

中性子コンプトン散乱によって誘起される 分子系のサブフェムト秒ダイナミクス

3P164

東北大院・理 田名部 誠一・河野 裕彦・藤村 勇一

<序>

分子内の原子核は電子と比べ非常に重いので、サブフェムト秒の時間領域では動かないものとされてきた。ところが、サブフェムト秒で分子内の原子核が動く事例が報告されている。Chatzidimitriou-Dreismann らによって行われた、水素原子を含む凝縮体に熱外中性子と呼ばれる高エネルギー（数 eV ~ 数十 eV 程度）の中性子を衝突させる実験である[1]。例えば、衝突によって水素原子に 40eV のエネルギーが移行した場合、1(fs)で約 0.09(nm)動く。

Chatzidimitriou-Dreismann らの実験によれば、分子内の水素原子に対する中性子の散乱断面積の実験値が従来からの理論値より 2 割程度小さい。分子内の水素原子間に短寿命の量子もつれがあると主張している。そこで、行われてきた熱外中性子衝突実験を理解した上で、化学結合を通して生成すると考えられる原子核間の相関がどのように散乱断面積に影響を与えているかを調べる。

< 1 中性子コンプトン散乱とは >

パルス中性子源から生成された中性子を、モデレータを通して適切なエネルギー領域（数十 eV 程度）に下げたものを入射中性子としてサンプルに衝突させる。散乱中性子のエネルギーと散乱角を決めて、中性子の飛行時間を測定する。飛行時間は、モデレータから入射してからサンプルを通り、検出器で散乱中性子を検出するまでの時間である。

実験データは、飛行時間に対する中性子強度（飛行時間スペクトル）である。飛行時間スペクトルから、衝突した原子核の核種、入射中性子のエネルギー、衝突した原子核に与えるエネルギー移行が求められる。飛行時間スペクトルから、その原子核の散乱断面積も求められる。

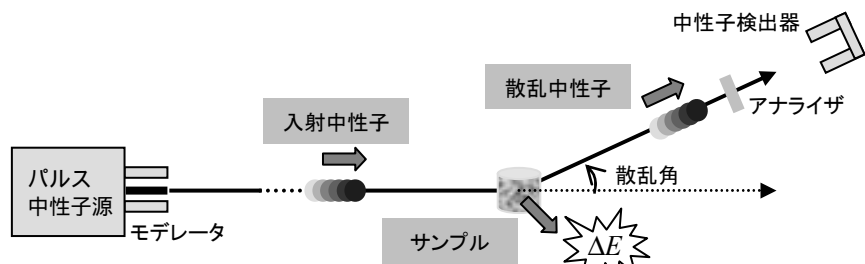


図 1 中性子コンプトン散乱実験装置の概略

< 2 従来の理論による散乱断面積 >

中性子と原子核との散乱には 2 種類ある。他の位置にある同種原子核の散乱波の位相によって影響を強く受けるコヒーレント散乱と、他の原子核の影響を受けないインコヒーレント散乱である。水素原子 ^1H のコヒーレント散乱断面積が $1.76 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]$ で、インコヒーレント散乱断面積が $80.27 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]$ である。低エネルギー極限の散乱断面積はコヒーレント散乱断面積とインコヒーレント散乱断面積の和である。Chatzidimitriou-Dreismann らの実験では、散乱断面積の比を取った。例えばポリスチレン[2]では、

$$\frac{N_{\text{H}} \sigma_{\text{H}}}{N_{\text{C}} \sigma_{\text{C}}} = \frac{82.02 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]}{5.551 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]} \sim 14.7 \quad (1)$$

である。実験値は、この値の 80% 前後である。

< 3 入射エネルギーを考慮した散乱断面積 >

しかし、式(1)での散乱断面積は中性子の入射エネルギーが低エネルギー極限のものである。数 eV ~ 数十 eV 程度での原子核 A の散乱断面積 σ_A を式(2)に示す。 σ_A^0 は低エネルギー極限の散乱断面積、 M_A は原子核 A の質量、 m_n は中性子の質量である。

$$\sigma_A = \sigma_A^0 \left(\frac{M_A}{M_A + m_n} \right)^2 \quad (2)$$

式(2)の散乱断面積を用いて比を求めると

$$\frac{N_H \sigma_H}{N_C \sigma_C} = \frac{\sigma_H^0}{\sigma_C^0} \left(\frac{M_H / (M_H + m_n)}{M_C / (M_C + m_n)} \right)^2 \sim 14.7 \times (13/24)^2 = 14.7 \times 0.2934 \quad (3)$$

であり、低エネルギー極限の約 30%である。実験結果(80%)と比較すると過小評価されている。

< 4 波束計算による理論モデル >

散乱断面積の比、(1)および(3)はいずれも正確な表現ではない。原子核の散乱断面積から求めたものであるため、分子内の化学結合を全く考慮していない。逆に言えば、散乱断面積は化学結合が存在することによって影響を受けると考えられる。そのため、分子内の自由度を考慮した散乱断面積を求めることを試みる。

分子内の自由度を考慮した散乱断面積を求めるため、まず 2 種類の散乱関数、コヒーレント散乱関数 $S_{\text{coh}}(\Delta\mathbf{k}, \omega)$ 、インコヒーレント散乱関数 $S_{\text{inc}}(\Delta\mathbf{k}, \omega)$ を計算する[3]。

$$S_{\text{coh}}(\Delta\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{j=1}^N \sum_{j'=1}^N \frac{1}{N} \int_{-\infty}^{\infty} \langle j', j(t) \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (4)$$

$$S_{\text{inc}}(\Delta\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{j=1}^N \frac{1}{N} \int_{-\infty}^{\infty} \langle j, j(t) \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (5)$$

$$\langle j', j(t) \rangle = \langle \Psi | \exp(-i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_{j'}(0)) \exp(i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j(t)) | \Psi \rangle \quad (6)$$

散乱関数は相関関数 $\langle j', j(t) \rangle$ のフーリエ変換の形になっている。ここで、 j は N 粒子系サンプルに含まれる原子核のインデックスで、 $\hbar\Delta\mathbf{k}$ は中性子からの特定の原子核への運動量移行、 $\hbar\omega$ は衝突前後の中性子のエネルギー差である。

はじめに、 H_2^+ の断熱ポテンシャルをモデルとして、相関関数と散乱関数を求めた。ただし、ここでは 1 次元で考え、原子核間の振動運動および解離だけに着目した。まず、核波束の時間発展を求めた(図 2)。衝突後 1(fs) で核間距離が Bohr 半径のオーダーで変化しているのが確認できる。

その結果をもとにして相関関数(式(6))を求め(図 3)、式(6)を式(4),(5)に代入して散乱関数を求めた(図 4)[4]。散乱関数に低エネルギー極限の散乱断面積をかけると、分子内の自由度を考慮した散乱断面積を求めることができる。発表では、化学結合によって生成される原子核間の相関がどのように散乱断面積に影響を与えているかを考察する。

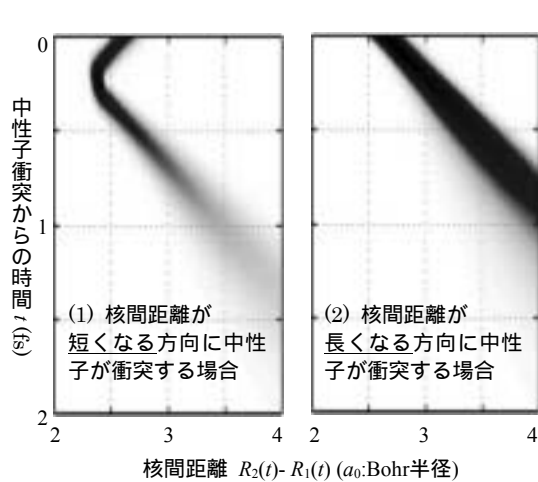


図2 波束の時間発展の例 $\Delta E=40(\text{eV})$

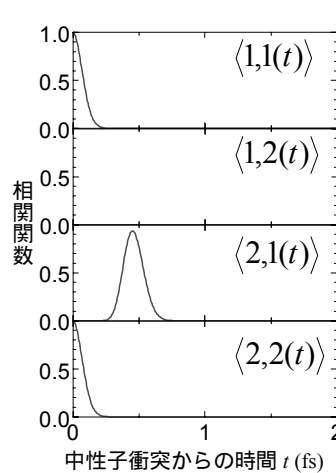


図3 相関関数の例

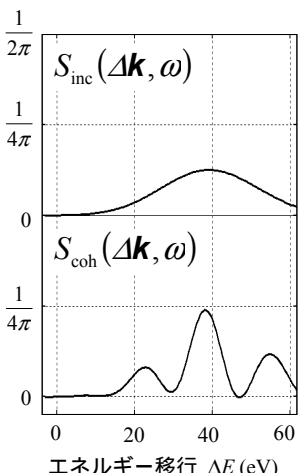


図4 散乱関数の例

< 参考文献 >

- [1] C. A. Chatzidimitriou-Dreismann *et al.* Phys. Rev. Lett. **79**, 15 (1997). など
- [2] C. A. Chatzidimitriou-Dreismann *et al.* J. Chem. Phys., **113**, 7 (2000).
- [3] G. L. Squires, Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering, Dover, Mineola, (1996).
- [4] D. Ambrosek *et al.* Chem. Phys. **302**, 229 (2004).