

中性子散乱によって誘起される分子系サブ フェムト秒ダイナミクスのモデルの構築

1P073

東北大院・理 ○田名部 誠一・河野 裕彦・藤村 勇一

【序】

近年のパルス中性子源の開発により、数十 eV 程度のエネルギーを持つ入射中性子パルスが得られるようになった。この入射エネルギーは化学結合と同程度以上であり、分子過程としての中性子散乱を考えることは、非常に興味深い。中性子は原子核程度の質量を持ち、核力によって原子核と相互作用する。一方、中性子は電子等との相互作用が無視でき、高い透過性を持つ。そのため、電子や光子の散乱とは異なる観測手段である。

本研究では、0~100eV 程度の入射中性子エネルギー領域を考える。入射エネルギー E について低エネルギー極限では、標的分子内の分子振動は起こらない。一方、解離エネルギー D_0 (数 eV 程度) よりも十分エネルギーが高い領域では、標的分子内の原子核は自由粒子として振る舞う。近年、数十 eV 程度のエネルギー領域での中性子散乱実験により、サブフェムト秒の時間領域で分子内の原子核が動くことを示唆する事例が報告されている。ここでは、原子核の運動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 Chatzidimitriou-Dreismann らの実験の紹介】

Chatzidimitriou-Dreismann らによって行われた実験は、水素原子を含む凝縮体サンプル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]。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とそれ以外の原子核に対する散乱断面積との比の実験値が低エネルギー極限の理論値より 2 割前後小さくなる。そのことから、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。

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。散乱中性子の持つエネルギーと散乱角を実験装置によって決め、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) として得られる。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 ΔE が求められる。飛行時間スペクトルの各原子核に対応するピークの面積の比をとることにより、散乱断面積比 R_{exp} を求められる。

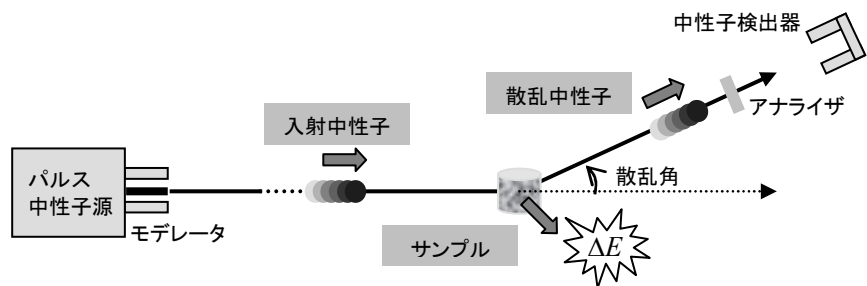


図 1 中性子コンプトン散乱実験装置の概略

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) として得られる。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 ΔE が求められる。飛行時間スペクトルの各原子核に対応するピークの面積の比をとることにより、散乱断面積比 R_{exp} を求められる。

Chatzidimitriou-Dreismann らの実験では、結果を低エネルギーにおける散乱断面積の比 R_{LE} と比較した。例えばポリスチレン[2]では、

$$R_{\text{LE}} = \frac{N_{\text{H}} \sigma_{\text{H}}^0}{N_{\text{C}} \sigma_{\text{C}}^0} = \frac{\sigma_{\text{H}}^0}{\sigma_{\text{C}}^0} = \frac{82.02 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]}{5.551 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]} \sim 14.7 \quad (1)$$

である。散乱断面積比の実験値 R_{exp} は、 R_{LE} の 80%前後である。

【2 理論的考察】

2-1 入射中性子エネルギーが高い場合

しかし、式(1)での散乱断面積比 R_{LE} は中性子の入射エネルギー E が低エネルギー極限 ($E \rightarrow 0$) の

ものである。一方、入射エネルギー E が数十 eV 程度以上といった十分に高いエネルギー領域における、ある原子核 A の散乱断面積 σ_A^{HE} 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。

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

式(2)の高エネルギー極限の散乱断面積を用いて比 R_{HE} を求めると

$$R_{\text{HE}} = \frac{N_{\text{H}} \sigma_{\text{H}}^{\text{HE}}}{N_{\text{C}} \sigma_{\text{C}}^{\text{HE}}} = \frac{\sigma_{\text{H}}^{\text{HE}}}{\sigma_{\text{C}}^{\text{HE}}} = \frac{\sigma_{\text{H}}^0}{\sigma_{\text{C}}^0} \left(\frac{M_{\text{H}}/(M_{\text{H}} + m_n)}{M_{\text{C}}/(M_{\text{C}} + m_n)} \right)^2 \sim 14.7 \times (13/24)^2 = 14.7 \times 0.2934 \quad (3)$$

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

2-2 入射中性子エネルギーが中間領域の場合

散乱断面積比、式(1)の R_{LE} および式(3)の R_{HE} 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、入射エネルギーが数 eV~数十 eV の中間領域に対応した、分子内の振動自由度を考慮した散乱断面積を求める。

H_2^+ の断熱ポテンシャルを分子モデルとした。ここでは 1 次元、つまり原子核間の振動運動および解離を考える。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た。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 (図 3)。その結果をもとにして相関関数式(4)を求めた。

$$\langle j', j(t) \rangle = \langle \Psi | \exp(-i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j(0)) \exp(i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j(t)) | \Psi \rangle \quad (4)$$

ここで、 j は原子核の番号 (ここでは 1 と 2)、 $\hbar\Delta\mathbf{k}$ は中性子が衝突した原子核への運動量移行である。部分微分散乱断面積式(5)は相関関数を用いて近似的に

$$\left(\frac{d^2\sigma_{\text{H}}}{d\Omega dE'} \right) \approx \frac{1}{4\pi} \frac{\sigma_{\text{H}}^0}{2\pi\hbar} \sqrt{\frac{E'}{E}} \sum_{j=1}^2 \int_0^{\infty} \langle j, j(t) \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (5)$$

と表わせる [3]。 $\hbar\omega$ は衝突前後の中性子のエネルギー差 $\hbar\omega = \Delta E = E - E'$ である。(5) を中性子の散乱角と散乱エネルギー E' で積分をすると分子内の核の運動を考慮した散乱断面積を求めることができる [4]。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。

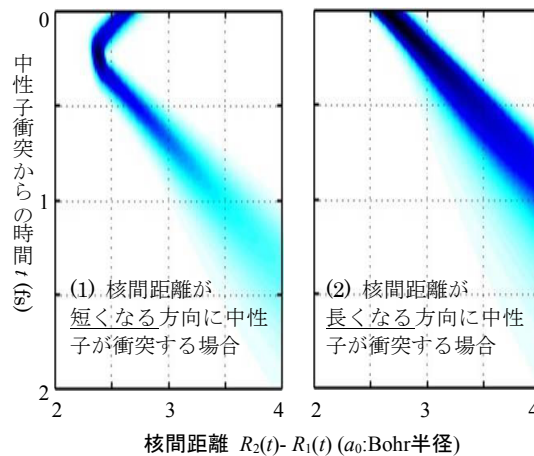


図 2 波束の時間発展の例 $\Delta E=40(\text{eV})$

【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).