\bar{E}$	0.0255 eV		0.035 eV	0.0525 eV
A	0.0971 eV		0.65 eV	1.402 eV
B	0.206 eV	> 0.1 eV のとき (2)のパラメータ ーを使用	33.31 eV	8744 eV
ω	0.06 eV		0.205 eV	0.481 eV

(注) E<sub>0</sub>, E はそれぞれ入射, 散乱エネルギー

との正当性のある程度の確認になる。しかし、この点については、Yip, Osborn<sup>(9)</sup> が束縛回転として扱い、0.10eV~0.14eV の所で曲線が持ち上がることを示している。

次に全断面積について、BNL-325 のデータとの比較計算をおこなった。計算に使用したパラメーターは中性子の入射エネルギーにより TABLE 2 のようである。

計算結果は Fig. 2. 2 に示されているが、実験データの方は BNL-325 の H<sub>2</sub>O の値から、酸素の散乱

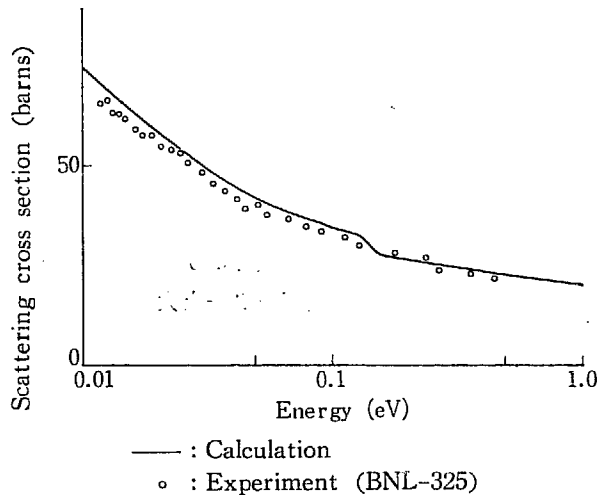


Fig. 2. 2 Scattering cross section of H<sub>2</sub>O at 20°C per hydrogen atom

断面積をエネルギーによらず 4 バーンと仮定して差し引きそれを水素 1 個あたりに換算したものである。エネルギーの高い所では計算と実験の一致が良いが、中性子エネルギーが小さい所で一致が良くない。これはこの領域で計算のエネルギー分割が粗すぎたためと思われる。

最近 Koppel 達<sup>(10)</sup> が水素分子の振動の非等方性を入れて計算し、0.06 eV 附近で一致が改善されると報告している。次に P. A. Egelstaff<sup>(9)</sup> による H<sub>2</sub>O の散乱法則の実験データとの比較計算をおこなった。H<sub>2</sub>O の温度は 24°C で、中性子の入射エネルギーは 0.15 eV 以下であるので、ネルキン模型で回転レベルのみが励起されるエネルギー範囲であり、パラメーターは次のようになる。

$$\begin{aligned} m &= 18 \\ T &= 0.02559 \\ \bar{E} &= 0.02559 \\ A &= 0.0975 \\ B &= 0.2032 \end{aligned}$$

実際の計算には、入射エネルギーが 0.035 eV と

0.13736 eV の 2 点、散乱中性子エネルギーは 0.004292 eV ~ 0.18854 eV の間を  $\beta$  が適当な数になるように 37 点えらんでおり、また散乱角は 9 点とっている。結果を Fig. 2. 3 に示しているが、この計算値には酸素

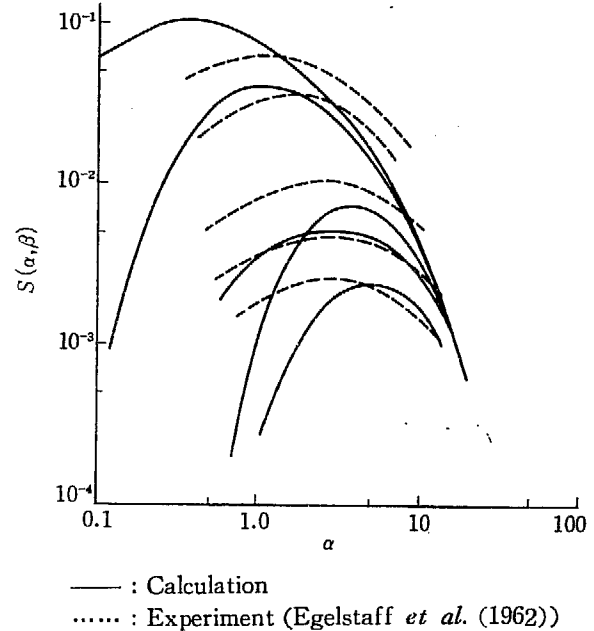
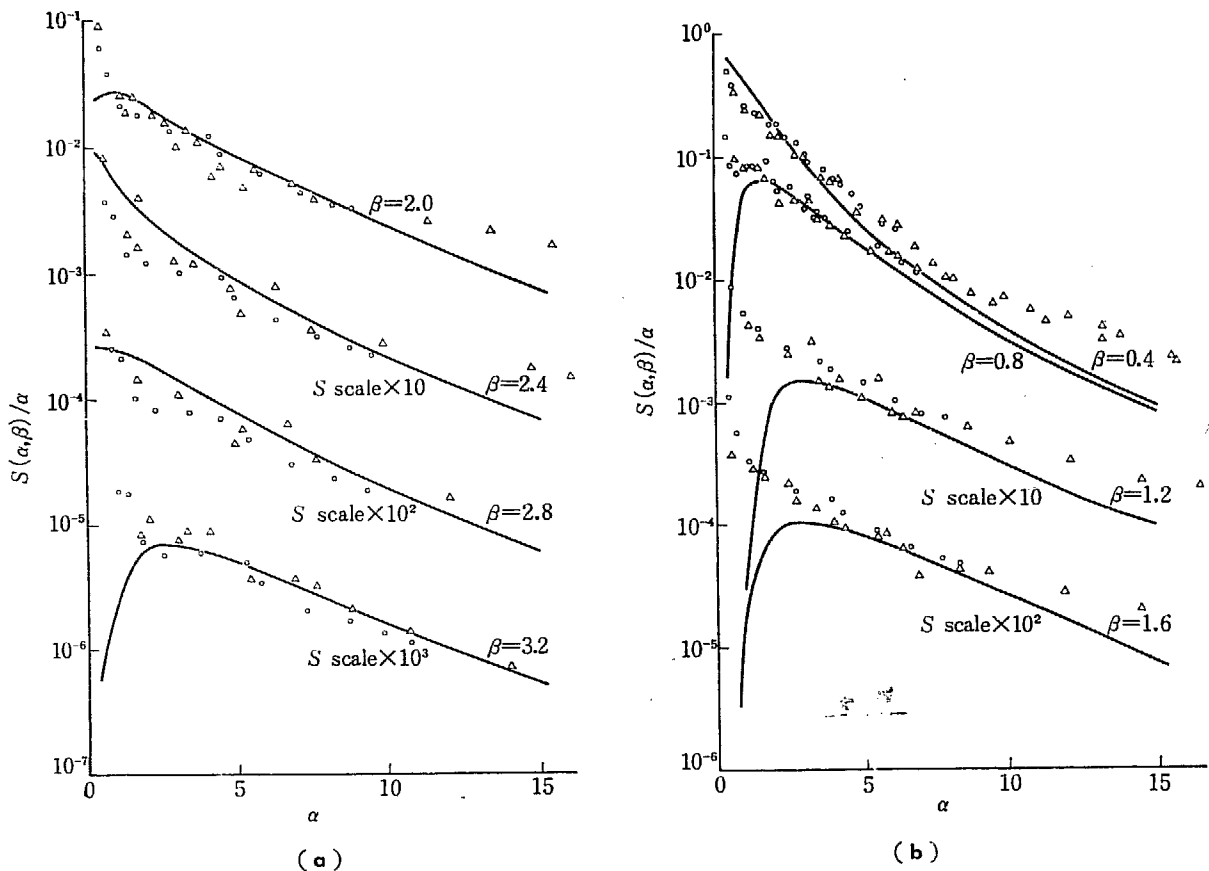


Fig. 2. 3 Scattering law for H<sub>2</sub>O at 24°C per hydrogen atom

からの寄与を無視しているとはいえ、計算値と実験値との一致は余りよくない。なお Haywood *et al.*<sup>(11)</sup> の実験データもあるが、この値は一般に Egelstaff の値より低くなっている。 $\beta=2.0$  と  $\beta=1.0$  の曲線が交差しているのは、0.06 eV の回転レベルに Einstein 型のものをとった事によりエネルギー変化が 0.06 eV に近い  $\beta=2.0$  の曲線は  $\alpha=0$  の所で他の曲線より大きくなっているためである。一般的に言って  $\alpha$  の大きな所で実験も計算も  $\beta$  の値によらず同じ場所に近づく傾向があるが、計算値の方が  $\alpha$  の小さな所に集まっている。この落ち方は主に  $A$  によるから  $A$  の定義から言って回転と振動の相対的な重みを小さくすればよい。次に、一般化された振動数分布に関係が深い  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  について実験データと計算値を Fig. 2. 4-a, Fig. 2. 4-b に比較している<sup>(9)</sup>。なおこの計算値は Fig. 2. 3 の計算値とは異なり、水の温度が 20°C の場合であるが、この程度の温度差は問題にならないと思われる。 $\alpha$  の小さな所では一致が悪く拡散効果を含ませなければならないことを示している。Nelkin 模型では全てのレベルをデルタ関数的に扱っているから、デルタ関数の近くの  $\beta$  の値に対しては  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  が  $\alpha \rightarrow 0$  のとき  $\infty$  になり、デルタ関数から離れた  $\beta$  の



— : Calculation (20°C) Δ : Experiment (Egelstaff (1962)) ○ : new data, △ : old data (24°C)

Fig. 2.4 Curves of  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  for H<sub>2</sub>O per hydrogen atom

附近では  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  がゼロになる。従って  $\beta$  の値により早く落ち過ぎたり遅く落ち過ぎたりする。今までの実験データは入射エネルギーが低く、また  $\beta$  も小さく振動レベルに余り関係しない領域であったが、D. A. Kottwitz and B. R. Leonard, Jr. の実験<sup>(4)</sup> はエネルギーの高い領域迄およんでいるので、このデータとの比較計算をおこなってみた。実験の条件は水の温度が 22°C、入射中性子のエネルギーは 0.142 eV, 0.20 eV, 0.3 eV, 0.4 eV の 4 種類である。0.142 eV と 0.20 eV は回転レベルのみ励起するとし、0.7 eV と 0.4 eV の中性子は 0.205 eV の振動レベルを励起するとする。 $S(\alpha, \beta)$  に関する実験値と計算値の比較を Fig. 2. 5-a, Fig. 2. 5-b に示している。点線が実験値、実線が計算値である。

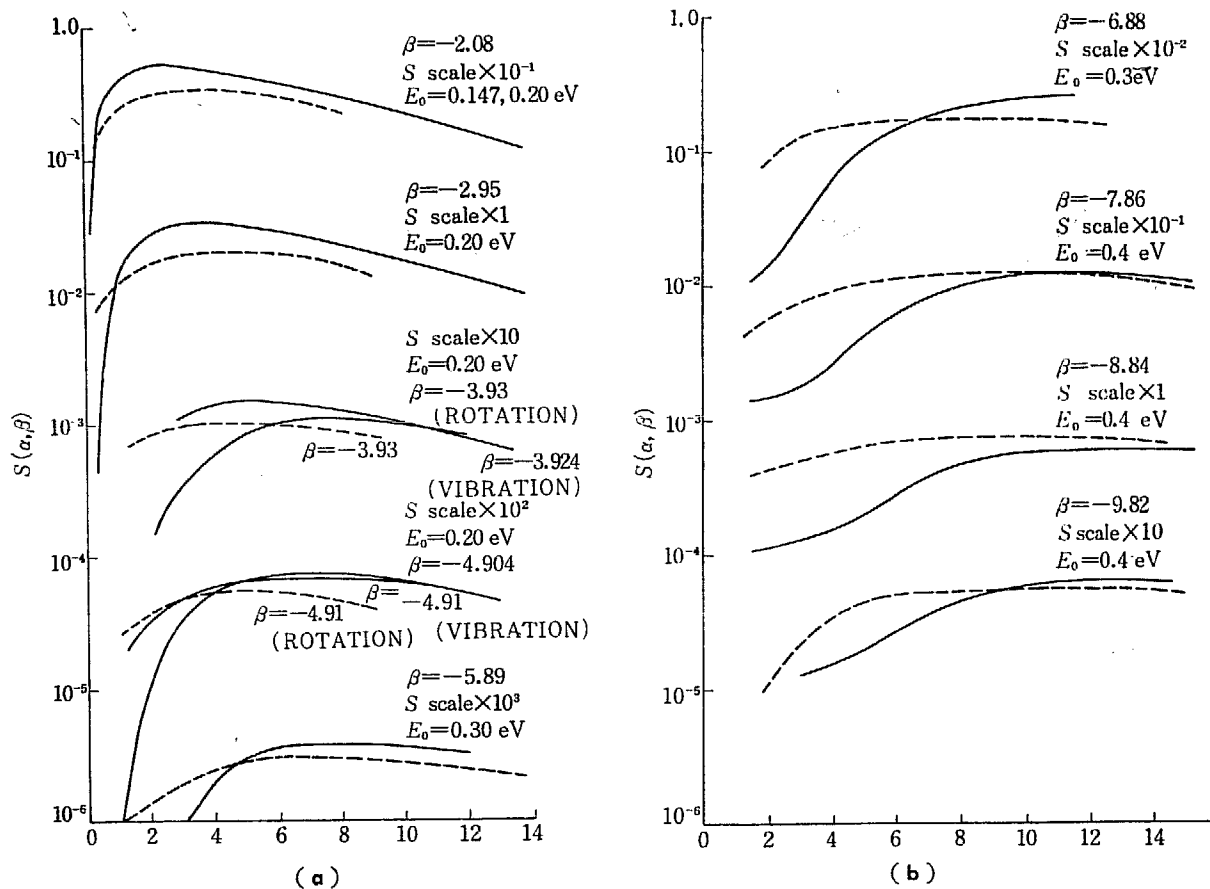
Fig. 2. 5-a で  $\beta = -3.93$  の所に計算値が 2 本書き込まれているが、 $\beta = -3.924$  の方は 0.205 eV の振動レベルのみが励起されるとしたものである。同様に  $\beta = -4.91$  の所にも 2 本の計算値が書き込まれているが  $\beta = -2.4904$  の方は 0.205 eV の振動子が励起されるとしたものである。

Nelkin 模型でパラメーターのとり方に、中性子の入射エネルギーによるのではなく、 $\beta$  によってパラメーターをえらぶという考えもある<sup>(5)</sup> が、この  $\beta = -3.91, -4.91$  の所は後者の考え方に従えば、振動レベルが励起されると考えられる領域であるので、両者の比較をおこなったものである。

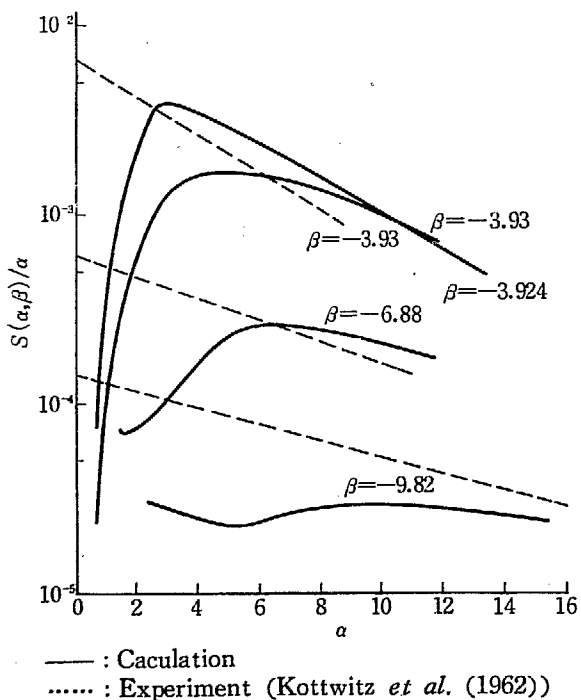
実際にはこの  $S(\alpha, \beta)$  は中性子の運動には無関係に決るべきものであるから、Nelkin のように中性子の入射エネルギーによってパラメーターを選ぶという考えは面白くないように思われる。Fig. 2. 6 に  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  の比較を示している。 $\beta = -3.93$  の所の 2 本の計算値は先の場合と同じ意味である。この場合も  $\alpha$  が小さい所で計算値の方が早く減少しており振動数分布が  $\beta = 0$  の附近でデルタ関数でなく、もっと巾の広いものであることも示している。

(ii) D<sub>2</sub>O

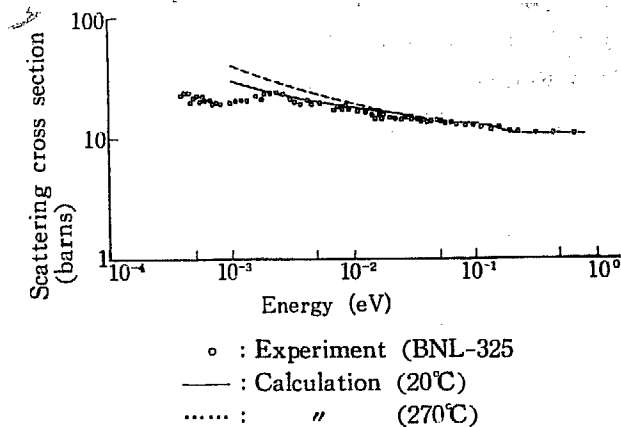
一方、重水については、Honeck<sup>(6)</sup> が Nelkin 模型でパラメーターを適当にとれば、全断面積に関して実験値と計算値を一致させ得ることを示している。次の



— : Calculation ..... : Experiment (Kottwitz *et al.*)  
 Fig. 2.5 Comparison of theoretical and experimental scattering laws for water at 22°C per hydrogen atom



— : Calculation ..... : Experiment (Kottwitz *et al.* (1962))  
 Fig. 2.6 Comparison of theoretical and experimental  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  for water at 22°C per hydrogen atom



○ : Experiment (BNL-325)  
 — : Calculation (20°C)  
 - - - : " (270°C)  
 $\sigma_{rec} = 3.38$     $\sigma_{bD} = 3.76$  (constant)  
 $m_r = 4.11$     $\omega_r = 0.05\text{eV}$     $E_0 = 0.001 \sim 0.144\text{eV}$   
 $m_{v1} = 4.85$     $\omega_{v1} = 0.15\text{eV}$     $E_0 = 0.169 \sim 0.324\text{eV}$   
 $m_{v2} = 4.85$     $\omega_{v2} = 0.35\text{eV}$     $E_0 = 0.364 \sim 0.9\text{eV}$

Fig. 2.7 The scattering cross section of heavy water in barns per  $D_2O$  molecule as a function of incident neutron energy

Fig. 2.7 でこのことが確かめられている。重水素の化学結合のないときの散乱断面積として、3.38 バーンをとり、酸素の散乱断面積は 3.76 バーンでエネルギーによらないとして加えてある。S( $\alpha, \beta$ ) については、重水では酸素の影響が強く、Nelkin 模型で実験値と計算値の一致が期待できないが、S. J. Cocking *et al.*<sup>(7)</sup> の実験値との比較をおこなった。結果を Fig. 2.8 に示しているが、D<sub>2</sub>O の場合も計算による S( $\alpha, \beta$ ) は  $\alpha$  が小さい所で実験値より急激に小さくなる。これは Nelkin 模型では、並進運動を自由としているからであろう。最近重水中の干渉散乱を考慮した Butler<sup>(12)</sup> の理論が出され、その理論値は実験をよく説明している。

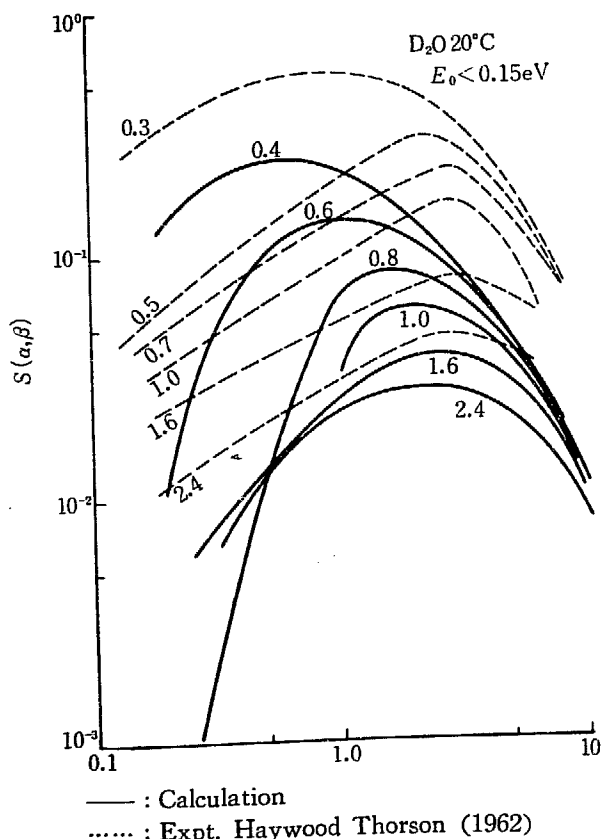


Fig. 2.8 Comparison of theoretical and experimental scattering laws for D<sub>2</sub>O at 20°C per deuterium atom

### 2.3 H<sub>2</sub>O, D<sub>2</sub>O の全断面積と散乱法則

シグマ委員会では H<sub>2</sub>O, D<sub>2</sub>O について温度が 20°C と 270°C のとき散乱核を計算 (P<sub>0</sub>, P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub>, P<sub>3</sub> 迄) し、これをカードの形で保存し、今後一般に使用されることを目的とした作業をおこなった。その際、散乱法則と全断面積をも同時に求めた。

H<sub>2</sub>O については先に全断面積の実験値との比較をおこなったとき使用したデータと同様に Nelkin によって与えられたデータ<sup>(11)</sup>を使用した。エネルギー数は 0eV~0.9eV の間 30 で TABLE 3 のようにとられている。

TABLE 3 Energy mesh

Energy (eV)	Energy (eV)	Energy (eV)
1 0.001	11 0.121	21 0.441
2 0.004	12 0.144	22 0.484
3 0.009	13 0.169	23 0.529
4 0.016	14 0.196	24 0.576
5 0.025	15 0.225	25 0.625
6 0.036	16 0.256	26 0.679
7 0.049	17 0.289	27 0.729
8 0.064	18 0.324	28 0.784
9 0.081	19 0.361	29 0.841
10 0.100	20 0.400	30 0.900

エネルギーグループは4つに分け

(1) 0.001~0.15 eV

0.06 eV の回転レベルが励起

(2) 0.15~0.205 eV

エネルギー変化が <0.1eV のとき 0.06eV の回転レベルが励起

エネルギー変化が >0.1 eV のとき 0.205 eV の振動レベルが励起

(3) 0.205~0.481 eV

0.205 eV の振動レベルが励起

(4) 0.481 eV < E<sub>0</sub>

0.481 eV の振動レベルが励起されるとした。

使用したデータは TABLE 1 に示されており、これより得られた、E, A, B を TABLE 4 にまとめておく。

TABLE 4 E, A, B for H<sub>2</sub>O

Temperature	20°C			270°C		
	1	3	4	1	3	4
$\bar{E}$	0.0253	0.0349	0.0525	0.0465	0.0521	0.0658
A	0.0980	0.647	1.41	0.0705	0.647	1.41
B	0.207	34.4	9455.0	0.0962	5.37	124.0

結果の全てをここにまとめることは紙面の都合上できないので、例としてその一部を示しておく。室温付

近の計算値については既に 2. 2 で、いくつか示されているので、270°C の場合について Fig. 2. 9 に全散乱断面積を、Fig. 2. 10 に  $S(\alpha, \beta)$ 、Fig. 2. 11 に  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  を示す。

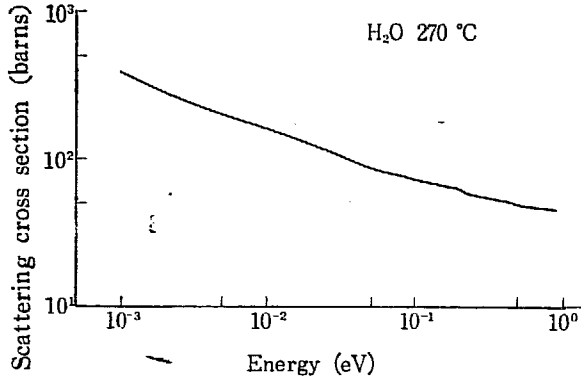


Fig. 2.9 The Scattering Cross Section for H<sub>2</sub>O at 270°C per H<sub>2</sub>O molecule

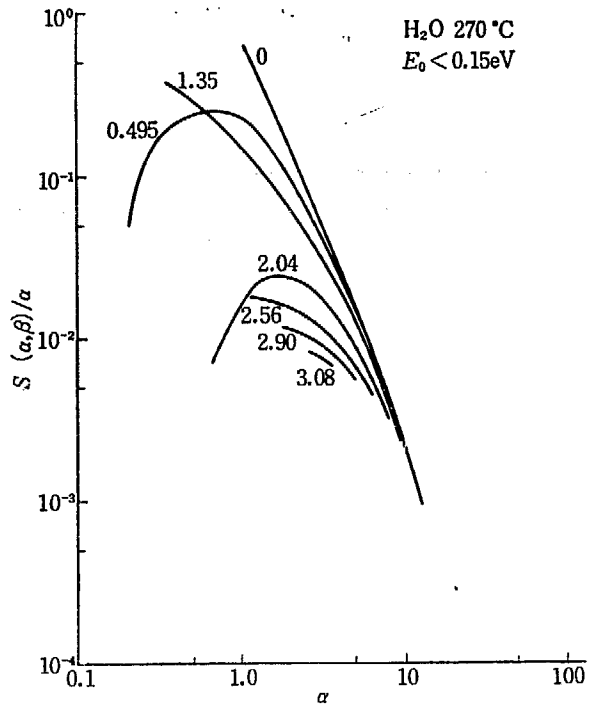


Fig. 2.11  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  of H<sub>2</sub>O at 270°C per hydrogen atom

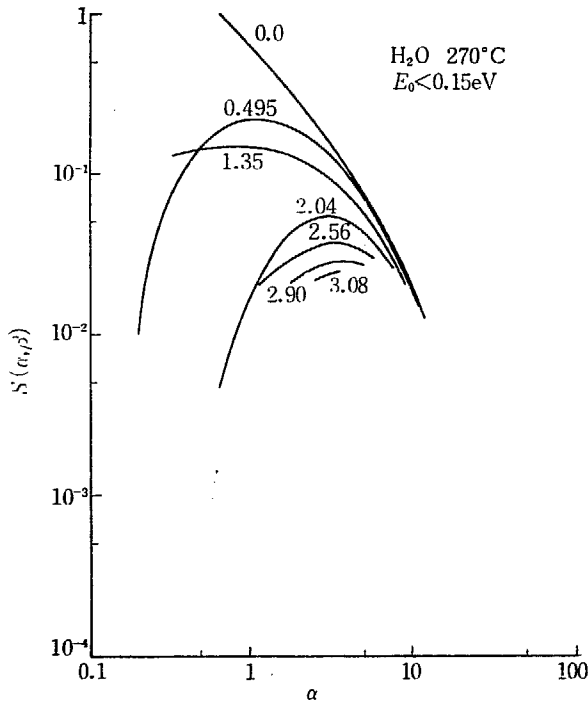


Fig. 2.10 The scattering law for H<sub>2</sub>O at 270°C per hydrogen atom

次に D<sub>2</sub>O については Honeck<sup>(5)</sup> によって与えられたパラメーターを用いる。D<sub>2</sub>O は H<sub>2</sub>O によく似ており、0.05 eV に回転レベル、0.15 eV に振動レベル、0.35 eV に縮退した振動レベルが考えられる。エネルギーメッシュは TABLE 3 のようにとり、中性子の入射エネルギーによりエネルギーグループを 3 つに分け

(1)  $E_0 < 0.15 \text{ eV}$

0.05 eV の回転レベルが励起

(2)  $0.15 \text{ eV} \wedge E_0 < 0.35 \text{ eV}$

0.15 eV の振動レベルが励起

(3)  $0.35 \text{ eV} < E_0$

0.35 eV の振動レベルが励起されるとした。

使用パラメーターは TABLE 1, TABLE 5 の如くである。

TABLE 5  $\bar{E}$ , A, B for D<sub>2</sub>O

Temperature	20°C			270°C		
Energy-region	1	2	3	1	2	3
$\bar{E}$	0.0253	0.0317	0.040	0.0465	0.0501	0.0560
A	0.137	1.18	2.55	0.0930	1.18	2.55
B	0.238	21.1	1285.0	0.116	5.26	54.8

H<sub>2</sub>O の場合と同様に 270°C の場合について、全散乱断面積、 $S(\alpha, \beta)$ 、 $S(\alpha, \beta)/\alpha$  をそれぞれ Fig. 2. 12、Fig. 2. 13、Fig. 2. 14 に示しておく。

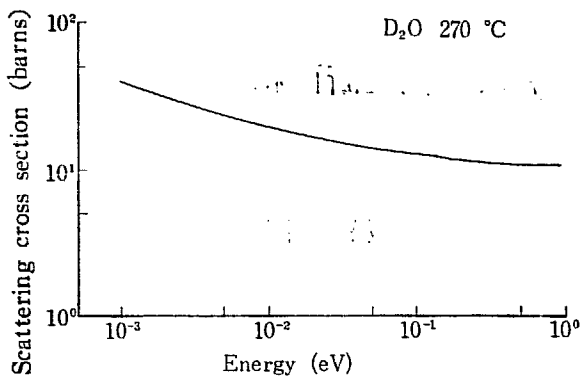


Fig. 2.12 The scattering cross section for D<sub>2</sub>O at 270°C per molecule

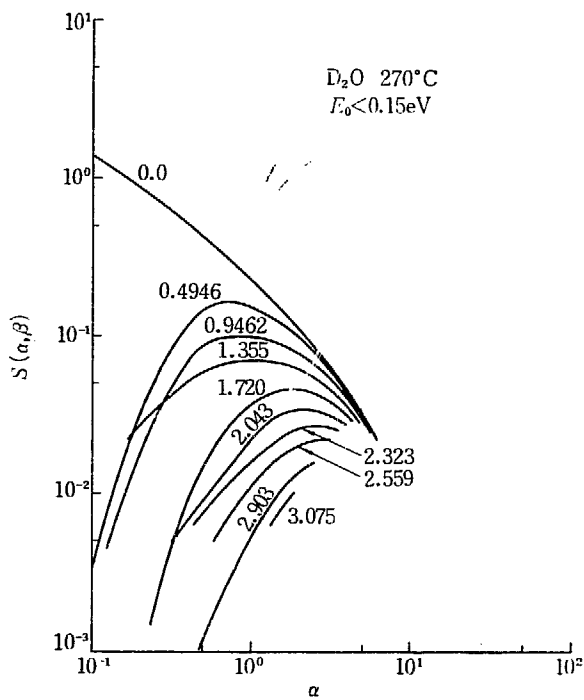


Fig. 2.13 The scattering law of D<sub>2</sub>O at 270°C per deuterium atom

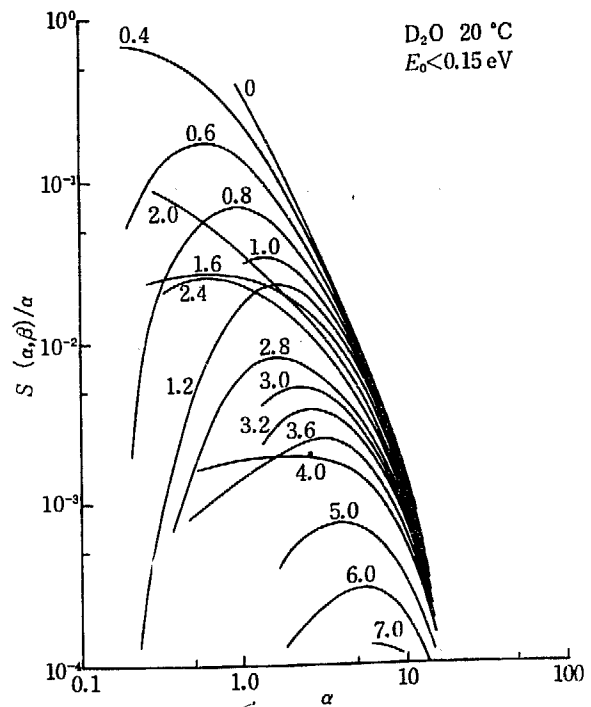


Fig. 2.14  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  for D<sub>2</sub>O at 20°C per deuterium atom

参考文献

(1) M. NELKIN; *Phys. Rev.*, **119** No. 2 (1960)  
 (2) A. C. ZEMACH and R. J. GLAUBEN; *Phys. Rev.*, **101**, 118 (1956)  
 (3) P. A. EGELSTAFF; AERE-R-3931  
 (4) D. A. KOTTWITZ and B. R. LEONARD, JR.; "Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids" IAEA, Vienna (1963) 359-371

(5) C. W. LINDENMEIER; HW-75228  
 (6) H. C. HONECK; *Trans. Am. Nucl. Soc.*, June (1962) 7-4  
 (7) P. A. EGELSTAFF; AERE-R-4041  
 (8) P. A. EGELSTAFF; "Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids" IAEA, Vienna (1961)  
 (9) S. YIP and R. K. OSBORN; Slow-Neutron Scattering by Hindered Rotators, *Phys. Rev.*, **130** 1860-1864 (1963)  
 (10) J. U. KOPPEL and J. A. YOUNG; Neutron Scattering by Water Taking into Account the Anisotropy of the Molecular Vibrations, NSE **19** 412-417 (1964)  
 (11) B. C. HAYWOOD and I. M. THORSON; The Scattering Law for Light and Heavy Water at 20°C, BNL 719 26-53 (1962)  
 (12) D. BUTLER; The Scattering of Slow Neutrons by Heavy Water, *Proc. Phys. Soc.*, **81** 276~293 (1963)



### 3. ESコードによる散乱法則および散乱断面積 の計算結果の検討

松 岡 謙 一

#### 3. 1 LEAPコードの結果との比較

Egelstaff-Schofield<sup>(1)</sup> によって定式化された理論に基づいて、散乱法則や散乱核を計算するコードは、すでに英国の Harwell において作成されており、LEAP と名付けられている。LEAP コードそのものの入手が遅れたために、われわれは、同じ理論模型に基づいた ES コードを作成したが、LEAP コードによる計算結果のいくつかはすでに発表されている<sup>(2)</sup>ので、最初に ES コードの精度を知る意味から、同じ入力を用いて計算した結果と LEAP との結果との比較を試みた。比較の対象として取り上げたのはつぎの2つの場合である。

第1は、液体のモデルで、液体に固有の拡散運動に対しては Egelstaff-Schofield によって導入された  $p_d(\beta)$  に対する解析的な表現：

$$p_d(\beta) = \frac{2d}{\pi} \left(c^2 + \frac{1}{4}\right)^{\frac{1}{2}} \beta K_1 \left[ \left(c^2 + \frac{1}{4}\right)^{\frac{1}{2}} \beta \right] \quad (1)$$

において  $c=100$ ,  $d=1$  としたものを用い、束縛運動に対してはこれを単純化して、一般化された振動数分布がつぎのような式で表わされるものと仮定する。

$$p_b(\beta) = \frac{4}{\sqrt{\pi} \beta_0^3} e^{-\beta_0^2/16} \left(1 - \frac{d}{c}\right) \beta^2 e^{-\beta^2/\beta_0^2} \quad (2)$$

ただし、 $\beta_0=1$  の場合を選んだ。ES コードではさらに光学モードの存在も考慮に入れることができるがここでは考えていない。

これらの式で与えられる  $p(\beta)$  の形を Fig. 3.1 に、これを用いて計算した散乱法則  $S(\alpha, \beta)$  を Fig. 3.2 に示す。

第2は、固体のモデルで、単純な Debye 固体：

$$p_b(\beta) = \frac{3}{2} \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^3 \frac{\beta^3}{\sinh\left(\frac{\beta}{2}\right)} : 0 \leq \beta \leq \frac{\theta_D}{T} \quad (3)$$

の場合を取上げた。 $\theta_D$  は Debye 温度で、いまの場合  $\theta_D/T=5$  として計算した。Debye 固体の場合はもちろん拡散モードも光学モードも存在しない。 $S(\alpha, \beta)$

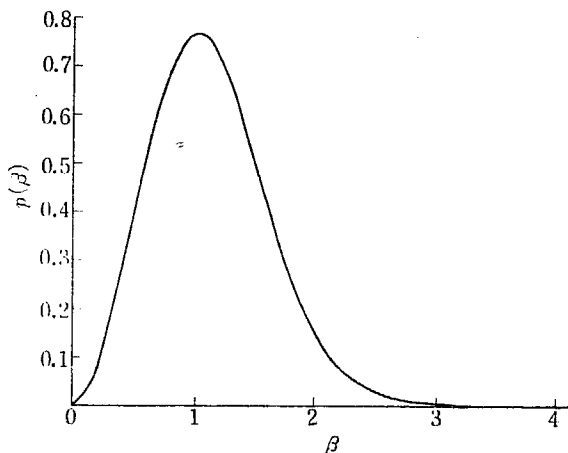


Fig. 3.1  $p(\beta)$  assumed for a simple liquid

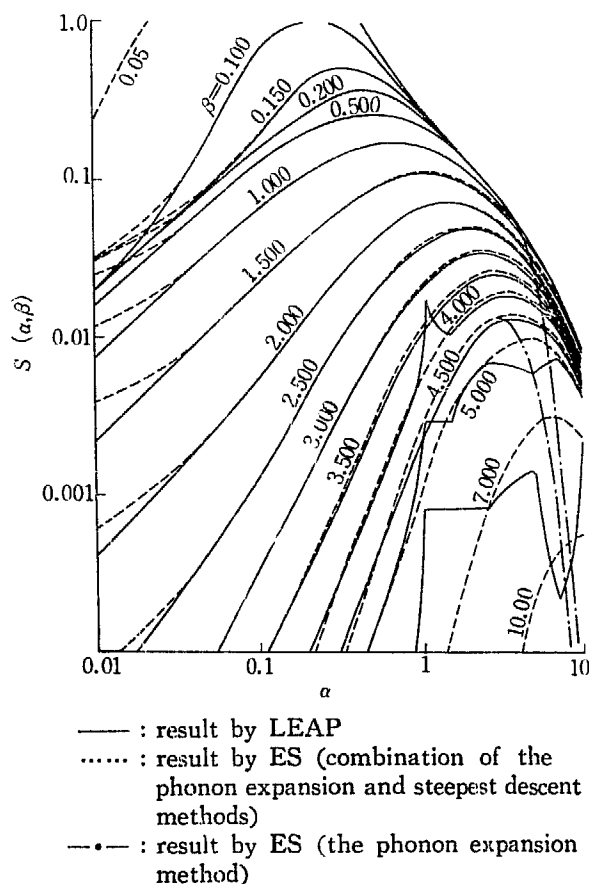


Fig. 3.2 Comparison between LEAP and ES  
(1) Case of a simple liquid

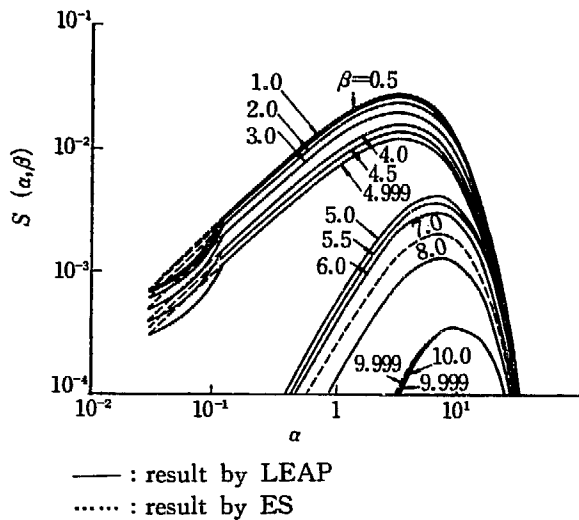


Fig. 3.3 Comparison between LEAP and ES  
(2) Case of a Debye solid

の結果を Fig. 3.3 に示す。

Fig. 3.2, Fig. 3.3 で実線は LEAP コードによる結果で、点線が ES コードの結果である。LEAP コードの結果には、かなり不規則な点がみられるのは原因不明である（おそらくミスプリントではないかと思われる）。 $S(\alpha, \beta)$  の結果にこのような不規則性が表われることはあり得ないので、この点を除いて考えれば、両者の一致はいずれの場合についてもかなり良いと言えよう。特に単純な Debye 固体の場合にはその一致はほぼ完全である。

液体の場合に  $\alpha$  の小さい領域で、ES コードの結果が次第に大きくなっているが、これはつぎのような原因によるものである。 $\alpha$  の小さい領域では液体中の分子の拡散運動の効果が表われるが、Fig. 3.1 からわかるように、 $p_a(\beta)$  は  $\beta=0$  の付近で鋭い特異性を示すために、 $p_a(\beta)$  あるいは  $S_d(\alpha, \beta)$  を含む積分の計算の際に  $\beta$  の分点を非常に細かく取らない限り、拡散運動の効果を過大評価してしまう。このことは後で軽水に対する計算の際に  $\beta$  の分点の幅を変えた結果からも明らかにされる。したがって Fig. 3.2 の  $\alpha$  の小さい領域での不一致は、コードの不備によるものではなく、計算をおこなった際の  $\beta$  の分点の幅がまだ大きすぎたことを示しているに過ぎない。

$S(\alpha, \beta)$  の計算は、 $\alpha$  の小さい所ではフォノン展開の方法により、 $\alpha$  の大きい所では鞍部点法によりおこなうことになっているが、この2つの方法をどこで分けるかが問題になる。この分け方については LEAP コードで採用している方法が知られているので、ES コードでもその判定法をそのまま用いることにしたが

Fig. 3.2 に参考のために、フォノン展開法だけで計算した結果の一部を示してある。ここで計算したフォノンの総数は15個で、そのうち convolution を正確に計算したのは6個であり、いずれも ES コードで許される最大値を取ったものであるが、 $\alpha$  の値が2ないし3以上で、フォノン数が急速に不足して行くことがわかる。

### 3.2 軽水についての実験との比較

軽水では干渉散乱がほとんど無視されるので、非干渉近似に基づいている Egelstaff-Schofield の理論を実験と比べるには大変都合の良い減速材である。しかも軽水については、かなり精度の良い実験がいくつか発表されているので、つぎに軽水を対象とした一連の計算を実験と比較し、理論が実験値をどの程度再現し得るものであるかを検討する。

ES コードで散乱法則を計算するには、一般化された振動数分布  $p(\beta)$  を入力として与えることが必要であるが、軽水のような液体では、まず分子の拡散運動が重要であり、その他に結晶と同様の格子振動、分子振動、束縛回転などのいわゆる束縛運動が伴う。したがって  $p(\beta)$  は

$$p(\beta) = p_a(\beta) + p_b(\beta) \quad (4)$$

のように2つの部分に分けることができる。

このうち、拡散部分については、Egelstaff-Schofield の理論では先に述べた(1)式のような形を仮定している。このとき、拡散運動に対する散乱法則は

$$S_d(\alpha, \beta) = \frac{1}{\pi} \exp(2cd\alpha) \frac{2d\alpha \left(c^2 + \frac{1}{4}\right)^{\frac{1}{2}}}{\left[\beta^2 + (2d\alpha)^2\right]^{\frac{1}{2}}} \cdot K_1 \left[ \left(c^2 + \frac{1}{4}\right)^{\frac{1}{2}} \left\{ \beta^2 + (2d\alpha)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \right] \quad (5)$$

のように解析的に求められる。この  $S_d(\alpha, \beta)$  が中性子散乱の準弾性ピークの形を決めることになるので、準弾性ピークの測定値を(5)式に合わせることで、拡散パラメータ  $c, d$  を決定することができる。室温の軽水に対しては  $c=70 \sim 100$ ,  $d \approx 0.04$  程度の値が得られている。

これに対して束縛部分の  $p_b(\beta)$  は、比較的小さい  $\alpha$  に対する散乱の実験から、各々の  $\beta$  に対して得られる一連の  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  を  $\alpha=0$  に外挿することにより求められる。すなわち

$$p_b(\beta) = \beta^2 \cdot \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{S(\alpha, \beta)}{\alpha} \quad (6)$$

この方法（あるいはこれと類似の方法）で求められた軽水に対する  $\rho_b(\beta)$  の例をつぎにいくつか示す。

Fig. 3. 4, Fig. 3. 5 は Larsson と Dahlborg<sup>(3)</sup> によ

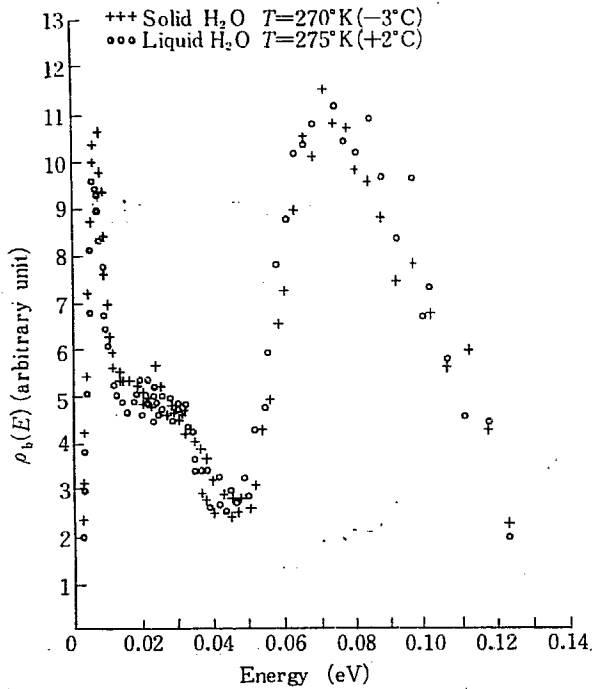


Fig. 3. 4 Frequency spectra derived from neutron spectra observed in H<sub>2</sub>O at +2°C and ice at -3°C showing an exact coincidence. Angle of observation 30°

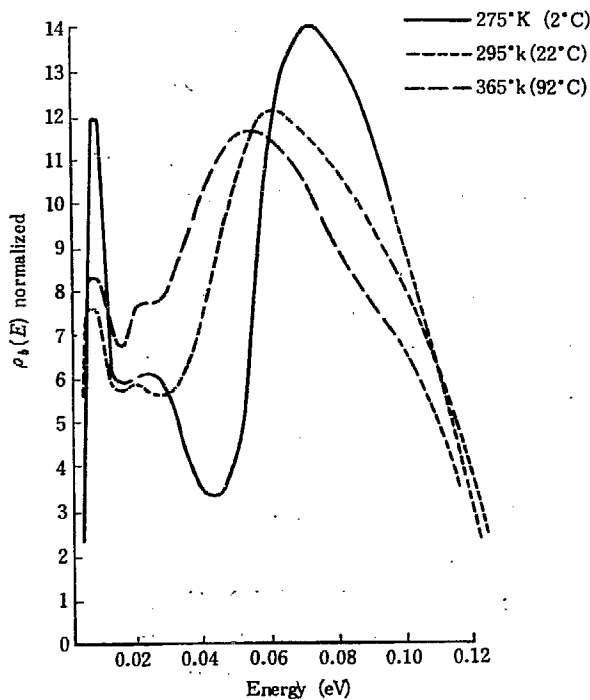


Fig. 3. 5 The change of shape of the derived frequency spectra for H<sub>2</sub>O in the range +2° to 92°C. Angle of observation 30°

って求められた振動数分布  $\rho_b(\beta)$  である。

( $\rho_b(\beta)$  と  $\rho_b(\beta)$  は

$$\rho_b(\beta) = \frac{\beta}{2 \sinh \frac{\beta}{2}} \rho_b(\beta) \quad (7)$$

の関係で結びつけられている。ここではいずれに対しても振動数分布という言葉を使っているが、 $\rho_b(\beta)$  の方がより直接に振動数分布という意味を持っている。）

Fig. 3. 4 で興味あることは 270°K の氷と 275°K の液体の水との振動数分布がほとんど一致していることである。

振動数分布の低エネルギー部分に着目すると 0.007 eV および 0.025eV 付近にピークが見られる。

Forslind<sup>(4)</sup> が氷の弾性定数を使って、分散関係 (Fig. 3. 6 の下2つ) を計算し、それから振動数分布 (Fig. 3. 6 の上) を求めた結果と比べることにより、0.007 eV 付近のピークは音響モード、0.025 eV 付近の幅広いピークは光学モードによるものであることがわかる (分散関係で  $q-\omega$  座標の原点を通るのが音響モードであること、曲線が  $q$  軸に平行になった所で振動数分布にピークが表われることなどはよく知られた事実である)。このことはふたたび +2°C の水は固体に類似していることを確かめるものである。Fig. 3. 5 に見られるように、温度が上がるにつれて、この結晶

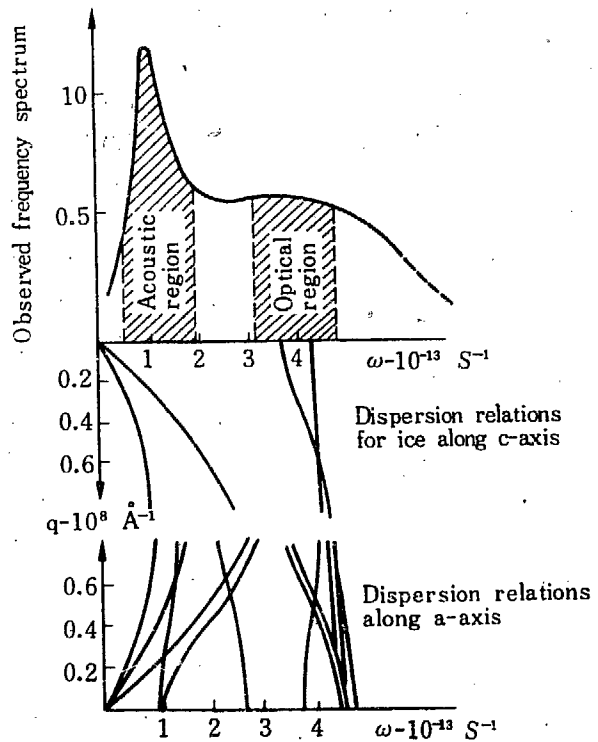


Fig. 3. 6 Comparison between dispersion relations for ice and observed frequency spectra

に似た領域 ( $\hbar\omega \lesssim 30 \sim 40 \text{ mV}$ ) での振動数分布の特異性は急速にぼやけ、 $20^\circ\text{C}$  付近ですでにほぼぼやけが飽和する。このことは水の中での分子の運動は  $20^\circ\text{C}$  ですでにかなり活発であり、結晶に似た  $H$  原子の運動は分子全体としての拡散運動におおわれていることを示している。なお今問題にしている結晶に似た低エネルギー領域で Debye 温度は約  $130^\circ\text{K}$  であり、系の温度に比べてかなり低いので、多フォノン過程の効果が大きくなる。したがって  $\rho_b(\beta)$  を求めるに当っては Debye-Waller 因子を正確に評価し、多フォノン過程による寄与を補正することが必要である。

つぎに Fig. 3.4 にみられる  $\hbar\omega \sim 0.075 \text{ eV}$  での幅広いピークは束縛回転によると見なされる。 $\text{H}_2\text{O}$  の束縛回転は  $0.06 \text{ eV}$  であるが、多フォノン過程を除いていないため、やや高いエネルギーにずれたものと考えられる。測定値からこのようにして定められた  $\rho(\beta)$  は必ずしも  $\int_0^\infty \rho(\beta) d\beta = 1$  とはならず、50% 近くずれることがある。これはエネルギー分解度、多重散乱、また  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  の  $\alpha=0$  への外挿の際の系統的誤差などによると考えられている。

Fig. 3.7 には Haywood, Thorson<sup>(5)</sup> および Egelstaff<sup>(6)</sup> ならびに Kottwitz と Leonard<sup>(7)</sup> によって求められた  $\rho_b(\beta)$  を示してある。いずれも室温の水に対するものであるが、Kottwitz と Leonard のデータは高い入射エネルギー ( $\alpha \geq 1 \sim 2$ ) についての散乱の測定値から求められたもので、 $S(\alpha, \beta)/\alpha$  の  $\alpha=0$  へ

の外挿の際に誤差がはやり易く、したがって、その値はやや信頼度が薄いと考えられる。特に  $\beta=9.82$  に対する値については外挿の手続きに疑問があり、実際はもっとずっと小さい値になりそうである。

Haywood-Thorson の  $\rho_b(\beta)$  は  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  から直接に求められたものであるが、Egelstaff 達はこの  $\rho_b(\beta)$  を初期の推測値として Debye-Waller 因子を求め、低振動数部分の多フォノン過程による寄与を計算で取除いて解析し直している。液体のように低振動数のモードが多い時には  $\rho_b(\beta)$  の導出にはかなりの注意が必要である。Fig. 3.7 では Egelstaff 達の求めた  $\rho_b(\beta)$  を実線で示してある。

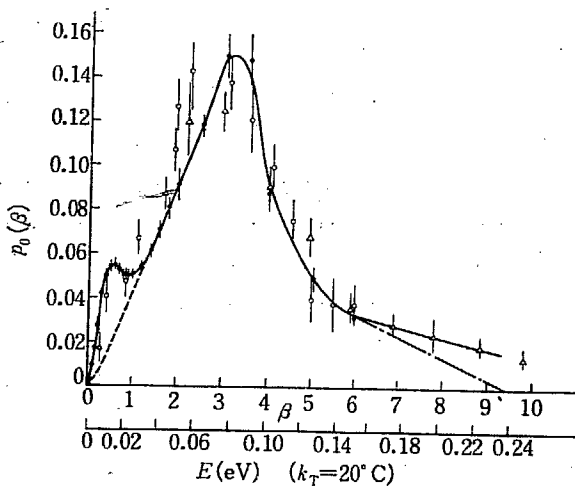
この実線で示された  $\rho_b(\beta)$  をそのまま  $\beta$  の大きい方へ外挿すれば  $\beta \approx 12.2$  の付近で 0 になるが、このとき  $\int_0^{12.2} \rho_b(\beta) d\beta \approx 1.48$  となり、規格化の条件を満たしていない。そこで  $\rho_b(\beta)$  を規格化し直して ( $\rho_b(\beta)$  を相対的に小さくして)  $S(\alpha, \beta)$  を計算してみると、計算値の  $S(\alpha, \beta)$  は測定値に比べて  $\alpha$  の大きい方へずれる。これは主に  $\rho(\beta)$  の  $\beta$  の大きい成分を大きく選び過ぎたため、Debye-Waller 因子が小さ過ぎたことによるものと思われる。先に述べた  $\beta=9.82$  での  $\rho(\beta)$  の値が過大評価されていることと傾向的に一致する。このような考察から、実際はむしろ  $\beta \approx 9$  の付近で  $\rho(\beta)=0$  となるように切断した方が真実に近いものと考えられる。規格化積分も事実  $\int_0^\infty \rho_b(\beta) d\beta \approx 1$  となっている。

そこで Fig. 3.7 の実線で示した分布を  $\beta=9.3$  で打ち切り、それ以上の  $\beta$  に対しては  $\rho_b(\beta)=0$  としたものを軽水の  $\rho_b(\beta)$  の標準値として採用することにした。ただ  $\rho_b(\beta)$  の決定にはかなり不確かな因子が多く作用しているため、標準値のほかにも、Fig. 3.7 に示されているような 2通りの  $\rho_b(\beta)$  の形を仮定し、 $S(\alpha, \beta)$  にどのように影響するかを調べてみた。 $\beta$  の高い所を変えた  $\rho_b(\beta)$  からは、先述の打ち切りの影響や、 $\beta$  の大きい成分の影響などを知り得るであろうし  $\beta$  の低い所を変えた  $\rho_b(\beta)$  からは多フォノン過程による寄与の補正の効果についてある程度の目安が与えられることが期待される。

Fig. 3.8 はこの 3通りの  $\rho_b(\beta)$  を用いて計算した  $S(\alpha, \beta)$  の結果である。いずれの場合にも  $\rho_b(\beta)$  は

$$2 \int_0^\infty \frac{\sinh \frac{\beta}{2}}{\beta} \rho_b(\beta) d\beta = 1 \quad (8)$$

のように規格化されている (この Fig. 3.8 の場合には拡散運動は考慮していない)。



- : Haywood, Thorson (1962)  $20^\circ\text{C}$
- : same as above, reanalyzed by Egelstaff (1963)  $20^\circ\text{C}$
- △ : Kottwitz, Leonard (1963)  $22^\circ\text{C}$
- :  $\rho_b(\beta)$  used as "standard"
- - :  $\rho_b(\beta)$  modified at high  $\beta$
- ⋯ :  $\rho_b(\beta)$  modified at low  $\beta$

Fig. 3.7.  $\rho_b(\beta)$  for water at room temperature

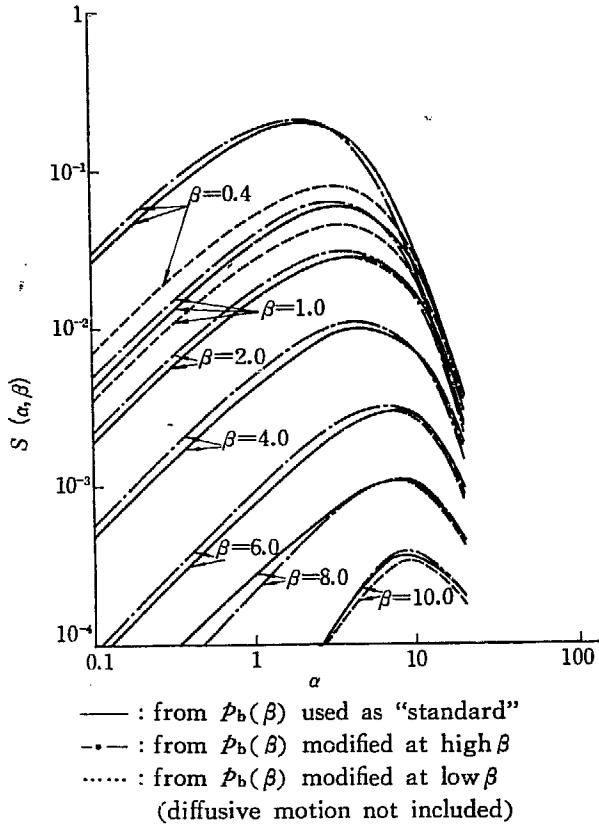


Fig. 3.8  $S(\alpha, \beta)$  of H in  $H_2O$  at  $20^\circ C$   
(1) Effect of  $p_b(\beta)$

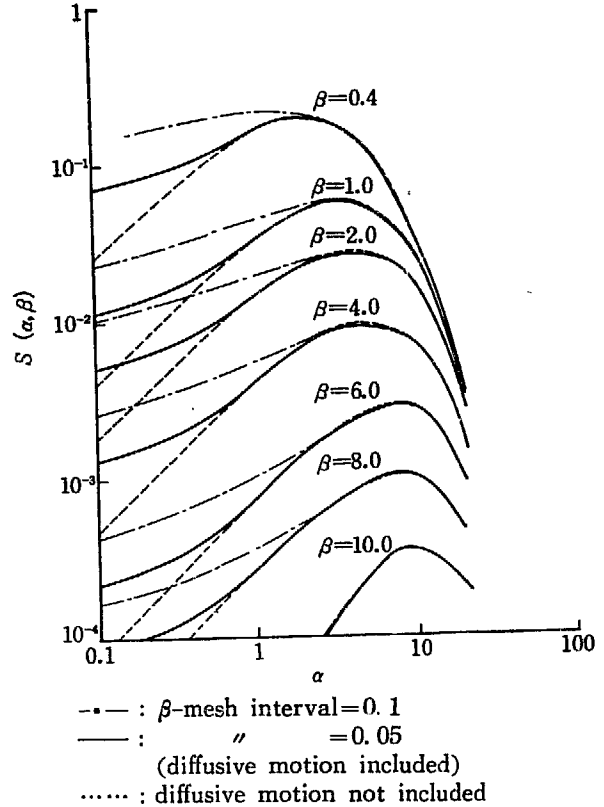


Fig. 3.9  $S(\alpha, \beta)$  of H in  $H_2O$  at  $20^\circ C$   
(2) Effect of  $\beta$ -mesh interval and of diffusive motion

まず、標準の  $p_b(\beta)$  に対して、 $\beta$  の高い領域 ( $6 \leq \beta \leq 9.3$ ) での成分を小さく取った直接の結果は Debye-Waller 因子を通じて、 $\alpha$  の大きい所での  $S(\alpha, \beta)$  の曲線の下がり方を急激ならしめる。なお  $\beta$  の高い領域での成分を小さく取ることによって、 $\beta \leq 6$  の領域では (8) 式の規格化のために  $p_b(\beta)$  の値は大きくなるが、その絶対値の違いは  $\alpha=0$  の付近での  $S(\alpha, \beta)$  の値の違いとなってそのまま表われる ((6)式参照)。

つぎに、 $\beta$  の低い領域での成分を変化させれば、その領域の  $\beta$  に対する  $S(\alpha, \beta)$  に直接に影響を与え、 $\alpha$  の大きい所を除き  $p_b(\beta)$  の変化分だけ  $S(\alpha, \beta)$  も変化する。この場合には規格化をおこなっても  $\beta$  の高い領域ではほとんど変化を受けない。というのは、一般に規格化積分 (8) 式に含まれる  $\sinh \cdot \beta/2$  なる因子のために  $p_b(\beta)$  の  $\beta$  の大きい成分が主に寄与するからである。

$p_b(\beta)$  の形の  $S(\alpha, \beta)$  におよぼす影響についてはまた後で実験値との比較の所で議論する。

Fig. 3.9 は  $\beta$  の分点幅を変えてその影響を調べ、合せて拡散運動がどのように  $S(\alpha, \beta)$  に寄与するかを調べたものである。この図で点線は、 $\beta$  の分点幅を

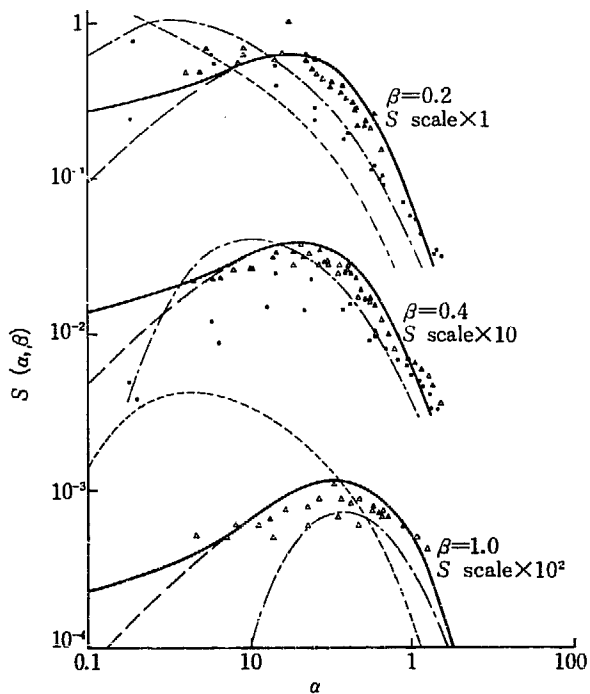
0.1 として計算した。拡散運動を含まない場合の  $S(\alpha, \beta)$  である。拡散運動を含まない場合については別に分点幅を変えた計算を、いくつかおこない、分点幅 0.1 ではほぼ十分であることを確かめてある (全散乱断面積に対する影響については後に述べる)。これに対して拡散運動が存在する場合、これの全体のモードに対する寄与は  $d/c$  であるが、室温の軽水に対して  $c=75$ ,  $d=0.04$  という値を採用することになると、全体のモードに対する寄与はわずか 0.05% にしか過ぎない。したがって大部分の  $(\alpha, \beta)$  領域については拡散運動を無視して軽水を結晶状として扱うことが許される。拡散運動が主に利くのは小さい  $(\alpha, \beta)$  値に対してであって、 $S(\alpha, \beta)$  は  $\alpha=0$  に近づくにつれて次第に平坦になるが、先に述べたようにこの効果を正當に評価するためには、 $\beta$  の分点幅を非常に小さく取ることが必要である。Fig. 3.9 はこのことをはっきりと示している。Fig. 3.9 からは、分点幅 0.05 ですでに収斂しているかどうかは断定できないが、 $\alpha$  が十分小さくて  $2cda \ll 1$  のとき、 $\beta=0$  の近くで、

$$S(\alpha, \beta) \approx \frac{1}{\pi} \frac{2d\alpha}{\beta^2 + (2d\alpha)^2} + \alpha \left(1 - \frac{d}{c}\right) p_b(\beta) \tag{9}$$

のように近似的に表わすことができる (この式の  $p_b(\beta)$  は拡散運動がないとして独立に (8) 式のように規格化したもの) ので, 拡散運動の寄与を定量的に評価することができる. この結果, 分点幅は 0.05 よりさらに細かく取る必要があることが明らかにされたが計算時間の関係でこれ以上の計算はまだおこなっていない.

Fig. 3.10 ~ Fig. 3.12 は  $S(\alpha, \beta)$  の計算値と実験値との比較である. 実験値は 3つの論文<sup>(8), (5), (7)</sup> から採り, 計算値の方は ES コードの結果 (拡散運動を考慮したものとししないもの) のほか, 同じくシグマ委員会での作業としておこなわれた自由ガス模型, および Nelkin 模型に基づく計算結果を借用させて頂いた.

全般を通じて自由ガス模型による結果と実験値との不一致は歴然としている. Nelkin 模型は分子の並進運動を自由運動として取扱い, 分子振動の振動数分布には Einstein 型の離散的な光学レベルを仮定しているので,  $S(\alpha, \beta)$  の計算値は小さい  $\alpha$  に対し一般に



- ..... : Free gas
  - - - : Nelkin
  - : ES (diffusive motion included)
  - - - : ES (diffusive motion not included)
  - △ : Egelstaff (1962)
  - : Haywood, Thorson (1962)
  - × : Kottwitz, Leonard (1963)
- } Calcu.  
} exp.

Fig. 3.10  $S(\alpha, \beta)$  of  $H_2O$  at room temperature : comparison between theory and experiment (1)

( $\beta$  が光学レベルの位置と一致しないときは) 強く減少しており, 測定値の傾向と一致しない. この点 Egelstaff-Schofield のように, 液体の  $H_2O$  対にしては, むしろ連続的な  $p(\beta)$  を考える方が良いことがわかる.

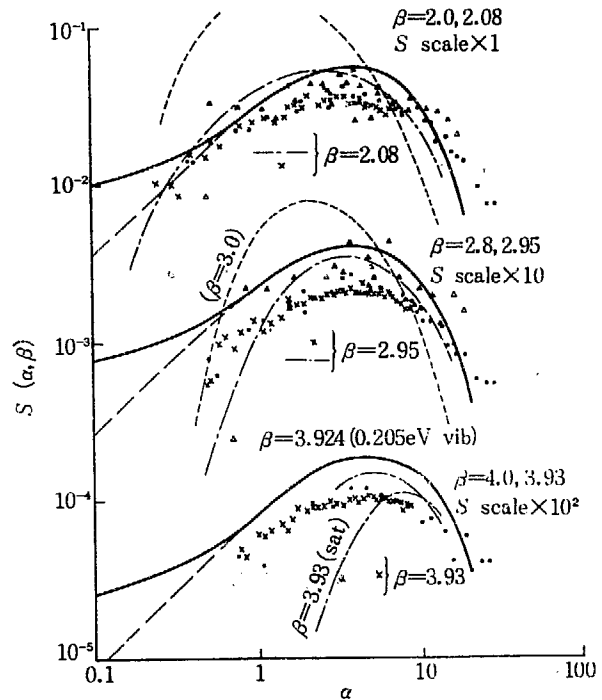


Fig. 3.11  $S(\alpha, \beta)$  of  $H_2O$  at room temperature : comparison between theory and experiment (2)

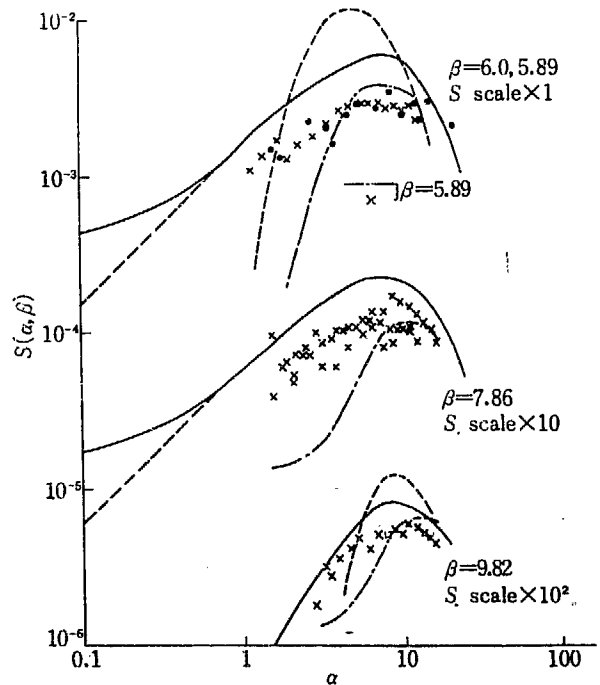


Fig. 3.12  $S(\alpha, \beta)$  of  $H_2O$  at room temperature : comparison between theory and experiment (3)

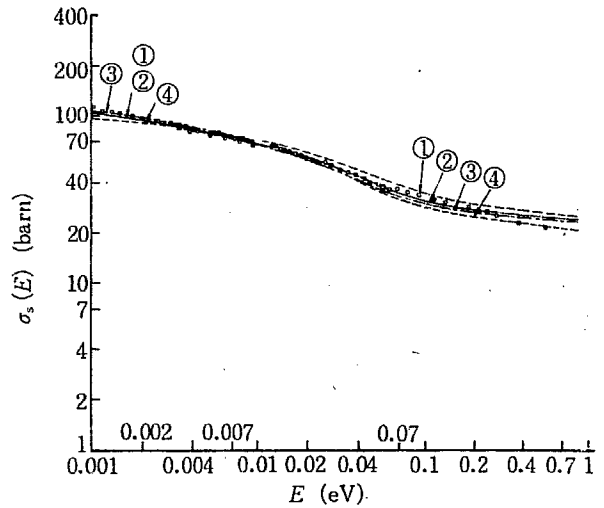
ES コードによる計算値のうち、拡散運動を含むものは先に述べたようにまだ収斂していないが、拡散運動の効果を実験値と比べるにはまだ実験値の方が不足しており、もっと広い  $\alpha$  の範囲についての実験値の集積が望まれる。ES コードによる計算値と実験値との比較から引出される結論はつぎのようにまとめることができる。

(a)  $\alpha$  の大きい所での  $S(\alpha, \beta)$  の減少の仕方は実験値に比べて計算値の方がやや急激である。これに対し  $\alpha$  の小さい所での減少の仕方はほぼ一致するがこの領域では  $S(\alpha, \beta)$  の絶対値が大きめにしている。この二つの不一致は、Fig. 3.8 の説明の所で述べたことから、 $p_b(\beta)$  の  $\beta$  の大きい領域での成分が少な過ぎたためと考えることができる。標準として用いた  $p_b(\beta)$  は、 $\beta=9.82$  に対する実験値を誤りとして  $\beta=9.3$  の所で打切っているが、実際はもう少し大きい  $\beta$  の所まで含める必要があるかも知れない。さらに、Nelkin 模型で考慮している分子の内部振動は、そのエネルギーが 0.205 eV ( $\beta \approx 8.1$ )、および 0.481 eV ( $\beta \approx 19.0$ ) であり、前者はここで標準として用いた  $p_b(\beta)$  である程度考慮されているとしても、これらをさらに何らかの形で含めることも必要であろう。ES コードでは高エネルギーの光学レベルを別に考慮に入れることが可能であるが、実際問題としてはこれにどのような強度を持たせて計算するか、などさらに検討を要する。

(b)  $\alpha$  の小さい所での  $S(\alpha, \beta)$  の減少の仕方が自由ガス模型や Nelkin 模型と著しく異なり、 $p_b(\beta)$  が定義されている  $\beta$  の領域で  $\alpha$  に線型の形でゆっくりと減少し(拡散運動を含めればさらに  $\alpha$  の小さい所でも平坦になる)、測定値の傾向と一致する。これは液体の  $H_2O$  が結晶に似た性質を持つことを示すものである。

なお詳細にみれば測定値間のずれもかなりあり、特に  $\beta=0.2, 0.4$  などの  $\beta$  の小さい所でのずれが著しい。これは  $p_b(\beta)$  をさらに不確かなものにする。散乱の実験の集積が望まれると共に、振動数分布についてのさらに進んだ検討も必要である。

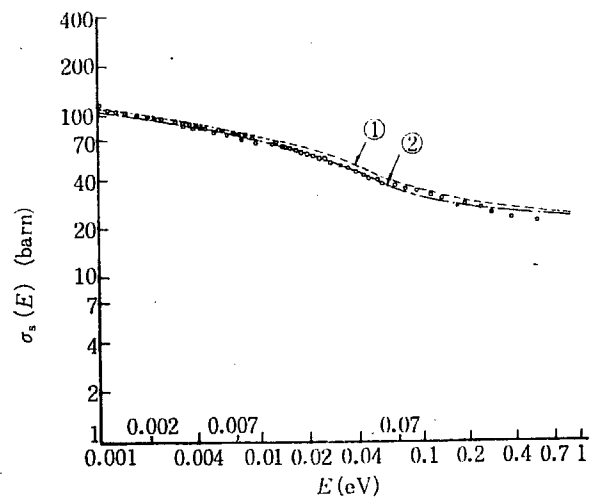
Fig. 3.13 ~ Fig. 3.15 は、散乱法則についておこなったと同じような解析を全散乱断面積についておこなったものである。Fig. 3.13 は入力として用いる  $p_b(\beta)$  を変化させたときの影響を調べたもので、Fig. 3.8 の3つの曲線に対応するもの(②, ③ および ④)のほか、標準として用いた  $p_b(\beta)$  について、 $p_b(\beta)/\beta^2$  の  $\beta=0$  における値(コード入力として指定する)を一



①  $p_b(\beta)$  used as "standard" ( $p_b(\beta)/\beta^2_{\beta=0}=1.8$ )  
 ② " " ( " =1.2)  
 ③  $p_b(\beta)$  modified at high  $\beta$  ( " =1.2)  
 ④  $p_b(\beta)$  modified at low  $\beta$  ( " =0.14)  
 diffusive motion not included  
 ○ : experimental value (BNL-325)

Fig. 3.13 Total scattering cross section of H in  $H_2O$  at 20°C

(1) Effect of  $p_b(\beta)$

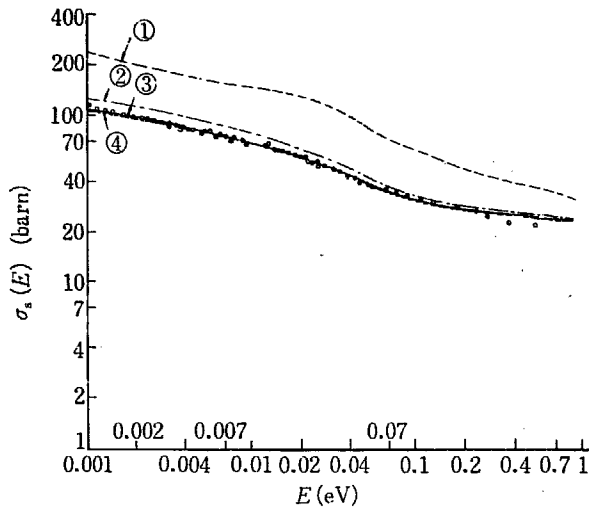


①  $\beta$ -mesh interval = 0.3  
 ② " " = 0.1, 0.05  
 diffusive motion not included  
 ○ : experimental value (BNL-325)

Fig. 3.14 Total scattering cross section of H in  $H_2O$  at 20°C

(2) Effect of  $\beta$ -mesh interval (bounded motion only)

応妥当と思われる 1.2 から 1.8 に変えて計算したものの(①)を含んでいる。散乱法則に比べて全断面積に対する  $p_b(\beta)$  の形の影響は比較的小さいが、4つの



- ①  $\beta$ -mesh interval = 0.3  
 ② " = 0.1  
 ③ " = 0.05  
 bounded motion (with standard  $P_b(\beta)$ )  
 and diffusive motion ( $c=75, d=0.04$ )  
 ④  $\beta$ -mesh interval = 0.1, 0.05  
 diffusive motion not included  
 (same as ② in Fig. 3.14).  
 ○ : experimental value (BNL-325)

Fig. 3.15 Total scattering cross section of H in  $H_2O$  at  $20^\circ C$   
 (3) effect of  $\beta$ -mesh interval and of diffusive motion

$P_b(\beta)$  のうちでは、われわれが標準として用いたもの ( $(P_b(\beta)/\beta^2)_{\beta=0} = 1.2$ ) が一番実験値に近いようである。ただし  $0.07eV$  から  $0.2eV$  附近での実験値のもち上りの部分など細かくみれば、まだ完全に一致しているとは言い難い。

Fig. 3.14 は拡散運動を含まない場合の  $\beta$  の分点幅の影響を示したもので、分点幅  $0.1$  で十分収まっていることがわかる。これに対し、拡散運動が存在する場合には、Fig. 3.15 に示すように、少なくとも分点幅を  $0.05$  以下に取らなければ全断面積の実験値を再現することができない（前に述べたように  $0.05$  でも収束はまだ完全ではない）。またこの図から、全断面積に対する拡散運動の影響はエネルギーの非常に低い領域以外にはほとんど表われないことが明らかにされる。

以上で ES コードによる結果と軽水についての実験との比較を終るが、計算値と実験値とは定性的にはもちろん、定量的にもかなりの程度までよい一致を示しているといえよう。軽水は良い非干渉散乱体なので、この結果は予期されることである。しかし、すでに指摘したようにその一致は決して充分とは言い難く、今

後も拡散運動を含めて入力  $p(\beta)$  の検討を続けて行かなければならない。

最後に  $270^\circ C$  の  $H_2O$  に対する計算について一言触れておく。 $270^\circ C$  の  $H_2O$  については入力として用いるべき  $p(\beta)$  の測定値がないので、つぎのような便法を用いた。Fig. 3.5 からわかるように、温度が変化するにつれて振動数分布  $P_b(E)$  の形はかなり変化するが、ピークの位置などごく大まかな点についてはそれほど変化がないと考えてよい。ただし、これはエネルギーを変数として用いた場合であって、 $\beta$  を変数に取れば

$$\beta = \frac{\hbar\omega}{kT} \quad (10)$$

の関係から、絶対温度の比だけピークの位置が移動することになる。そこで  $270^\circ C$  の場合の計算をおこなうに当たっては、まず  $20^\circ C$  の場合の計算でアウトプットされる  $P_b(\beta)$  の値をそのまま  $270^\circ C$  の場合に対する  $P_b(\beta)$  の入力とし、その代わりに  $\beta$  の分点幅を絶対温度の比だけ縮めることにする。拡散運動のパラメータについては種々のデータを参照して、やや任意に  $c=300, d=0.4$  と選んだ。 $20^\circ C$  の場合に比べて計算精度が落ちるのは当然であるが、現状では止むを得ない。

### 3.3 種々の減速材についての計算

軽水の他に減速材として広く用いられるものには、重水、黒鉛、ベリリウムなどいくつかあるが、これらは軽水と異なり、多かれ少なかれ中性子非干渉散乱をおこなうために、ES コードでは軽水ほど精度よく計算をおこなうことができず、また計算結果を直接実験値と比較して、詳細な検討をおこなうこともでき難い。その上、これらの減速材の振動数分布についてもまだ十分な情報が得られておらず、むしろシグマ委員会熱中性子グループの今後の中心課題として取上げられているのが実情である。

しかし現段階において、とにかく種々の減速材について原子炉物理の計算に必要な定数を計算しておくことは必要なことと思われるので、現在利用できる範囲のデータに基づいて、重水 ( $20^\circ C, 270^\circ C$ )、黒鉛 ( $20^\circ C, 600^\circ C$ ) およびベリリウム ( $20^\circ C$ ) について一連の計算をおこなった。Fig. 3.16 ~ Fig. 3.18 はそれぞれ  $20^\circ C$  における重水<sup>(9)</sup>、黒鉛<sup>(9)</sup> およびベリリウム<sup>(10)</sup> に対して用いた振動数分布である。重水についてはさらに拡散運動を考慮し、拡散パラメータの値と



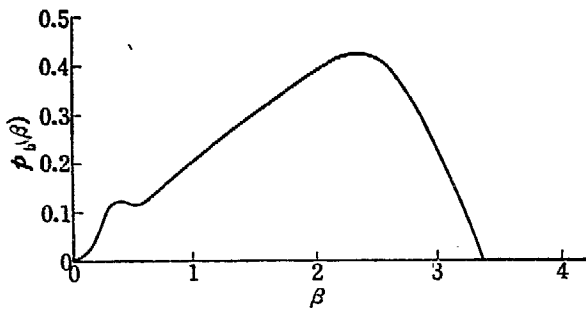


Fig. 3.16  $p_k(\beta)$  for  $D_2O$  at room temperature

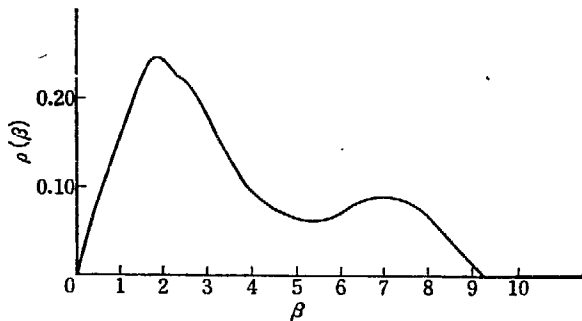


Fig. 3.17  $\rho(\beta)$  for graphite at room temperature

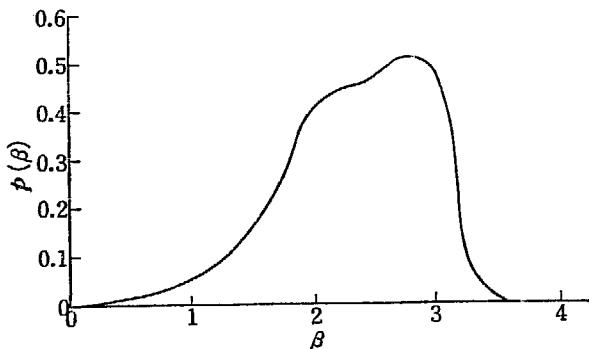
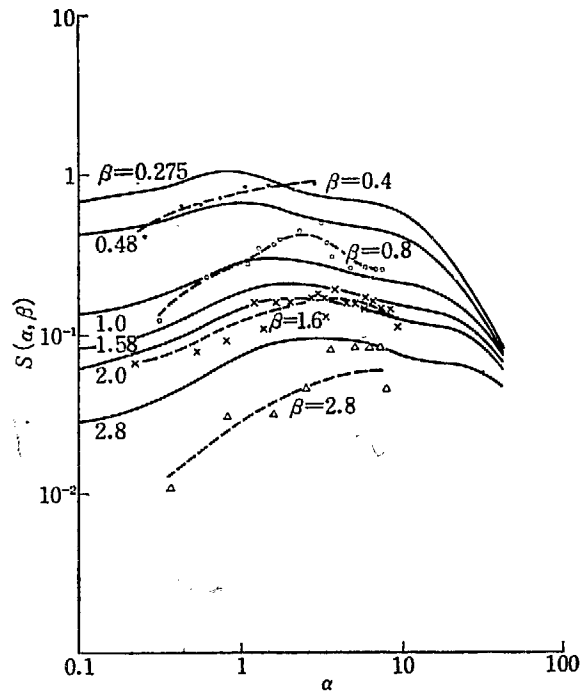


Fig. 3.18  $p(\beta)$  for Be at room temperature

して  $c=25$ ,  $d=0.08$  (20 °C), および  $c=100$ ,  $d=0.8$  (270 °C) を用いた. Fig. 3.19 ~ Fig. 3.21 には, これらの減速材に対する  $S(\alpha, \beta)$  の計算結果を示してある.

重水の場合のように2種以上の元素が存在して, しかもそれぞれの元素による中性子散乱が同程度の寄与をするような場合には, 全体の  $S(\alpha, \beta)$  をどのように定義するかは, 最初に入力として用いた  $p(\beta)$  がどのようにして定義されているかとも関連して簡単には結論をくだせない問題であるが, ここでは一応単純に

$$S_{D_2O}(\alpha, \beta) = 2S_D(\alpha, \beta) + \frac{\sigma_b^0}{\sigma_b^D} S_D\left(\frac{M^D}{M^0} \alpha, \beta\right)$$



— : Calculation with ES code  
 ..... : Curve drawn through experimental values  
 • :  $\beta=0.4$   
 ◦ :  $\beta=0.8$   
 × :  $\beta=1.6$   
 Δ :  $\beta=2.8$  } experimental value by Egelstaff

Fig. 3.19  $S(\alpha, \beta)$  of  $D_2O$  at room temperature : Comparison between theory and experiment

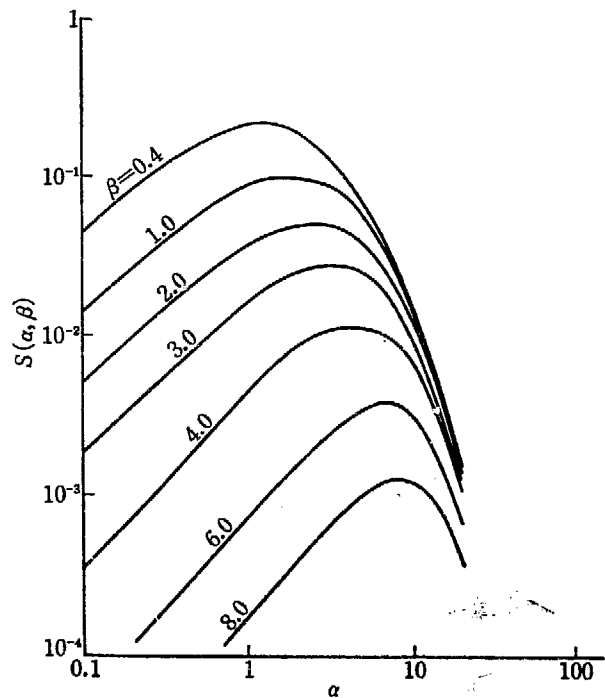


Fig. 3.20  $S(\alpha, \beta)$  of graphite at 20°C (calculation with ES code)

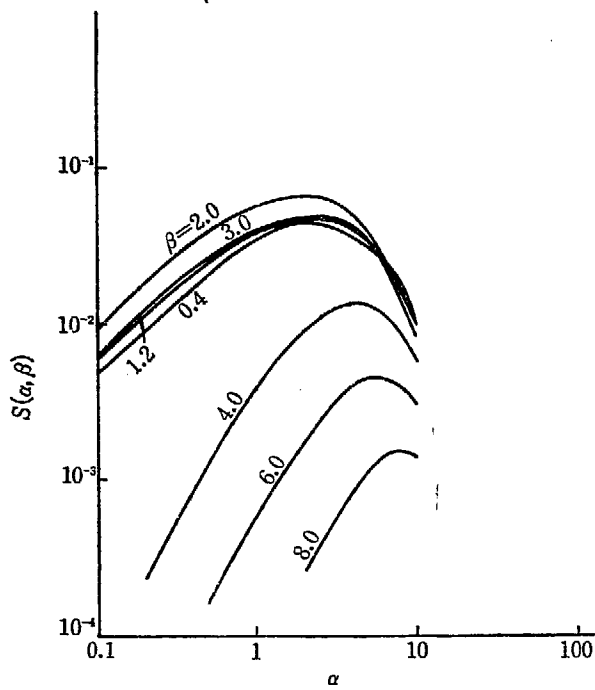


Fig. 3.21  $S(\alpha, \beta)$  of Be at 20°C (calculation with ES code)

によって全体の  $S(\alpha, \beta)$  が求められるものとしている。計算値は全体的にながめて実験値<sup>(4)</sup>とそれほど大きなずれはないようであるが、さらに検討を加える必要がある。特に小さな  $\alpha$  の領域で  $S(\alpha, \beta)$  がかなり平坦になっているのは、軽水の所で述べたように拡散運動の効果であり、しかも計算の際の  $\beta$  の分点幅から考えて、それがさらに過大評価されていることは間違いない。この点は計算時間さえいとわなければ改善するのは容易である。

黒鉛とベリリウムについては、干渉散乱が強いために実験値との比較はおこなわなかった。これらについては UNCLE コードを使って詳細な検討がおこなわれているので UNCLE コードの項を参照して頂きたい。非干渉近似をおこなっているため、全散乱断面積の計算結果 Fig. 3.22, 23 は極めて平坦な曲線になる。

フォノン展開の方法によって  $S(\alpha, \beta)$  を計算する際に多フォノンの項を Convolution によって正確に計算するのはせいぜい6個までであり、その後は Gauss 関数からのずれを Hermite 多項式で近似するという方法を用いている。軽水のような場合には単一フォノンの項  $T_1(\beta)$  がすでに見 Gauss 関数的に見える程なめらかな形を持っているが、特にベリリウムの場合には  $T_1(\beta)$  の形はかなり複雑である。そこでベリリウムの場合に  $T_n(\beta)$  が  $n$  が増加するにつれてどのよ

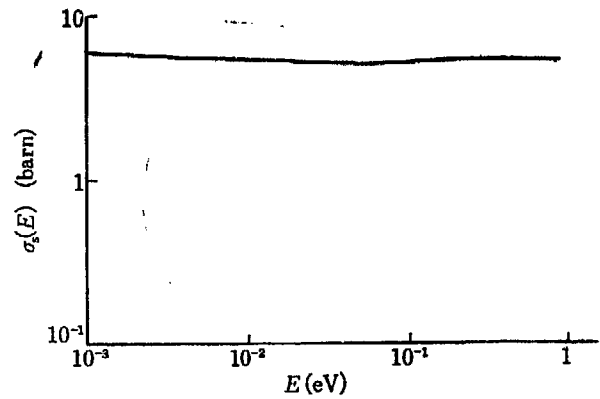


Fig. 3.22 Total scattering cross section of graphite at 20°C

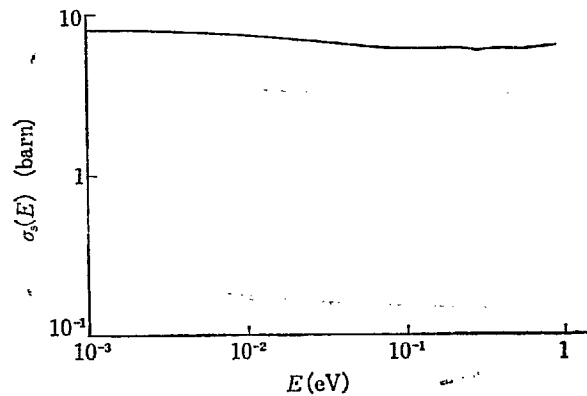


Fig. 3.23 Total scattering cross section of Be at 20°C

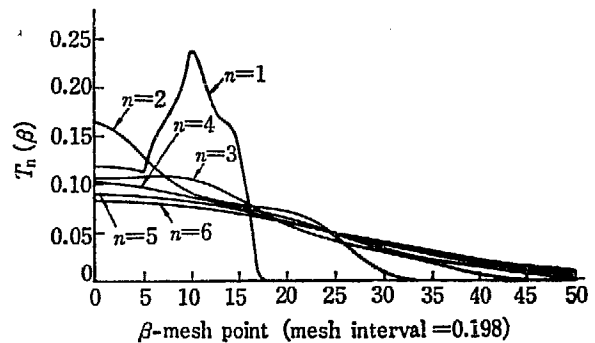


Fig. 3.24  $T_n(\beta)$  for Be at 20°C (obtained by convolution)

うに変化するかを調べたのが Fig. 3.24 である。これからわかるように  $n=4$  ですでにかなり Gauss 関数に近い形を持っており、convolution による平坦化がかなり急激におこなわれることが知れよう。

参考文献

(1) P. A. EGELSTAFF, P. SCHOFIELD ; *Nucl. Sci. Engng.*, 12, 260 (1962)

- (2) McLATCHIE ; AERE-R-3847
- (3) K. E. LARSSON, U. DAHLBORG ; Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids (Chalk River Conf.), Vol. 1 (1963)
- (4) E. FORSLIND ; Proc. No. 21, Swedish Cement and Concrete Res. Inst. at Roy. Inst. of Technology, Stockholm (1954)
- (5) B. C. HAYWOOD, I. M. THORSON ; Proc. BNL Conf. on Neutron Thermalization (1962)
- (6) P. A. EGELSTAFF, B. C. HAYWOOD, I. M. THORSON ; Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids (Chalk River Conf.), Vol. 1 (1963)
- (7) D. A. KOTTWITZ, B. R. LEONARD, JR ; Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids (Chalk River Conf.), Vol. 1 (1963)
- (8) P. A. EGELSTAFF ; AERE-R-3931 (1962)
- (9) M. J. POOLE, *et al.* ; IAEA Symposium on Critical and Exponential Experiments (1963)
- (10) R. N. SINCLAIR ; Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids (Chalk River Conf.), Vol. 2 (1963)

## 4. UNCLEコードによる結晶からの散乱法則計算結果の検討

飯 島 俊 吾

### 4.1 ま え が き

UNCLEコード\* を使って、グラファイト (20°C, 600°C), BeO (20°C) について thermal 30-group の scattering kernel の計算をおこなった。その他に、小規模の計算で、グラファイト (20°C, 600°C), Be (20°C), Debye 結晶について散乱法則の計算をおこなった。

30-group の kernel  $\sigma_L(E_0 \rightarrow E)$  は,  $L=0, 1, 2, 3$  について full kernel が求められ, カード形で原研に保存されている。UNCLE の manual に述べてある理由により, 全断面積の計算はおこなっていない。

計算は incoherent 近似でおこなっている。その場合, 結晶力学を特徴づけるものは振動数分布であり, ここでは, 振動数分布と, 散乱法則計算について測定値と比較して議論する。ES コードは等方結晶について計算できるコードであり, 松岡氏 (日立) がグラファイト (20°C), Be (20°C) について計算をおこなったので, UNCLE による計算と比較して議論する。

以下 2. で UNCLEコードの基礎となっている中性子非干渉散乱理論の概要と, 特に, グラファイトの扱いについて述べる。

3. で UNCLE と, ES コードによる計算結果について検討する。

### 4.2 多結晶による中性子非干渉散乱の理論の概要

結晶の unit cell 内に  $r$  ケの原子があるとし, それらを index  $\nu=1, 2, \dots, r$  で表わす。中性子散乱の self term は, van Hove, Sjölander が示したように単結晶について, unit cell 当り

$$\left. \begin{aligned} \frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} &= \frac{k}{k_0} \sum_{\nu=1}^r \langle a_{\nu}^2 \rangle S_{\nu}(\vec{k}, \omega_0 - \omega) \\ S_{\nu}(\vec{k}, \omega_0 - \omega) &= \frac{1}{2\pi} \times \\ &\int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i(\omega_0 - \omega)t} e^{-i\vec{\kappa}(m_{\nu\nu}(0) - m_{\nu\nu}(t)\vec{\kappa})} \end{aligned} \right\} (1)$$

と表わされる。ここで, 入射および散乱中性子のエネルギー, 波数ベクトルをそれぞれ  $E_0 \equiv \hbar\omega_0, E \equiv \hbar\omega$ ;  $\vec{k}_0, \vec{k}$  としている。 $\vec{\kappa}$  は momentum transfer で,

$$\vec{\kappa} \equiv \vec{k}_0 - \vec{k}$$

$m_{\nu\nu}(t)$  は,  $\nu$ -th atom の運動に関係した diadics で, 任意の unit cell 中の  $\nu$ -th atom の原子変位を  $\vec{u}_{\nu}(t)$  とすると

$$\begin{aligned} m_{\nu\nu}(t) &\equiv \langle \vec{u}_{\nu}(0) \vec{u}_{\nu}(t) \rangle_T \\ &= \frac{\hbar}{2NM_{\nu}} \sum_s \frac{\vec{C}_{\nu}^{s*} \vec{C}_{\nu}^s}{\omega_s} [(n_s + 1) e^{i\omega_s t} + n_s e^{-i\omega_s t}] \end{aligned} \quad (2)$$

と表わされる。ここで,  $s$  は normal mode (branch  $\lambda$ , wave vector  $\vec{q}$ ),  $\vec{C}_{\nu}^s$  は  $\nu$ -th atom (あるいは,  $\nu$ -th sub-lattice) に対する規格直交化された polarization vector,  $\omega_s$  は mode  $s$  の phonon の振動数,  $n_s$  は  $\omega_s$  の phonon の average occupation number で,  $n_s = \left( e^{\frac{\hbar\omega_s}{T}} - 1 \right)^{-1}$  で与えられる。

(1) 式の主な基礎仮定は, (i) 磁性体を含まない。(ii) 完全調和結晶である。多結晶による散乱は, (1) を  $\vec{\kappa}$  の方向で平均して得られる。

cubic Bravais lattice (単位格子に原子 1 ケの cubic lattice) の場合には結晶の対称性より,

(2) 式は簡単化され

$$\begin{aligned} \vec{\kappa} m(\vec{\kappa}) \vec{\kappa} &= \frac{\hbar \kappa^2}{2M} \cdot \frac{1}{3N} \sum_s \frac{1}{\omega_s} [(n_s + 1) e^{i\omega_s t} + n_s e^{-i\omega_s t}] \\ &= \frac{\hbar \kappa^2}{2M} \int_0^{\infty} \frac{\rho(\omega)}{\omega} [(n(\omega) + 1) e^{i\omega t} + n(\omega) e^{-i\omega t}] d\omega \\ &\equiv \frac{\hbar \kappa^2}{2M} \Gamma(t) \end{aligned} \quad (3)$$

ここで,  $\rho(\omega)$  は, 結晶の規格化された振動数分布で, 次のように normal mode density として定義される。

\* UNCLE は, General Atomic で開発された SUMMIT コードを,  $\sigma$  委員会昭和38年度研究の一環として, 修正追加を行ったものである。

$$\rho(\omega) d\omega \equiv \frac{1}{3N} \sum_{\vec{q}} \sum_{\vec{q}'} 1 = \frac{V_0}{(2\pi)^3} \frac{1}{3} \sum_{\vec{q}} \int_{\omega \leq \omega_{\lambda}(\vec{q}) \leq \omega + d\omega} d\vec{q} \quad (4)$$

したがって cubic Bravais lattice では

$$S(\kappa, \omega_0 - \omega) = \frac{1}{2\pi} \int dt e^{-i(\omega_0 - \omega)t} e^{-\frac{\hbar\kappa^2}{2M}(\gamma(0) - \gamma(t))} \quad (5)$$

この場合、結晶の力学的性質は振動数分布  $\rho(\omega)$  を通してのみ中性子散乱 (selfterm) に関係して来るので、 $\rho(\omega)$  を入力として散乱断面積が計算される。

(5) は、 $\kappa$  の方向によらず、等方的なので (2) が (3) の形式に表わされる時結晶は等方的であるという。

断面積の計算は (5) において Debye-Waller factor  $2W \equiv \frac{\hbar\kappa^2}{2M}\gamma(0)$  の大きさにより計算方法を変えるのが良く、通常  $2W \leq 3$  では、(5) 式の被積分項を  $\gamma(t)$  の中に展開する phonon 展開の方法が収斂が早い。すなわち

$$S(\kappa, \omega_0 - \omega) = e^{-2W} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(2W)^n}{n!} \phi_n(\omega - \omega_0) \quad (6)$$

ここで

$$\phi_n(\omega) \equiv \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left( \frac{\gamma(t)}{\gamma(0)} \right)^n e^{i\omega t} dt = \int_{-\infty}^{\infty} \phi_1(\omega - \omega') \phi_{n-1}(\omega') d\omega'$$

$$\phi_0(\omega) = \delta(\omega)$$

$$\phi_1(\omega) = \frac{e^{-\frac{\hbar\omega}{2T}}}{2\omega\gamma(0) \sinh \frac{\hbar\omega}{2T}} \rho(\omega) \quad \text{for } |\omega| \leq \omega_{\max}$$

zero-phonon process は、弾性散乱を与え、全散乱断面積への寄与は

$$\begin{aligned} (\sigma(E_0))_{\text{zero-phonon}} &= \langle a^2 \rangle \cdot \iint \frac{k}{k_0} e^{-2W} \delta(\omega_0 - \omega) d\Omega d\omega \\ &= \sigma_b \left( \frac{4\hbar k_0^2}{2M} \gamma(0) \right)^{-1} \left[ 1 - e^{-\frac{4\hbar k_0^2}{2M} \gamma(0)} \right] \end{aligned} \quad (7)$$

ただし、 $\sigma_b \equiv 4\pi \langle a^2 \rangle$  は bound atom scattering cross section である。

one-phonon 項  $\phi_1(\omega)$  は振動数分布  $\rho(\omega)$  に直接に比例しているので、中性子非弾性散乱の測定値から干渉散乱および multi-phonon 項を差引く事により振動数分布を決定できることが van Hove-Placzek<sup>(8)</sup> により初めて指摘された。実験的には、この差引きは、Large  $\kappa$  で  $S/\kappa^2$  を作り、これを  $\kappa \rightarrow 0$  へ外挿して得

られる。

Few phonon 項 ( $n \leq 3 \sim 4$ ) までは、 $\phi_n$  は convolution integral を正確におこなって計算する。 $n \geq 3 \sim 4$  の many phonon process は  $\gamma(t)$  を  $t$  の中に展開して  $\phi_n(\omega)$  を計算する。この場合  $\phi_n(\omega)$  は Gau $\beta$  型分布を Hermite 多項式による級数で補正した形に表わされる (Sjölander 近似)。被数は  $n^{-1/2}$  の巾展開になっている。

$2W \geq 3$  の時には phonon 展開は収斂が遅くなる。10-phonon 程度の process がかなり利いて来るようになると、(5) 式の被積分項で  $\gamma(t)$  を  $t$  の中に展開して (5) 式を直接に積分して行く short time expansion (あるいは short collision time) の方法が有効になる。この場合、 $S(\kappa, \omega_0 - \omega)$  は Hermite 補正付きの Gau $\beta$  分布で表わされ、級数は  $(2W)^{-1/2}$  の巾展開になる。Gau $\beta$  分布は、原子系の平均運動エネルギーによって定まる effective temperature  $T_{\text{eff}}$  をもつ自由ガスと同型であり、Hermite 補正は原子の平均ポテンシャル・エネルギー、原子に働く力の自乗平均等をパラメータとして含んでいる。

多結晶の理論と測定値を比較するさい、しばしば、 $S(\kappa, \omega_0 - \omega)$  よりも、それを対称化した。

$$S(\alpha, \beta) \equiv \frac{T}{\hbar} e^{-\frac{\hbar(\omega_0 - \omega)}{2T}} S(\kappa, \omega_0 - \omega) \quad (8)$$

$$S(\alpha, -\beta) = S(\alpha, \beta),$$

$$\alpha \equiv \frac{\hbar^2 \kappa^2}{2MT}, \quad \beta \equiv \frac{\hbar(\omega_0 - \omega)}{T}$$

について考えるのが便利な事が多い。上述の計算方法の結果は、Fig. 4.6, Fig. 4.11 の例から判るように  $S(\alpha, \beta)$  に関して次のような一般的傾向を与える。

小さい  $\alpha$  に対しては、 $\beta \neq 0$  の時  $S(\alpha, \beta) \propto \alpha$  となる。この部分は one-phonon process が主であり、結晶の特徴である。自由ガス、分子ガスではこのようにならない。水では  $\beta$  が余り小さくない限り、小さい  $\alpha$  に対して測定値は  $S(\alpha, \beta) \propto \alpha$  となっている。これは水が原子運動に関しては結晶とよく似ていることを意味している。

$\alpha$  が大きくなるにつれ multi-phonon contribution が加わるが、同時に Debye-Waller factor が増大して Fig. 4.6 に示すように  $S(\alpha, \beta)$  は  $\alpha$  に対して上に凸になる。さらに  $\alpha$  が大きくなると、effective temperature  $T_{\text{eff}}$  の自由ガスの散乱法則に近づく。

測定値の  $S(\alpha, \beta)$  が上記の傾向からずれる時、考えられる主な理由は、

- ① 干渉散乱の効果
- ② anharmonicity の効果
- ③ 完全結晶からのずれ

である。普通、余り高くない温度では ① が主な原因である。干渉非弾性散乱の正確な計算は困難であり、まだ十分におこなわれていないが、干渉散乱は zero-および one-phonon process について最も著しく  $S(\alpha, \beta)$  は  $\alpha$  に対して廻折型のパターンを示す。multi-phonon process では干渉効果は小さく、したがって大きい  $\alpha$  では干渉効果は無視できる。anharmonicity も主に one-phonon process を perturb し、small  $\alpha$  で影響が現われると考えられるが、多結晶についてその効果は未だ計算されていない。その他、small  $\alpha$  で効果をもつものは、測定の際の試料による多重散乱で非常に小さい  $\alpha$  で測定値の  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  が著しく大きくなるのは多重散乱による場合が多い。

また、分子結晶等では結晶内で分子回転が起ることがあり、この運動は、結晶の振動数分布では表現できず、今までの議論はかなりの変更が必要とされる。

上述の議論は、cubic Bravais lattice についてのものであるが、一般の結晶では (2) 式の  $m_{vv}(t)$  は変位の polarization vector を含んでいるので、振動数分布だけで  $m_{vv}(t)$  を表現することはできない。van Hove-Placzek は、この場合にも one-phonon process の測定値から、振動数分布の critical frequencies を決定できることを示した。critical frequency とは

$$|\text{grad } \vec{q} \omega_2(\vec{q})| = 0$$

となる  $\vec{q}$  に対する  $\omega_2(\vec{q})$  値をいう。したがって、incoherent scattering の測定から、格子力学についての情報を得ることができる。通常、中性子散乱の解析のさい、Be 等の結晶に対しても“等方結晶近似”を仮定して cubic Bravais lattice に対するのと同型に表現することが多い。この場合、振動数分布  $\rho(\omega)$  は、normal mode density としての  $\rho(\omega)$  ではなく、中性子非干渉近似散乱を表現するための“一般化された振動数分布”である。Be について、後に計算結果の検討の項で議論する。

グラファイトは、層状結晶で、layer 間の結合が、layer 内原子間力に比べ  $10^{-2}$  程度小さいので 2次元結晶的な特徴をもっている。この場合等方結晶近似は成立たないが、Parks は Yoshimori Kitano の原子間力模型を使って、良い近似で、振動数分布のみで  $m_{vv}(t)$  を表現できることを示した。すなわち

$$\begin{aligned} \vec{\kappa} m_{vv}(t) \vec{\kappa} &\approx \frac{\hbar \kappa^2}{2M} \int_0^\infty \frac{\rho(\omega, l)}{\omega} [(n(\omega)+1)e^{i\omega t} + n(\omega)e^{-i\omega t}] d\omega \\ &\equiv \frac{\hbar \kappa^2}{2M} \gamma(t, l) \end{aligned} \quad (9)$$

ただし、

$$\rho(\omega, l) \equiv l^2 \rho_\perp(\omega) + (1-l^2) \rho_\parallel(\omega) \quad (10)$$

ここで、 $\rho_\perp(\omega)$ 、 $\rho_\parallel(\omega)$  はそれぞれ layer 内振動 (in-plane) および layer に垂直な振動 (out-of-plane) についての振動数分布である。l は  $\vec{\kappa}$  と結晶 c 軸とのなす角の cosine で、多結晶については、単結晶についての散乱法則を l について積分して得られる。(9)、(10) の l 依存性の故にグラファイトは非等方結晶であると呼ばれる。

(9)を導くさい、グラファイトの layer 間の shear に対する復原力 (layer 間の中心力の約 1/10) を無視している。また polarization vector の評価に際し、layer 間 coupling が小さいことおよび結晶の対称性が用いられている。 $\rho_\perp(\omega)$ 、 $\rho_\parallel(\omega)$  は Yoshimori-Kitano によって Houston 近似で計算され比熱データと比較され良い一致を得ている。

グラファイトの  $\rho(\omega)$  の特徴は、第 1 に、最大振動数が大きいこと ( $\hbar \omega_{\parallel \max} \approx 0.22 \text{ eV}$ ,  $\hbar \omega_{\perp \max} \approx 0.14 \text{ eV}$ ) で、したがって、低エネルギー中性子散乱 ( $E_0 \leq 1 \text{ eV}$ ) では高振動数の phonon は高々数ヶしか励起されないため、この部分は常に phonon 展開の方法で計算する必要がある。第 2 に、層状結晶の特徴として、低い  $\omega$  で  $\rho(\omega) \propto \omega$  となるので、Debye-Waller factor が発散する。実際には layer 間の弱い shearing force が  $\hbar \omega / k_B \leq 15^\circ \text{ K}$  で利いて来て  $\rho(\omega) \propto \omega^2$  となるが、それでもなお Debye-Waller factor は非常に大きくなり低振動数の phonon は常に非常に多数励起されることになり、phonon 展開の方法が使えなくなる。この第 1 と第 2 の面の矛盾を避けるため Parks は  $\rho(\omega)$  を適当な cut-off frequency  $\omega_c$  で低振動数部分  $\rho^{(1)}(\omega, l)$  と高振動数部分  $\rho^{(2)}(\omega, l)$  に分け、 $\omega \leq \omega_c$  に対しては  $\rho(\omega) \propto \omega^2$  の形に modify して Debye-Waller factor の発散を防いでいる。この modification は、 $\omega_c \ll \omega_{\max}$ ,  $\omega_c \ll T/\hbar$ ,  $|\text{energ transfer}| \gg \hbar \omega_c$  ならば妥当である。実際の計算では  $\omega_c \approx 55^\circ \text{ K}$  ととっている。 $\omega \leq \omega_c$  からの実際の結晶での寄与は、one-phonon cross section に鋭い quasi-elastic peak を与える事になるが、この部分は弾性散乱として近似的に扱うことができる。UNCLE コードでは、この部分の計算はおこなわれていない。

上記の分割により、(9) 式の  $\gamma(t, l)$  は

$$\gamma(t, l) = \gamma^{(1)}(t, l) + \gamma^{(2)}(t, l) \quad (11)$$

と表わされ、これに対応して、散乱法則は

$$S(\kappa, \omega; l) = \int_{-\infty}^{\infty} S^{(1)}(\kappa, \omega - \omega'; l) \cdot S^{(2)}(\kappa, \omega'; l) d\omega' \quad (12)$$

と convolution の形に表わされる。UNCLE では、 $S^{(2)}(\kappa, \omega, l)$  は常に phonon 展開で計算する。 $S^{(1)}(\kappa, \omega, l)$  は、Debye-Waller factor  $2W^{(1)} \equiv \frac{\hbar \kappa^2}{2M} \gamma^{(1)}(0, l)$  の大きさによって判定し cubic Bravais lattice におけると同様に、 $2W^{(1)} \leq 3$  ならば phonon 展開、 $2W^{(1)} \geq 3$  ならば short time expansion の方法で計算する。この扱いにより、前述の計算上の困難が著しく改良されている。

### 4. 3 散乱法則の計算結果と検討

#### (1) グラファイト

振動数分布 Fig. 4. 1~4. 4

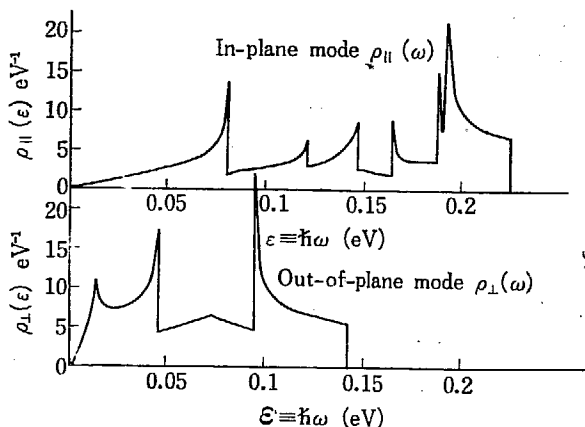


Fig. 4. 1 Erequency distribution of graphite YOSHIMORI-KITANO theory

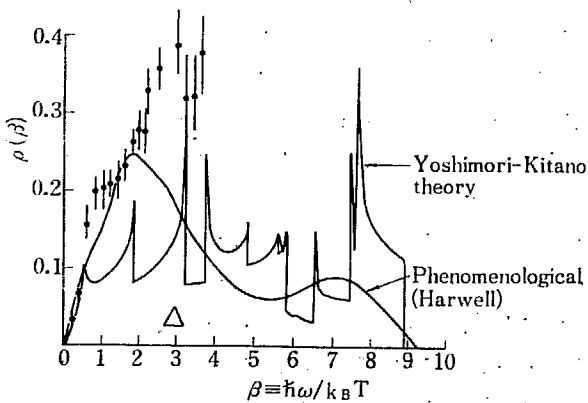


Fig. 4. 2 Frequency distribution of graphite at 20°C

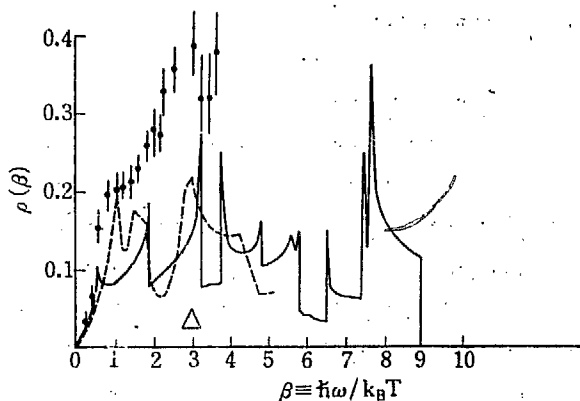
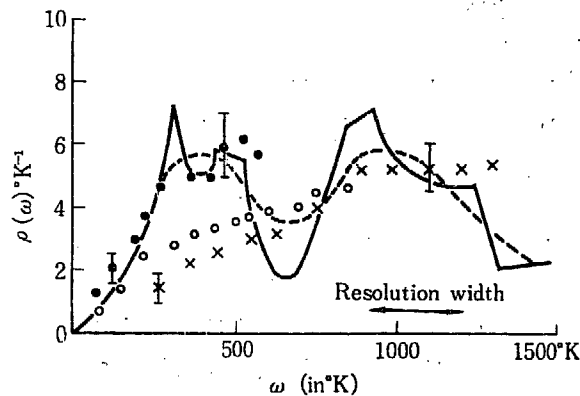


Fig. 4. 3 Frequency distribution of graphite at 20°C



Measured by EGELSTAFF and COCKING

- : 24°C
- : Average of data at 336°C & 425°C
- × : 610°C

— : BALDOCK theory  
 ..... : BALDOCK theory modified by resolution

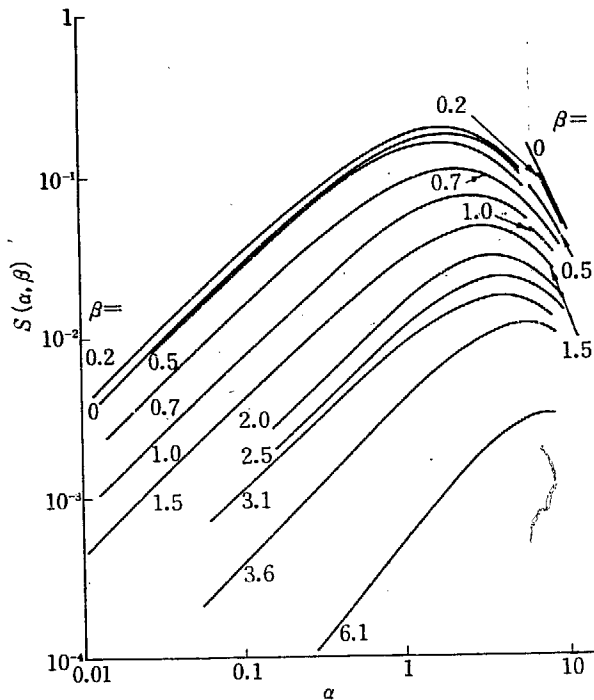
Fig. 4. 4 Frequency distribution of graphite (From EGELSTAFF-COCKING)

#### 散乱法則 Fig. 4. 5~4. 10

##### 振動数分布についての議論

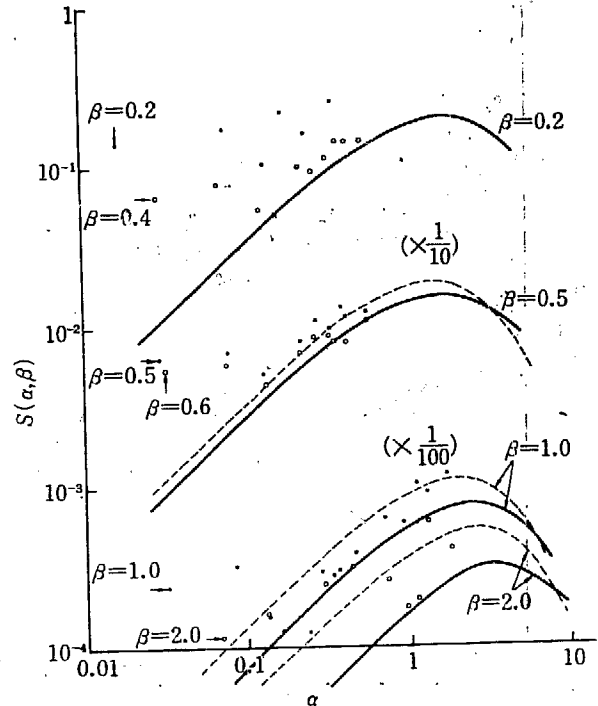
UNCLE による計算では YOSHIMORI-KITANO (以下 Y-K と略す) スペクトル<sup>(1)</sup> が入力として用いられている。Y-K スペクトルは BORN-VON KÁRMÁN 理論で原子的立場から計算されたものであるが、Y-K は HOUSTON の近似方法で  $\rho(\omega)$  を計算したので、spurious なピークが高振動数部分に現われていると考えられる。Y-K スペクトルの詳細については、中原氏の報告を参照。

ES コードでは Harwell のスペクトルを入力している。このスペクトルは HAYWOOD-THORSON<sup>(2)</sup> の測定



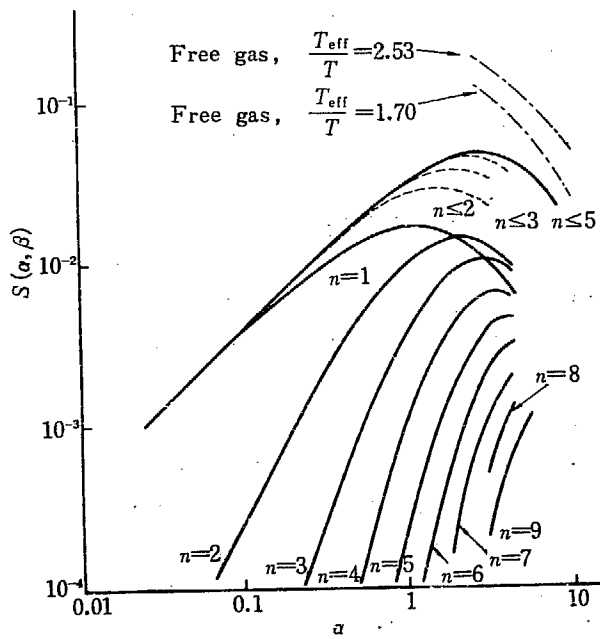
— : Calculated by UNCLE code, using YOSHIMORI-KITANO phonon spectrum

Fig. 4.5 Scattering law of room temperature graphite



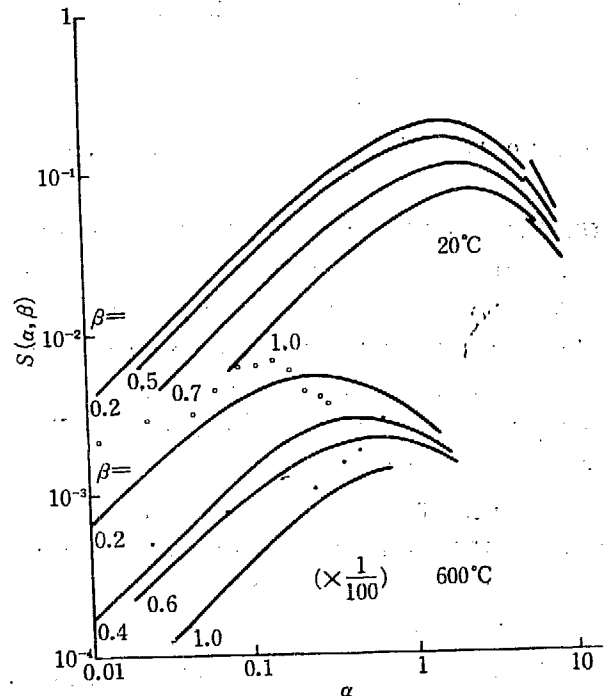
• • : EGALSTAFF AERE-R 3931  
 — : UNCLE code (Y-K spectrum)  
 ..... : ES code (Harwell spectrum)

Fig. 4.7 Scattering law for graphite at room temperature: comparison of theory with experiment



Calculated by UNCLE code, using YOSHIMORI-KITANO phonon spectrum  
 $(T_{eff})_V / T = 1.70$   
 $(T_{eff})_{AV} / T = 2.53$

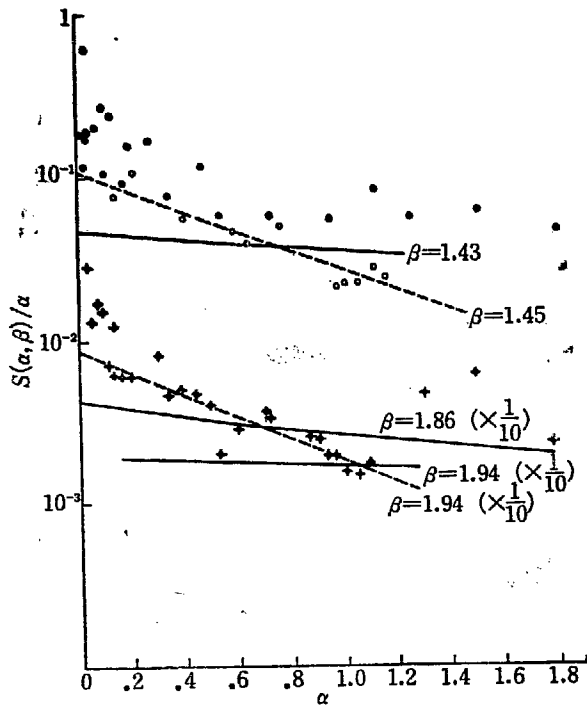
Fig. 4.6 Multi-phonon contribution to the scattering law for graphite, 20°C,  $\beta = 1.5$



— : Calculated by UNCLE code, using YOSHIMORI-KITANO phonon spectrum  
 ○ : measured,  $\beta = 0.2, 600^\circ\text{C}$   
 □ : "  $\beta = 1.0, 600^\circ\text{C}$   
 (EGELSTAFF-COCKING)

Fig. 4.8 Scattering law of 20°C and 600°C graphite





— : Calculated by UNCLE using YOSHIMORI-KITANO phonon spectrum  
 • : EGELSTAFF-COCKIG  $\beta=1.5$   
 ★ : EGELSTAFF-COCKIG  $\beta=2.0 (\times \frac{1}{10})$   
 ◦ : HAYWOOD-THORSON  $\beta=1.45$   
 ☆ : HAYWOOD-THORSON  $\beta=1.94 (\times \frac{1}{10})$   
 ..... : Curve drawn by HAYWOOD-THORSON to obtain  $\lim_{\alpha \rightarrow 0} (S/\alpha)$

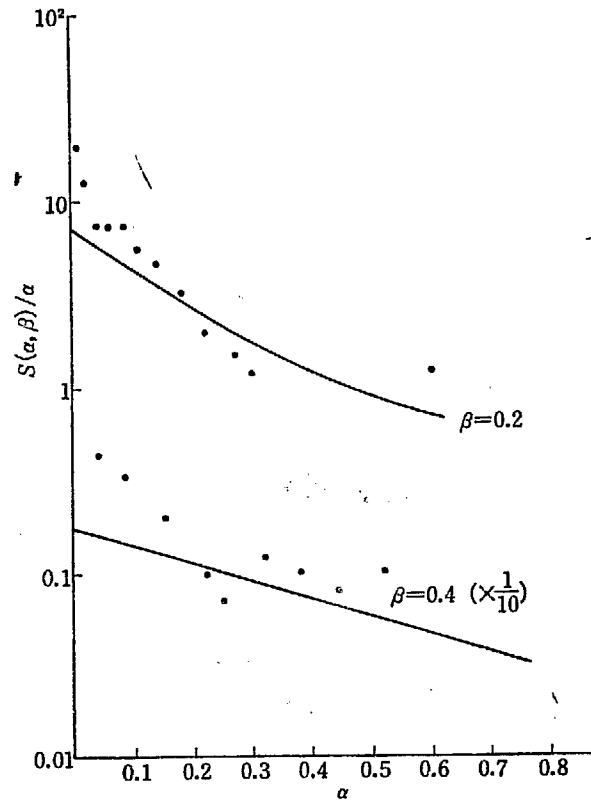
Fig. 4.9  $\log \frac{S(\alpha, \beta)}{\alpha}$  versus  $\alpha$  for 20°C graphite

値に基づいて作られているようであるが詳細は不明である。BALDOCK<sup>(3)</sup> のスペクトルは BORN-VON KÁRMÁN 理論に基づいているが、グラファイト層間の原子間中心力が Y-K に比べかなり大きい値が採用されておりそのため、1st critical frequency が Fig. 4.3 に見るよう高過ぎるようである。Fig. 4.1~4.4 より次の諸点が議論の対象となるであろう。

① HAYWOOD-THORSON と EGELSTAFF-COCKING<sup>(4)</sup> (それぞれ H-T, E-C と略す) の測定値間にかなりの不一致がある。

E-C では resolution が悪く、H-T はその点改善されており、現在 H-T のデータの方が信頼されているようであるが、後に議論するように、H-T でも  $(S(\alpha, \beta)/\alpha)_{\alpha \rightarrow 0}$  の手続きが本当に正しくおこなわれているかどうか疑問の余地がある。

② E-C の測定値では温度が上がるとスペクトルが著しく平坦になっている。



• : Experiment (AERE-R-3931, 1962, Egelstaff; "compilation of early scattering law data")  
 — : Calculation (UNCLE code using YOSHIMORI-KITANO's phonon spectra,  $T=0.0758 \text{ eV}$ )

Fig. 4.10  $\log \frac{S(\alpha, \beta)}{\alpha}$  versus  $\alpha$  for 600°C graphite

実際にそうなのかどうか疑問で、例えばグラファイトの Out-of-plane mode は高温では非常に活発に励起されるので、 $(S/\alpha)_{\alpha \rightarrow 0}$  をおこなう時 multiphonon process の補正を正しくおこなっているかが問題になると考えられる。

③ H-T の測定値と Y-K の理論値の critical frequency は良く一致しているように見える。

これは Y-K の原子間力の大きさが妥当にえらばれている事を示している。しかし、 $\beta \sim 3$  で H-T 値は Y-K 値よりも振動数密度が factor 2 以上大きい。これは現在の所説明困難である。

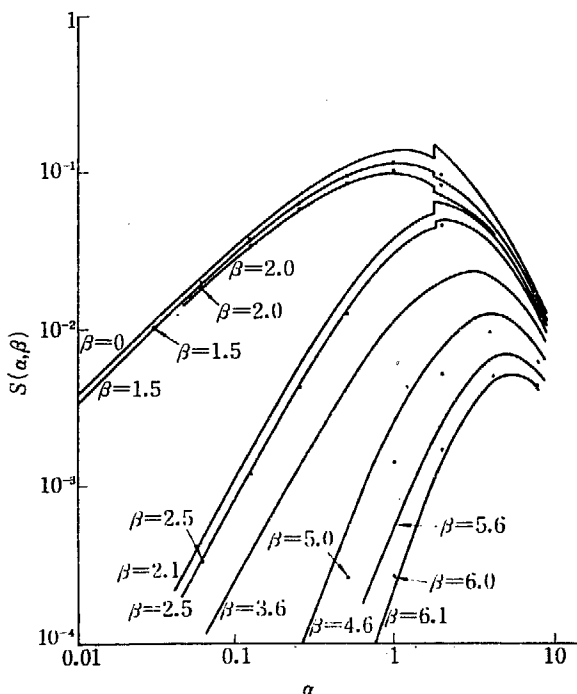
散乱法則についての議論

散乱法則の  $S(\alpha, \beta)$  vs.  $\alpha$  の曲線群で、Fig. 4.5 に見るように jump が現われるのは、その  $\alpha$  値以上の  $\alpha$  に対して short collision time 法が使われ、以下の  $\alpha$  に対して phonon 展開が使われるという計算方法

の変更がその  $\alpha$  値を境としておこなわれるためである。  $\beta=0$  に対して特に jump が大きいのは、phonon 展開法では zero-phonon process ( $\propto \delta(\beta)$ ) が除かれているが、short time 法ではそれが加わっているからである。等方結晶を扱う時にもこの jump が現われるが、その場合 jump が十分小さくなければ short time 法の良い近似領域に入っているとはいえない、Fig. 4. 11 に Debye 結晶についての散乱法則計算例を示すが、この例では、 $2W \geq \bar{N} \approx 4$  or  $5$  が criterion になるであろう。グラファイトでは UNCLE コードでは高振動数部分は常に phonon 展開で扱い、低振動数部分だけをその Debye-Waller factor の大きさによって phonon 展開あるいは short time 展開の方法で計算し、高振動数部分による散乱法則と低振動数部分による散乱法則の convolution を作る事により全体の振動数スペクトルによる散乱法則を求めている。そのさい、低振動数部分が short time 展開で扱われる時には、高振動数部分の zero-phonon process を計算に含めているが、低振動数部分が phonon 展開で扱われる時には、高振動数部分の zero-phonon process は計算から除かれている。所で、グラファイトの高振動数部分のスペクトルはかなり硬いので、一般に数 phonons

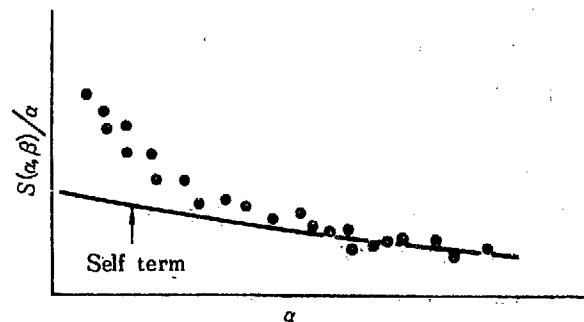
しか励起されず、したがって zero-phonon process がかなりの割合を占めている。したがって、散乱法則の  $\beta=0$  の曲線の jump は等方結晶の場合に比べてずっと大きい。Fig. 4. 5 の  $S(\alpha, \beta)$  群の中、 $\beta=1.5$  の場合、各 phonon process の寄与の程度を Fig. 4. 6 に示す。Fig. 4. 6 で判るように、 $\alpha \approx 5$  では 6~7-phonon process まで考えれば十分である。 $\alpha \approx 8 \sim 9$  では、約 10-phonons が励起されるので short time 展開の近似が良い近似になる。Fig. 4. 5~4. 6 の計算は  $\bar{N}=3.0$  として計算しているが、 $\bar{N}=5 \sim 6$  とえらぶ方が良い。

Fig. 4. 7 は 20°C グラファイトの散乱法則の計算値と測定値と比較したものである。測定値は EGELSTAFF-COCKING の値であるが、small  $\alpha$  側では計算値より著しく大きく、また、 $\alpha$  について廻折型のパターンを示している。これは干渉散乱を示していると考えられる。Large  $\alpha$  では干渉効果は小さくなり、非干渉近似に近づくことが理論的には予想されるが、E-C の測定範囲の  $\alpha$  では未だ干渉効果が強く残っており、incoherent 近似理論と測定値とを比較して振動数スペクトルの優劣をはっきりと議論することができない。Fig. 4. 7 で見ると、Harwell spectrum を使った結果は測定値の略中央を縫っており、Y-K スペクトルより優っているように見えるが、必ずしもそうではない。というのは、後 Be について議論するように、干渉非弾性散乱は必ずしも非干渉近似値 (self term) を中心としてばらつくとは限らず、下図のようになることがあるからである。



$\theta_D/T = 2.0$      $2W = 1.6585\alpha$   
 $2W \geq 3.0$  ( $\alpha \geq 1.809$ ) で short time expansion method  
 — : Calculated by UNCLE  
 • : From McLATCHIES table

Fig. 4.11 Scattering law of Debye crystal



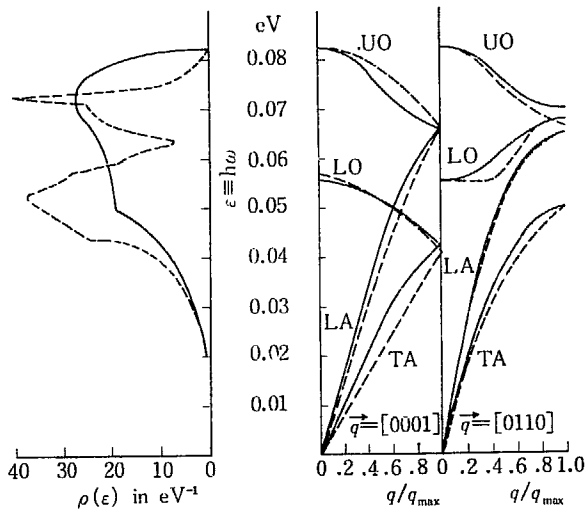
以上のことから、振動数スペクトルを中性子散乱データから得るためには、干渉非弾性散乱の或る程度信頼できる評価が必要であることが結論される。実験的には、もっと大きい  $\alpha$  の領域まで散乱法則が測定されることが望ましい。

Fig. 4. 9, 4. 10 は  $S(\alpha, \beta)/\alpha$  を  $\alpha$  についてプロットしたもので、E-C と H-T の測定値間の不一致が目立つ。H-T は、Fig. 4. 9 の破線から、振動数スペ

クトルを求めており、それが Fig. 4. 2, 4. 3 に示した H-T の測定値の  $\rho(\beta)$  であるが、上述の干渉散乱の問題があるので、これが正しい  $\rho(\beta)$  と考えるのは尚早と思える。

(2) Be

振動数分布 Fig. 4. 12



$\rho(\epsilon)$  : — : Expt., by SINCLAIR, using the extrapolation procedure on  $S(\alpha, \beta)$   
 ..... : Calculated by YOUNG and KOPPEL  
 $\omega(\vec{q})$  : — : Expt., by SCHMUNK *et al.*  
 ..... : Calculated by SCHMUNK *et al.*

Fig. 4. 12 Frequency distribution and dispersion relations of beryllium

散乱法則 Fig. 4. 13~4. 15

振動数分布についての議論

Fig. 4. 12 の振動数分布  $\rho(\epsilon)$  の曲線で、実線は SINCLAIR<sup>(5)</sup> による測定値で、中性子散乱から  $(S/\alpha)\alpha \rightarrow 0$  の手続きで得られたもので、点線は YOUNG-KAPPEL<sup>(6)</sup> による root sampling 法での計算値である。計算は、SCHMUNK *et al.*<sup>(7)</sup> が分散関係に合わせて定めた BORN-VON KÁRMÁN force (5-th neighbor までの中心力 + electron gas effect) に基づいておこなわれている。

分散関係は  $\vec{q}=[0001]$  および  $[01\bar{1}0]$  の方向について SCHMUNK *et al.* が中性子散乱から決定し (実線), また、上述の BORN-VON KÁRMÁN force で fit した (点線)。Sinclair と Young-Koppel の振動数分布を比較すると、

① 両者の critical frequencies はかなり良く一致している。しかし、 $\omega \sim 0.05$  eV での形状と絶対値は大分異なっている。

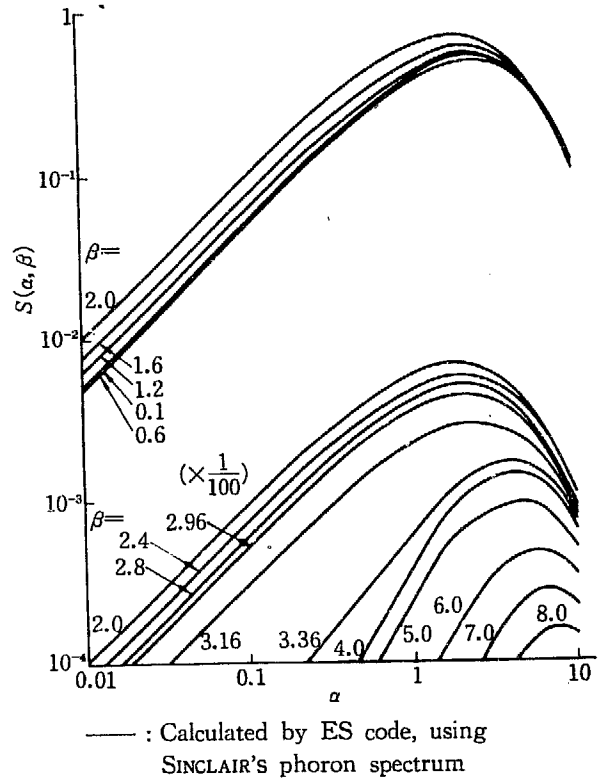


Fig. 4. 13 Scattering law for beryllium at 20°C

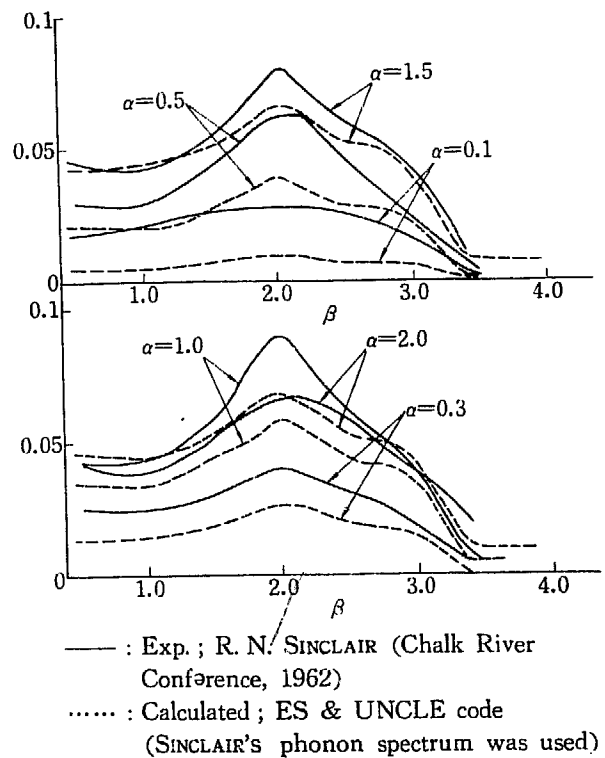


Fig. 4. 14 Scattering law for Be at 20°C

② Be は h. c. p. 結晶なので、非干渉近似散乱は normal mode density として振動数分布だけで厳密に表現することはできない。したがって Sinclair の  $\rho(\epsilon)$

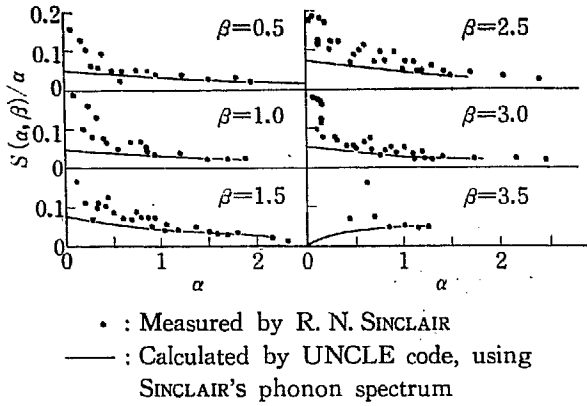


Fig. 4.15  $\frac{S(\alpha, \beta)}{\alpha}$  for beryllium at 20°C  
Comparison of theory with experiment

は、正しくは“一般化された振動数分布”であり、これは VAN-HOVE と PLACZEK<sup>(6)</sup> の議論によって critical frequency は正しくあたえる。critical frequency が、SINCLAIR と YOUNG-KOPPEL の両者で一致していることは SINCLAIR の extrapolation procedure  $(S/\alpha)_{\alpha \rightarrow 0}$  が正しくおこなわれていることを示していると考えて良いであろう。その他、実際の形状や絶対値で両者が一致すべき理由はない。

cubic Bravais lattice では incoherent scattering は結晶の振動数分布だけで書き表わされることが判っている。グラファイトでは PARKS が layer 間の相互作用が弱いことを使って、同様の形式に表現できることを示した。他の結晶では一般にそうならず、原子変位の polarization vector が陽かに散乱断面積の表式に入ってくる。したがって、この場合、結晶の dynamics が判っていても散乱断面積の計算は大変複雑になる。普通、特に非等方性が強い場合以外では cubic Bravais lattice と同様に見なす慣わしがあるが、Be の例によって、それが余り良くない事が判る。

散乱法則についての議論

Fig. 4.13 については特に取立てて言うことはない。

Fig. 4.14, 4.15 から、large  $\alpha$  で測定値と計算値が大きく一致すること、small  $\alpha$  では著しくずれることが判る。これらの点についてはグラファイトの項での議論がそのままあてはまる。Fig. 4.15 で判るように、干渉効果は必ずしも非干渉近似を中心としてばらつくのではない。

EGELSTAFF は、Bravais lattice について、分散関係を単純化して one-phonon coherent scattering を計算

し、次の表式を得た。

$$S^{(1) \text{ coh}}(\kappa, \omega) \approx \left(1 + \frac{1}{3} \frac{q^2}{\kappa^2}\right) S_S^{(1)}(\kappa, \omega), \quad \kappa \gg q_{\text{max}}$$

ただし、 $\omega(q) = \omega$

EGELSTAFF は  $\omega(q) \approx c_{AV} \cdot q$  とおき、 $c_{AV}$  として無理のない値を採用して Be の散乱法則の測定値と良く一致する結果を得た。

(3) BeO

振動数分布、散乱法則 Fig. 4.16

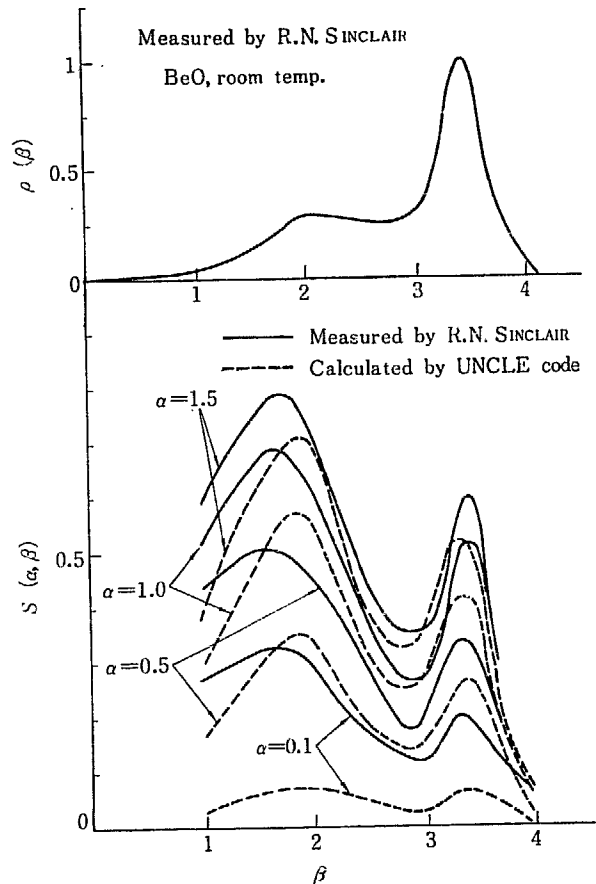


Fig. 4.16 Frequency distribution and scattering law for BeO at room temperature

議論

BeO では Be の場合よりも、なお“一般化された振動数分布”の物理的意味は希薄であり、散乱断面積のフーリエ変換としての意味しかないと考えられる。critical freq. についても議論は前述のままあてはまる。

$\rho(\beta)$  の導出方法 (SINCLAIR<sup>(5)</sup>) に対応して、散乱法則は

$$S_{\text{BeO}}(\alpha, \beta) = S_{\text{Be}}(\alpha, \beta) + \frac{\sigma_0}{\sigma_{\text{Be}}} S_{\text{Be}}\left(\frac{M_{\text{Be}}}{M_0} \alpha, \beta\right)$$

$$\alpha \equiv h^2 \kappa^2 / 2M_{Be} T$$

$\sigma_0, \sigma_B \equiv$  oxygen, Be の bound atom cross section  
として計算している

#### 参考文献

- (1) YOSHIMORI-KITANO ; *J. Phys. Soc. Japan*,  
11, 352 (1956)
- (2) HAYWOOD-THORSON ; IAEA, Chalk River  
Vol. II, p. 111 (1963)
- (3) BALDOCK ; *Phil. Mag.*, 8, 789 (1956)
- (4) EGELSTAFF-COCKING ; IAEA. Vienna. p. 569  
(1961), EGELSTAFF ; AERE-R 3931 (1962)
- (5) SINCLAIR ; IAEA. Chalk River. Vol. II.  
p. 199 (1963)
- (6) YOUNG-KOPPEL ; *Phys. Rev.*, 134A, 1476  
(1964)
- (7) SCHMUNK, *et al.* ; *Phys. Rev.*, 128, 562  
(1962)
- (8) VAN HOVE-PLACZEK ; *Phys. Rev.*, 93, 1207  
(1954)
- (9) D. E. PARKS ; GA-2125 (1961)