

2014 年原子力学会春の年会 核データ部会・炉物理部会合同セッション  
「熱中性子散乱則データのこれまでとこれから」

(2) 熱中性子散乱則の表式と現状の断面積の問題点

名古屋大学 工学研究科

鬼柳 善明

[kiyanagi@phi.phys.nagoya-u.ac.jp](mailto:kiyanagi@phi.phys.nagoya-u.ac.jp)

1. はじめに

よく炉物理の本で出てくる中性子の減速は、玉突きのように弾性散乱によって減速していく過程である。これはポテンシャル散乱で、内部に運動の自由度などが無い場合にあってはまる。これが成り立つのは減速材温度より中性子エネルギーが大分大きい所で、水素では 0.5eV より上くらいで、断面積がほぼ一定になる領域に対応する。物理的には、下方散乱、即ちエネルギーを減少する散乱が支配的な領域となる。エネルギーが低くなると、減速材物質が運動しているため、その運動モードからエネルギーを得て中性子のエネルギーが増加する散乱（上方散乱）の寄与が増加してくる。この領域では散乱体のダイナミクス・構造が中性子散乱に効いてくるようになり、断面積の表式がとたんに難しくなる。また、中性子の散乱は低エネルギーでは干渉性散乱と非干渉性散乱の二つの顔を一つの元素に対して表してくることも現象を複雑にしている。従って、約 1eV 以下の中性子エネルギー領域では、断面積の評価を厳密にすることが必要となり、散乱則データの作成が容易ではないためあまり整備されていないのが実情である。

現在、JENDL に納められている熱中性子散乱則は、基本的には ENDF をベースにしたものであるが、その数はきわめて少なく、原子炉計算に関係するものとしては、軽水の H、重水の D、Be、BeO、グラファイト、ポリエチレン、ベンゼン、水素化ジルコニウムの H と Zr などである。その他は液体水素、固体メタンなどの極低温中性子減速材用である。軽水の断面積としては、Nelkin モデルが有名であるが、それは 1960 年に発表されたものである[1]。その他の原子炉関連物質の散乱則も、似たような時代に作られている。一方、極低温減速材は原子炉冷中性子源や最近の加速器中性子源の建設に際して必要だったこともあり、比較的最近作られており、我々も簡単なモデルを作成してスペクトル計算などをした。本格的なモデルは、日本では元京大教授の森嶋氏が先導して作成していた。また、海外では Dr. Granada などが作成している[2-4]。しかし、原子炉関係で最も重要な軽水の断面積ですら、ごく最近になって改善が行われている状態である[5-7]。なお、

ENDF-B/VIIには鉄、アルミなども納められている。

熱中性子領域の断面積については、水素のような非干渉性散乱を行うものは少なく、黒鉛やベリリウムのように干渉性散乱をする物質が多い。後で簡単に紹介するが干渉性散乱を行う物質の散乱断面積は、材料の結晶組織構造に依存する場合もあり、取り扱いは結構大変であることが最近分かってきた。

ここでは、中性子散乱断面積の基本的特徴を理解していただくための、散乱断面積の表式に関する説明と非干渉性散乱物質として代表的な水の断面積および干渉性物質として鉄の断面積が製法で変化することを例示して、熱中性子断面積の概要を説明するとともに、その問題点について述べる。

## 2. 中性子断面積の概要

中性子は先に述べたように、干渉性散乱と非干渉性散乱があること、熱中性子領域が丁度回折（干渉性散乱）がおきる領域になっていることが、全体を複雑にしている。さて、中性子の散乱断面積の表式を簡単に紹介する[8-12]。ここでは、式を用いて説明するが、言いたいことは、散乱断面積を求めるためには、時間依存で標的核の位置座標が必要なことと、中性子には干渉性散乱と非干渉性散乱の二つがあるということである。

散乱体の量子レベルの状態が  $\ell$  から  $\ell'$  へ遷移し、中性子の波数ベクトル  $\mathbf{k}$  が  $\mathbf{k}'$  へ、エネルギーが  $E$  から  $E'$  へ変化するときの微分散乱断面積は次の式で表される。

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\ell \rightarrow \ell'} = \frac{k'}{k} \left( \frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \mathbf{k}' \ell' | V | \mathbf{k} \ell \rangle \right|^2 \delta(E_\ell - E_{\ell'} + E - E').$$

ここで、 $m$  は中性子質量、 $V$  は相互作用ポテンシャルである。 $\delta$  関数はエネルギー保存則を表す。中性子の波長  $\lambda$ 、波数ベクトル  $\mathbf{k}$ 、運動量  $\mathbf{p}$ 、エネルギー  $E$  との関係は以下の通りである。ここで  $h$  はプランク定数である。

$$\lambda = \frac{h}{mv}, \quad k = \frac{2\pi}{\lambda}, \quad \mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}, \quad E = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

ここで、ポテンシャル  $V$  は、散乱体内原子の位置を  $\mathbf{R}$ 、中性子の位置を  $\mathbf{r}$  とすれば、フェルミの擬似ポテンシャルによって次の様に表される。 $b$  は散乱長である。

$$V(\mathbf{R} - \mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b \delta(\mathbf{R} - \mathbf{r})$$

ここで大事なことは、 $\mathbf{R}$  と  $\mathbf{r}$  が一致した時にのみ、相互作用が起きること、即ち、座標としては  $\mathbf{R}$  だけが残ることになる。その様子を図1に示す。これは水分子を標的分子と考えている。

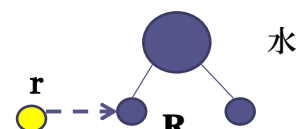


図1 散乱系の座標

次に、この $\delta$ 関数積分を実行し、

$$\text{運動量変化量： } \boldsymbol{\kappa} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$$

$$\text{エネルギー変化量： } \hbar\omega = E - E'$$

(但し、ダッシュ系は散乱後の量である。)

とにおいて、エネルギー保存の $\delta$ 関数を積分形で表すと、以下のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} &= \sum_{\ell, \ell'} P_{\ell} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\ell \rightarrow \ell'} \\ &= \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{i, i'} b_i b_{i'} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{\ell} P_{\ell} \langle \ell | \exp\{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i(0)\} \exp\{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i(t)\} | \ell \rangle \times \exp(-i\omega t) dt \end{aligned}$$

ここで、

$$P_{\ell} = \frac{1}{Z} \exp(-E_{\ell}/k_B T), \quad Z = \sum_{\ell} \exp(-E_{\ell}/k_B T)$$

であり、 $E_{\ell}$ は状態 $\ell$ の固有エネルギーである。従って、 $P_{\ell}$ は始状態 $\ell$ が存在する確率になる。ここで、標的核の位置座標は時間を含んだものに変更されている。この式から、必要なのは標的核が時間でどう動くかという情報であることが分かる。

ここで、干渉性散乱と非干渉性散乱について述べる。中性子は原子核との相互作用であるため、基本的に原子核毎に、即ち同じ元素でもアイソトープで散乱の強さが違う。また、同じ原子核でもスピンがあると、そのスピンの向きが中性子のスピンと並行・反並行ということで差がでる。そのため、中性子散乱断面積は干渉性 (coh) と非干渉性 (inc) の二種類に分けられる。

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{coh}} = \frac{\sigma_{\text{coh}} k'}{4\pi k} \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{i, i'} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{\ell} P_{\ell} \langle \ell | \exp\{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i(0)\} \exp\{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i(t)\} | \ell \rangle \times \exp(-i\omega t) dt$$

但し、 $i \neq i'$ 。

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{inc}} = \frac{\sigma_{\text{inc}} k'}{4\pi k} \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_i \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{\ell} P_{\ell} \langle \ell | \exp\{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i(0)\} \exp\{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i(t)\} | \ell \rangle \times \exp(-i\omega t) dt$$

ここで、干渉性散乱断面積  $\sigma_{\text{coh}}$  と非干渉性散乱断面積  $\sigma_{\text{inc}}$  は次の式で表される。

$$\sigma_{\text{coh}} = 4\pi \overline{(\bar{b})}^2, \quad \sigma_{\text{inc}} = 4\pi \left\{ \overline{b^2} - \overline{(\bar{b})}^2 \right\}.$$

$$\text{また、 } \overline{b_i b_{i'}} = \overline{(\bar{b})}^2 \quad i \neq i', \quad \overline{b_i b_{i'}} = \overline{b^2} \quad i = i'$$

である。最初の式は干渉性散乱断面積で回折現象が中に含まれる。一方、2番目の非干渉性散乱断面積は個々の原子核からの散乱であり、お互いの散乱に干渉はない。ただ、個々

の原子核が分子あるいは結晶として結びついていると、分子や結晶の運動や構造が散乱に反映されるという形で間接的に関係する。非干渉性散乱断面積が主たる元素はあまり多くなく、代表的なものが軽水素で、 $\sigma_{\text{coh}} = 1.758$  バーン、 $\sigma_{\text{inc}} = 80.27$  バーンである。他にバナジウムもあるが、殆どの元素が干渉性散乱断面積の方が大きな元素となる。

### 3. Nelkin モデルによる軽水の中性子断面積の概要

軽水の中性子断面積は、Nelkin モデルをベースにして作成されており、これで原子炉計算も行われてきている。先に書いたように現在も JENDL にはこのカーネルが組み込まれている。この断面積モデルは水の中性子断面積をかなりよく再現しているものであるが、最近求められているより厳密なモデルとは差がある。その問題点を理解するために、簡単に、この断面積の表式を説明する。

水は水素と酸素から構成されているが、水素の散乱断面積のほうが酸素に比べて非常に大きいので、水素の断面積が支配的となる。また、水素は非干渉性散乱が支配的なので水素 1 個の運動を考えれば良く、構造を考慮する必要はない。2 章で説明したように、この場合、水素原子の位置が時間でどう変わって行くかが分かればよい。そこで水素原子の運動について考える。分子中の原子の位置を表す座標  $R$  を図 2 のように表す。但し、ここでは簡単のために 2 原子分子で表している。

$$\mathbf{R}(t) = \mathbf{w}(t) + \mathbf{v}(t) + \mathbf{u}(t)$$

ここで、

$\mathbf{w}(t)$  は散乱分子の基準位置（重心位置）で並進運動に関係する。

$\mathbf{v}(t)$  はそこから原子（核）の平衡位置までのベクトルで、回転運動に関係する。

$\mathbf{u}(t)$  は原子核の平衡位置からのずれを示し、分子振動に関係する。

次にそれぞれの位置ベクトルについて具体的分子運動モードを当てはめる。分子の運動モードは一般に並進（拡散運動、フォノンなど）、回転運動、分子振動に分けて考え、それぞれが独立と仮定する。Nelkin モデルでは、並進  $\mathbf{w}(t)$  を質量数 18 の粒子が自由に運動していると仮定し、自由ガスモデルを適用している。回転運動  $\mathbf{v}(t)$  については、水中では水分子の相互作用があるので、くるくる回転するような回転ではなく、ある角度の範囲を行ったり来たりする振り子のような回転（ねじれ振動）を考えている。これをエネルギー  $0.06\text{eV}$  の調和振動子で表す。分子内振動は、 $0.205$ 、 $0.474$ 、 $0.484\text{eV}$  の三つのエネルギーモードがあるが、上の二つを一つのエネルギー  $0.481\text{eV}$  とまとめてしまい、 $0.205$  と  $0.481\text{eV}$  の二つのモードの調和振動子として扱っている。それらの運動モードによる表式を代入し、断面積の表式を積分することによって断面積を

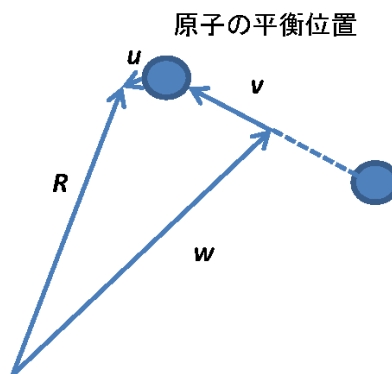


図 2 分子中の原子の位置座標

求める。以下にオリジナルの Nelkin の解析的式を示す。Nelkin の式では、エネルギー領域を 3 つに分けて計算するようになっているが、ここでは最低エネルギー領域の定数を示す。このモデルで計算された水の断面積は、実験結果をかなり良く再現しており、中性子断面積の特徴を捉えている。

$$\left[ \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right] = \frac{\sigma_{inc}}{4\pi} \left( \frac{E'}{E} \right)^{\frac{1}{2}} \left( \frac{A^*}{2\pi\bar{E}\kappa^2} \right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(-\frac{\kappa^2}{2A'}\right) \times$$

$$\sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{n\omega}{2T}\right) I_n\left(\frac{\kappa^2}{2B}\right) \exp\left[-\frac{A^*}{2\bar{E}\kappa^2} \left(E' - E - n\omega + \frac{\kappa^2}{2A^*}\right)^2\right]$$

ここで、 $I_n(x)$  は変形ベッセル関数である。 $A^*$ 、 $A'$ 、 $\bar{E}$ 、 $\omega$  はパラメータで、エネルギー変化の大きさによって変わり、0.205eV 以下の変化の時は次のようになる。

$$\begin{aligned} A^* &= 18 \\ \bar{E} &= T = 0.0255 \text{ eV} \\ 1/A' &= (1/\alpha_v) + [m_r \omega_r \tanh(\omega_r/2T)]^{-1} \\ A' &= 0.0971 \text{ eV} \\ B &= m_r \omega_r \sinh(\omega_r/2T) = 0.206 \text{ eV} \\ \omega &= \omega_r = 0.06 \text{ eV} \end{aligned}$$

しかし、これまでの議論で分かるように、このモデルではいくつかの簡略化がある。まず、第 1 点は並進運動を自由ガスモデルとしたところである。水はクラスターを形成して拡散していると考えられており、ある場所で振動的な動きをして、そこから跳躍していくという跳躍拡散のようなモデルに近いと思われる。従って、このような分子間力による束縛によって運動の自由度が制限されるので、低エネルギー領域では、実際は相互作用断面積が小さくなることが予想される。また、回転や振動も単純な調和振動で表しており、非調和性などによるエネルギーレベルの広がりなどが考慮されていない。図 3 に核データニュース No.62 の森嶋氏の報告にあった断面積の図を再掲する[13]。森嶋氏は分子動力学をベースにした、より厳密な中性子断面積計算を行っており、断面積が実験値に近いものになっているのが分かる。中性子散乱断面積は詳細釣り合いの原理を満足するため、熱平衡状態を形成することは変わらないが、減速に要する衝突回数や移動距離に違いが生じる。

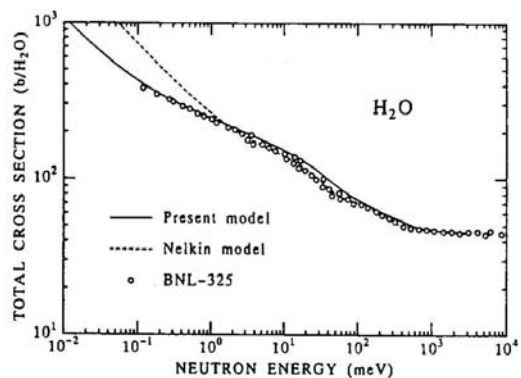


図 3 Nelkin モデルと森嶋氏の水断面積

#### 4. 干渉性結晶性物質の中性子断面積

干渉性散乱では分子構造、結晶構造を考慮しなければならなくなるので、扱いが格段に難しくなる。全断面積は、干渉性弾性散乱、非干渉性弾性散乱、非弾性散乱（干渉性散乱も非干渉性散乱近似で計算）と吸収断面積で構成され、次式のようなになる。

$$\sigma_{\text{tot}}(\lambda) = \sigma_{\text{ela}}^{\text{coh}}(\lambda) + \sigma_{\text{ela}}^{\text{incoh}}(\lambda) + \sigma_{\text{inela}}(\lambda) + \sigma_{\text{abs}}(\lambda)$$

干渉性弾性散乱がブラッグ回折による散乱を表す。その表式は以下のようなになる。

$$\sigma_{\text{ela}}^{\text{coh}}(\lambda) = \frac{\lambda^2}{2V_0} \sum_{hkl} |F_{hkl}|^2 d_{hkl} [1 - H(\lambda - 2d_{hkl})]$$

ここで、 $H$ はヘビサイドの階段関数、 $d_{hkl}$ は格子定数、 $V_0$ は単位胞体積、 $hkl$ はミラー指数である。 $F_{hkl}$ は構造因子と呼ばれる強度因子であり、この中に中性子散乱長  $b$  などが含まれている。非弾性散乱に関しては、格子振動モードを考慮して断面積を計算するが、これを正確に評価するためには、波数と格子振動数の分散関係を正確に知ることと、それを忠実に計算モデルに反映することが必要となる。結晶性物質の全断面積を計算できるコード RITS[14]で計算した鉄の全断面積を図4に示す。このコードでは非干渉性弾性

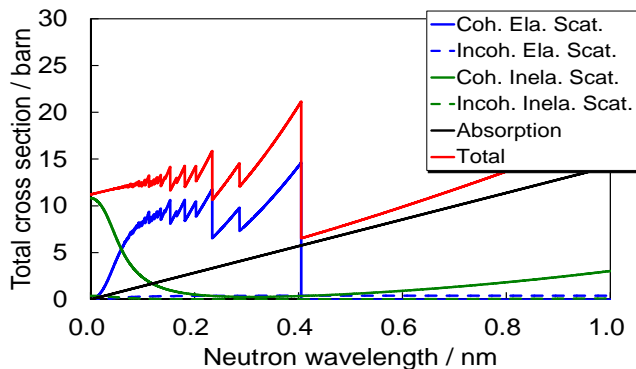


図4 鉄の全断面積の計算結果 (RITS コード)

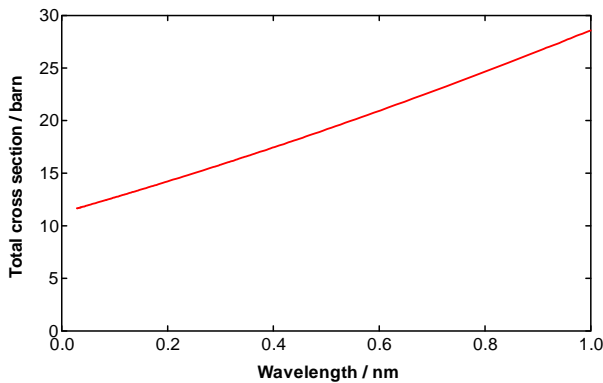


図5 JENDL の鉄の全断面積

散乱、非弾性散乱は Granada 氏のモデルによっており、格子振動から来るデバイ温度を用いて断面積を計算している[15]。中性子波長 0.18nm が 0.025eV に対応する。このように、結晶性物質の中性子断面積はブラッグ散乱が起きる波長  $\lambda = 2d_{hkl}$  のところにエッジが立つ特徴的な形となる。ベリリウムや黒鉛のように熱中性子則が整備されているものについては結晶構造を反映した断面積になっているが、非弾性散乱などの扱いは 1960 年代のものである。最新の中性子散乱実験をベースにした運動モードをきちんと入れた散乱モデルの構築が望まれる。一方、鉄のように熱中性子則が整備されていない元素の JENDL などに組み込まれているカーネル

の断面積は図 5 のようになる。低エネルギーのところは自由ガスモデルによる散乱断面積で表されている。そのため、結晶構造が反映されないとともに散乱によるエネルギー授受の仕方も実際とは異なったものとなる。従って、熱領域においてこれらのカーネルを用いる場合には注意が必要である。

今までの断面積は結晶子サイズが小さく、結晶面も等方的に分布している場合である。さらに、結晶性物質の中性子散乱断面積を難しくしているのが材料の作り方などにも依存して実質的中性子断面積が変化することである。図 6 は圧延鉄を溶接したものの中性子透過率の実測値を示したものである。圧延方向(RD)とその直角方向(ND)、また溶接部(Weld)と元のままところ(Base)の透過率を示す。0.1nm

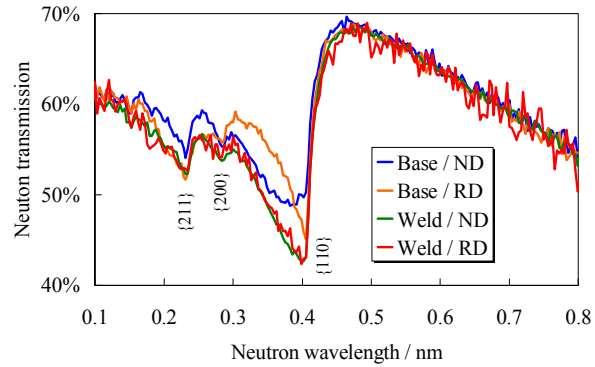


図 6 溶接圧延鉄の各部の中性子透過率の波長依存性

では殆ど同じ透過率になっているので、測定位置での鉄の厚さは同じであることが分かる。それにも拘わらず、波長が長い所では違った形の透過率になっており、結晶組織構造によって実効的断面積が変化することを示している。この原因としては、結晶子サイズの大きさと結晶配向が考えられる。図 7 は結晶子サイズによって断面積が変わって行く様子を示したものであり、結晶子サイズ  $S$  が大きくなると断面積が小さくなることが示されている。これは中性子散乱の分野で消衰効果と言われているものである。また、結晶配向（結晶面分布の非等方性）があると、図 8 に示すように、特定の結晶面の散乱が強調されたりする。そのために、断面積の形が変わってくる。この図では  $r=1$  が等方で、1 からずれると非等方性がある。実際の物質はこれらの効果が混じり合った形で現れる。従って、中性子断面積については、材料の結晶構造学的な特性をよく把握して断面積を個々に作成することが厳密に扱う場合は必要となる。

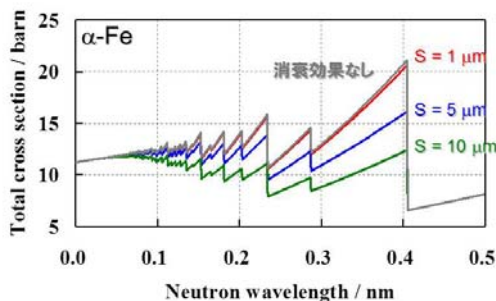


図 7 結晶子サイズによる断面積の変化

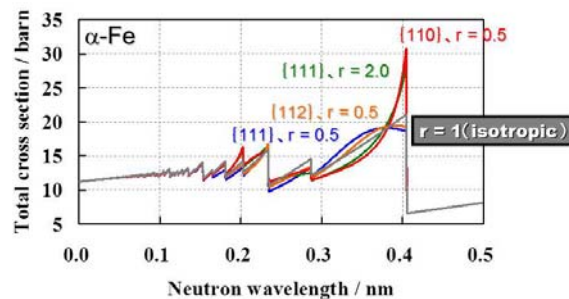


図 8 結晶配向による断面積の変化

## 5. まとめ

熱中性子則については、1960年代に基本的なモデルが構築されて以来、長い間その更新がなされてこなかったのが実情であり、また、整備されている物質も少ない。軽水に関しては、本号の中でも述べられているように最新の手法で断面積が計算されるようになり、中性子輸送計算にも使用できるように整備されている。一方、結晶性物質に関しては、整備されているもの自体が少なく、それもほぼ50年前の古いデータのままとまっている。結晶性物質の非弾性散乱に関しても、最新の知見をいれてチェック・更新すべきであると考えられる。また、最近の研究で材料の製法や結晶構造学的性質によって中性子断面積が変化することが分かった。従って、厳密な中性子輸送計算を行う場合には、そのような影響をきちんと考慮した断面積データを使用する必要がある。

共鳴領域でも不備がある核があることが分かってきている。核データを利用する研究も増えてきている現在、熱領域から共鳴領域まで、改めて核データの整備を考えるべき時期であると考えられる。

## 引用文献

- [1] M.S. Nelkin, Phys. Rev. 119 (1960) 741.
- [2] N. Morishima, Y. Sakurai, Nucl. Instr. Meth., A 490 (2002) 527–537.
- [3] Y. Shin, W. MikeSnow, C.Y. Liu, C.M. Lavelle, D.V. Baxter, Nucl. Instr. Meth., A 620 (2010) 382–390.
- [4] J.R. Granada, F. Cantagi, J.I. Marquez Dami, J. Korean Phys. Soc., 59 (2011) 1076.
- [5] N. Morishima, Y. Aoki, Ann. Nucl. Energy, 22 (1995) 147.
- [6] M. Mattes, J. Keinert, INDC(NDS)-0470 (2005).
- [7] Y. Abe, T. Tsuboi, S. Tasaki, Nucl. Instr. Meth., A 735 (2014) 568.
- [8] M.M.R. Williams, The Slowing Down and Thermalization of Neutrons, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1966.
- [9] G.L. Squires, Introduction to the theory of thermal neutron scattering, Cambridge University Press, Cambridge, 1978.
- [10] K.H. Beckurts and K. Wirts, Neutron Physics, Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg-New York, 1964.
- [11] I.I. Gurevich and L.V. Tarasov, Low Energy Neutron Physics, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1968.
- [12] 鬼柳善明、RADIOISOTOPE 誌、56 巻、5 号 (2007) 271.
- [13] 森嶋信弘、核データニュース、No.62 (1999) 1.
- [14] H. Sato, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Materials Transactions, 1.52 (2011)1294.
- [15] J. R. Granada, Z. Naturforsch. **39a** (1984) 1160.