

4. "The Chemical Binding Effects on the Resonance Line Shapes of Uranium-238 in a UO₂ Lattice,"
C.R.Adkins, P.J.Persiani, R.N.Hwang, J.J.Kaganove,
A N L (Wash.Conf.'66)

角谷浩享 (東工大)

静止核による中性子共鳴吸収(又は共鳴散乱)はよく知られた Breit-Wigner 型の断面積で表式されるが、原子核が実験室系で運動している場合にはこの断面積は変形を受ける。この現象は古典的に考えると、反応は原子核と中性子の相対速度で起り、実験室系での中性子の速度を決めただけではこの反応を起す速度が決まらないことを意味している。今、静止核に対する断面積 $\sigma(v)$ が既知であると、実験室系での実効断面積 $\sigma_{\text{eff}}(v)$ を重心系で起っている反応率に等しい反応率を実験室系で与えるように定義すると

$$|v_n| \sigma_{\text{eff}}(|v_n|) = \int \sigma(|v_r|) |v_r| N(v) dv$$

となる。ここで v_n , v は中性子及び共鳴核の実験室系での速度、 v_r は相対速度 ($=v_n - v$)、 $N(v)$ は共鳴核の速度の分布関数である。 $N(v)$ は共鳴核のおかれている物性的な状態によって異なり、

$\sigma_{\text{eff}}(v)$ に影響を与える。共鳴核が静止している場合は $N(v) = \delta(v)$ となり実効共鳴断面積は Breit-Wigner の断面積に一致する。共鳴核がガスの場合は、 $N(v)$ として Maxwell 分布をとり、実効断面積は Doppler Broadening を起して ψ 関数に帰着する。共鳴核が固体中に化学的に束縛されている場合は、 $N(v)$ は Maxwell 分布と異なり、従って $\sigma_{\text{eff}}(v)$ も ψ 関数とは違った関数形になることが予想できる。又逆に考えて、 $\sigma_{\text{eff}}(v)$ の測定から $N(v)$ に関する情報を得ることが可能となる。この共鳴断面積に対する固体効果は、中性子の共鳴とまったく同じ形式で γ 線の共鳴の場合にもメソバウアー効果として知られており、その一つの応用として物性研究の強力な手段となっている。中性子の場合共鳴の中が γ 線の共鳴の中と比較して広いために固体効果は γ 線の場合ほど強く現われないが、次の様な理由から研究を行なう必要があると考えられている。第1の理由は実験的に測定された実効断面積から Breit-Wigner のパラメーターを精度よく決定するためである。これは断面積の測定がしばしば固体の試量についてなされるためである。第2は原子炉への応用として、実効共鳴積分の値やその温度依存性等を精度よく計算するためで、従来この種の計算はすべてガスモデルで行なわれてきた。第3には物性研究の手段としての可能性を検討するためである。

この問題に対する量子力学的な表式は古く Lamb, Jr. によって与えられているが、最近熱中性子散乱の理論で用いられる散乱法則に関連させて立式されている。従って共鳴核の物性的な状態は結晶のフォノンの振動数分布を通して実効共鳴断面積に影響を与える。

この論文では酸化ウランが取りあげられて、実効共鳴断面積に対する固体効果が研究されている。酸化ウランは ^{238}U による強い共鳴の準位を持っているだけでなく、結晶の化学結合が強く固体効果が出やすいと考えられる。又最近 Dolling et al によって分散関係が測定され格子振動の振動数分布が得られている。

酸化ウラン (UO_2) の振動数分布

酸化ウランの振動数分布が Born-von Karman 流の方法で求められた。二つのモデルについて計算がなされている。F' と呼ばれるモデルは Second nearest neighbor のウラン及び Third nearest neighbor の酸素までを考慮して、5コの力の常数がとられた。力は中心力であるとしたが、U-O の nearest neighbor の力に関しては非中心力が考慮された。4コの力の常数が弾性常数から決まり、残りの1コは比熱の実験値を best fit するように決められた。H と呼ばれるモデルは6コの力の常数が考えられ、その内5コは F' と同一であり残りは Third nearest neighbor と Fourth nearest neighbor の酸素間の

力の常数である。酸化ウランはイオン性の結晶でありこれらのモデルで考えた比較的近くの原子間に働く弾性的な力の他に遠くのイオン間に働く Coulomb 力による相互作用を考える必要がある。この時は Born-von Karman 流の取り扱いでは不十分となり、例えば Shell model 等を用いた計算が必要となる。ここでは Dolling et al. の Shell model による振動数分布を比較のため用いた。これら三つの振動数分布は低振動数部分ではよく一致したが、高振動数部分の一致はよくなかった。

実効断面積

吸収及び散乱(ポテンシャル散乱及び共鳴とポテンシャル散乱の干渉を含む)の実効断面積が求められた。散乱断面積は AB_n 型の結晶に対して一般化した形で得られている。又散乱断面積は共鳴エネルギーが一般に高いこと、及び共鳴核の質量が重いことを考えて次の近似を行なった。一つは Incoherent 近似で Bragg 反射を与える干渉性の散乱断面積は無視された。他は Short collision time (SCT) 近似で時間に関する展開は二次までで打ち切られた。吸収の実効断面積は実質的に Lamb, Jr. のものと同一である。この様にして求められた断面積は複合核の life time に関する積分を含んでいる。多くの場合 Short compound nucleus life time (SCNL) 近似が成立し、複合核の life time に関する展開も二次までで打ち切ることが可能となる。この場合は実効断面積は格子振動の平均のエネルギー (T_{eff}) をもったガスマデルに帰着する。この近似は結晶の結合が弱い場合に精度がよくなる。酸化ウランの場合は、Debye 温度が $300^\circ\text{K} \sim 870^\circ\text{K}$ と高く SCNL 近似の精度はよくないと考えられる。SCNL 近似の場合は振動数分布は実効温度 (T_{eff}) の決定のために用いられるだけである。

結 果

酸化ウラン結晶中の ^{238}U の 6.67eV の実効断面積が 50°K の場合について、ガスマデル、SCNL 近似、結晶の場合について比較された。結晶の場合は吸収の際に核の受ける古典的な反跳のエネルギーがガスマデルの場合よりも常に小さく(すなわち Recoilless な吸収が起る確率がありこの結果共鳴エネルギー近くの断面積は Breit-Wigner 型に近づく)、このために実効断面積は非対称となる。

1500°K より高い温度で、 36.8eV 以上の共鳴準位について、SCNL 近似はガスマデルに実際上一致し、結晶の実効断面積に対するよい近似となっている。しかしこの温度でも低エネルギーの共鳴については結晶の効果が認められる。室温又は室温以下では結晶の断面積はエネルギーが

高くなるに従ってゆっくりに SCNL 近似に近づくが、663 eV の単位でもまだ二つの差を認めることができる。

共鳴散乱及び共鳴とポテンシャル散乱の干渉項による散乱断面積に対する固体効果も吸収の場合と同様であった。特に干渉項に対する固体効果のきき方は大きかった。この散乱断面積の変化はエネルギー的な自己遮蔽の変化を起し共鳴積分に影響を与える。NR I A 近似を用いた 6.67 eV に対する共鳴積分は (実効ポテンシャル散乱断面積が 17.52 b の場合) ,

$$\frac{R I (500^{\circ}K) - R I (300^{\circ}K)}{R I_{\text{gas}} (300^{\circ}K)} \times 100 \%$$

で表わしてガスモデルで 0.3092% , 結晶で 0.2534% , SCNL 近似で 0.2697% であった。又 190 eV の単位に対して ($\sigma_{p, \text{eff}} = 40 \text{ b}$ の場合) , ガスモデルで 0.9874% , 結晶で 0.7791% , SCNL 近似で 0.8264% であった。なお、振動数分布がいずれも H モデルの場合の結晶である。SCNL 近似と結晶の場合の差の主な原因は、共鳴とポテンシャル散乱の干渉項からきていることがたしかめられた。