

平成 29 年度 修士論文

冷中性子散乱による重力的相互作用の探索

Search for New Gravity-like Interactions via Cold Neutron Scattering

東京大学大学院 理学系研究科 物理学専攻  
駒宮研究室

修士課程 2 年  
学籍番号 35-166098

山田 耕史

2018 年 1 月 28 日

## 概要

素粒子の標準理論を越えるいくつかの新物理モデルにおいて、質量を結合荷とする湯川型の相互作用が予言されている。これまで種々の方法によって、この相互作用の探索が進められてきたが、相互作用の到達距離が 0.1 nm から 10 nm の範囲では、キセノン原子による中性子小角散乱を用いた手法がもっとも厳しい制限を与えている。この実験の感度は統計誤差によって決まっているため、さらなる感度の向上のための選択肢として、高フラックスビームラインを用いた高統計実験か、散乱ターゲットであるガスの高圧化の二つが考えられる。

本論文では、まず、次期高統計実験に向け、世界最高の中性子フラックスを持つ ILL D22 ビームラインで行ったテスト実験について述べる。この実験では、先行研究の 10 倍の統計量を取得することに成功したが、最終的な到達感度の評価には検出器形状を考慮し解析する必要があることが分かった。

次に、散乱ターゲットのガスを高圧化した際の感度評価の手法について述べる。そして、この手法を高圧クリプトンの中性子小角散乱のデータ (Benmore et al. 1999) に適用し、到達感度を評価した。2 体間ポテンシャルの不定性による系統誤差により、到達感度は先行研究と比較して 1 桁程度悪くなったが、統計、温度、3 体間ポテンシャル、2 体間ポテンシャルの精度を改善することにより到達距離が数 nm の領域で先行研究を上回る感度を達成できることがわかった。

# 目次

第 1 章	序論	1
1.1	対象となる新物理	1
1.2	先行研究	1
第 2 章	中性子散乱の理論	5
2.1	微分散乱断面積	5
2.1.1	微分散乱断面の一般形の導出	5
2.1.2	散乱長	7
	既知の相互作用による散乱長	7
	新しい相互作用による散乱長	9
2.1.3	2 階微分断面積の表式	9
	散乱波の干渉が無視できる場合	11
	散乱波の干渉が無視できない場合	12
2.2	構造因子	14
2.2.1	動径分布関数～統計力学からのアプローチ～	14
2.2.2	構造因子と動径分布関数	16
2.2.3	希ガス原子間のポテンシャル	18
	2 体間ポテンシャル	19
	3 体間ポテンシャル	20
第 3 章	ILL D22 実験	23
3.1	実験環境	23
3.1.1	中性子の生成と減速	24
3.1.2	波長選別器・ビーム整形	25
3.1.3	真空槽	26
3.1.4	検出器・ビームストッパー	27
3.2	装置	28
3.2.1	Xe ガスチェンバー	28
3.2.2	ガス系統	29

3.3	実験内容	30
3.4	結果	31
3.4.1	アウトガス・リーク測定	31
3.4.2	バックグラウンド測定	32
3.4.3	ビーム特性	32
3.4.4	チェンバーによる散乱	33
3.4.5	ガスの透過率の評価	35
3.4.6	Xe ガスによる散乱	35
3.5	解析	37
3.5.1	確率密度関数	37
3.5.2	ピンに分けられたデータの最尤推定法	38
3.5.3	散乱データと reference 分布の比較	39
第 4 章	高压ガスを用いる手法	43
4.1	新しい相互作用が構造因子に与える影響	43
4.2	解析に用いた実験データ	44
4.3	解析	45
4.3.1	散乱強度の規格化	45
4.3.2	尤度関数	46
4.3.3	バイアスの評価	47
4.3.4	温度による系統誤差	48
4.3.5	3 体間ポテンシャルの強度の不定性による系統誤差	48
4.3.6	2 体間ポテンシャルの各パラメータの不定性による系統誤差	48
4.3.7	感度評価	49
第 5 章	今後の展望	53
5.1	ILL 実験	53
5.2	高压実験	53
5.2.1	数密度に対する制約	53
5.2.2	チェンバーサイズに対する制約	54
5.2.3	到達感度の改善	55
付録		59
A	新しい相互作用による散乱長	59
B	3 体ポテンシャルの角度・距離依存項	61
C	円環平均	61
D	フィッティング結果のバイアス	62
E	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ の温度依存性	63
F	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ の ddd3 強度依存性	64

---

G	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ の 2 体間ポテンシャル依存性 . . . . .	65
謝辞		67
引用文献		69



# 目次

1.1	新しい相互作用の存在が棄却された領域 . . . . .	2
1.2	HANARO 実験のセットアップ . . . . .	3
2.1	原子による散乱 . . . . .	6
2.2	パラメータ $q_0$ の $Z$ 依存性 . . . . .	9
2.3	新しい相互作用による散乱長 $b^{(\text{new})}(q)$ の形 . . . . .	10
2.4	構造因子 $S(0)$ に対する $c(0)$ の $n^2$ 項の寄与の割合 $R_{n^2}$ . . . . .	18
2.5	Kr の 2 体間ポテンシャル . . . . .	20
2.6	3 体間ポテンシャルの距離・角度の定義 . . . . .	21
2.7	構造因子の 3 体間ポテンシャル依存性 . . . . .	21
3.1	ILL の全体図 . . . . .	23
3.2	D22 ビームライン . . . . .	24
3.3	減速後の中性子スペクトル . . . . .	25
3.4	速度選別器 . . . . .	25
3.5	真空槽 . . . . .	26
3.6	検出器の概要 . . . . .	27
3.7	感度マップ . . . . .	28
3.8	Xe ガスチェンバー . . . . .	29
3.9	ガス系統 . . . . .	29
3.10	アウトガス・リーク量の時間変化 . . . . .	31
3.11	バックグラウンド . . . . .	32
3.12	中性子ビームのプロファイル . . . . .	33
3.13	チェンバーによる散乱 (マスク前) . . . . .	34
3.14	チェンバーによる散乱 (マスク後) . . . . .	34
3.15	Xe ガスの透過率変化 . . . . .	35
3.16	Xe ガス (1.6atm) による散乱 . . . . .	36
3.17	等方散乱項の reference 分布 . . . . .	37
3.18	ne 散乱項の reference 分布 . . . . .	38
3.19	新しい相互作用による散乱の reference 分布 . . . . .	38

3.20	各相互作用ごとの確率密度関数 $h_j(r)$ . . . . .	39
3.21	散乱データと既知の相互作用の確率密度関数との比較 . . . . .	40
3.22	隣接するピクセルによる遮蔽効果 . . . . .	41
3.23	視差効果による感度変化 . . . . .	41
3.24	視差効果を補正した散乱データと既知の相互作用の確率密度関数との比較 . . . . .	42
4.1	新しい相互作用による構造因子 $S(q)$ の変化 (数密度 $n = 2.5 \text{ nm}^{-3}$ ) . . . . .	43
4.2	Benmore らによって測定されたデータ . . . . .	45
4.3	規格化後の構造因子 $I_{\text{data}}(q_i, n_j)$ . . . . .	46
4.4	フィッティング結果のバイアス ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) . . . . .	47
4.5	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ の温度依存性 ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) . . . . .	48
4.6	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ の $Z_{111}^{(3)}$ 依存性 ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) . . . . .	49
4.7	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ の 2 体間ポテンシャル依存性 ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) . . . . .	50
4.8	Benmore のデータの解析によって得られた到達感度 . . . . .	51
5.1	McStas で行ったシミュレーションのセットアップ . . . . .	54
5.2	McStas を用いたシミュレーションの結果 . . . . .	55
5.3	統計、温度、3 体間・2 体間ポテンシャルの精度が改善された場合の予想到達感度 . . . . .	57
C.1	円環平均 . . . . .	61
D.2	フィッティング結果のバイアス . . . . .	62
E.3	フィッティング結果の温度依存性 . . . . .	63
F.4	フィッティング結果の 3 体間ポテンシャル強度依存性 . . . . .	64
G.5	フィッティング結果 $\hat{\chi}_{\text{new}}$ の 2 体間ポテンシャル依存性 . . . . .	65

# 表目次

1.1	HANARO 実験のパラメータ . . . . .	2
2.1	2 体間ポテンシャルのパラメータの値 . . . . .	20
2.2	3 体間ポテンシャルの強度係数の値 . . . . .	22
3.1	ILL D22 ビームラインにおいて取得したデータ . . . . .	30
4.1	Benmore 実験のパラメータ . . . . .	44
4.2	Benmore 実験で測定された状態 . . . . .	44
4.3	フィッティング結果 . . . . .	47
4.4	2 体間ポテンシャルのパラメータの誤差 . . . . .	50
4.5	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) に対する誤差のまとめ . . . . .	50
5.1	精度が改善されたときの 2 体間ポテンシャルのパラメータの誤差 . . . . .	56
5.2	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) に対する誤差のまとめ (改善予想) . . . . .	56



# 第 1 章

## 序論

### 1.1 対象となる新物理

素粒子の標準理論は、物質の構成粒子とその間に働く相互作用を量子力学的に説明する理論であり、これまで得られた様々な実験結果を再現する。しかし、標準理論は重力を量子力学的に記述できず、またダークマターの存在を説明できないことから、標準理論を超える新物理の存在は確実視されている。新物理の候補である超対称性理論や余剰次元モデルの中には、質量やバリオン数  $B$ 、バリオン数とレプトン数の差 ( $B - L$ ) を結合荷とし、ピコメートルからミリメートルのオーダーの到達距離を持った新しい相互作用を予言するものがある [1–4]。本研究では結合荷が質量  $B$  であるものについて扱う\*<sup>1</sup>。このような相互作用を媒介するスカラーボソンの質量を  $\mu$  とし、この粒子の換算コンプトン波長を  $\lambda \equiv \frac{\hbar}{\mu c}$  とすると、この相互作用のポテンシャル  $V^{\text{new}}(r)$  は次のような湯川型ポテンシャルで与えられる：

$$V^{\text{new}}(r) = -\frac{\hbar c}{4\pi} g^2 Q_1 Q_2 \frac{e^{-r/\lambda}}{r}. \quad (1.1)$$

ここで、 $Q_1, Q_2$  は相互作用の働く 2 つの test mass の結合荷であるが、本研究ではバリオン数  $B$  ではなく質量とする。 $g^2$  は結合定数であり、質量<sup>-2</sup> の次元を持つ。

この相互作用は、重力のように質量を持つ物質に働くという性質を持つ一方で、重力の逆 2 乗則や等価原理を破ることになる。本研究ではこの相互作用を**新しい重力的な相互作用** (以下、新しい相互作用) と呼ぶことにする。

### 1.2 先行研究

重力の逆二乗則や等価原理は 1908 年の Eötvös の実験、以来様々な手法で検証されてきた。これらの実験を通して、新しい相互作用への制限は年々厳しくなっている。図 1.1 は、式 (1.1) の結合定数  $g^2$  と到達距離  $\lambda$  のパラメータ空間における、95% 信頼水準での棄却域を示している。図中のそれぞれの曲線ごとに実験の手法は異なるが、一般的に  $\lambda$  が 10 nm よりも大きい範囲では、振り秤やカンチレバーといったマクロスコピックな手法が用いられてきたのに対し [5–10]、 $\lambda$  が 10 nm よりも小さい範囲では、中性子散乱が用いられてきた [11–13]。

\*<sup>1</sup> 本研究では中性子と原子を test mass とするが、この場合、質量と  $B$  は比例する

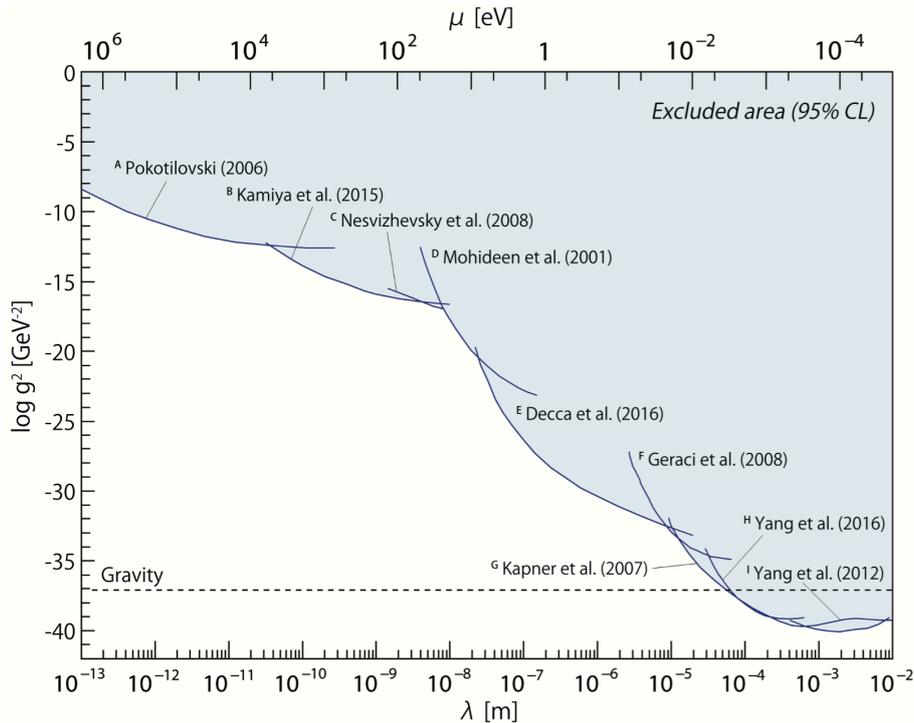


図 1.1 これまでに新しい相互作用の存在が棄却された領域。制限 A-C は中性子散乱によって得られたもの [11–13]。制限 D-I は振り秤やカンチレバーなどのマクロな手法によって得られたもの [5–10]。

表 1.1 HANARO 実験のパラメータ

名称	値
中性子波長	5.0 Å
中性子ビーム発散角	3 mrad
Xe ガス圧力	2.0 atm
Xe ガス散乱測定時間	72 hr

中性子の散乱角度分布を用いた探索実験は、2014 年、韓国原子力研究所 (KAERI) の原子炉 HANARO において、Kamiya らによって行われた [12]。この実験では、ビームライン上に設置したチェンバーに充填された Xe ガスに冷中性子ビームを照射し、チェンバーから 3.1 m 下流に設置された 2 次元検出器で散乱中性子を測定した (図 1.2)。その他の実験パラメータを表 1.1 に示す。散乱角度分布を詳細に調べること、新しい相互作用の探索が可能となる原理については後述する。

Kamiya らの実験は、新しい相互作用の到達距離  $\lambda$  が 0.1 nm から 10 nm の範囲で最も高い感度を実現している。この実験の到達感度は散乱データの統計量で制約されていたため、高統計の実験を行うことで感度改善の余地がある。そこで、以下 2 つの選択肢が考えられる。

### 1. 高フラックスビームラインでの散乱実験

HANARO と同様の原子炉を用いる定常中性子源として、HANARO よりも高フラックスのビームが得られる施設がいくつか存在する。特に、フランス ILL の中性子源であれば、約 10 倍のフラッ

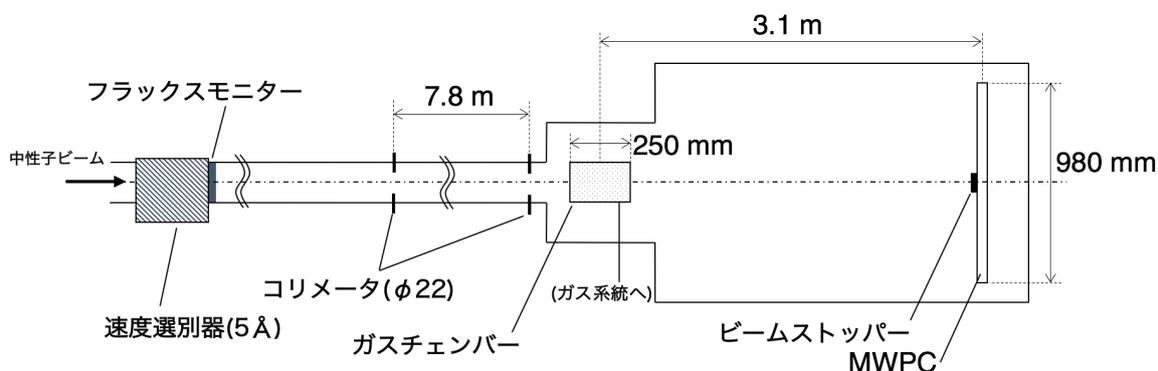


図 1.2 HANARO 実験のセットアップ (文献 [12] を元に作成)

クスが期待され、感度の改善を行うことができる。

## 2. ガスの高圧化

先行研究では中性子の透過率は約 90% であり、透過しなかった中性子もそのほとんどが Xe 原子に吸収されていた。そこで散乱体であるガスを高圧化し、さらに吸収断面積の小さい原子を標的として用いることで、散乱イベントを増やすことができる。その有力な候補が  $^{86}\text{Kr}$  である。

本論文では、1. の次期高統計実験に向けたテスト実験として、2017 年 3 月に ILL D22 ビームラインでの実験を第 3 章で扱い、2. の内容として、過去に行われた  $^{86}\text{Kr}$  の高圧ガスによる中性子散乱のデータへの適用のために開発した新しい相互作用の探索手法とその適用結果を第 4 章で述べる。



## 第 2 章

# 中性子散乱の理論

本章では、中性子散乱の理論について概説する。

2.1 節において中性子散乱の微分散面積を扱う。まず 2.1.1 節では、中性子散乱の微分散面積の一般形を示し、ポテンシャルの Fourier 変換である散乱振幅が現れることを見る。続く 2.1.2 節で、この散乱振幅から散乱長と呼ばれる量が得られることを述べ、散乱長の表式について説明する。そして 2.1.3 節では、散乱波の干渉が無視できないような状況において、微分散面積が散乱長と原子の分布に起因する構造因子とに分けられることを見る。

2.2 節では構造因子に焦点をあてる。まず 2.2.1 節で、統計力学の議論から、原子の分布を反映した動径分布関数と呼ばれる量を導く。次の 2.2.2 節で、構造因子と動径分布関数がフーリエ変換で結ばれていることを確認し、原子間ポテンシャルを用いて構造因子の関数形を決定する方法を見る。そして、2.2.3 節で、原子間ポテンシャルの詳細について議論する。

## 2.1 微分散乱断面積

本節では、中性子の微分散乱断面積の表式を求める。導出は基本的に文献 [14] に従う。

### 2.1.1 微分散乱断面の一般形の導出

波数ベクトル  $k$ , エネルギー  $E$ , スピン  $\sigma$  の中性子 (質量を  $m$  とする) が、相互作用ポテンシャル  $\hat{V}$  によって散乱し、波数ベクトル  $k'$ , エネルギー  $E'$ , スピン  $\sigma'$  となる過程を考える。そしてこのとき、サンプルの原子系の状態が  $\lambda$  から  $\lambda'$  に変わったとする (図 2.1)。散乱前後のエネルギー保存を考えると、原子の反跳による中性子から原子へのエネルギー移行  $\hbar\omega \equiv E - E' = \hbar^2(k^2 - k'^2)/2m$  と、原子系のエネルギー  $E_\lambda, E_{\lambda'}$  との間に

$$\hbar\omega = E_{\lambda'} - E_\lambda \quad (2.1)$$

が成り立つ。

さて、Born 近似の下で、波数ベクトル  $k$  の平面波が、波数ベクトル  $k'$  の平面波へと遷移する確率は次

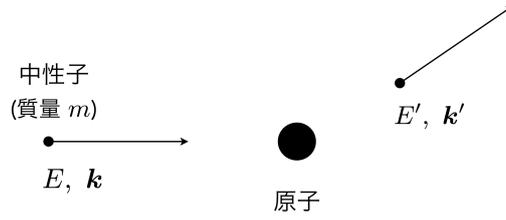


図 2.1 原子による散乱。

のように与えられる (Fermi の黄金律):

$$W_{\mathbf{k},\sigma,\lambda \rightarrow \mathbf{k}',\sigma',\lambda'} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle \sigma' \lambda' | \int d\mathbf{x} \psi_{\mathbf{k}'}^* \hat{V} \psi_{\mathbf{k}} | \sigma \lambda \rangle \right|^2 \rho_{\mathbf{k}'}(E). \quad (2.2)$$

ここで、 $\psi_{\mathbf{k}}$  および  $\psi_{\mathbf{k}'}^*$  は入射・散乱中性子の波動関数で、中性子の位置ベクトルを  $\mathbf{x}$ 、系の体積を  $L^3$  とすると

$$\psi_{\mathbf{k}} = \frac{1}{L^{3/2}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}), \quad \psi_{\mathbf{k}'} = \frac{1}{L^{3/2}} \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{x}) \quad (2.3)$$

で与えられる。また、 $\rho_{\mathbf{k}'}(E)$  は終状態密度で

$$\rho_{\mathbf{k}'}(E) = \left( \frac{L}{2\pi} \right)^3 \frac{d\mathbf{k}'}{dE} = \left( \frac{L}{2\pi} \right)^3 \frac{mk'}{\hbar^2} d\Omega \quad (2.4)$$

で与えられる。散乱断面積  $d\sigma$  と遷移確率  $W_{\mathbf{k},\sigma,\lambda \rightarrow \mathbf{k}',\sigma',\lambda'}$  は、入射フラックスを  $j_{\text{in}}$  とするとき

$$d\sigma = W_{\mathbf{k},\sigma,\lambda \rightarrow \mathbf{k}',\sigma',\lambda'} / j_{\text{in}}$$

で得られるが、入射フラックス  $j_{\text{in}}$  は

$$j_{\text{in}} = (\text{入射中性子の速度}) / L^3 = \frac{\hbar k}{mL^3} \quad (2.5)$$

と書けるので、式 (2.2),(2.3),(2.4) および (2.5) より微分散乱断面積は

$$\begin{aligned} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\mathbf{k},\sigma,\lambda \rightarrow \mathbf{k}',\sigma',\lambda'} &= \frac{k'}{k} \left( \frac{mL^6}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \sigma' \lambda' | \int d\mathbf{x} \psi_{\mathbf{k}'}^* \hat{V} \psi_{\mathbf{k}} | \sigma \lambda \rangle \right|^2 \\ &= \frac{k'}{k} \left( \frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \sigma' \lambda' | \int d\mathbf{x} \exp(-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{x}) \hat{V} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}) | \sigma \lambda \rangle \right|^2 \end{aligned} \quad (2.6)$$

となる。さらに式 (2.3) より、上式の積分の部分を

$$\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int d\mathbf{x} \exp(-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{x}) \hat{V} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}) = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}) \hat{V} \quad (2.7)$$

$$\equiv \langle \mathbf{k}' | \hat{V} | \mathbf{k} \rangle \equiv -A(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \quad (2.8)$$

と状態ベクトルの内積の形で書くことにする。ここで  $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$  は中性子から原子への運動量移行ベクトルであり、 $A(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  は散乱振幅と呼ばれる量である。そして、 $|\sigma\lambda\rangle |\mathbf{k}\rangle \equiv |\mathbf{k}\sigma\lambda\rangle$  とおくと式 (2.6) は

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\mathbf{k},\sigma,\lambda \rightarrow \mathbf{k}',\sigma',\lambda'} = \frac{k'}{k} \left| \langle \mathbf{k}'\sigma'\lambda' | \hat{V} | \mathbf{k}\sigma\lambda \rangle \right|^2 \quad (2.9)$$

となる。

微分散乱断面積の一般的な形を求めるには、始状態  $\sigma, \lambda$  について平均を取り、終状態  $\sigma', \lambda'$  について和を取れば良い。また、後述するように  $A(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  がアイソトープの種類 (原子核スピンの大きさ) や原子核スピンの方向に依存するため、アイソトープ比率に応じた平均と、原子核スピンの方向について平均をとることにする。よって、2 階微分散乱断面積の一般形として

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{k'}{k} \sum_{\lambda, \lambda'} \sum_{\sigma, \sigma'} P_\lambda P_\sigma \overline{\left| \langle \mathbf{k}'\sigma'\lambda' | \hat{V} | \mathbf{k}\sigma\lambda \rangle \right|^2} \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \quad (2.10)$$

を得る。ここで、 $P_\lambda$  は始状態  $\lambda$  が実現する確率であり、 $P_\lambda = e^{-\beta E_\lambda} / \sum_\lambda e^{-\beta E_\lambda}$  で与えられる。また  $P_\sigma$  は入射中性子スピンの確率で、本研究のように非偏極ビームを用いる場合には  $P_\sigma(\uparrow) = P_\sigma(\downarrow) = 1/2$  である。上の水平線は、始状態のアイソトープ比率、原子核スピンの方向についての平均を表す。最後に現れたデルタ関数は、式 (2.1) のエネルギー保存を反映させたものである。

ここから、微分散乱断面積についてより詳細な議論を行うためには、散乱振幅  $A(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = -\langle \mathbf{k}' | \hat{V} | \mathbf{k} \rangle$  について見ておく必要がある。次節ではこれを扱う。

### 2.1.2 散乱長

既知の相互作用による散乱長

式 (2.10) に現れる行列要素  $\langle \mathbf{k}' | \hat{V} | \mathbf{k} \rangle = -A(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  に注目し、中性子と原子の相互作用について議論する。散乱振幅  $A(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  は、 $j$  番目の原子の位置演算子を  $\hat{r}_j$ 、この原子と中性子の相互作用ポテンシャルを  $\hat{V}_j(\mathbf{x} - \hat{r}_j)$  としたとき

$$A(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = -\sum_j b_j(\mathbf{q}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{r}_j) = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int d\mathbf{x} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}) \sum_j \hat{V}_j(\mathbf{x} - \hat{r}_j) \quad (2.11)$$

と書けることが知られている。 $b_j(\mathbf{q})$  を**散乱長**と呼ぶ。原子間ポテンシャルの中には、原子核スピンに依存するものがあり、これに伴って、ポテンシャル  $\hat{V}_j$  および散乱長  $b_j(\mathbf{q})$  はアイソトープごとに異なる値を持つ。

相互作用ポテンシャルは、以下に示す 4 つの相互作用の和で書けることが知られている [15](原子のインデックス  $j$  は省略) :

$$\hat{V} = \hat{V}^{(N)} + \hat{V}^{(M)} + \hat{V}^{(E)} + \hat{V}^{(P)} \quad (2.12)$$

$\hat{V}^{(N)}$  : 原子核との強い相互作用

$\hat{V}^{(M)}$  : 中性子の磁気双極子モーメントと原子の電磁場との相互作用

$\hat{V}^{(E)}$  : 中性子の内部電荷分布と原子の電磁場との相互作用

$\hat{V}^{(P)}$  : 中性子の分極による誘起電気双極子モーメントと原子の電磁場との相互作用

これに伴い、散乱長  $b(\mathbf{q})$  も、式 (2.12) のそれぞれの相互作用に起因する項の和で書くことができる：

$$b(\mathbf{q}) = b^{(N)} + b^{(M)} + b^{(E)} + b^{(P)} \quad (2.13)$$

電子のスピン磁気モーメントの和が 0 であるような反磁性原子に対する、式 (2.13) の各項の具体的な表式は次のようになる：

$$b^{(N)} = b^{N_c} + b^{N_i} \frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{I}}{\sqrt{I(I+1)}} \quad (2.14)$$

$$b^{(M)} = -b^F \{g_N \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{1} - \hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{q}}) \cdot \mathbf{I} + Z [1 - f(\mathbf{q})] [1 - i\boldsymbol{\sigma} \cdot \hat{\mathbf{n}} \cot \theta]\} \quad (2.15)$$

$$b^{(E)} = -b^I Z [1 - f(\mathbf{q})] \quad (2.16)$$

$$b^{(P)} = b^P \quad (2.17)$$

ここで、 $I$  は原子核スピン、 $\frac{1}{2}\boldsymbol{\sigma}$  は中性子スピン、 $\hat{\mathbf{q}}$  は運動量移行  $\mathbf{q}$  の単位ベクトル、 $g_N$  は原子核の  $g$  因子\*<sup>1</sup>であり、 $\hat{\mathbf{n}}$  は散乱平面の法線ベクトルを表す。また、 $\mathbf{1}$  は単位行列である。

上式に現れている  $f(\mathbf{q})$  は原子形状因子 (atomic form factor) と呼ばれる量で、

$$f(\mathbf{q}) = \langle 0 | \frac{1}{Z} \sum_{j=1}^Z \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) | 0 \rangle \quad (2.18)$$

と定義される。ここで  $|0\rangle$  は原子の基底状態であり、 $\mathbf{r}_j$  は電子の位置を表す。希ガス原子では電子の分布が球対称であるため、 $f(\mathbf{q})$  は  $q \equiv |\mathbf{q}|$  のみに依存する。 $f(\mathbf{q})$  は Hartree-Fock 法を用いて数値的に計算可能だが、この結果を再現する次のような経験式が知られている：

$$f(q) = \frac{1}{\sqrt{1 + 3\left(\frac{q}{q_0}\right)^2}}. \quad (2.19)$$

パラメータ  $q_0$  は Hartree-Fock 法で得られた結果との比較から、図 2.2 のように与えられることが知られている [15]。この図から、本研究では  $q_0$  の値を、キセノン (Xe) :  $6.92 \text{ \AA}^{-1}$ 、クリプトン (Kr) :  $6.75 \text{ \AA}^{-1}$  とした。

式 (2.14) に与えられた散乱長を、原子核スピン  $I$ 、中性子スピン  $\frac{1}{2}\boldsymbol{\sigma}$  に対する依存性に応じてまとめると、次のようになる：

$$b(\mathbf{q}) = b^{\text{coh,s}}(\mathbf{q}) + \frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{b}^{\text{inc,s}}(\mathbf{q}) \cdot \mathbf{I}}{\sqrt{I(I+1)}} + i b^S(\mathbf{q}) \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \hat{\mathbf{n}} \quad (2.20)$$

ここで、 $b^{\text{coh,s}}(\mathbf{q})$  は (単一原子の) coherent 散乱長、 $\mathbf{b}^{\text{inc,s}}(\mathbf{q})$  は incoherent 散乱長テンソル\*<sup>2</sup>、 $b^S(\mathbf{q})$  は Schwinger 散乱長と呼ばれ、それぞれ

$$b^{\text{coh,s}}(\mathbf{q}) = (b^{N_c} + b^P) - (b^F + b^I) Z [1 - f(\mathbf{q})] \equiv b^{\text{const}} - b^{\text{ne}} Z [1 - f(\mathbf{q})] \quad (2.21)$$

$$\mathbf{b}^{\text{inc,s}}(\mathbf{q}) = b^{N_i} \mathbf{1} - \sqrt{I(I+1)} g_N b^F (\mathbf{1} - \hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{q}}) \equiv b^{N_i} \mathbf{1} + \frac{3}{2} b^{N_d} (\mathbf{1} - \hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{q}}) \quad (2.22)$$

$$b^S(\mathbf{q}) = b^F Z [1 - f(\mathbf{q})] \cot \theta \quad (2.23)$$

\*<sup>1</sup> 核磁子  $\beta_N \equiv eh/2mc$  を用いると、原子核の磁気双極子モーメント  $\boldsymbol{\mu}_N$  は  $\boldsymbol{\mu}_N = g_N \beta_N \mathbf{I}$  となる。

\*<sup>2</sup> 添字に含まれる  $s$  は single を表す。

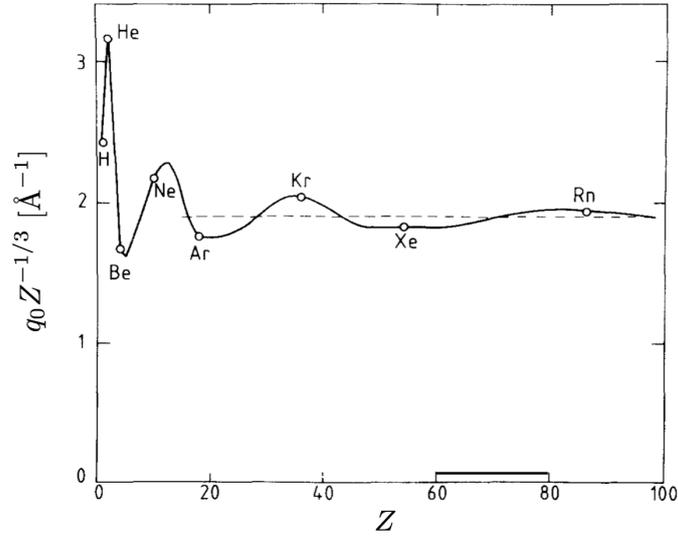


図 2.2 パラメータ  $q_0$  の  $Z$  依存性 (文献 [15] より)

である。式 (2.22) では、 $b^{\text{const}} \equiv b^{N_c} + b^P$ 、 $b^{\text{ne}} \equiv b^F + b^I$  とおき、式 (2.23) では  $b^{N_d} = \frac{2}{3} \sqrt{I(I+1)} g_N b^F$  とおいた。上の式中に現れる  $b^F$  および  $b^I$  はすべての原子について共通で、

$$b^F \equiv \frac{1}{2} \gamma \frac{m_e}{m} r_e = -1.47 \times 10^{-3} \text{ fm} \quad (2.24)$$

$$b^I \equiv \frac{1}{3} \frac{m}{m_e} \frac{\langle r_n^2 \rangle}{a_0} = -1.34 \times 10^{-3} \text{ fm} \quad (2.25)$$

である [16]。ここで、 $\gamma = -1.913$  は核磁子を単位としたときの中性子磁気双極子モーメントの大きさで、 $m_e$  は電子質量、 $r_e$  は電子の古典半径、 $r_n$  は中性子の荷電半径、 $a_0$  は Bohr 半径である。また、 $b^{\text{const}} \equiv b^{N_c} + b^P$  は、Xe(自然組成) : 4.92 fm、 $^{86}\text{Kr}$  : 8.07 fm である [17]。

### 新しい相互作用による散乱長

新しい相互作用が存在する場合には、式 (2.12) に、この相互作用によって新たな項  $\hat{V}^{\text{new}}$  (式 (1.1)) が付け加わる。これに伴って、式 (2.14) に新しい散乱長の項  $b^{\text{new}}(q)$  が現れる：

$$b^{\text{new}}(q) = \frac{mc^2}{2\pi\hbar c} g^2 Q_1 Q_2 \frac{\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2}. \quad (2.26)$$

この散乱長の導出は、付録 A に示した。

新しい相互作用の到達範囲  $\lambda = \hbar/\mu c$  を変えたときの散乱長  $b^{\text{new}}(q)$  の形を図 2.3 に示す。一般に、この散乱長は小角散乱を強める働きをすることがわかる。そして、相互作用の到達距離  $\lambda$  が小さくなればなるほど、広い  $q$  のレンジで散乱長が一定の値をとり等方散乱的な振る舞いをするようになる。

### 2.1.3 2 階微分断面積の表式

本節では、式 (2.10) で得た 2 階微分断面積を詳細に調べる。そして、2 階微分断面積が coherent 散乱による寄与と incoherent 散乱による寄与との和で書くことができ、それぞれの項が、散乱長と原子の分

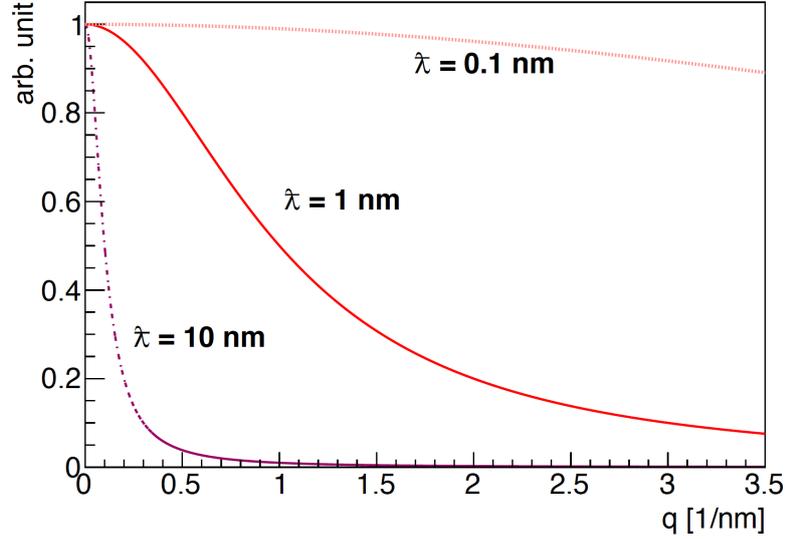


図 2.3 点線 (桃色) :  $\lambda = 0.1$  nm、実線 (赤色) :  $\lambda = 1$  nm、一点鎖線 (紫色) :  $\lambda = 10$  nm

布に起因する構造因子の積の形になることを見る。

式 (2.10)、(2.11) および (2.13) より、

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{k'}{k} \sum_{\lambda, \lambda'} \sum_{\sigma, \sigma'} P_\lambda P_\sigma \overline{\left| \langle \sigma' \lambda' | \sum_j^N b_j(\mathbf{q}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) | \sigma \lambda \rangle \right|^2} \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \quad (2.27)$$

$$= \frac{k'}{k} \sum_{\lambda, \lambda'} \sum_{\sigma} P_\lambda P_\sigma \sum_{j, j'}^N \overline{\langle \sigma | b_j^*(\mathbf{q}) b_{j'}(\mathbf{q}) | \sigma \rangle} \langle \lambda | \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) | \lambda' \rangle \langle \lambda' | \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}) | \lambda \rangle \times \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \quad (2.28)$$

ここで、 $j$  は原子の番号を表し、 $b_j(\mathbf{q})$  は式 (2.13) で与えた散乱長である。上式に現れている

$$\langle \sigma | b_j^*(\mathbf{q}) b_{j'}(\mathbf{q}) | \sigma \rangle \quad (2.29)$$

は入射中性子スピンについての平均であるから、簡略化のために、これも種々の平均を表す水平線に加えることにする。また、エネルギー保存を表す  $\delta$  関数は、積分表示によって

$$\delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp\{-it(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'})/\hbar\} \quad (2.30)$$

と書くことができ、さらにハミルトニアン  $\hat{H}$  によって  $\exp(-iE_\lambda t/\hbar) | \lambda \rangle = \exp(-i\hat{H}t/\hbar) | \lambda \rangle$  と書けること

から、式 (2.28) は

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} &= \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \\ &\times \sum_{\lambda, \lambda'} P_{\lambda} \sum_{j, j'}^N \overline{b_j^*(\mathbf{q}) b_{j'}(\mathbf{q})} \langle \lambda | \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) | \lambda' \rangle \langle \lambda' | \exp(i\hat{H}t/\hbar) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}) \exp(-i\hat{H}t/\hbar) | \lambda \rangle \\ &\times \delta(\hbar\omega + E_{\lambda} - E_{\lambda'}) \end{aligned} \quad (2.31)$$

$$\begin{aligned} &= \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \\ &\times \sum_{\lambda} P_{\lambda} \sum_{j, j'}^N \overline{b_j^*(\mathbf{q}) b_{j'}(\mathbf{q})} \langle \lambda | \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) | \lambda \rangle \end{aligned} \quad (2.32)$$

$$= \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \sum_{j, j'}^N \overline{b_j^*(\mathbf{q}) b_{j'}(\mathbf{q})} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \quad (2.33)$$

となる。2 つ目の等式では、Heisenberg 表示を採用し時刻  $t$  における  $j$  番目の原子の位置を  $\hat{\mathbf{r}}_j(t)$  とした ( $\hat{\mathbf{r}}_j \equiv \hat{\mathbf{r}}_j(0)$ )。また 3 つ目の等式では、原子の状態  $\lambda$  についての統計平均  $\sum_{\lambda} P_{\lambda} \langle \lambda | \cdots | \lambda \rangle$  を  $\langle \cdots \rangle$  と表記した。

散乱波の干渉が無視できる場合

サンプルの原子の密度が小さく、散乱波の干渉が無視できる場合を考える。これは第 3 章で述べる低圧ガスを用いた中性子散乱実験に対応する。この場合、式 (2.33) に現れている和  $\sum_{j, j'}$  について、 $j \neq j'$  の干渉項は無視し、 $j = j'$  のみを考えればよい。このとき、散乱長の 2 乗の部分は

$$\overline{b_j^*(\mathbf{q}) b_{j'}(\mathbf{q})} = \overline{b_j^*(\mathbf{q}) b_j(\mathbf{q})} = \overline{|b_j(\mathbf{q})|^2} \equiv \overline{|b(\mathbf{q})|^2} \quad (j = j') \quad (2.34)$$

となるから、2 階微分散断面積の表式 (2.33) は

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \sum_{j=j'} \overline{|b(\mathbf{q})|^2} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \quad (2.35)$$

となる。

実際の実験では、散乱中性子のエネルギー  $E'$  の分布は測定せず、散乱角度分布のみを見るので、 $E'$  について積分を施した微分散乱断面積を求めておく。そこで式 (2.35) において、 $q$  を一定に保ったまま  $E'$  で積分すると、

$$\begin{aligned} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{低圧}} &= \int_{q-\text{const}} dE' \frac{d\sigma}{d\Omega dE'} \\ &= \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int d\omega \exp(-i\omega t) \sum_{j=j'} \overline{|b(\mathbf{q})|^2} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \\ &= \frac{k'}{k} \int_{-\infty}^{\infty} dt \delta(t) \sum_{j=j'} \overline{|b(\mathbf{q})|^2} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \\ &= N \frac{k'}{k} \overline{|b(\mathbf{q})|^2} \end{aligned} \quad (2.36)$$

を得る。2 つ目の等式では、 $E'$  についての積分を、 $\omega = (E - E')/\hbar$  についての積分に変換している。

散乱波の干渉が無視できない場合

サンプルの原子の密度が大きくなり、式 (2.33) に現れている和  $\sum_{j,j'}$  の干渉項 ( $j \neq j'$ ) が無視できない場合を考える。これは、第 4 章で述べる高圧ガスを用いた中性子散乱に対応する。ここで、式 (2.34) に対応して、 $j \neq j'$  の場合を考えると

$$\overline{b_j^*(\mathbf{q})b_{j'}(\mathbf{q})} = \overline{b_j^*(\mathbf{q})} \overline{b_{j'}(\mathbf{q})} = |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 \quad (j \neq j') \quad (2.37)$$

となる。これより、一般の  $j, j'$  に対して、

$$b_j^*(\mathbf{q})b_{j'}(\mathbf{q}) = |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 + \delta_{j,j'} \left( |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 - |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 \right) \quad (2.38)$$

と書くことができる。式 (2.38) を式 (2.33) に代入すると、

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{k'}{k} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \left\{ \sum_{j,j'} |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \right. \\ \left. + \sum_{j=j'} \left( |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 - |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 \right) \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \right\} \quad (2.39) \end{aligned}$$

を得る。そして、原子の位置  $\mathbf{r}$  に依存する因子をまとめ、**干渉動的構造因子** (coherent dynamic structure factor):  $S_c(\mathbf{q}, \omega)$  および、**非干渉動的構造因子** (incoherent -):  $S_i(\mathbf{q}, \omega)$  を

$$S_c(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \sum_{j,j'} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \quad (2.40)$$

$$S_i(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \sum_{j=j'} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \quad (2.41)$$

と定義すると<sup>\*3</sup>、2 階微分断面積は

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = N \frac{k'}{k} \{ b_{\text{coh},m}^2(\mathbf{q}) S_c(\mathbf{q}, \omega) + b_{\text{inc},m}^2(\mathbf{q}) S_i(\mathbf{q}, \omega) \} \quad (2.42)$$

と書ける。ここで、 $b_{\text{coh},m}^2(\mathbf{q}) \equiv |\overline{b(\mathbf{q})}|^2$ 、 $b_{\text{inc},m}^2(\mathbf{q}) \equiv \left( |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 - |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 \right)$  とおいた (添字の  $m$  は many body を表す)。 $b_{\text{coh},m}(\mathbf{q})$ 、 $b_{\text{inc},m}(\mathbf{q})$  はそれぞれ (多原子系での) coherent 散乱長、incoherent 散乱長と呼ばれる。式 (2.36) と同様に、 $q$  を一定に保ったまま  $E'$  について積分を施すと、微分断面積が得られる：

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{高圧}} = N \frac{k'}{k} \{ b_{\text{coh},m}^2(\mathbf{q}) S(q) + b_{\text{inc},m}^2(\mathbf{q}) \}. \quad (2.43)$$

ここで  $S(q)$  は**静的構造因子** (static structure factor) と呼ばれる量で、

$$S(\mathbf{q}) \equiv \int_{q=\text{const}} d(\hbar\omega) S_c(\mathbf{q}, \omega) \quad (2.44)$$

<sup>\*3</sup> この定義から分かるように、時刻  $t$  での原子の位置  $\mathbf{r}(t)$  に依存する。これが"動的"と呼ばれる所以である。後述する静的構造因子は、 $\omega$  による積分によって時刻  $t$  への依存性が消えるため、"静的"と呼ばれる。

と定義される。また右辺第 2 項では、

$$\int_{q-\text{const}} d\omega S_i(\mathbf{q}, \omega) = 1$$

という性質を用いた。 $q = 0$  における  $S(q)$  の値は、sum rule と呼ばれる関係：

$$S(0) = n\kappa_T k_B T \quad (2.45)$$

が成り立つことが知られている [14]。ここで、 $n$  は数密度、 $\kappa_T$  は等温圧縮率、 $k_B$  はボルツマン定数である。もし散乱体を液体にすると、 $n$  が極めて大きくなるかわりに  $\kappa_T$  が 0 に近づき、結果として小角散乱の  $S(q)$  は 0 に近い値をとる。一方、ガスを高圧化すると、通常  $S(0) > 1$  となる。すでに述べたように、新しい相互作用による散乱長の変化は小角散乱を強める傾向があるが、液体の構造因子は小角散乱を弱めてしまうので散乱長の変化を見ることができない。これが、液体を用いるのではなくガスの高圧化を検討する理由である。

本節の締めくくりに、 $|\overline{b(\mathbf{q})}|^2$ 、 $|\overline{b(\mathbf{q})}|^2$  の具体的な形を記し、低圧および高圧の場合の微分散乱断面積の形をまとめる。式 (2.20) より  $\overline{b(\mathbf{q})}$  を求めると、中性子スピンについての平均によって  $\sigma$  を含む項は消えるので、式 (2.22),(2.26) の結果も踏まえて

$$|\overline{b(\mathbf{q})}|^2 = \{b^{\text{coh},s}(\mathbf{q}) + b^{\text{new}}(q)\}^2 = \{b^{\text{const}} - b^{\text{ne}}Z[1 - f(\mathbf{q})] + b^{\text{new}}(q)\}^2 \quad (2.46)$$

$$\approx b^{\text{const}^2} \left\{ 1 + 2\chi_{\text{ne}}[1 - f(\mathbf{q})] + 2\chi_{\text{new}} \frac{1}{1 + (q\lambda)^2} \right\} \quad (2.47)$$

を得る。ここで、最後の等号において  $\chi_{\text{ne}} \equiv -Zb^{\text{ne}}/b^{\text{const}}$ 、 $\chi_{\text{new}} \equiv \frac{mc^2}{2\pi\hbar c} g^2 \lambda^2 Q_1 Q_2 / b^{\text{const}}$  とおき、これらの 2 乗の項を無視した。また、 $|\overline{b(\mathbf{q})}|^2$  は、以下のようになることが分かっている [15]：

$$|\overline{b(\mathbf{q})}|^2 = \{b^{\text{coh},s}(\mathbf{q}) + b^{\text{new}}(q)\}^2 + (b^{N_i} + b^{N_d})^2 + \frac{1}{2}(b^{N_d})^2 + b^S(q)^2. \quad (2.48)$$

この式に現れている  $b_i \equiv b^{N_i} + b^{N_d}$  は Xe(自然組成)、 $^{86}\text{Kr}$  とともに 0 fm である [17]\*4。また、 $(b^{N_d})^2$  は十分に小さく無視できることが知られている [15]。 $b^S(q)^2$  の寄与についても、 $b^{\text{const}}$  による寄与を基準としたとき  $10^{-6}$  程度であることが分かっており、無視することができる [20]。したがって、式 (2.48) は上で定義した  $\chi_{\text{ne}}$ 、 $\chi_{\text{new}}$  を用いて

$$|\overline{b(\mathbf{q})}|^2 = b^{\text{const}^2} \left\{ 1 + 2\chi_{\text{ne}}[1 - f(\mathbf{q})] + 2\chi_{\text{new}} \frac{1}{1 + (q\lambda)^2} \right\} + b_i^2 \quad (2.49)$$

と書ける。そして、式 (2.47) および (2.48) より、

$$|\overline{b(\mathbf{q})}|^2 - |\overline{b(\mathbf{q})}|^2 = b_i^2 \quad (2.50)$$

となることが分かる\*5。以上から、低圧および高圧の場合の微分散乱断面積は

\*4 アメリカ国立標準技術研究所 NIST のウェブサイト [18] では、Xe の  $b_i$  について 3.04 fm としている。しかし、この値の原典とされている文献 [19] では値無しとなっているため誤植の可能性がある。

\*5 この表式において  $b_i$  だけが残ることから、一般的には  $b_i$  を incoherent 散乱長と呼んでいる。

低圧の場合

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{低圧}} = N \frac{k'}{k} \left[ b^{\text{const}^2} \left\{ 1 + 2\chi_{\text{ne}} [1 - f(\mathbf{q})] + 2\chi_{\text{new}} \frac{1}{1 + (q\lambda)^2} \right\} + b_i^2 \right] \quad (2.51)$$

高圧の場合

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{高圧}} = N \frac{k'}{k} \left[ b^{\text{const}^2} \left\{ 1 + 2\chi_{\text{ne}} [1 - f(\mathbf{q})] + 2\chi_{\text{new}} \frac{1}{1 + (q\lambda)^2} \right\} S(q) + b_i^2 \right] \quad (2.52)$$

と書くことができる。

## 2.2 構造因子

前節では、散乱波の干渉が無視できない状況での散乱断面積に構造因子  $S(q)$  が現れることを見た。本節では、構造因子の意味と、その形を決定する方法について考えることにする。

### 2.2.1 動径分布関数 ～ 統計力学からのアプローチ ～

この節では、散乱理論から離れ、統計力学の視点から多数の原子からなる系を扱っていく。特に、2つの原子の相対的な位置分布について考え、動径分布関数と呼ばれる量を定義する。次節において、動径分布関数と構造因子は Fourier 変換で結びついていることを見る。

温度  $T (\equiv 1/k_B\beta)$ ,  $k_B$ : Boltzmann 定数)、体積  $V$ 、粒子数  $N$  の古典系をカノニカル分布で扱う。外力と境界 (例: 容器表面) の影響を無視すると、全系のハミルトニアンは

$$H = \sum_{j=1}^N \frac{|\mathbf{p}_j|^2}{2M} + V_N(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) \quad (2.53)$$

で与えられる。このとき、分配関数  $Z_N(\beta)$  は

$$\begin{aligned} Z_N(\beta) &= \frac{1}{N! h^{3N}} \int d\mathbf{r}_1 \dots d\mathbf{r}_N e^{-\beta V_N(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)} \prod_{j=1}^N \int d\mathbf{p}_j e^{-\beta |\mathbf{p}_j|^2 / (2M)} \\ &= \frac{1}{N!} \left( \frac{M}{2\pi\hbar^2\beta} \right)^{3N/2} \int d\mathbf{r}_1 \dots d\mathbf{r}_N e^{-\beta V_N(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)} \\ &\equiv \frac{1}{N!} \left( \frac{M}{2\pi\hbar^2\beta} \right)^{3N/2} \tilde{Z}_N(\beta) \end{aligned} \quad (2.54)$$

となる。ここで、2つの原子に注目することにして、これらが位置  $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$  に存在する確率密度  $n^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$  を考えると、これは次のように表される:

$$n^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = N(N-1) \frac{\int d\mathbf{r}_3 \dots d\mathbf{r}_N e^{-\beta V_N(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \dots, \mathbf{r}_N)}}{\tilde{Z}_N(\beta)}. \quad (2.55)$$

因子  $N(N-1)$  は  $N$  個の原子の中から2個の原子を選ぶ際の、選び方の数である。ここで、外力と境界の影響を無視していることを思い出すと、 $n^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$  は相対位置  $\mathbf{r}_{\text{rel}} \equiv \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$  のみに依存する関数で

あると考えられる。また、等方的な流体であれば  $n^{(2)}$  は  $\mathbf{r}_{\text{rel}}$  の向きにも依存せず、 $r \equiv |\mathbf{r}_{\text{rel}}|$  の関数となる。 $n^{(2)}$  は数密度<sup>2</sup>の次元を持つので、平均数密度  $n \equiv N/V$  で無次元化した動径分布関数と呼ばれる関数  $g(r)$  を考えることが多い：

$$g(r) \equiv \frac{n^{(2)}(r)}{n^2} = \frac{V^2(N-1)}{N} \frac{\int d\mathbf{r}_3 \cdots d\mathbf{r}_N e^{-\beta V_N(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \dots, \mathbf{r}_N)}}{\tilde{Z}_N(\beta)} \quad (2.56)$$

$$= \frac{V^2(N-1)}{N} \frac{Q(r)}{\tilde{Z}_N(\beta)} \quad (2.57)$$

ここで、 $\mathbf{r}_3$  から  $\mathbf{r}_N$  までの積分を施した後ではボルツマン因子  $e^{-\beta V_N}$  が原子 1,2 の相対距離  $r \equiv |\mathbf{r}_{\text{rel}}|$  のみに依存することを用いて、 $Q(r)$  を定義した。動径分布関数の意味を考えるために、次の量を計算する：

$$\begin{aligned} \int_0^\infty ng(r)4\pi r^2 dr &= \int d\mathbf{r}_{\text{rel}} V(N-1) \frac{Q(|\mathbf{r}_{\text{rel}}|)}{\tilde{Z}_N(\beta)} \\ &= \int d\mathbf{r}_{\text{rel}} V(N-1) \frac{Q(|\mathbf{r}_{\text{rel}}|)}{\int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 Q(|\mathbf{r}_{\text{rel}}|)} \\ &= \int d\mathbf{r}_{\text{rel}} V(N-1) \frac{Q(|\mathbf{r}_{\text{rel}}|)}{\int d\mathbf{r}_G d\mathbf{r}_{\text{rel}} Q(|\mathbf{r}_{\text{rel}}|)} \\ &= N-1 \sim N. \end{aligned} \quad (2.58)$$

3つ目の等号では2つの体積要素  $d\mathbf{r}'_1 d\mathbf{r}'_2$  を相対位置ベクトル  $\mathbf{r}_{\text{rel}}$  と重心位置ベクトル  $\mathbf{r}_G$  を使って表した。式(2.58)より、 $ng(r)4\pi r^2 dr$  は、ある原子が原点にあるとき、半径  $r$ 、厚さ  $dr$  の球殻内の原子数を表していることがわかる。そして、式(2.58)と  $\int n4\pi r^2 dr = N$  とを比較すると、 $g(r)$  は、原点からの距離  $r$  における原子数密度の、平均数密度  $n$  との比を表していることが分かる。

さて、後の目的のために、デルタ関数を用いた  $g(r)$  の定義を示しておく。式(2.56)において、デルタ関数を用いると次のように書き換えられる：

$$\begin{aligned} g(r) &= \frac{V^2(N-1)}{N} \frac{\int d\mathbf{r}'_{\text{rel}} d\mathbf{r}_3 \cdots d\mathbf{r}_N \delta\{\mathbf{r}'_{\text{rel}} - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)\} Q(\mathbf{r}'_{\text{rel}})}{\tilde{Z}_N(\beta)} \\ &= \frac{V(N-1)}{N} \frac{\int d\mathbf{r}'_G d\mathbf{r}'_{\text{rel}} d\mathbf{r}_3 \cdots d\mathbf{r}_N \delta\{\mathbf{r}'_{\text{rel}} - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)\} Q(\mathbf{r}'_{\text{rel}})}{\tilde{Z}_N(\beta)} \\ &= \frac{V(N-1)}{N} \frac{\int d\mathbf{r}'_1 d\mathbf{r}'_2 d\mathbf{r}_3 \cdots d\mathbf{r}_N \delta\{\mathbf{r}'_1 - \mathbf{r}'_2 - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)\} e^{-\beta V_N(\mathbf{r}'_1, \mathbf{r}'_2, \mathbf{r}_3, \dots, \mathbf{r}_N)}}{\tilde{Z}_N(\beta)} \\ &= \frac{V(N-1)}{N} \langle \delta\{\mathbf{r}'_{\text{rel}} - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)\} \rangle \end{aligned} \quad (2.59)$$

2つ目の等式では、 $\mathbf{r}'_{\text{rel}}$  に対応する重心ベクトル  $\mathbf{r}'_G$  についての積分を導入し、これにより係数に含まれる体積  $V$  を吸収している。3つ目の等号において、 $\mathbf{r}'_{\text{rel}}$  と  $\mathbf{r}'_G$  を二つの原子の座標ベクトルに分離した。また最後の等号ではカノニカル平均を  $\langle \cdots \rangle$  で表したが、これは式(2.33)において導入したものと同一意味を持っている。

### 2.2.2 構造因子と動径分布関数

式 (2.40) で定義した干渉動的構造因子を、 $\delta$  関数を用いて次のように書き換える：

$$\begin{aligned}
S_c(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \sum_{j,j'} \langle \exp(-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_j) \exp(i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{j'}(t)) \rangle \\
&= \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \int d\mathbf{r}' \sum_{j,j'} \langle \exp\{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j + i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'\} \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_{j'}(t)) \rangle \\
&= \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \\
&\quad \times \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \sum_{j,j'} \langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}' - \mathbf{r}_j)) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_{j'}(t)) \rangle. \tag{2.60}
\end{aligned}$$

すると、静的構造因子  $S(q)$  は

$$\begin{aligned}
S(q) &= \int_{-\infty}^{\infty} d(\hbar\omega) S(\mathbf{q}, \omega) \\
&= \frac{1}{N} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \sum_{j,j'} \langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}' - \mathbf{r}_j)) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_{j'}) \rangle \tag{2.61}
\end{aligned}$$

と書ける。そして、原子のインデックス  $j, j'$  についての和の取り方を、 $j = j'$  の場合と  $j \neq j'$  の場合とに分けると

$$\begin{aligned}
S(q) &= \frac{1}{N} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \{ N \langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}' - \mathbf{r}_1)) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_1) \rangle \\
&\quad + N(N-1) \langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}' - \mathbf{r}_1)) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_2) \rangle \} \\
&= \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \{ \delta(\mathbf{r}) + (N-1) \langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)) \rangle \} \\
&= 1 + (N-1) \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)) \rangle \tag{2.62}
\end{aligned}$$

を得る。1 つ目の等式では、すべての原子は対等であるため、 $\{ \}$  内の第 1 項において  $j = j' = 1$  として全体を  $N$  倍し、第 2 項において  $j = 1, j' = 2$  として全体に組み合わせの数  $N(N-1)$  をかけている。ここで、被積分関数に現れている  $\langle \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)) \rangle$  は、式 (2.59) の動径分布関数  $g(r)$  の表式に他ならない。よって、構造因子  $S(q)$  と動径分布関数  $g(r)$  の間には、次の関係が成り立つことが分かる：

$$S(q) = 1 + n \int d\mathbf{r} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) g(r). \tag{2.63}$$

(1 という余計な項があるが) 構造因子と動径分布関数は Fourier 変換で結びついている。

さて、動径分布関数は、次のように数密度  $n$  のべきで展開できることが知られている [21]：

$$g(r_{12}) = g_0(r_{12}) + n g_1(r_{12}) + O(n^2) \tag{2.64}$$

原子 1, 2 の相対距離という意味で  $r_{12}$  と記した。ここで、

$$g_0(r_{12}) = \exp[-V_{2b}(r_{12})/k_B T] \tag{2.65}$$

であり、 $g_1(r_{12})$  は

$$g_1(r_{12}) = g_1^{(2b)}(r_{12}) + g_1^{(3b)}(r_{12}) \quad (2.66)$$

$$g_1^{(2b)}(r_{12}) = \exp[-V_{2b}(r_{12})/k_B T] \int d\mathbf{r}_{13} f(r_{13}) f(|\mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{13}|) \quad (2.67)$$

$$g_1^{(3b)}(r_{12}) = \exp[-V_{2b}(r_{12})/k_B T] \times \int d\mathbf{r}_{13} \exp[-V_{2b}(r_{13})/k_B T] \exp[-V_{2b}(|\mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{13}|)/k_B T] \exp[-V_{3b}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3)/k_B T] \quad (2.68)$$

である。 $V_{2b}$  および  $V_{3b}$  は、それぞれ後述する 2 体間、3 体間ポテンシャルであり、 $f(r) \equiv \exp[-V_{2b}(r)/k_B T] - 1$  とした。

さて、ここで全相関関数  $h(r_{12})$  を  $h(r_{12}) \equiv g(r_{12}) - 1$  と定義し、 $h(r_{12})$  と次の Ornstein-Zernike 方程式

$$h(r_{12}) = c(r_{12}) + n \int d\mathbf{r}_{13} c(|\mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{13}|) h(r') \quad (2.69)$$

によって直接相関関数  $c(r_{12})$  を定義する。式 (2.69) を Fourier 変換すると

$$h(q) = c(q) + nc(q)h(q) \quad (2.70)$$

が得られる。式 (2.63) は、 $h(r_{12})$  を用いると

$$S(q) = 1 + nh(q) \quad (2.71)$$

となるため、式 (2.70) より  $S(q)$  と  $c(q)$  の関係

$$S(q) = \frac{1}{1 - nc(q)} \quad (2.72)$$

が得られる。ここで、 $n \rightarrow 0$  の極限を考えると  $S(q) \rightarrow 1$  となり、散乱波の干渉が無視できない高圧の場合の微分断面積の式 (2.52) が、干渉が無視できる低圧の場合の式 (2.51) と一致することが分かる。

前述のように動径分布関数  $g(r)$  は  $n$  のべきで展開される。これに伴って、 $c(q)$  も  $n$  のべきで展開することができる：

$$c(q) = c_0(q) + nc_1(q) + O(n^2) \quad (2.73)$$

$$c_0(q) = \int d\mathbf{r}_{12} f(r_{12}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{12}) \quad (2.74)$$

$$c_1(q) = c_1^{(2)}(q) + c_1^{(3)}(q) \quad (2.75)$$

$$c_1^{(2)}(q) = \int \int d\mathbf{r}_{12} d\mathbf{r}_{13} f(r_{12}) f(r_{13}) f(|\mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{13}|) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{12}) \quad (2.76)$$

$$c_1^{(3)}(q) = \int \int d\mathbf{r}_{12} d\mathbf{r}_{13} (1 + f(r_{12}))(1 + f(r_{13}))(1 + f(|\mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{13}|)) \times (\exp[-V_{3b}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3)/k_B T] - 1) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{12}) \quad (2.77)$$

本研究では、原子間ポテンシャルから構造因子の形を求める際には、式 (2.72) および式 (2.73) を用いた。

式 (2.73) の  $O(n^2)$  の寄与は、文献 [21] において熱力学測定から求められた  $c(0)$  の  $n$  依存性：

$$c(0) = 0.1683 - (1.930 \times 10^{-2})n + (0.73 \times 10^{-4})n^2 \quad (n < 3 \text{ nm}^{-3}) \quad (2.78)$$

を用いて推定することができる。ここで、 $c(0)$  の  $n^2$  項を無視して計算した  $S(0)$  の値を  $S_{\text{without } n^2(0)}$  とし、 $n^2$  項を考慮して計算した  $S(0)$  の値を  $S_{\text{with } n^2(0)}$  とする。そして、 $S_{\text{without } n^2(0)}$  に対する、 $n^2$  項の寄与の大きさを表す量

$$R_{n^2} \equiv \frac{S_{\text{with } n^2(0)} - S_{\text{without } n^2(0)}}{S_{\text{without } n^2(0)}} \quad (2.79)$$

を定義し、これの  $n$  依存性を図 2.4 に示す。

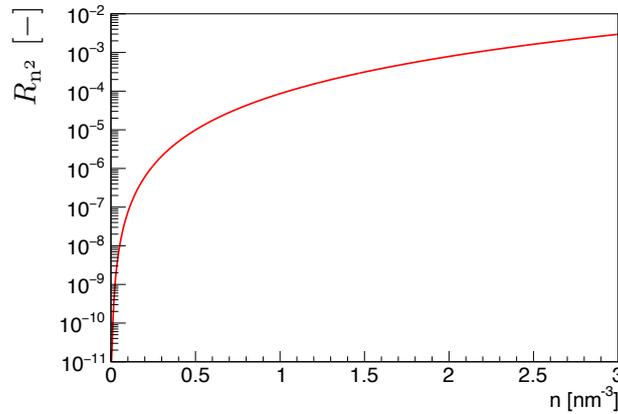


図 2.4 構造因子  $S_{\text{without } n^2(0)}$  に対する  $c(0)$  の  $n^2$  項の寄与の割合  $R_{n^2}$

本研究では最大で  $n = 2.4 \text{ nm}^{-3}$  ( $\sim 82 \text{ atm}$ ) を扱うが、このときの構造因子への  $c(0)$  の  $n^2$  項の寄与は、図 2.4 より  $+0.15 \%$  と見積もられる。第 4 章で扱う実験データは構造因子の形に  $0.5 \%$  の誤差を持っており、 $O(n^2)$  の寄与はこれよりも十分に小さいため無視することにした。

### 2.2.3 希ガス原子間のポテンシャル

前節では、2 体間ポテンシャル、3 体間ポテンシャルから構造因子の形を導く方法が示された。本節では、構造因子の形を求めるために必要な原子間ポテンシャルがどのように表されるかを見ていくことにする。本節では主に結果だけを述べる。導出は文献 [22] を参照されたい。

原子間に働く相互作用は、原子核とその周囲の電子による量子力学的な効果の表れである。一般に、原子間の距離が近いと電子雲が重なることで強い斥力が支配的となり (斥力芯)、遠距離では原子の誘起電気多重極モーメントによる分散力 (dispersion force) が支配的となる。斥力芯の寄与は、2 つの原子の座標によって決まる 2 体間相互作用として扱えるが、遠距離における分散力は、相互作用ポテンシャルによる基底状態からの摂動展開を考えると 3 体以上の多体ポテンシャルが表れる。

$N$  個の原子からなる系の分散力による相互作用ポテンシャル  $V_{\text{disp.}}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)$  を考える。これを基底状態から摂動展開したものを次のように表す：

$$V_{\text{disp.}}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = V^{(1)} + V^{(2)} + V^{(3)} + \dots \quad (2.80)$$

ここで、右上の添字は摂動展開の次数を表す。球対称な希ガス原子の場合には一次摂動  $V^{(1)}$  の寄与は 0 となり、摂動の最低次の寄与は 2 次摂動  $V^{(2)}$  である。それぞれの摂動項において誘起モーメントを多重極展開することによって、

$$V^{(2)} = \sum_{i < j} \sum_{l_i, l_j} V_{l_i l_j}^{(2)}(\mathbf{r}_{ij}) \quad (2.81)$$

$$V^{(3)} = \sum_{i < j} \sum_{l_i, l_j} V_{l_i l_j}^{(3)}(\mathbf{r}_{ij}) + \sum_{i < j < k} \sum_{l_i, l_j, l_k} V_{l_i l_j l_k}^{(3)}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k) \quad (2.82)$$

と書くことができる。ここで、 $l_i$  は多重極モーメントの次数を表し、 $2^{l_i}$  重極モーメントという意味である。例えば、 $V_{11}^{(2)}(\mathbf{r}_{ij})$  は、2 次摂動の 2 体間ポテンシャルのうち、両方の原子の誘起 2 (=  $2^1$ ) 重極モーメントどうしの相互作用の寄与を表す。また、 $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$  である。式 (2.81) および (2.82) の第 1 項は 2 体間ポテンシャルであり、式 (2.82) の第 2 項は 3 体間ポテンシャルである。すなわち、以下では、 $N$  個の原子からなる系のポテンシャル  $V_N(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)$  は、斥力芯による寄与も含めて

$$V_N(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \sum_{i < j} V_{2b}(r_{ij}) + \sum_{i < j < k} V_{3b}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k) + \dots \quad (2.83)$$

と書くことができる。ここで、 $V_{2b}(r_{ij})$  は 2 体間ポテンシャル、 $V_{3b}$  は 3 体間ポテンシャルである。以下では、これらのポテンシャルの具体的な関数形を見ていく。

## 2 体間ポテンシャル

斥力芯の寄与が現れない程度の遠距離では、分散力の効果によって 2 体間ポテンシャルは次のような形で与えられる：

$$V_{2b}(r_{ij}) = -\frac{C_6}{r_{ij}^6} - \frac{C_8}{r_{ij}^8} - \frac{C_{10}}{r_{ij}^{10}} - \dots \quad (2.84)$$

第 1 項は、2 つの原子の誘起双極子モーメント同士の相互作用に起因し、第 2 項以降は双極子より高次の誘起多重極モーメントの相互作用に起因する。それぞれの項の係数  $C_6$ ,  $C_8$ ,  $C_{10}$  は正であるため、分散力は引力となる。

斥力芯も含めた 2 体間ポテンシャルは古くから実験的に測定が行われてきた。第 4 章での解析ではクリプトン (Kr) を対象にするが、Kr に対する 2 体間ポテンシャルとして Aziz らによって実験的に決定されたものを用いる [23]。このポテンシャルの表式と各パラメータの値は次のようになっている：

$$V_{2b}(r) = \epsilon \left[ A \exp(-\alpha R + \beta R^2) - F(R) \sum_{j=0}^2 \frac{c_{2j+6}}{R^{2j+6}} \right] \quad (2.85)$$

$$F(R) = \exp \left[ - \left( \frac{D}{R} - 1 \right)^2 \right], \quad R < D \quad (2.86)$$

$$= 1, \quad R \geq D \quad (2.87)$$

$$R \equiv r/r_m \quad (2.88)$$

式 (2.85)、表 2.1 によって与えられる Kr の 2 体間ポテンシャルは、図 2.5 のような形をしている。

表 2.1 2 体間ポテンシャルのパラメータの値

パラメータ	値
$A$	$1.10146811 \times 10^5$
$\alpha$	9.39490495
$\beta$	-2.32607647
$c_6$	1.08822526
$c_8$	0.53911567
$c_{10}$	0.42174119
$D$	1.28
$r_m[\text{\AA}]$	4.008
$\epsilon$	$201.2 k_B$

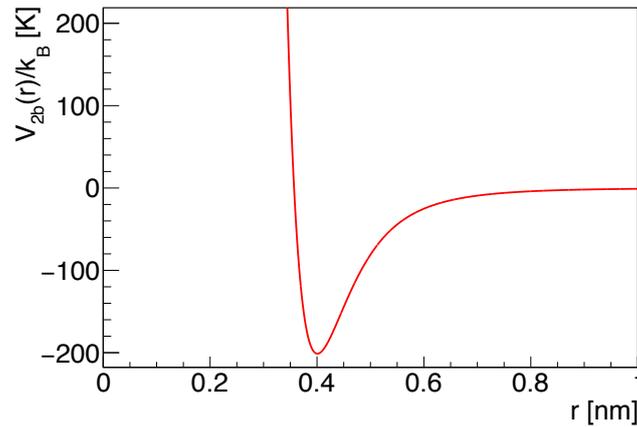


図 2.5 Kr の 2 体間ポテンシャル。原子間距離が約 0.4 nm より短い領域では、電子雲の重なりによる強い斥力を受ける。遠距離では式 (2.84) による引力が働く。

### 3 体間ポテンシャル

3 次摂動以上によって生じる 3 体間ポテンシャルは、式 (2.82) で導入したように各原子の誘起モーメントの次数によって多重極展開され、その各項は、強度を表す係数  $Z_{l_i l_j l_k}$  と、距離・角度依存性を表す部分  $W_{l_i l_j l_k}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k)$  とに分けることができる ( $l_i l_j l_k$  の意味については式 (2.82) 以降を参照) [24–27] :

$$V_{3b} = Z_{111}^{(3)} W_{111}^{(3)} + Z_{112}^{(3)} W_{112}^{(3)} + Z_{122}^{(3)} W_{122}^{(3)} + Z_{113}^{(3)} W_{113}^{(3)} + Z_{222}^{(3)} W_{222}^{(3)} + Z_{111}^{(4)} W_{111}^{(4)} + \dots \quad (2.89)$$

この 3 体間ポテンシャルの中で最も寄与が大きいのは、3 つの原子の誘起双極子モーメントによる  $Z_{111} W_{111}$  の項で、Axilod-Teller-Muto(ATM) ポテンシャルとして知られている [28, 29] :

$$W_{111} = \frac{1 + 3 \cos \theta_{ij} \cos \theta_{jk} \cos \theta_{ki}}{r_{ij}^3 r_{jk}^3 r_{ki}^3}. \quad (2.90)$$

原子間距離・角度の定義は図 2.6 に示した。ATM ポテンシャル以外の角度・距離依存項  $W_{l_i l_j l_k}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k)$

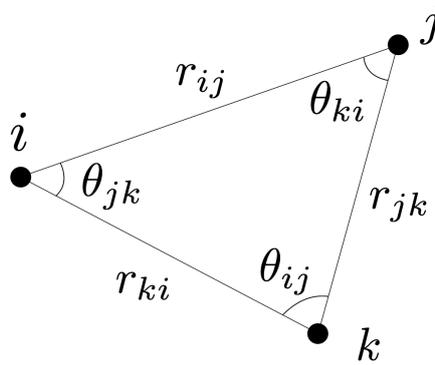


図 2.6 3 体間ポテンシャルの距離・角度の定義。

は付録 B に示した。4 次摂動の leading term である  $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  を記したのは、この項の寄与が 3 次の  $Z_{111}^{(3)}W_{111}^{(3)}$  以外の寄与と同程度であることが知られているためである [22]。文献 [25] によれば、4 次の摂動において、誘起双極子モーメントによる寄与のうち 90% 以上は 3 体間ポテンシャル  $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  であり、4 次摂動から出る 2 体間、4 体間ポテンシャルの寄与は無視できる。

4 次摂動の 3 体間ポテンシャルのうち、 $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  以外の高次の多重極モーメントの寄与についても考えてみる。式 (2.89) において、 $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  まで含めた場合とそうでない場合の Kr の構造因子 (数密度  $n = 1.522 \text{ nm}^{-3}$  の場合) を図 2.7 に示す。 $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  の有無による構造因子の変化は 0.2~0.1% であり、これより高次の項を考えても、それによる構造因子の変化は無視できるほど小さいと考えられる。そのため、本研究では  $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  までを扱うことにした。式 (2.89) の各項の強度係数  $Z$  は、過去いくつもの論

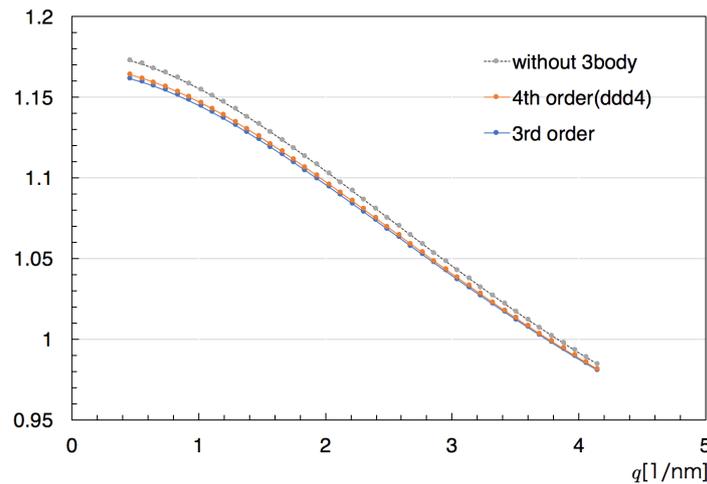


図 2.7  $Z_{111}^{(4)}W_{111}^{(4)}$  まで含めた場合とそうでない場合の Kr の構造因子 (数密度  $n = 1.522 \text{ nm}^{-3}$ )。参考として、3 体間ポテンシャルが無いと仮定した場合の構造因子を示した (破線)。

文で報告されている。表 2.2 にそれぞれの係数の値を示す。

本研究では、 $Z_{111}^{(3)}$  については文献 [30] に記載されている先行研究の平均値を用いることとし、これら

表 2.2 3 体間ポテンシャルの強度係数の値

強度係数	値
$Z_{111}^{(3)}$	$(2.177 \pm 0.125) \times 10^{-26} \text{ J nm}^9$
$Z_{112}^{(3)}$	$3.796 \times 10^{-28} \text{ J nm}^{11}$
$Z_{122}^{(3)}$	$6.482 \times 10^{-30} \text{ J nm}^{13}$
$Z_{113}^{(3)}$	$2.177 \times 10^{-29} \text{ J nm}^{13}$
$Z_{222}^{(3)}$	$3.916 \times 10^{-32} \text{ J nm}^{15}$
$Z_{111}^{(4)}$	$-8.602 \times 10^{-29} \text{ J nm}^{12}$

の標準偏差をのエラーとした\*6。  $Z_{112}^{(3)}$ ,  $Z_{122}^{(3)}$ ,  $Z_{113}^{(3)}$  については文献 [31] の値を用いた。  $Z_{222}^{(3)}$  の値は [32] に、  $Z_{111}^{(4)}$  は文献 [27] に従った。

\*6 文献 [30] には文献 [31] の結果も含まれている。

## 第 3 章

# ILL D22 実験

2017 年 3 月、フランスのグルノーブルにある中性子科学実験施設 Institut Laue-Langevin (ILL) の D22 ビームラインにおいて、次期高統計実験に向けたテスト実験を行った。本章ではこの実験について述べる。

### 3.1 実験環境

ILL D22 ビームラインは、中性子小角散乱実験に特化した世界最高強度の中性子フラックスを誇るビームラインである (図 3.1, 3.2)。先行研究 [12] の実験が行われた HANARO と比較しても数十倍のフラックスを得られるため、感度の改善を目指す上で最善の環境である。

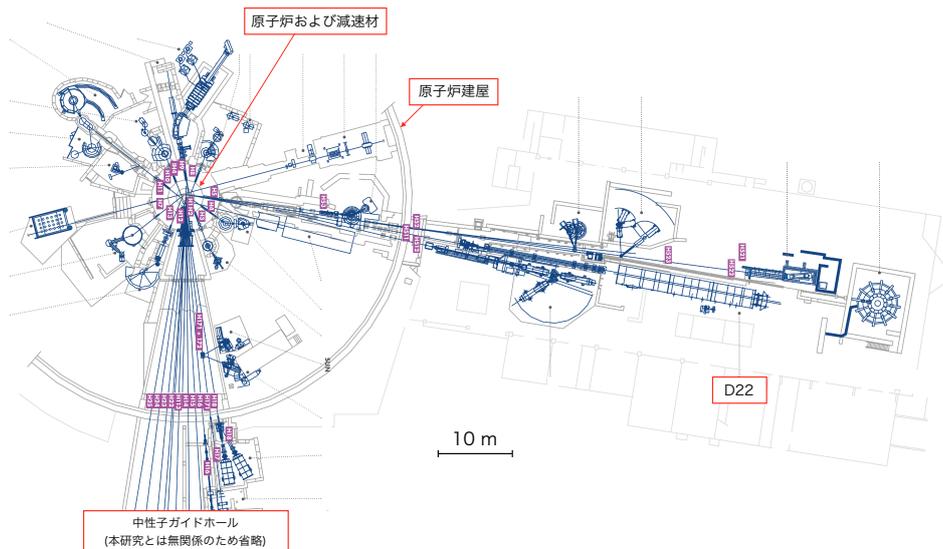


図 3.1 ILL の全体図 (文献 [33] を元に作成)

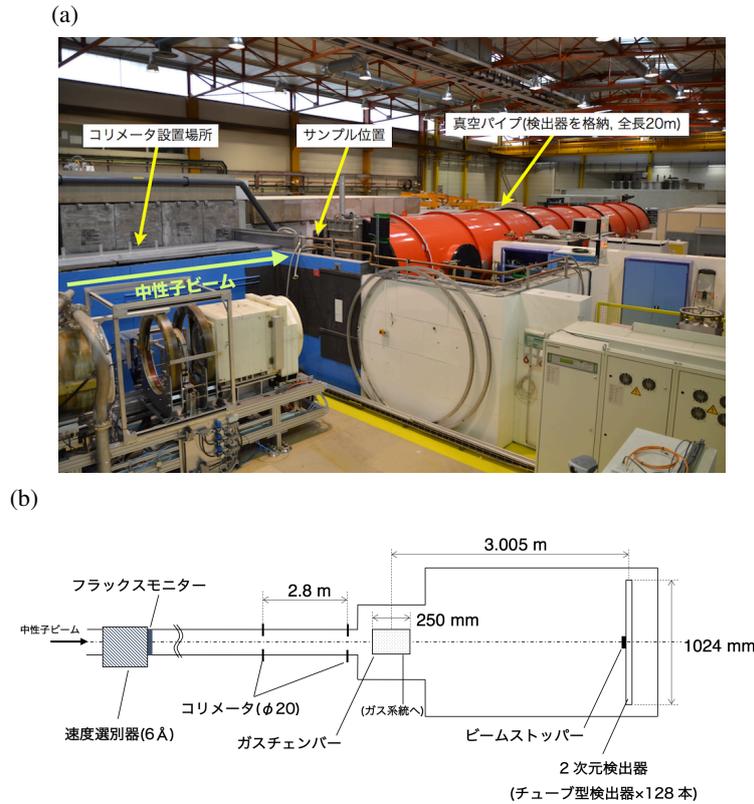


図 3.2 (a)D22 全景。コリメータより上流は全て自動化されている。図中サンプル位置に Xe ガスチェンバーおよびガスシステムを設置した。真空パイプ内には、検出器とそれを動かすためのレールがあり、適当な位置に検出器を置くことができる。(b)D22 ビームラインおよび本実験のセットアップの概略図。

### 3.1.1 中性子の生成と減速

ビームラインの最上流にはウラン  $^{235}\text{U}$  を燃料とする原子炉がある (図 3.1)。 $^{235}\text{U}$  の核分裂によって生じる中性子は、平均運動エネルギーが約 2 MeV、温度に換算して約  $2 \times 10^{10}\text{K}$  の高速中性子であるため<sup>\*1</sup>、軽い原子核と散乱させることで減速を行う。D22 ビームラインでは、第 1 段階の減速材として室温の重水 ( $\text{D}_2\text{O}$ )、そして第 2 段階の減速材として温度 25 K の液体重水素 ( $\text{D}_2$ ) を用いている。2 段階の減速を経た中性子のエネルギースペクトルを図 3.3 に示す [34]。

\*1 運動エネルギー  $E$  [eV] と温度  $T$  [K] の関係は、Boltzmann 定数  $k_B$  を用いて、 $T = E/k_B = 1.16 \times 10^4 E$  で与えられる。

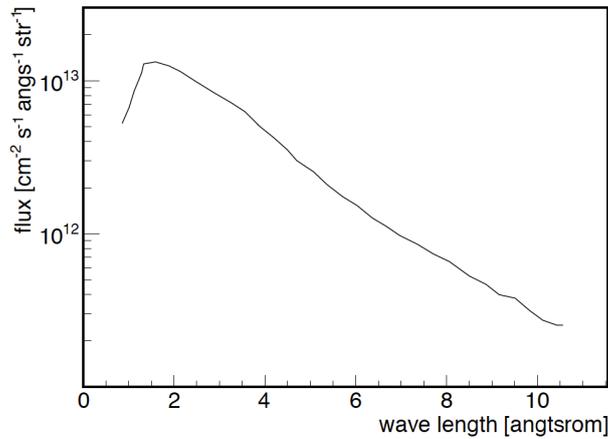


図 3.3 減速後の中性子のエネルギースペクトル (文献 [34])

### 3.1.2 波長選別器・ビーム整形

減速された中性子は中性子ガイドによって原子炉から実験ホールまで輸送される。実験ホール内に入ってきた中性子は、以下に述べる速度選別器、フラックスモニター、減衰材 (オプションで設置される)、コリメータを通してサンプルに照射される。

速度選別器は、図 3.3 に示したように様々な波長の中性子が混ざったビームの中から、特定の波長 (すなわち速度) を持った中性子のみを下流に送る装置である。速度選別器は図 3.4 のように一定の角度を持った螺旋状の羽を持つタービンで、羽には中性子吸収断面積の大きいホウ素  $10^{10}\text{B}$  のコーティングが施されている。そして、このタービンの回転速度を調整することで、特定の速度の中性子のみを通過させる。ILL D22 に設置されているのは Dornier 社 (現 EADS Astrium 社) 製の直径約 30 cm のもので、波長の選別分解能  $\Delta\lambda$  は  $\Delta\lambda/\lambda \sim 10\%$ (FWHM) である。

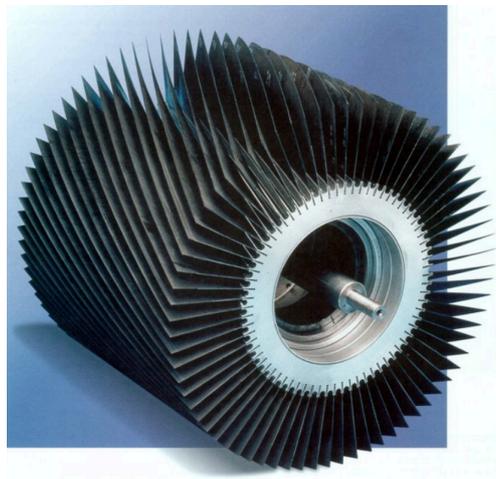


図 3.4 ILL D22 のものと同型の速度選別器 [35]

速度選別器の下流には、フラックスモニターが設置されている。フラックスモニターは中性子捕獲反応で得られた荷電粒子を、ワイヤ検出器で検出するものであるが、後述するヘリウム検出器とは異なり、吸収断面積の小さいガスを用いるなどして検出効率が  $10^{-5}$  程度になるようにされ、中性子フラックスの損失を避けている。フラックスモニターでのカウント数は実際の中性子フラックスに十分に高い精度で比例しており [36]、散乱中性子の強度をこのカウント数で規格化することによって、原子炉の出力の変動に伴うフラックスの変動があったデータや測定時間の異なる実験データを比較できるようになる。

フラックスモニターの下流には、減衰材を挿入できる領域がある。減衰材は細かい穴の空いたカドミウム (Cd) 板でできており [37]、本実験では中性子ビーム強度を約 1/1000 に減衰させるものを用いた。この減衰材は、サンプルやガスチェンバーを透過した中性子ビームの強度を測定する際に、検出器の不感時間の影響が大きくなめようビーム強度を落とす目的で挿入される。散乱分布を測定する際には減衰材は挿入せず、後述するビームストッパーを検出器の手前におくことで透過した中性子ビームを吸収する。

減衰材の下流には、コリメータを設置するための領域が約 18 m 設けられている。本実験では直径 20 mm のコリメータを 2.8 m 間隔で設置した。

### 3.1.3 真空槽

真空槽は、コリメータなどが置かれているビームパイプと、検出器が設置されている真空パイプを接合し、一体化させるために用いた (図 3.5)。内壁には中性子を吸収するために炭化ホウ素 ( $B_4C$ ) を含んだゴムが貼り付けられており、ガスチェンバーと真空槽との間には断熱のための厚さ 1cm のアクリル板を取り付けた。

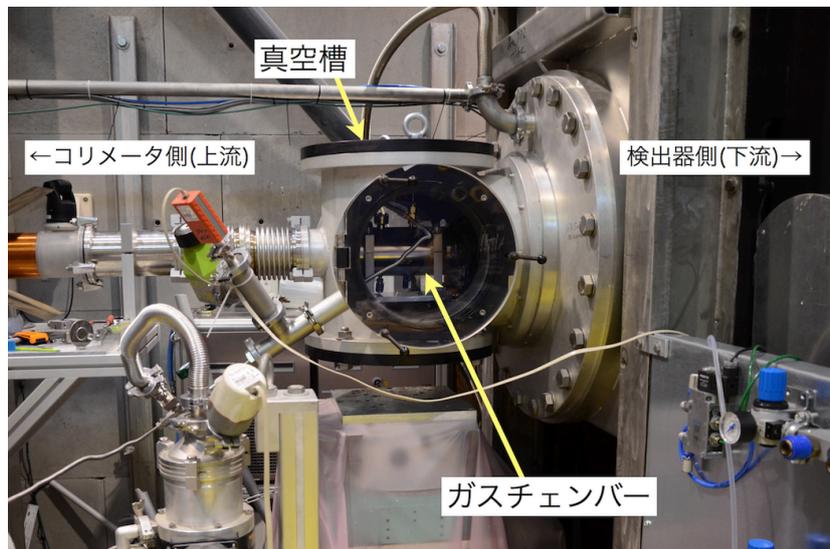


図 3.5 真空槽の様子。真空槽は上流側のビームパイプと下流側の検出器のある真空パイプを接合するために用いた。图中チェンバーと真空槽との間には断熱のためのアクリル板が取り付けられている。

### 3.1.4 検出器・ビームストッパー

ILL D22 の中性子検出器は GE Reuter-Stokes 社のヘリウム 3 ( $^3\text{He}$ ) ガスチューブ型 1 次元検出器 (以下、1 次元検出器) 128 本から成る (図 3.6)。

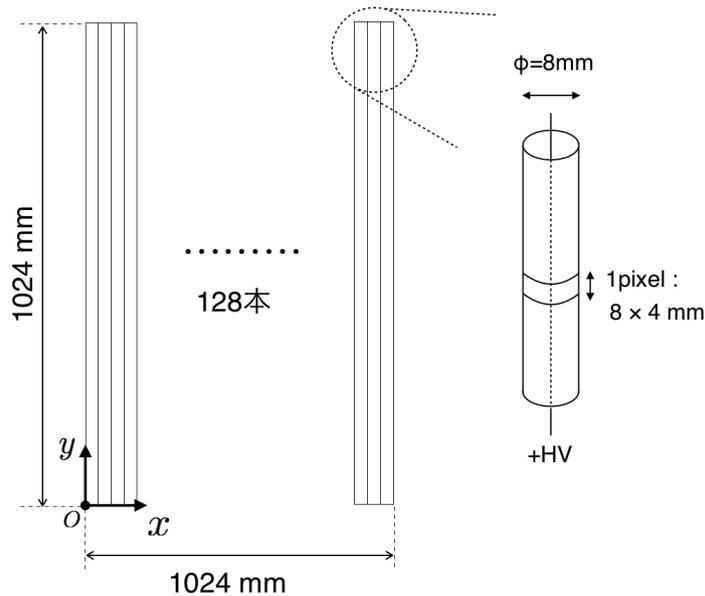


図 3.6 検出器の概要。 $^3\text{He}$  ガスチューブ型 1 次元検出器 128 本からなる。

1 本の 1 次元検出器は全長 1024 mm、直径 8 mm のステンレス製のチューブで、内部に  $^3\text{He}$ 、アルゴン (Ar)、メタン ( $\text{CH}_4$ ) が充填されている。この検出器に中性子が入射すると、中性子捕獲反応



によって荷電粒子  ${}^3\text{H}$  および  $p$  が生成する。これらの荷電粒子が Ar をイオン化し、チューブ外壁と中心のワイヤとの間の電場でガス増幅を起こす。そして、ワイヤで集められた電荷に対して、電荷分割法 (charge division) を用いることで、1 次元検出器のどこで中性子を検出したかがわかる。この時の位置分解能は約 5 mm ある。

チューブのどこで中性子を検出したかという位置情報は、その後、ADC (analog to digital converter) に送られる。ADC では、1 本のチューブ検出器の長さ 1024 mm の有感領域を、1 つあたり長さ 4 mm の小領域に分割し (全部で 256 個)、どの小領域内で検出されたかという情報を 8 ビット ( $2^8 = 256$ ) のデジタル信号に変換する。このデジタル信号はコンピュータに送られ、HDF ファイル形式で記録される [38]。ILL D22 の検出器は、この 1 次元検出器が 128 本並んでいるので、 $8 \times 4 \text{ mm}$  の領域を一つの "ピクセル" として扱い\*2、 $128 \times 256$  ピクセルの 2 次元検出器として動作する。

\*2 半導体を用いたピクセル検出器の概念とは異なるものだが、慣例にならないピクセルと呼称する。

検出器のピクセル毎の相対感度 (平均が 1 になるように規格化された感度) は一様な incoherent 散乱を与えることで知られている水またはバナジウム (V) を用いて測定されている (図 3.7)。実験で取得したデータは、ピクセル毎に図 3.7 の相対感度の値で割ることで補正を行った。

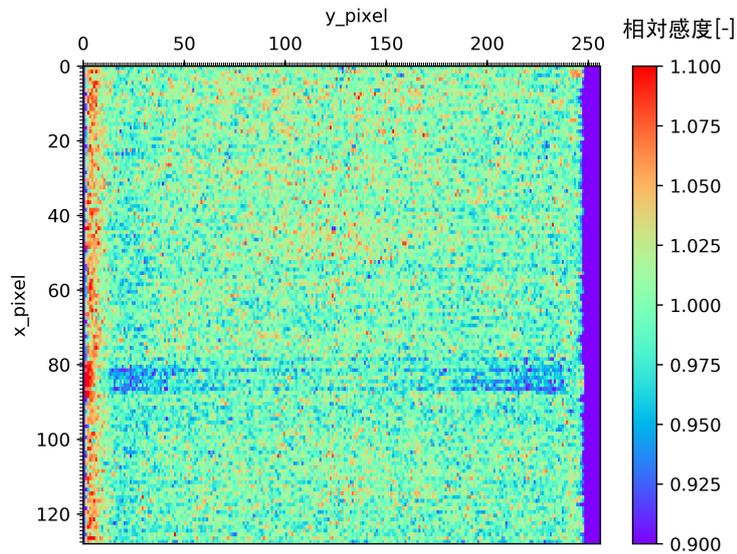


図 3.7 検出器の感度マップ

検出器の前面には、サンプルを透過してきた中性子ビームを止めるためのビームストッパーを設置することができる。本実験ではサイズが  $5.5 \times 7$  cm のものを用いた。ビームストッパーは、Xe ガスやガスチェンバーによる散乱を測定する時のみ設置し、透過率を評価するために透過中性子ビームの強度を測定する場合には取り除いた。透過中性子ビームを測定する際には、ビームストッパーを取り除く代わりに、先述の減衰材を用いてビームの強度を落としている。

## 3.2 装置

前節では、ILL D22 ビームラインの設備および中性子測定器について説明した。本節では、実験を行うために著者らが用意した Xe ガスチェンバーおよびガス系統について説明する。

### 3.2.1 Xe ガスチェンバー

本実験で用いた Xe ガスチェンバーを図 3.8 に示す。このガスチェンバーは、先行研究 [12] で用いたものと同じものである。本体は外径 114.3 mm、内径 110.1 mm のステンレス (SUS316) 製の円筒で、上流側と下流側には、中性子を透過させるための Si 単結晶製の窓が取り付けられている。窓は上流側が直径 18 mm、厚さ 1 mm であり、下流側が直径 100 mm、厚さ 5 mm である。Si 単結晶がチェンバーの中性子窓に適切である点として

- ・結晶構造により、ブラッグピークが生じる散乱角度以外の角度領域に、散乱のパターンが現れないこと

- ・中性子の吸収断面積が小さいこと
  - ・ガスの圧力に耐えられる強度を持っていること
- がある。

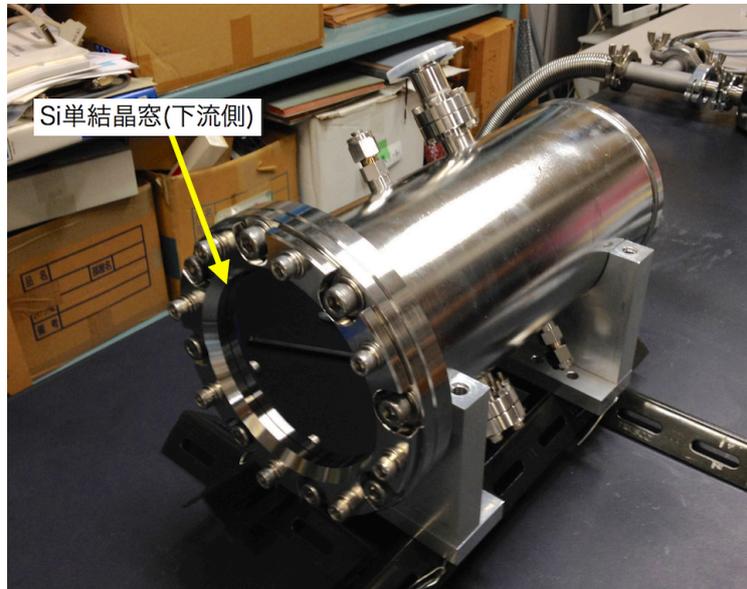


図 3.8 実験に用いた Xe ガスチェンバー (文献 [39] より)。

### 3.2.2 ガス系統

実験で用いたガス供給、制御系統を説明する。実験のために用意した配管の様子を図 3.9 に示す。散乱標的である Xe ガスではなく、ガスチェンバーの物質による散乱を測定する際には、バルブ 3 を閉め、バルブ 1,2 を開放することで真空ポンプによる吸引を行った。また、ガスを充填する際にはバルブ 2 を閉め、バルブ 1,3,4 を開放した。そして、レギュレータによって一定の圧力でガスが充填されるようにした。

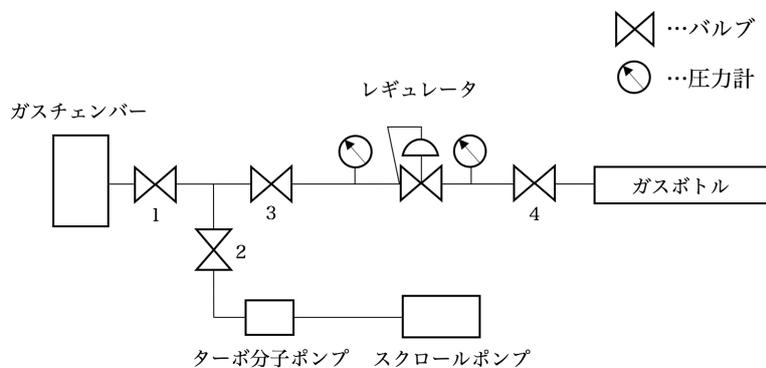


図 3.9 実験で用いたガス系統図。

### 3.3 実験内容

ILL D22 ビームラインでビームタイム中に取得したデータの一覧を表 3.1 に示す。取得したデータは散乱データと透過データに大別される。散乱データは、検出器の前に透過中性子を遮るためのビームストッパーを置き、散乱分布を測定したもので、一方の透過データは、減衰材を挿入して中性子強度を弱くした上でビームストッパーを取り除き、ガスチェンバーやガスの透過中性子の強度を測定したものである。各データには便宜上 A~F のインデックスを振ってある。

データ A は、バックグラウンド測定のためにビームを遮断するための Cd 板を設置して測定した。データ B は、ガスチェンバーに取り付けられた Si 窓による散乱の測定を目的とし、真空引きしたガスチェンバーを設置して測定を行った。データ C は、ガスチェンバーに Xe ガスを 1.6 気圧で充填し、これによる散乱を測定したものである。データ D は、中性子ビームの中心を決定するために測定したもので、ビーム軸上に減衰材のみを置いて測定した。データ E は、Si 窓による中性子の透過率 (transmission) を測定するために取得したもので、減衰材を設置しビームを弱めた上で、ビームストッパーを取り除いて、Si を透過してきた中性子ビームの強度を測定した。データ D と E の強度を比較することで、Si 単結晶窓 6 mm 分の透過率がわかる。データ F は Xe ガスの透過率を求めるために、データ E と同様に減衰材を設置し、ビームストッパーを取り除いて測定した。データ E と F を比較することで、ガスの透過率を求めることができる。ガスチェンバーを設置する際は、ガスチェンバー中心と検出器面までの距離が 3005 mm となるようにした。また、散乱測定中の Xe ガス透過率の時間依存性を把握するため、データ C の測定とデータ F の測定は交互に行った。

表 3.1 ILL D22 ビームラインにおいて取得したデータ

種類	index	名称	測定時間	概略図
散乱データ	A	Back Ground	20 min×5	
	B	Empty Chamber	1 hr×16	
	C	Gas(Xe:1.6 atm)+Chamber	3 hr×7	
透過データ	D	Direct Beam	1 min	
	E	Empty Chamber Trans.	5 min×2	
	F	Gas + Chamber Trans.	5 min×8	

## 3.4 結果

### 3.4.1 アウトガス・リーク測定

ガスチェンバーの内壁には空気分子が吸着しており、これが散乱測定中に壁面から脱離することで、Xe ガスの純度を下げたり真空度を下げたりして、測定に悪影響を及ぼす。このように壁面に吸着していた分子が脱離することによって発生するガスをアウトガスと呼ぶ。もし本実験で到達できる感度付近 (先行研究 [12] の 3 倍程度) に新しい相互作用が存在すると仮定すると、そのシグナルは中性子と Xe 原子との既知の相互作用による散乱の 0.3% 程度である。本実験では、Xe ガスを 1.6 atm ( $1.6 \times 10^5$  Pa) で封入するため、散乱測定中、Xe ガス以外のガス分子の量を 0.01% 以下に抑えられれば良いだろう。そこで、ビームラインで測定を行う前に、アウトガスの測定を行った。測定はまず、ガスチェンバー内を 0.29Pa まで真空引きした後、弁を封じ切り、ガスチェンバー内の気圧変化をモニターすることによって行った。この気圧変化は、アウトガス以外にもリークによっても生じる。封じ切り後のガスチェンバー内の気圧変化を図 3.10 に示す。傾きから、アウトガス・リークのレートは 1 時間あたり 0.5Pa であることが分かった。これは、1.6 atm の Xe ガス中で 20 時間の測定を行うと、ガスチェンバー内の分子のうち Xe ガス以外の分子が占める数の割合が 0.0063% となることを意味する。

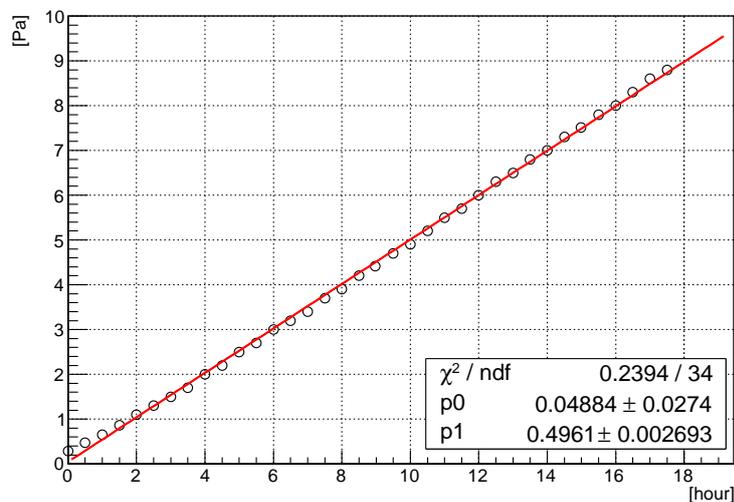


図 3.10 アウトガス・リーク量の時間変化

散乱体となる Xe ガスを充填したときのアウトガスの増加レートは、ガスチェンバーを真空引きしたときの増加レートに比べて小さいことが知られているので [40]、この測定の結果はアウトガス量の増加の上限を与えると言える。また、仮に気圧変化の主要因がリークであっても、ビームラインでの測定の際はガスチェンバー自体が真空槽に設置され、さらに Xe ガスは大気圧よりも高圧で充填されることから、この影響は低減される。これらの事実と上述の測定結果から、アウトガスおよびリークの影響は無視できる。

### 3.4.2 バックグラウンド測定

中性子ビームを遮断して行ったバックグラウンドの測定の結果を図 3.11 に示す (データ A)。図 3.11(a) の検出器のピクセル  $(i, j)$  番での値  $I_{BG}(i, j)$  は、フラックスモニターでのカウント数  $M_A$  で規格化したものである。つまり、検出器感度補正後のピクセル  $(i, j)$  番でのカウント数を  $n_A(i, j)$  とすると、

$$I_{BG}(i, j) = \frac{n_A(i, j)}{M_A} \quad (3.2)$$

である。図 3.11(a) において値が 0 になっているところは、マスク (後述) をかけているところである。また図 3.11(b) では、円環平均 (付録 C) を用いて、散乱分布のビーム中心からの距離  $r$  に対する依存性を示している (以後の  $r$  方向の分布についても同様に円環平均を行っている)。

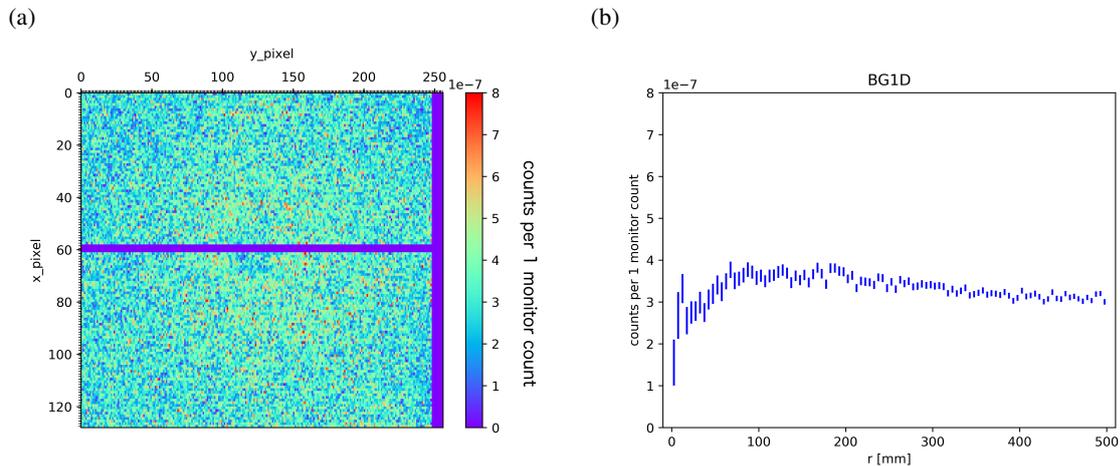


図 3.11 バックグラウンド強度  $I_{BG}$ 。(a)2次元の分布。後述するマスクをかけた後の状態のもの。(b) 検出器上でのビーム中心 (後述) からの距離  $r$  方向の分布。

バックグラウンドの原因として、1) 検出器のノイズ、2) 原子炉からビーム軸方向に沿って流れてくる中性子がある。1) は検出器の性能が均一ならば検出器上で一様になり、2) は検出器中央付近にビームストッパーがあるせいで検出器の中央で弱くなるような分布を持つ。図 3.11(b) を見てみると、ちょうどビームストッパーがある  $r$  の小さいところでバックグラウンドが減っているため、2) の影響が大きいことがわかる。

### 3.4.3 ビーム特性

表 3.1 のデータ D について述べる。取得したデータに対して検出器の不感時間補正を施し、検出器でのカウント数で示した結果を図 3.12 に示した。このデータは、減衰材によって約 1/1000 に減衰したものである。

図 3.12(b),(c) に示した、 $x$  軸および  $y$  軸への射影から、ビームの中心をフィッティングによって決定した。フィッティング関数として、 $x$  軸方向の射影にはガウシアンを、 $y$  軸方向への射影には 2 つのガウ

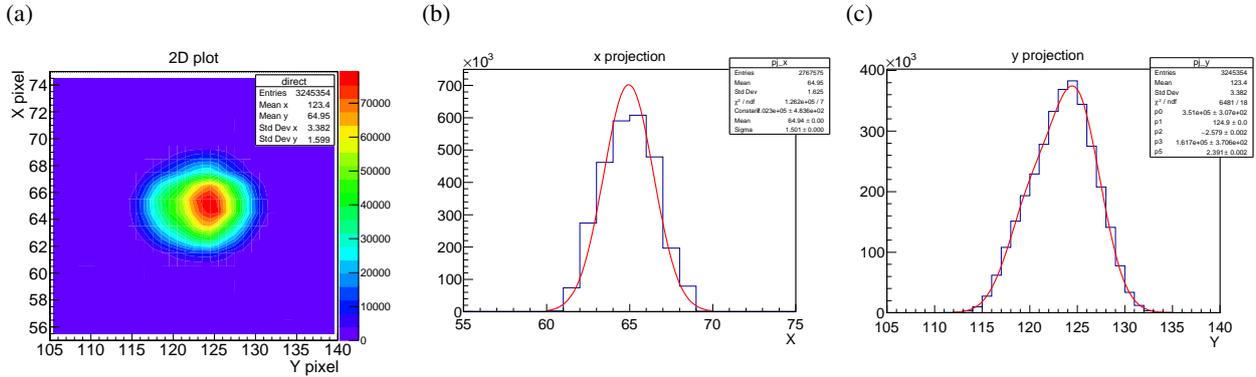


図 3.12 中性子ビームのプロファイル。(a)2次元。(b)検出器上のx軸への射影。(c)検出器上のy軸への射影。

シアンを重ね合わせた以下の式を用いた:

$$p_0 \exp \left\{ - \left( \frac{y - p_1}{2p_2} \right)^2 \right\} + p_3 \exp \left\{ - \left( \frac{y - 120}{2p_5} \right)^2 \right\}. \quad (3.3)$$

ここで、 $p_0 \sim p_5$  はフィッティングパラメータである。これにより、検出器上の原点(図 3.6 を参照)に対するビームの中心の座標を

$$x = 519.52 \text{ mm}, \quad y = 499.6 \text{ mm} \quad (3.4)$$

と決定した。

### 3.4.4 チェンバーによる散乱

この節では、チェンバーによる散乱と透過を測定したデータ B,E について述べる。この測定は、チェンバー内を真空にして行った。このデータは、データ C からチェンバーの寄与を差し引くために用いられるほか、Si 窓による中性子吸収の角度依存性の補正に必要な Si の吸収率を求めるために用いる。

データ B データ B は、1 時間の測定を 16 回に分けて連続して取得した。すべてのデータを足し合わせ、検出器感度補正を行い、バックグラウンドを差し引いたものを図 3.14 に示す。ここで、図 3.14 のピクセル  $(i, j)$  での値  $I_{\text{chamber}}(i, j)$  は、次のように計算したものである:

$$I_{\text{chamber}}(i, j) = \frac{n_B(i, j)}{M_B} - I_{\text{BG}}(i, j). \quad (3.5)$$

ここで、 $n_B(i, j)$  は検出器感度補正後のピクセル  $(i, j)$  でのカウント数、 $M_B$  はデータ B を取得中のフラックスモニターのカウント数、 $I_{\text{BG}}(i, j)$  は式 (3.2) で求めたバックグラウンド強度である。

二次元の散乱パターンには、丸みを帯びた三角形のような特徴的な分布が見られる。これは、Si 単結晶の構造が不完全であるために現れるものと考えられる。図 3.13 から分かるように、x 軸の 59 から 62 番にかけて、筋状のパターンが現れている。これは検出器の感度補正がこの番号の領域において完全でないことを意味しているので、本研究の解析においては、この領域のデータは扱わない(マスクする)ことにした。また、y 軸の 249 から 256 番にかけて、検出器の読み出し端子のカバー材による中性子の減衰が起

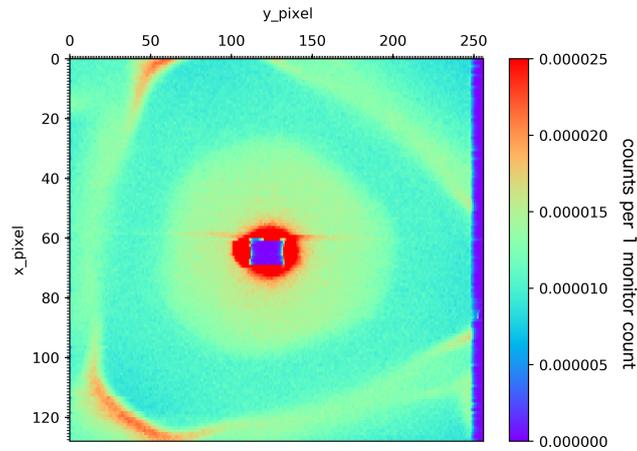


図 3.13 チェンバーによる散乱  $I_{\text{chamber}}$ 。丸みを帯びた三角形のようなパターンが現れていることがわかる。

きているので、この部分についても同様にマスクした。マスク後の散乱パターンを図 3.14 に示す。ビーム中心からの距離  $r$  方向の分布を示した図 3.14(b) では、ビーム中心からの距離  $r$  が 500 mm までしか記していないが、これはこれ以上の大角度領域では、一部の中性子がチェンバーのステンレス部分を通過し減衰しているためである。以降の解析でも、ビーム中心からの距離が 500 mm 以下の領域を扱うことにする。

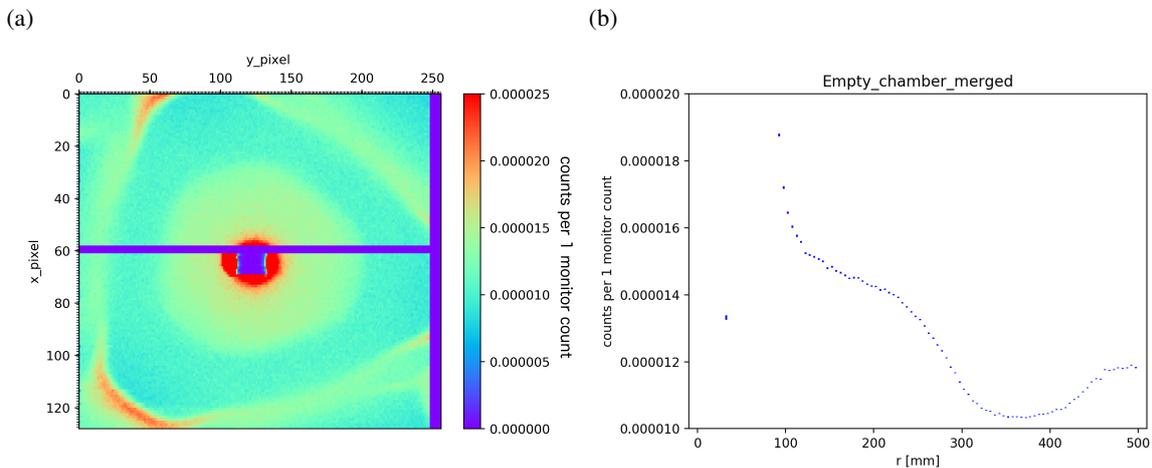


図 3.14 マスクを施した後のチェンバーによる散乱  $I_{\text{chamber}}$ 。(a)2次元の分布。(b)ビーム中心からの距離  $r$  方向の分布。

データ E データ E では、5 分間の測定を 2 回行った。データ E とデータ D を比較することで、チェンバーの透過率  $T_{\text{chamber}}$  が分かる。結果は、

$$T_{\text{chamber}} = 0.993 \quad (3.6)$$

となった。これは中性子が通過する Si 単結晶 6 mm 分の透過率であるから、ここから Si 単結晶の吸収係数  $\mu_{\text{Si}}$  を求めることができる。すなわち、入射前の中性子フラックスを  $I_0$ 、透過後のフラックスを  $I$  とすると

$$\frac{I}{I_0} = 0.993 = e^{-\mu_{\text{Si}}(6 \times 10^{-3} \text{ m})} \quad (3.7)$$

であることから、 $\mu_{\text{Si}} = 1.12 \text{ m}^{-1}$  が得られる。この結果は、後述する reference 分布を求める際、Si による中性子吸収の角度依存性を評価するために用いる。

### 3.4.5 ガスの透過率の評価

データ F とデータ E の比較によって、チェンバーに充填したガスの透過率  $T_{\text{gas}}$  を求めることができる。データ F の 8 回のそれぞれの測定におけるガス透過率を図 3.15 に示す。

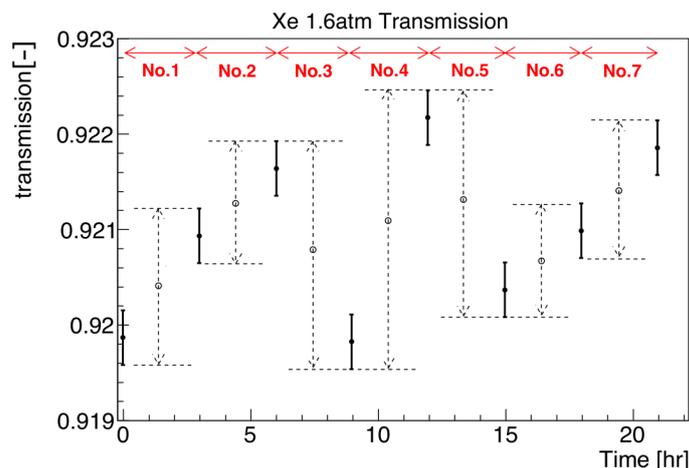


図 3.15 Xe ガスの透過率変化。黒丸 (●) で示したのが、データ F と E から求めた透過率。図上側の No. は、Xe ガスの散乱測定 (データ C) を行ったタイミングを表している。白丸 (○) は No.1 から 7 の Xe ガス散乱に適用する透過率  $T_{\text{gas}}$  で、前後の ● の値の平均値である。破線矢印で示したのが、○ に対するエラーである。

図 3.15 に示したように、透過率測定 (データ F) の間に Xe ガスの散乱測定 (データ C) を 3 時間ずつ行った。7 回のそれぞれの Xe ガス散乱に適用する透過率  $T_{\text{gas}}$  は、散乱測定の前後の透過率の平均値とした (例えば、No.1 の Xe ガス散乱データに適用するのは、0 時間目と 3 時間目に測定した透過率の平均値とした)。そして、平均を取った透過率に対するエラーは、エラーバーを含む前後の透過率の上限値と下限値により定めた (図中、破線矢印)。

### 3.4.6 Xe ガスによる散乱

データ C で取得した中性子の分布  $n_C(i, j)$  ( $i, j$  はピクセル番号。感度補正済みのもの) には、バックグラウンドの寄与とチェンバーによる散乱の寄与が含まれている。まずバックグラウンドの寄与を差し引く

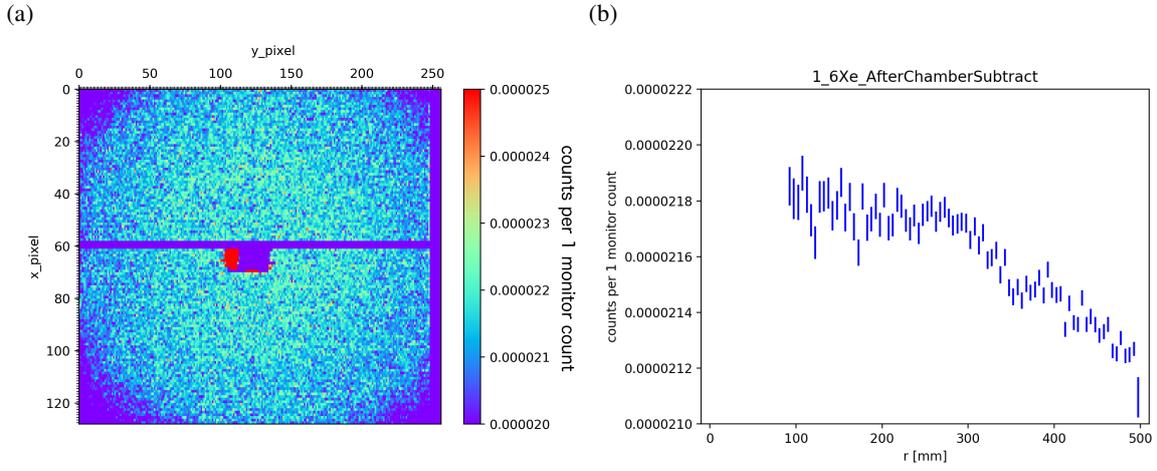


図 3.16 Xe ガスによる散乱  $\frac{n_{\text{gas}}}{M_C}$ 。(a)2次元の分布。(b) ビーム中心からの距離  $r$  方向の分布。

ためには

$$\frac{n_C(i, j)}{M_C} - I_{\text{BG}}(i, j) \quad (3.8)$$

を計算すればよい。ここで、 $M_C$  はデータ C 取得中のフラックスモニターのカウント数であり、 $I_{\text{BG}}(i, j)$  は式 (3.2) で求めたバックグラウンド強度である。次に、チェンバーからの寄与を差し引くには、Xe ガスによる中性子の吸収を補正し、以下の量を求めればよい：

$$\frac{1}{T_{\text{gas}}} \left\{ \frac{n_C(i, j)}{M_C} - I_{\text{BG}}(i, j) \right\} - I_{\text{chamber}}(i, j). \quad (3.9)$$

上式は、全体がチェンバーによる吸収の効果を含んでいるのでこれをチェンバーの透過率  $T_{\text{chamber}}$  を用いて補正することで、Xe ガスによる散乱の寄与  $n_{\text{gas}}(i, j)/M_C$  を得る：

$$\frac{n_{\text{gas}}(i, j)}{M_C} = \frac{1}{T_{\text{chamber}}} \left[ \frac{1}{T_{\text{gas}}} \left\{ \frac{n_C(i, j)}{M_C} - I_{\text{BG}}(i, j) \right\} - I_{\text{chamber}}(i, j) \right]. \quad (3.10)$$

Xe 原子による散乱の総カウント数  $n_{\text{tot}} \equiv \sum_{i, j} n_{\text{gas}}(i, j)$  は  $1.06 \times 10^8$  となった。これは先行研究 [12] の 10 倍である。後の 3.5.2 節で述べるが、式 (3.10) において全体を定数倍する因子  $\frac{1}{T_{\text{chamber}}}$  を無視したとしても、新しい相互作用の寄与の評価には影響しない ( $n_{\text{tot}}$  の大きさが変化することにより、フィッティング結果の誤差が因子  $\frac{1}{T_{\text{chamber}}}$  だけ変化する)。そのため、因子  $\frac{1}{T_{\text{chamber}}}$  は無視することにする。このようにして得られたガスによる散乱分布を図 3.16 に示す。

## 3.5 解析

### 3.5.1 確率密度関数

Xe 原子による散乱で得られる分布は、次のような確率密度関数  $f(r; \beta)$  に従っている：

$$f(r; \beta) = (1 - \beta)\{(1 - \alpha)h_{\text{const}}(r) + \alpha h_{\text{ne}}(r)\} + \beta h_{\text{new}}(r) \quad (3.11)$$

$$\int_{\text{accept.}} dr f(r; \beta) = \int_{\text{accept.}} dr h_j(r) = 1, \quad j = \{\text{const, ne, new}\}. \quad (3.12)$$

ここで、 $\alpha : 1 - \alpha$  は ne 散乱と等方散乱の寄与の比を表し、フィッティングパラメータである  $\beta : 1 - \beta$  は新しい相互作用による散乱と既知の相互作用による散乱の比を表している。 $\alpha$  の値は、2.1.3 節で定義した  $\chi_{\text{ne}}$  の大きさをもとにモンテカルロ法を用いて求め、その大きさは  $\alpha \approx 1 \times 10^{-4}$  である。 $h_j(r)$  は等方散乱項、ne 散乱項、新しい相互作用項ごとの確率密度関数である。

各相互作用ごとの確率密度関数  $h_j(r)$  は、次のように得る。まず、原子の熱運動、ビーム形状、散乱位置の分布、Xe, Si による中性子吸収を考慮に入れたモンテカルロ法によって、検出器上の分布をシミュレートする。このとき、作成する分布 (reference 分布と呼ぶ) の統計誤差が、実験データの統計誤差より十分に小さくなるようにする。各相互作用ごとの reference 分布を図 3.17-3.19 に示す。そして、検出器上の動径  $r$  方向のヒストグラムをその面積で割ることで、各相互作用項ごとの確率密度関数  $h_j(r)$  が得られる (図 3.20)。

実験で得られた散乱データの分布の形状と、式 (3.11) の形状を比較し、パラメータ  $\beta$  の大きさを評価することで新しい相互作用の探索が可能となる。次節では、 $\beta$  の大きさを求めるための最尤推定法について説明する。

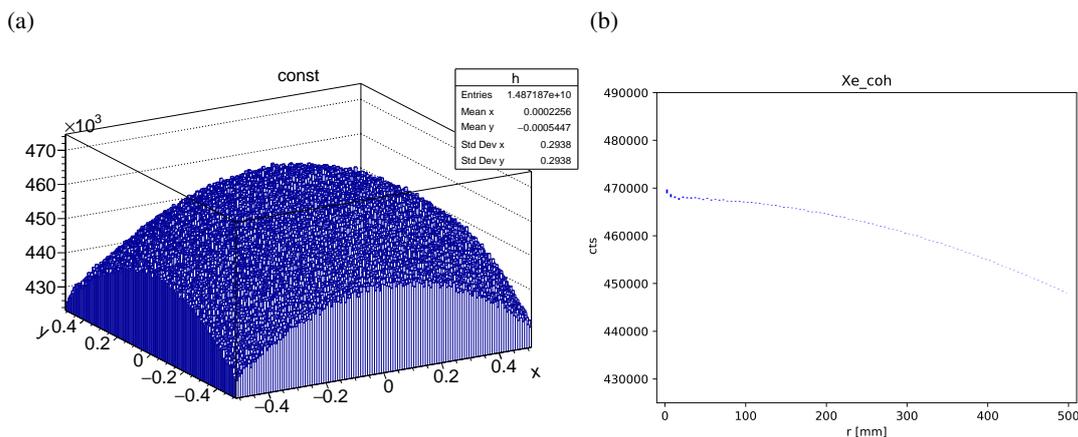


図 3.17 等方散乱項の reference 分布

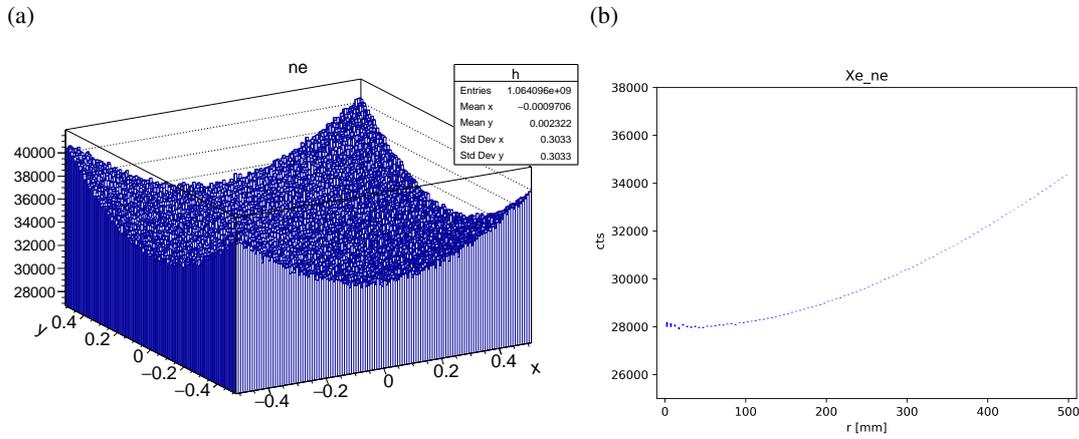
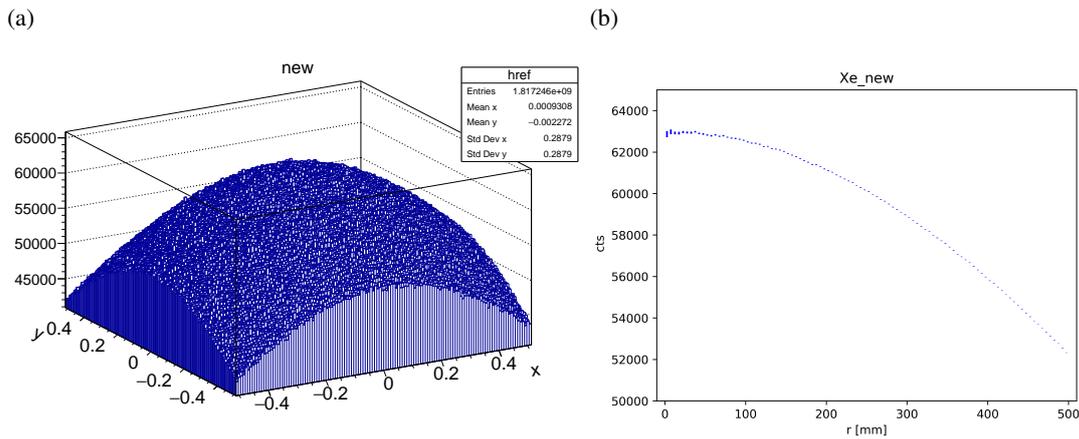


図 3.18 ne 散乱項の reference 分布

図 3.19 新しい相互作用による散乱の reference 分布 ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ )

### 3.5.2 ビンに分けられたデータの最尤推定法

本実験の解析では、図 3.16(b) のようにヒストグラムを作成し、そのビンに入れられたデータを用いて最尤推定法を行い、新しい相互作用の強さについて推定を行う。ここでは、最尤推定法で決定するパラメータを  $\theta$  (新しい相互作用の寄与を評価するときには  $\theta = \beta$  である。しかし、後の節ではデータ処理の妥当性を確認するために  $\theta = \alpha$  として用いている。) として、ビンを用いた最尤推定法について述べる。導出は文献 [41] に従う。

確率密度関数  $f(r, \theta)$  に従う確率変数  $r$  の測定を  $n_{\text{tot}}$  回行い、 $N$  個のビン (ビン番号を  $i$  とする) を持つヒストグラムを作成したとき、それぞれのビンでのカウント数が  $n = (n_1, \dots, n_N)$  となったとする。このとき、 $i$  番目のビンのカウント数の期待値  $\nu_i$  は

$$\nu_i(\theta) = n_{\text{tot}} \int_{r_i^{\min}}^{r_i^{\max}} dr f(r, \theta) \quad (3.13)$$

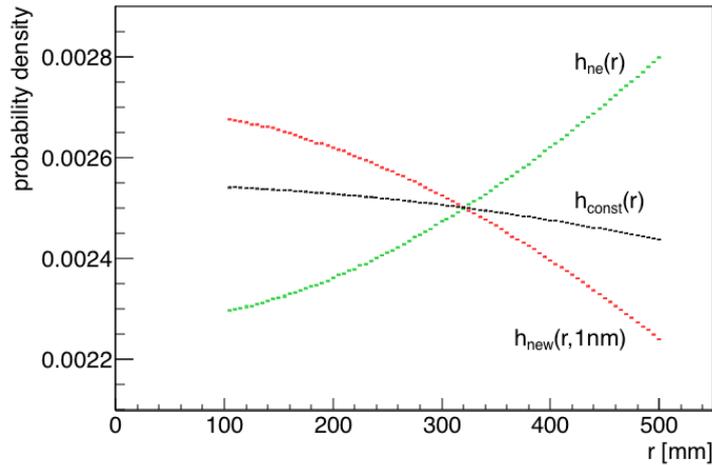


図 3.20 各相互作用ごとの確率密度関数  $h_j(r)$

と書くことができる。すると、確率変数  $r$  が  $i$  番目のビンに入る確率は  $\nu_i/n_{\text{tot}}$  で与えられるから、期待値  $\nu(\theta) = (\nu_1, \dots, \nu_N)$  の下でヒストグラムの各ビンのカウント数が  $\mathbf{n} = (n_1, \dots, n_N)$  となる確率  $g(\mathbf{n}|\nu(\theta))$  は、次の多項分布に従う：

$$g(\mathbf{n}|\nu(\theta)) = \frac{n_{\text{tot}}!}{n_1! \dots n_N!} \prod_i \left( \frac{\nu_i}{n_{\text{tot}}} \right)^{n_i} = \frac{n_{\text{tot}}!}{n_1! \dots n_N!} \prod_i \left[ \int_{r_i^{\min}}^{r_i^{\max}} dr f(r, \theta) \right]^{n_i}. \quad (3.14)$$

この  $g(\mathbf{n}|\nu(\theta))$  が最大になるような  $\theta$  を求め推定値とすれば良い。しかし、 $g$  のままでは複雑なので  $\theta$  に依存する部分だけを取り出して、これを尤度関数 (likelihood function)  $L$ ：

$$L \equiv \prod_i \left[ \int_{r_i^{\min}}^{r_i^{\max}} dr f(r, \theta) \right]^{n_i} \quad (3.15)$$

とし、これの対数をとった

$$\log L = \sum_i n_i \log \int_{r_i^{\min}}^{r_i^{\max}} dr f(r, \theta) \quad (3.16)$$

を最大にする  $\theta$  が推定値  $\hat{\theta}$  である。また、パラメータ  $\theta$  の誤差は次のように求められる：

$$\sigma_{\hat{\theta}}^2 = - \left. \frac{1}{\left( \frac{\partial^2 \log L}{\partial \theta^2} \right)} \right|_{\theta=\hat{\theta}}. \quad (3.17)$$

### 3.5.3 散乱データと reference 分布の比較

図 3.21 に、規格化した散乱データ (図 3.16(b)) と確率密度関数  $h_j(r)$  の比較を示す。データ処理の妥当性を確認するために、新しい相互作用の寄与を無視して ( $\beta = 0$  として)、ne 散乱項の寄与  $\alpha$  の大きさを上述のフィッティングによって評価すると、 $\alpha = (5.5 \pm 0.1) \times 10^{-2}$  となり、 $\chi_{\text{ne}}$  をもとに求めた値と大きくかけ離れた。これは、大角散乱が強めに測定されていることによる。この原因として考えられるのが、と呼ばれる検出器の 3 次元的な形状に起因する次の 2 つの影響である。

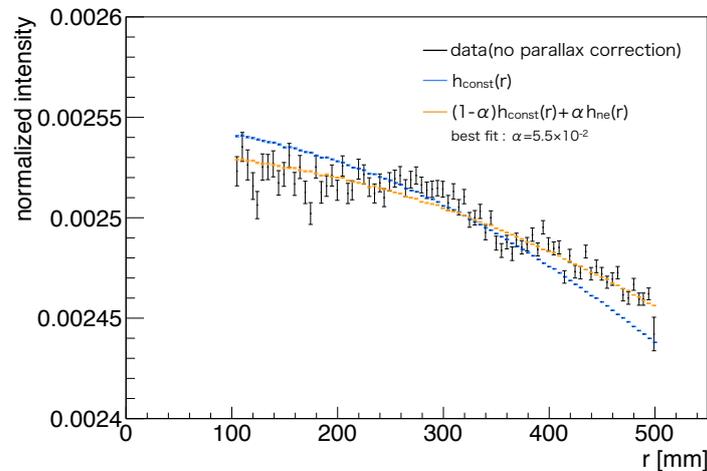


図 3.21 規格化した Xe ガスによる散乱と既知の相互作用の確率密度関数との比較。既知の相互作用の確率密度関数  $h_{\text{const}}(r)$ ,  $h_{\text{ne}}(r)$  を用いて、式 (3.11) のパラメータ  $\alpha$  を推定したところ、 $\alpha = (5.5 \pm 0.1) \times 10^{-2}$  を得た。

### 1. 隣接するピクセルによる遮蔽効果

ILL D22 の検出器は 3.1.4 節で述べたようにチューブ型の検出器が並べられている。このため、図 3.22(a) に示すように隣接するチューブによる中性子の遮蔽が生じ、水平方向の散乱角度が大きいほど、ピクセルの有感領域は小さくなる。さらに、垂直方向についても隣接するピクセルによる遮蔽効果が生じる (図 3.22(b))。

### 2. チューブ内の飛距離の変化

垂直方向の散乱角が大きいほど中性子の通過できる長さが増加し、中性子検出感度が大きくなっていく。また 1 つのピクセル内においても、散乱角度によってピクセルの奥行きは変化する。

この 2 つの効果をまとめて**視差効果** (parallax effect) と呼ぶ。

本研究では、x 方向の角度依存性を文献 [42] (Fig. 4.1, Grasp のもの) に示された校正曲線を用いて評価し、y 方向の依存性は文献 [43] の計算結果を検出器距離をスケールすることで評価した。これによって求めた視差効果による感度変化を図 3.23 に示す。これによれば、水平方向の散乱角が大きいほど検出器の感度は低くなり、垂直方向の散乱角が大きいほど検出器の感度は大きくなるが、わずかに y 方向の感度変化の方が大きい。図 3.23 に示した値で測定データを割ることで、この角度依存性を補正することにした。

視差効果の補正後の分布を図 3.24 に示す。補正後の分布を用いてパラメータ  $\alpha$  の大きさを求めたところ  $\alpha = (3.5 \pm 0.1) \times 10^{-2}$  を得、補正前と比べて改善したが、依然として本来の値  $\alpha \approx 10^{-4}$  と比較して大きい。この原因として、文献 [43] の y 方向の補正では中性子波長  $\lambda = 4.5 \text{ \AA}$  を仮定して計算しており、本実験の中性子波長  $\lambda = 6 \text{ \AA}$  よりも短い点が挙げられる。一般に、中性子吸収断面積は中性子速度に反比例する ( $1/v$  則) ため、中性子波長の長い (=中性子速度が遅い) 本実験の方が  $^3\text{He}$  による吸収の効果が大きい。そのため、検出器チューブ内を通過する距離の変化が検出感度に与える影響が大きくなる。その結

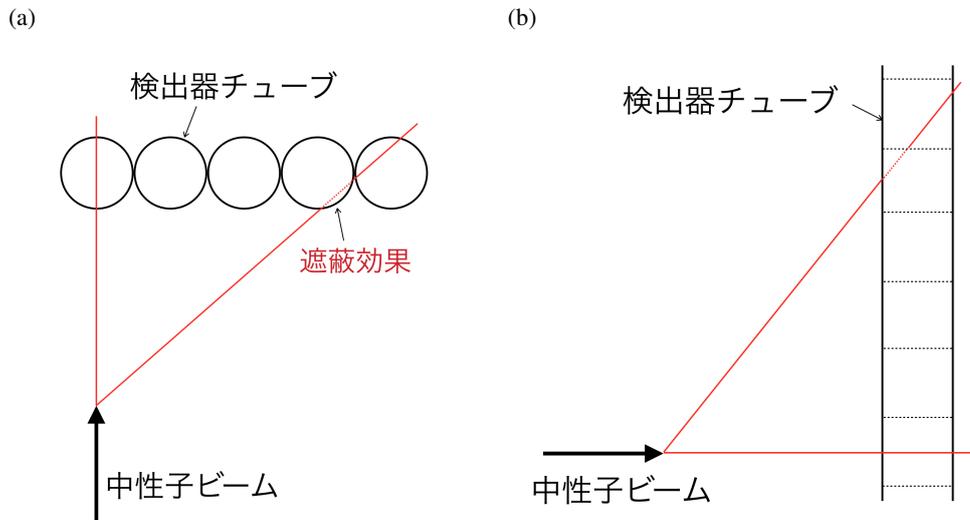


図 3.22 (a) 水平方向の遮蔽。(b) 垂直方向の遮蔽。

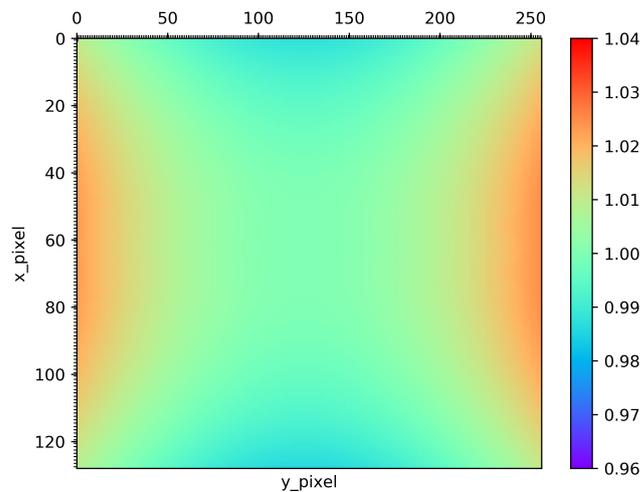


図 3.23 視差効果による感度変化。水平方向 (x 方向) の散乱角度が大きいほど感度が小さくなり、垂直方向 (y 方向) の散乱角度が大きいほど感度が大きくなる。

果、著者らの測定では、垂直方向の散乱角度が大きい領域において、図 3.23 に示した y 方向の感度変化の度合いよりも多めに中性子を検出している可能性がある。上に述べた中性子波長の相違以外にも本研究で考慮した視差効果の補正が、上述のように x 方向と y 方向で別の情報源によるものを施しているなどの問題点もある。そのため、視差効果の影響を実験によって定量的に確かめておく必要がある。その方法については、5.1 節で述べることにする。

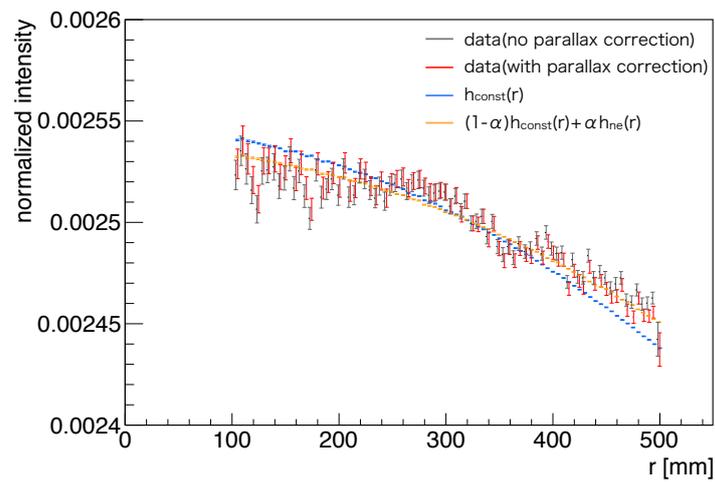


図 3.24 視差効果補正後の Xe ガスによる散乱と既知の相互作用の確率密度関数との比較。既知の相互作用の確率密度関数  $h_{\text{const}}(r)$ ,  $h_{\text{ne}}(r)$  を用いて、式 (3.11) のパラメータ  $\alpha$  を推定したところ、 $\alpha = (3.5 \pm 0.1) \times 10^{-2}$  を得た。

## 第 4 章

# 高压ガスを用いる手法

### 4.1 新しい相互作用が構造因子に与える影響

第 2 章では、原子間ポテンシャルによって構造因子が表されることを見た。しかし、新しい相互作用が存在する場合には、原子間にもその相互作用は働くはずであり、むしろ中性子と原子との間に働くものよりも、質量が大きい分強くなる。そこで、この節では原子間に新しい相互作用が働くとき、働かないときと比べてどの程度、構造因子の形状が変化するかを考える。図 4.1 に示したのは、式 (2.85) に示した 2 体間ポテンシャルに新しい相互作用を足したり (図中  $+V^{\text{new}}$ )、引いたり (図中  $-V^{\text{new}}$ ) して計算した構造因子と、式 (2.85) だけを用いて計算した構造因子の差である。仮定する新しい相互作用の結合定数  $g^2$  の値として、設定した  $\lambda$  における、本論文執筆時の上限値 (図 1.1 を参照) を用いた。

計算の結果、新しい相互作用の到達距離  $\lambda$  が 0.1 nm よりも短い場合には、構造因子への影響は現れないことが分かった。これは、新しい相互作用の作るポテンシャルが、図 2.5 の 4 より短距離にあるような斥力芯に埋もれてしまうためであると考えられる。また、一番影響が強く現れる  $\lambda = 1$  nm の時の構造因子の変化は最大で  $10^{-6}$  程度であることが分かった。これは新しい相互作用によって散乱長が変わることによる散乱強度の変化： $10^{-3} \sim 10^{-2}$  と比べて十分小さいため、無視することができる。

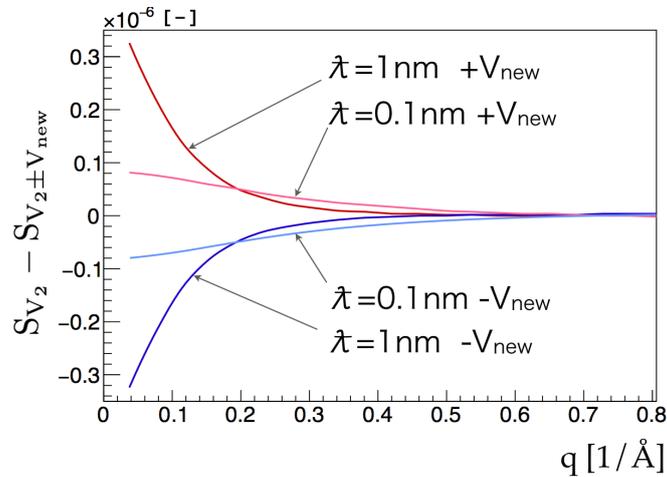


図 4.1 新しい相互作用による構造因子  $S(q)$  の変化。数密度として  $n = 2.5 \text{ nm}^{-3}$  を仮定。

表 4.1 Benmore 実験のパラメータ

名称	値
散乱ガス	$^{86}\text{Kr}$
中性子波長	4.0 Å
温度	$297.6 \pm 0.5 \text{ K}$

## 4.2 解析に用いた実験データ

高圧ガスを用いた散乱実験のデータには、1999年に Benmore らによって測定されたクリプトン  $^{86}\text{Kr}$  の小角散乱実験 [44] のものを用いた。この実験は、3 体間ポテンシャルの強度を測定するために行われたもので、ne 散乱や新しい相互作用の存在は無視されている。実験に用いられたのは、フランスの Saclay 研究所内の中性子実験施設 LLB にある小角散乱装置 PAXE である。実験の主なパラメータを表 4.1 に示す。

散乱ターゲットとして用いられた  $^{86}\text{Kr}$  は式 (2.50) の  $b_i$  が 0 となる。これにより、 $b_i$  の不定性による系統誤差を無くすることができる。また、中性子捕獲による中性子吸収が起きにくく吸収断面積が自然組成の Kr の 1/8000 程度と小さいので、吸収の補正に伴う系統誤差を抑えることができる。

散乱の測定は次の 5 つの状態について行われた。Benmore らによれば、数密度  $n_j$  ( $j = 1 \sim 5$ ) の誤差は 0.5% である。

表 4.2 Benmore 実験で測定された状態

番号 $j$	気圧 [atm]	数密度 $n_j$ [ $\text{nm}^{-3}$ ]
1	$30.5 \pm 0.1$	0.804
2	$54.8 \pm 0.2$	1.522
3	$68.9 \pm 0.3$	1.984
4	$76.1 \pm 0.3$	2.231
5	$82.1 \pm 0.3$	2.431

この実験によって得られた散乱分布を図 4.2 に示す。図 4.2(a) は、バックグラウンドやチェンバーによる寄与を差し引く前のデータであり、図 4.2(b) はバックグラウンドおよびチェンバーの寄与を差し引き、非弾性散乱および検出器の検出効率の補正を行ったデータに対し、ne 散乱長と新しい相互作用の存在を無視して

$$b_{\text{coh,m}}^2(q) \rightarrow b^{\text{const}^2} \quad (4.1)$$

として求めた構造因子の値である。この構造因子の値を  $S_{\text{data}}(q_i, n_j)$  とおく。Benmore らによれば各点の統計誤差は 0.5% とされているので、これに従った。

ne 散乱と新しい相互作用を考慮すると、Benmore らによって報告された  $S_{\text{data}}(q_i, n_j)$  は、真の構造因

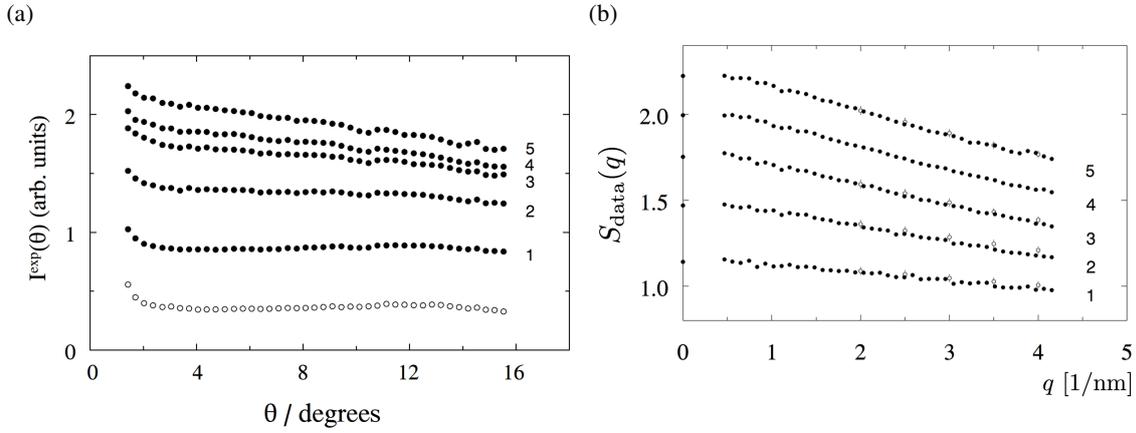


図 4.2 (a) 生データ。白丸はチェンバーのみによる散乱。右側の番号は表 4.2 に示した状態の番号を表す。(b) 補正後。右側の番号は状態の番号で、番号 2~5 はそれぞれ 0.2、0.4、0.6、0.8 だけ上にシフトさせてある(データ点の重なりを防ぐため)。白丸は、過去に行われたクリプトンによる散乱実験のデータ [45] である。(a),(b) とともに文献 [44] より引用。

子  $S(q, n)$  と次のような関係になっている：

$$S_{\text{data}}(q_i, n_j) = \left\{ 1 + 2\chi_{\text{ne}}[1 - f(q_i)] + \frac{2\chi_{\text{new}}}{1 + (q_i\lambda)^2} \right\} S(q_i, n_j). \quad (4.2)$$

そこで、この真の構造因子  $S(q_i, n_j)$  を式を用いて原子間ポテンシャルから計算し、フィッティングによってパラメータ  $\chi_{\text{new}}$  を決定すれば、新しい相互作用に対する感度を評価できる。

## 4.3 解析

### 4.3.1 散乱強度の規格化

図 4.2(b) に示した構造因子  $S_{\text{data}}(q_i, n_j)$  を関数

$$\left\{ 1 + 2\chi_{\text{em}}[1 - f(q)] + \frac{2\chi_{\text{new}}}{1 + (q\lambda)^2} \right\} S(q, n) \quad (4.3)$$

を用いてフィッティングし、 $\chi_{\text{new}}$  の値を評価したいところだが、これには問題がある。図 4.2(b) は、式 (2.52) から分かるように、散乱強度を  $b_{\text{coh},m}^2(q)$  (今は  $b^{\text{const}^2}$ ) で割って求めた構造因子の絶対値である。しかし、 $^{86}\text{Kr}$  の  $b^{\text{const}}$  の不定性が大きいので、構造因子の絶対値には系統的な大きな誤差があるのである。この影響を避けるためには、各状態の構造因子の面積が 1 になるように規格化し、構造因子の形状のみに注目すればよい。規格化後の構造因子の値を  $I_{\text{data}}(q_i, n_j)$  とし、これを図 4.3 に示す。

これに対応して、フィッティング関数も規格化された

$$I(q, n; \chi_{\text{new}}) \equiv \frac{\left\{ 1 + 2\chi_{\text{em}}[1 - f(q)] + \frac{2\chi_{\text{new}}}{1 + (q\lambda)^2} \right\} S(q, n)}{\int dq \left\{ 1 + 2\chi_{\text{em}}[1 - f(q)] + \frac{2\chi_{\text{new}}}{1 + (q\lambda)^2} \right\} S(q, n)} \quad (4.4)$$

を用いる。

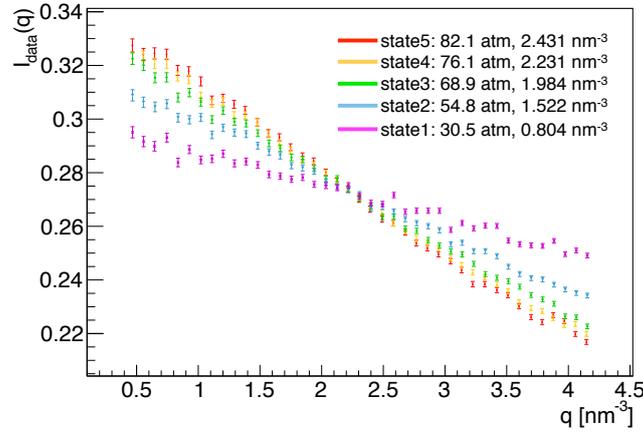


図 4.3 規格化後の構造因子  $I_{\text{data}}(q_i, n_j)$

### 4.3.2 尤度関数

規格化した構造因子  $I_{\text{data}}(q_i, n_j)$  に対する統計誤差  $\sigma_{ij}$  とする。 $I_{\text{data}}(q_i, n_j)$  がフィッティング関数の周りで分散  $\sigma_{ij}^2$  のガウス分布に従うと仮定すると、最大化すべき尤度関数  $L$  は 41 × 5 個のガウス分布の積

$$L = \prod_{j=1}^5 \prod_{i=1}^{41} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{ij}^2}} \exp \left\{ -\frac{(I_{\text{data}}(q_i, n_j) - I(q_i, n_j; \chi_{\text{new}}))^2}{2\sigma_{ij}^2} \right\} \quad (4.5)$$

である。今回は、数密度  $n_j$  も 0.5% の誤差を持っていることが分かっている (これを  $\sigma_{n_j}$  とする) ので、これらも、平均値が表 4.2 に与えられた値 (これを  $n_j^{\text{mean}}$  とする) で、分散が  $\sigma_{ij}^2$  で与えられるようなガウス分布に従うと仮定し、フィッティングパラメーターに加えることにした。すると尤度関数は次のように修正される：

$$L = \prod_{j=1}^5 \prod_{i=1}^{41} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{ij}^2}} \exp \left\{ -\frac{(I_{\text{data}}(q_i, n_j) - I(q_i, n_j, \chi_{\text{new}}))^2}{2\sigma_{ij}^2} \right\} \times \prod_{j=1}^5 \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{n_j}^2}} \exp \left\{ -\frac{(n_j - n_j^{\text{mean}})^2}{2\sigma_{n_j}^2} \right\} \quad (4.6)$$

このような尤度関数を用いる最尤推定法を最大事後分布推定 (MAP 推定) と呼ぶ。この尤度関数の対数をとり正負の符号を反転させると、尤度関数の最大値は

$$-\log L = \sum_{j=1}^5 \sum_{i=1}^{41} \left\{ \frac{(I_{\text{data}}(q_i, n_j) - I(q_i, n_j, \chi_{\text{new}}))^2}{\sigma_{ij}^2} \right\} + \sum_{j=1}^5 \left\{ \frac{(n_j - n_j^{\text{mean}})^2}{\sigma_{n_j}^2} \right\} \quad (4.7)$$

の最小値として与えられる。本研究では、まず  $I(q_i, n_j, \chi_{\text{new}})$  を 3 次摂動までの 3 体間ポテンシャルを考慮した構造因子  $S_{3\text{rd}}(q)$  に対して式 (4.4) の積分を行うことによって求め、次に式 (4.7) を最小化するようなフィッティングによって  $\chi_{\text{new}}$  の推定値  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  を求めた。その結果を表 4.3 に示す。

表 4.3 フィッティング結果

到達距離 $\lambda$ [nm]	$\hat{\chi}_{\text{new}} \pm \sigma_{\hat{\chi}_{\text{new}}}$
0.05	$-0.0196 \pm 0.0338$
0.1	$-0.00572 \pm 0.01014$
0.2	$-0.00203 \pm 0.00367$
0.5	$-0.000711 \pm 0.001962$
1	$0.000151 \pm 0.002198$
2	$0.00197 \pm 0.00382$
5	$0.0113 \pm 0.0146$
10	$0.0435 \pm 0.0529$

### 4.3.3 バイアスの評価

第 1 章において 4 次摂動の  $Z_{111}^{(4)} W_{111}^{(4)}$  の有無による構造因子の形状変化について述べた。4 次の摂動において  $Z_{111}^{(4)} W_{111}^{(4)}$  以外の多重極モーメントからの寄与が小さいのは明らかなので、 $Z_{111}^{(4)} W_{111}^{(4)}$  までを考慮して求めた構造因子  $S_{4\text{th};111}(q)$  を真の構造因子と仮定し、これを用いて、3 次摂動までの寄与を含む  $S_{3\text{rd}}(q)$  で評価したフィッティング結果  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  のバイアスを pseudo experiment によって評価した。到達距離  $\lambda = 1$  nm の時の結果を図 4.4 に示す (それ以外の到達距離については付録 に示した)。

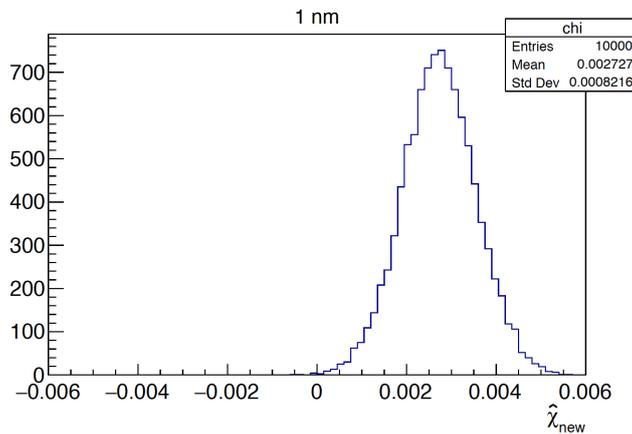


図 4.4 到達距離  $\lambda = 1$  nm の時のフィッティング結果のバイアス。4 次摂動の  $Z_{111}^{(4)} W_{111}^{(4)}$  までを考慮して計算した構造因子  $S_{4\text{th};111}(q)$  をもとに 10000 回の pseudo experiment を行った際の推定値  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の分布。

図から分かるように全ての到達距離  $\lambda$  において  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の平均が 0 より大きくなった。このことは、 $S_{3\text{rd}}(q)$  を用いて  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の評価をすると、結果が正に振れるバイアスが存在することを意味する。そのため、表 に示したフィッティング結果から図に示したヒストグラムの平均値を引き、このバイアスを補正した。

#### 4.3.4 温度による系統誤差

Benmore らの実験は、温度  $T = 297.6 \pm 0.5$  K の環境で行われた。式 (2.73) から分かるように構造因子の形は温度 (逆温度  $\beta$ ) に依存するので、 $\pm 0.5$  K の変化によるフィッティング結果  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  のずれを pseudo experiment で評価した。到達距離  $\lambda = 1$  nm の時の結果を図 4.5 に示す (それ以外の到達距離については付録に記載)。これによって得られた  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の平均値のずれを、 $\pm 0.5$  K の温度変化に伴う系統誤

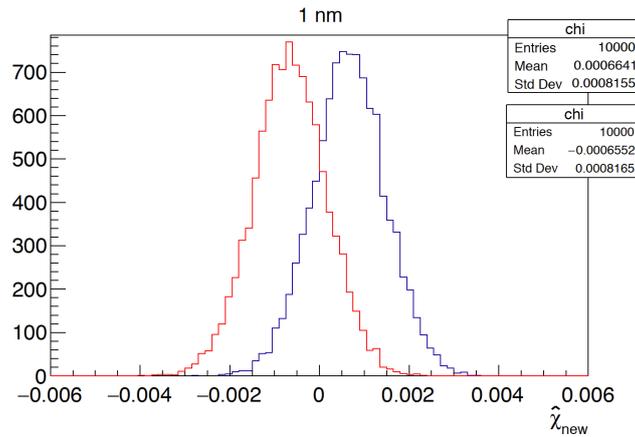


図 4.5 温度を変えた時のフィッティング結果の分布 (到達距離  $\lambda = 1$  nm)。左側 (赤色) のヒストグラムが  $T = 298.1$  K の場合のもので、右側 (青色) のヒストグラムが  $T = 297.1$  K 場合のもの。

差とした。

#### 4.3.5 3 体間ポテンシャルの強度の不定性による系統誤差

式 (2.89) に示したように、一般に 3 体間ポテンシャルは強度係数  $Z$  と角度・距離に依存する部分  $W$  に分けられる。 $Z$  の値は Doran(文献 [27]) 以降、様々な手法で計算されてきたがそれぞれの結果はわずかに異なっている。本解析では、3 体間ポテンシャルの中でも最も寄与の大きい  $Z_{111}^{(3)}$  の不定性による  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  のずれを pseudo experiment によって評価した。

$Z_{111}^{(3)}$  の値の不定性として、文献 [30] に示された、近年の 5 つの研究による  $Z_{111}^{(3)}$  の結果の標準偏差を用いた。到達距離  $\lambda = 1$  nm の時の pseudo experiment の結果を図 4.6 に示す。

これによって得られた  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の平均値のずれを、 $Z_{111}^{(3)}$  の不定性に伴う系統誤差とした。

#### 4.3.6 2 体間ポテンシャルの各パラメータの不定性による系統誤差

本研究で用いた 2 体間ポテンシャル (式 (2.85)) のパラメータには誤差が与えられていないので、2 体間ポテンシャルの不定性による  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  のずれの評価には、各パラメータの誤差を現実的な値で仮定する必要がある。そこで、文献 [21] において、熱力学測定からのデータから独立に評価された  $c_0(0)$  (式 (2.73)) に対する値：

$$c_0(0) = 0.168 \pm 0.007 \quad (4.8)$$

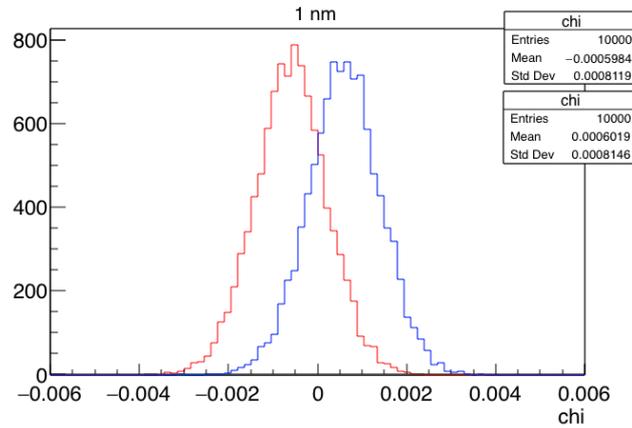


図 4.6  $Z_{111}^{(3)}$  の値を変えた時のフィッティング結果の分布 (到達距離  $\lambda = 1$  nm)。左側 (赤色) のヒストグラムが  $Z_{111}^{(3)}$  の値が強い場合のもので、右側 (青色) のヒストグラムが  $Z_{111}^{(3)}$  の値が弱い場合のもの。

を用いることにした。具体的なプロセスとしては、式 (2.85) のパラメータのうち、1 つだけをガウス分布 (平均値は表 2.1 に示した値とし、分散を  $\sigma_i^2$  ( $i = \{A, \alpha, \beta, c_6, \dots, \epsilon\}$ ) とする。) に従う乱数で与えたとき、そのポテンシャルを用いて評価した  $c_0(0)$  の標準偏差が 0.007 程度になるように、各パラメータの分散  $\sigma_i^2$  を決定した。次に全てのパラメータを、上述の平均と分散を持つガウス分布に従う乱数で一斉に与え (本研究では 6000 通りの乱数を生成した)、それらのポテンシャルを用いて 6000 通りの  $c_0(q)$  を求めた。そして、6000 通りの  $c_0(q)$  のうち、 $c_0(0)$  の値とその平均値との差が 0.007 以下のものだけを残し、その中から 1000 個を抽出した\*1。続いて、抽出された 1000 個の  $c_0(q)$  に対応する 2 体間ポテンシャルを用いて、 $c(q)$  を計算し構造因子  $S(q)$  を求めた。最後に、1000 個の  $S(q)$  に対して pseudo experiment を行い、フィッティング結果  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の平均値の分布を調べた。到達距離  $\lambda = 1$  nm のときの 1000 通りの構造因子に対するフィッティング結果  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の平均値の分布を図 4.7 に示す

#### 4.3.7 感度評価

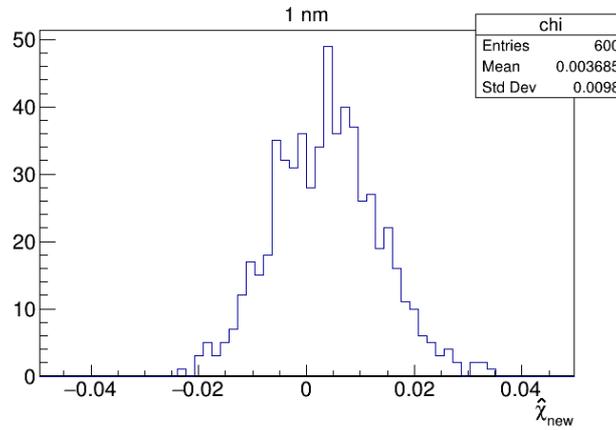
本節では、表 4.3 に示したフィッティング結果と、第 4.3.3 節で求めたバイアス、第 4.3.4, 4.3.5, 4.3.6 節で評価した系統誤差を用いて、新しい相互作用の探索感度を求める。統計誤差としては表 4.3 の error を用いた。表 4.5 に  $\lambda = 1$  nm のとき、それぞれの要因による  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  に対する誤差をまとめた。

これらの誤差を二乗和で足し合わせることによってまとめ、Feldman-Cousins のアプローチ [46] で求めた 95% 信頼水準での結合定数  $g^2$  の upper limit を図 4.8 に示す。

\*1 パラメータ数が 9 であり、各パラメータの平均値よりも上振れ/下振れの 2 通りを考えると  $2^9 = 512$  通り。これの約 2 倍の数のパターンを考えることで起こりうるポテンシャルの形を網羅するものとした。

表 4.4 2 体間ポテンシャルのパラメータの誤差

パラメータ	誤差 (表 2.1 に対する相対値 [%])
$A$	0.9
$\alpha$	0.11
$\beta$	0.45
$c_6$	0.8
$c_8$	2
$c_{10}$	2.5
$D$	0.6
$r_m$	0.6
$\epsilon$	0.7

図 4.7 フィッティング結果  $\hat{\chi}_{new}$  の平均値の分布 (600 通りまで計算した時点のもの)。表 4.5  $\hat{\chi}_{new}$  ( $\lambda = 1$  nm) に対する誤差のまとめ

要因	$\hat{\chi}_{new}$ ( $\lambda = 1$ nm) に対する誤差
統計	$2.2 \times 10^{-3}$
温度 (0.5K)	$6.6 \times 10^{-4}$
3 体間ポテンシャル $Z_{111}^{(3)}$	$6.0 \times 10^{-4}$
2 体間ポテンシャル	$3.7 \times 10^{-3}$

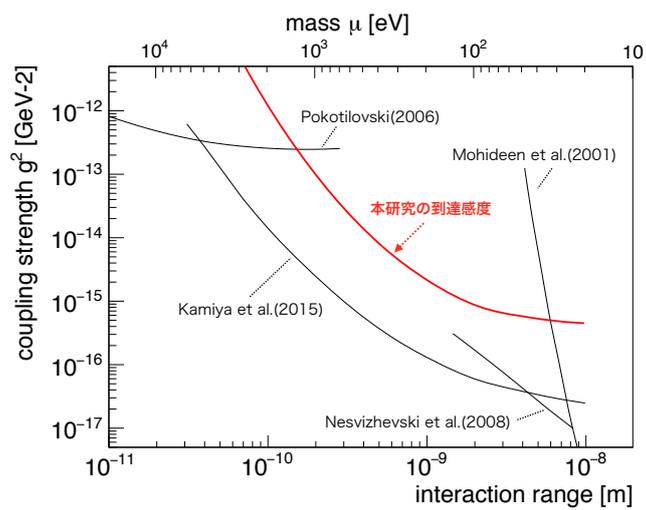


図 4.8 Benmore のデータの解析によって得られた到達感度。



## 第 5 章

# 今後の展望

### 5.1 ILL 実験

節でも述べたように、検出器の 3 次元形状が、中性子散乱の分布を解析する上で重要な役割を担うことが分かった。今研究では、ILL によって作成された検出器の感度マップと、文献 [42], [43] による 3 次元形状の補正を別々に行った。しかし、この補正には次のような問題がある。

- 検出器の感度マップ自体が、検出器の 3 次元形状の影響を含んでいる可能性がある。
- 検出器の感度マップが、最新の検出器の状態を反映したものとは言えない。
- x 方向と y 方向とで別々の情報源に依って、検出器の 3 次元形状の影響を補正している。

そのため、より確実な方法として、散乱を測定したのと同じ配置でバナジウム (V) または水による一様散乱を測定し、3 次元形状の影響とピクセルごとの感度の違いを正しく含んだ感度マップを新たに作成することが望ましい。これは、今後 ILL D22 と類似した施設において新たに高統計実験を行う際には、感度マップの作成のためのデータ取得も考慮して、ビームタイムを確保する必要があるということでもある。

### 5.2 高圧実験

第 4 章で見たように、Benmore の実験データを用いた解析では、先行研究によって達成された感度を超えることはできなかった。本節では、まず、高圧ガスを用いた実験をデザインする上で重要な、数密度とチェンバーのサイズに対する制約を明らかにする。次に、統計誤差が改善し、さらに温度、3 体間ポテンシャル、2 体間ポテンシャルの不定性が減少した場合に、どれだけの感度を達成できるかを見る。

#### 5.2.1 数密度に対する制約

数密度  $n$  (すなわち圧力) に対する制約は、式 (2.73) において無視した直接相関関数の  $n^2$  項の寄与の大きさによって与えられる。2.2.2 節では、文献 [21] による熱力学測定データからの評価：

$$c(0) = 0.1683 - (1.930 \times 10^{-2})n + (0.73 \times 10^{-4})n^2 \quad (n < 3 \text{ nm}^{-3}) \quad (5.1)$$

を用いて、 $n^2$  項を無視して求めた構造因子  $S_{\text{without } n^2}(0)$  に対する、 $n^2$  項の寄与の大きさを表す量

$$R_{n^2} \equiv \frac{S_{\text{with } n^2}(0) - S_{\text{without } n^2}(0)}{S_{\text{without } n^2}(0)} \quad (5.2)$$

の  $n$  依存性を図 2.4 に示した。この結果を踏まえ、高圧ガスを用いた実験を行う際には、構造因子  $S(q)$  の統計誤差に比べて、 $n^2$  項の寄与が十分に小さくなるような数密度を選ばなければならない。

例えば、 $n = 0.804 \text{ nm}^{-3}$  であれば、 $R_{n^2} = 4 \times 10^{-3}\%$  であり、これは Benmore らが測定した構造因子の統計誤差 0.5% に対して十分に小さく、より高統計のデータを取得したとしても安全であると言える。

### 5.2.2 チェンバーサイズに対する制約

チェンバーサイズに対する制約は、中性子の多重散乱を考慮することによって与えられる。多重散乱の影響を評価するために、本研究では、中性子散乱に特化したモンテカルロシミュレーションソフトウェア McStas [47,48] を用いた。McStas ではコンピュータ上に実験のセットアップを再現し、検出器で得られるデータをシミュレーションすることができる。想定したセットアップは、図 5.1 に示したように、波長  $5\text{\AA}$ 、直径  $16\text{ mm}$ 、発散角  $3\text{ mrad}$  の中性子ビームを球形チェンバーに照射し、チェンバー中心から  $3.1\text{ m}$  下流に置かれた一辺  $1\text{ m}$  の正方形の検出器で散乱中性子を測定するというものである。シミュレーションには広角散乱領域までの構造因子のデータが必要なので、これは文献 [45] に記載されたものを用いた。

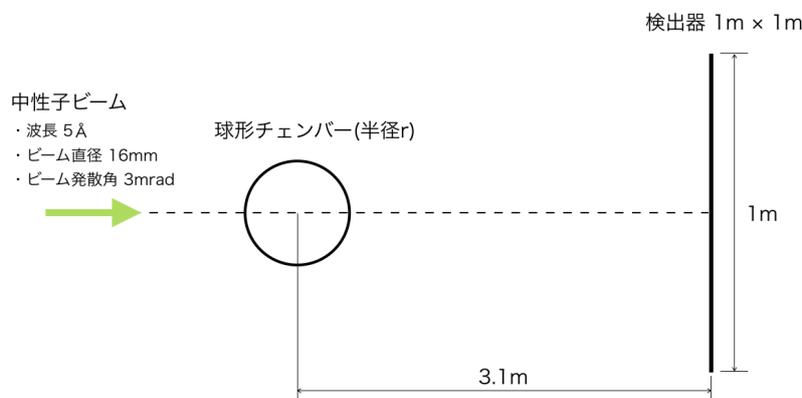


図 5.1 McStas で行ったシミュレーションのセットアップ

シミュレーションの結果を図 5.2 に示す。図はチェンバーに入射した中性子数と検出器上での 1 回散乱のカウント数の比を表している。この比は数密度  $n$  とチェンバー半径  $r$  の積に依存しており、 $^{86}\text{Kr}$  の場合には  $n \times r \approx 6 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$  で最大になることがわかる。これより大きい  $n \times r$  では、吸収の効果により 1 回散乱の強度は頭打ちになる。一方、図 5.2(b) は、検出器上での 1 回散乱のカウント数と、2 回以上の散乱 (多重散乱) を経て検出器上に到達した中性子のカウント数の比を表している。ここから分かるように、一回散乱強度が最大になる  $n \times r \approx 6 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$  では多重散乱の寄与が一回散乱の 10~20% となり、散乱分布を精密に測定することを目指す本研究では好ましくない。仮に多重散乱の影響を、1 回散乱

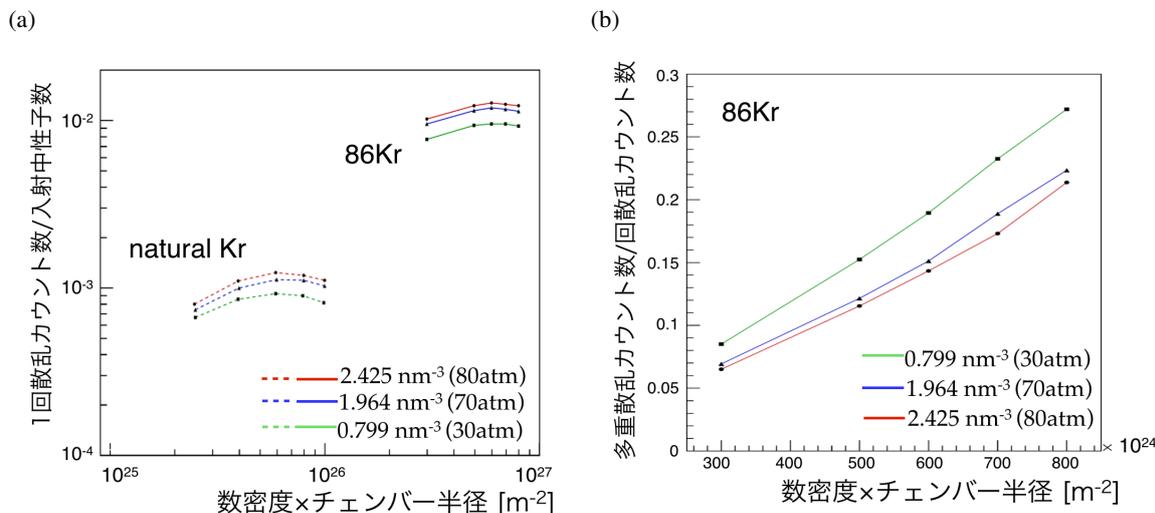


図 5.2 McStas を用いたシミュレーションの結果

の 1% 程度に抑えるならば、 $n \times r \approx 1 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$  が要求される。これにより、チェンバーのサイズが決まる。

### 5.2.3 到達感度の改善

この節では統計・系統誤差が低減した場合に、どの程度の感度が達成できるかを述べる。想定する状況としては次の通り：

統計量 Benmore らの実験の 50 倍の統計量を仮定する。

この統計量を得るために必要な時間を評価することにしよう。まずチャンバーの大きさとしてビーム軸方向に 10 cm のもの考える (球形ならば半径  $r = 5 \text{ cm}$ )。そして、5.2.1 節で述べた  $O(n^2)$  の項の影響を無視するために数密度を  $n = 0.804 \text{ nm}^{-3}$  とする。このとき、 $n \times r \approx 4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$  となり、多重散乱の影響は十分に小さい。測定に必要な時間は、文献 [12] の実験時間をスケールすることによって、HANARO の場合 80~100 時間、ILL D22 の場合 8~10 時間と見積もられる。これは十分現実的なビームタイムである。

温度 4.3.4 節では、Benmore らの実験における温度の精度  $\pm 0.5 \text{ K}$  での系統誤差を評価した。この温度の精度が  $\pm 0.1 \text{ K}$  である場合を考える。この精度の測定は市販の温度計で十分達成できる。また、測定中つねにガスの温度を  $\pm 0.1 \text{ K}$  の範囲に収める必要はない。0.1 K 以上の温度変動がある場合には、変動が 0.1 K の範囲に収まっている範囲で全測定データをいくつかのデータセットに分割し、それぞれのデータセットの温度に対して構造因子を評価すればよいからである。

3 体間ポテンシャル 4.3.5 節では、3 体間ポテンシャルの中でも最も寄与の大きい  $Z_{111}^{(3)}$  の不定性による系統誤差を、文献 [30] に示された値を用いて評価した。ここでは、この  $Z_{111}^{(3)}$  による系統誤差が、1/5 に小さくなると仮定した。

2 体間ポテンシャル 4.3.6 節では、文献 [21] に基づいて、 $c_0(0)$  の不定性が  $\pm 0.007$  になるような 2 体間ポテンシャルの不定性を考えた。ここでは  $c_0(0)$  の不定性が  $\pm 0.001$  に抑えられる場合について、4.3.6 節と同じ手順で 2 体間ポテンシャルのパラメータのエラーを求め (表 5.1)、これによる系統誤差を評価した。

表 5.1 精度が改善されたときの 2 体間ポテンシャルのパラメータの誤差

パラメータ	誤差 (表 2.1 に対する相対値 [%])
$A$	0.32
$\alpha$	0.035
$\beta$	0.15
$c_6$	0.26
$c_8$	0.6
$c_{10}$	0.8
$D$	0.23
$r_m$	0.2
$\epsilon$	0.25

表 5.2 に、上述のように統計、温度、3 体間・2 体間ポテンシャルの精度が改善した場合の  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  に対する誤差を示す。

表 5.2  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) に対する誤差のまとめ (改善予想)

要因	$\hat{\chi}_{\text{new}}$ ( $\lambda = 1 \text{ nm}$ ) に対する誤差
統計	$3.1 \times 10^{-4}$
温度 (0.1K)	$1.3 \times 10^{-4}$
3 体間ポテンシャル $Z_{111}^{(3)}$	$1.2 \times 10^{-4}$
2 体間ポテンシャル	$5.3 \times 10^{-4}$

図 5.3 に、統計、温度、3 体間・2 体間ポテンシャルの精度が上述のように改善したときの予想到達感度を示す。これによれば、新しい相互作用の到達距離が数 nm のレンジで、先行研究 [12] を上回る感度を達成できることが分かった。今考えているように統計、温度、3 体間・2 体間ポテンシャルの精度が改善した場合、感度は統計には依らず、2 体間ポテンシャルの強度の不定性が最も大きい誤差の要因となる。

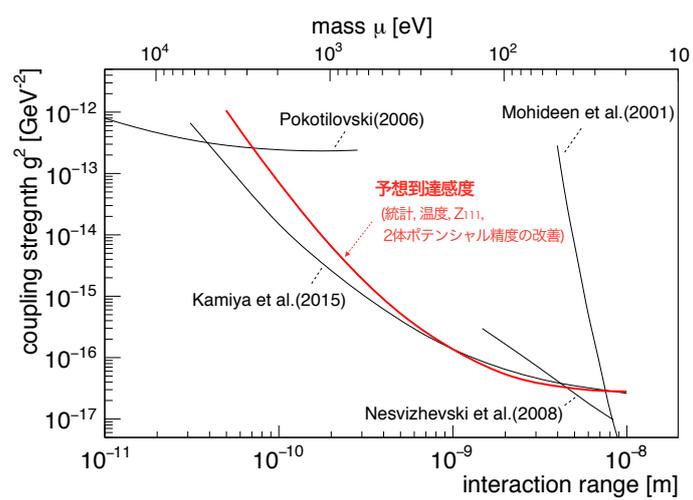


図 5.3 統計、温度、3 体間・2 体間ポテンシャルの精度が改善された場合の予想到達感度



# 付録

## A 新しい相互作用による散乱長

本節では、式 (1.1) の  $V^{\text{new}}$  による散乱長  $b^{\text{new}}$  が、式 (2.26) の形をしていること：

$$\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int d\mathbf{x} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}) \sum_j V_j^{\text{new}}(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) = - \sum_j b^{\text{new}}(q) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) \quad (\text{A.1})$$

$$b^{\text{new}}(q) = \frac{mc^2}{2\pi\hbar c} g^2 Q_1 Q_2 \frac{\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2} \quad (\text{A.2})$$

を示す。

まず、原点 ( $\mathbf{r} = 0$ ) に置かれた単一の原子による湯川型ポテンシャル

$$V^{\text{new}}(\mathbf{x}) = A \frac{e^{-x/\lambda}}{x}, \quad A \equiv -\frac{\hbar c}{4\pi} g^2 Q_1 Q_2 \quad (\text{A.3})$$

が、遮蔽された Poisson 方程式 (screened Poisson equation)

$$\left( \nabla^2 - \frac{1}{\lambda^2} \right) A \frac{e^{-x/\lambda}}{x} = -4\pi A \delta(\mathbf{x}) \quad (\text{A.4})$$

を満たすという事実を用いる。これは、湯川ポテンシャルを作る charge の密度  $\rho^{\text{new}}(\mathbf{x})$  が

$$\rho^{\text{new}}(\mathbf{x}) = \nabla^2 V^{\text{new}}(\mathbf{x}) = 4\pi A \left\{ -\delta(\mathbf{x}) + \frac{1}{4\pi\lambda^2} \frac{e^{-x/\lambda}}{x} \right\} \quad (\text{A.5})$$

で与えられることを示している\*1。これを多原子系に拡張すると、 $j$  番目の原子の位置を  $\mathbf{r}_j$  として

$$\nabla^2 \sum_j V_j^{\text{new}}(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) = 4\pi A \sum_j \left\{ -\delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) + \frac{1}{4\pi\lambda^2} \frac{e^{-|\mathbf{x} - \mathbf{r}_j|/\lambda}}{|\mathbf{x} - \mathbf{r}_j|} \right\} \quad (\text{A.6})$$

となる。

次に、式 (A.6) の各項の Fourier 積分について見ていく。

左辺は、 $V_j^{\text{new}}(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j)$  の Fourier 変換を  $V_j^{\text{new}}(\mathbf{q})$  とすると、

$$\begin{aligned} \int d\mathbf{x} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}) \sum_j V_j^{\text{new}}(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) &= \sum_j \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) \int d\tilde{\mathbf{r}}_j \exp(i\mathbf{q} \cdot \tilde{\mathbf{r}}_j) V_j^{\text{new}}(\tilde{\mathbf{r}}_j) \quad (\tilde{\mathbf{r}}_j \equiv \mathbf{x} - \mathbf{r}_j) \\ &= \sum_j \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) V_j^{\text{new}}(\mathbf{q}) \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

\*1  $\lambda \rightarrow \infty$  の極限で、電磁相互作用と同じ形を与える

と書けるので、これの逆 Fourier 変換によって

$$\begin{aligned}\sum_j V_j^{\text{new}}(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) &= \frac{1}{(2\pi)^3} \sum_j \int d\mathbf{q} \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) V_j^{\text{new}}(\mathbf{q}) \\ &= \frac{1}{(2\pi)^3} \sum_j \int d\mathbf{q} \exp\{-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{x} - \mathbf{r}_j)\} V_j^{\text{new}}(\mathbf{q})\end{aligned}\quad (\text{A.8})$$

を得る。

右辺  $\{\dots\}$  内の第 1 項は、 $\delta$  関数の積分表示を用いて次のように書ける。

$$\delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{q} \exp\{-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{x} - \mathbf{r}_j)\}.\quad (\text{A.9})$$

続く第 2 項については、

$$\begin{aligned}\int d\mathbf{x} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}} \frac{e^{-(|\mathbf{x} - \mathbf{r}_j|)/\lambda}}{|\mathbf{x} - \mathbf{r}_j|} &= e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j} \int d\mathbf{x}' e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}'} \frac{e^{-x'/\lambda}}{x'} \\ &= e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j} 2\pi \int_0^\infty x' dx' \int_{-1}^1 d\cos\theta e^{iqx' \cos\theta} e^{-x'/\lambda} \\ &= e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j} \frac{4\pi}{q} \int_0^\infty dx' e^{-x'/\lambda} \sin(qx') \\ &= e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j} \frac{4\pi\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2}\end{aligned}$$

であることから、これの逆 Fourier 変換によって

$$\frac{e^{-(|\mathbf{x} - \mathbf{r}_j|)/\lambda}}{|\mathbf{x} - \mathbf{r}_j|} = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{q} \exp\{-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{x} - \mathbf{r}_j)\} \frac{4\pi\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2}\quad (\text{A.10})$$

と書ける。

式 (A.8)、(A.9) および (A.10) を式 (A.6) に代入すると、 $V_j^{\text{new}}(\mathbf{q})$  について、以下の式を得る：

$$\begin{aligned}-q^2 V_j^{\text{new}}(\mathbf{q}) &= 4\pi A \left\{ -1 + \frac{1}{1 + (q\lambda)^2} \right\} \\ \Leftrightarrow V_j^{\text{new}}(\mathbf{q}) &= 4\pi A \frac{\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2} \\ &= -\hbar c g^2 Q_1 Q_2 \frac{\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2}.\end{aligned}\quad (\text{A.11})$$

これを式 (A.7) に代入することにより

$$\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int d\mathbf{x} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}) \sum_j V_j^{\text{new}}(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j) = - \sum_j \frac{mc^2}{2\pi\hbar c} g^2 Q_1 Q_2 \frac{\lambda^2}{1 + (q\lambda)^2} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j)\quad (\text{A.12})$$

が得られ、式 (A.1) および (A.2) が示された。

## B 3 体ポテンシャルの角度・距離依存項

$$W_{112}^{(3)} = \frac{1}{16r_{ij}^3 r_{jk}^4 r_{ki}^4} [9 \cos(\theta_{ij}) - 25 \cos(3\theta_{ij}) + 6 \cos(\theta_{jk} - \theta_{ki}) \{3 + 5 \cos(2\theta_{ij})\}] \quad (\text{B.13})$$

$$W_{122}^{(3)} = \frac{5}{64r_{ij}^4 r_{jk}^5 r_{ki}^4} [3 \cos(\theta_{jk}) + 15 \cos(3\theta_{jk}) + 20 \cos(\theta_{ki} - \theta_{ij}) \{1 - 3 \cos(2\theta_{jk})\} + 70 \cos(2(\theta_{ki} - \theta_{ij})) \cos(\theta_{jk})] \quad (\text{B.14})$$

$$W_{113}^{(3)} = \frac{5}{96r_{ij}^3 r_{jk}^5 r_{ki}^5} [9 + 8 \cos(2\theta_{ij}) - 49 \cos(4\theta_{jk}) + 6 \cos(\theta_{jk} - \theta_{ki}) \{9 \cos(\theta_{ij}) + 7 \cos(3\theta_{ij})\}] \quad (\text{B.15})$$

$$W_{222}^{(3)} = \frac{5}{128r_{ij}^5 r_{jk}^5 r_{ki}^5} [490 \cos(2\theta_{ij}) \cos(2\theta_{jk}) \cos(2\theta_{ki}) - 27 + 220 \cos(\theta_{ij}) \cos(\theta_{jk}) \cos(\theta_{ki}) + 175 \{ \cos(2(\theta_{jk} - \theta_{ki})) + \cos(2(\theta_{ki} - \theta_{ij})) + \cos(2(\theta_{ij} - \theta_{jk})) \}] \quad (\text{B.16})$$

$$W_{111}^{(4)} = \frac{45}{64} \left\{ \frac{1 + \cos^2 \theta_{ki}}{r_{ij}^6 r_{jk}^6} + \frac{1 + \cos^2 \theta_{ij}}{r_{jk}^6 r_{ki}^6} + \frac{1 + \cos^2 \theta_{jk}}{r_{ki}^6 r_{ij}^6} \right\} \quad (\text{B.17})$$

## C 円環平均

散乱データにおいて、散乱強度分布のビーム中心からの距離  $r$  依存性を見る際には円環平均と呼ばれる処理を行っている。その手順は、

1. 図 C.1 に示すようにビーム中心からの距離が  $r \sim r + \Delta r$  の中に、ピクセル中心が入っているピクセルのカウント数を足し合わせる
2. 足しあわせたカウント数を、 $r \sim r + \Delta r$  の中に入っているピクセルの数で割る

というものである。

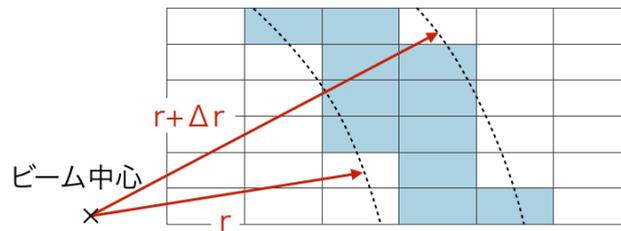


図 C.1 円環平均

## D フィッティング結果のバイアス

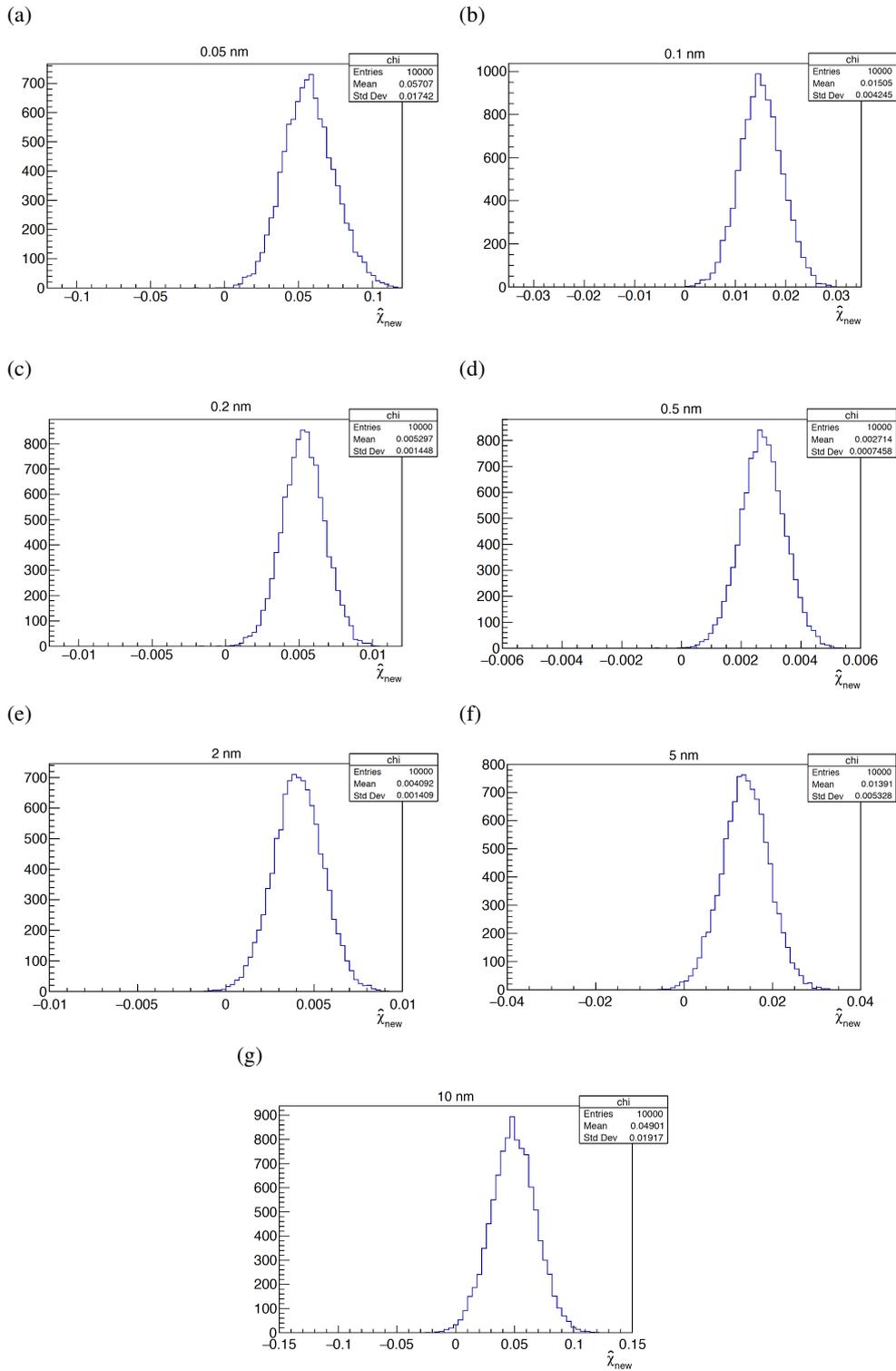


図 D.2

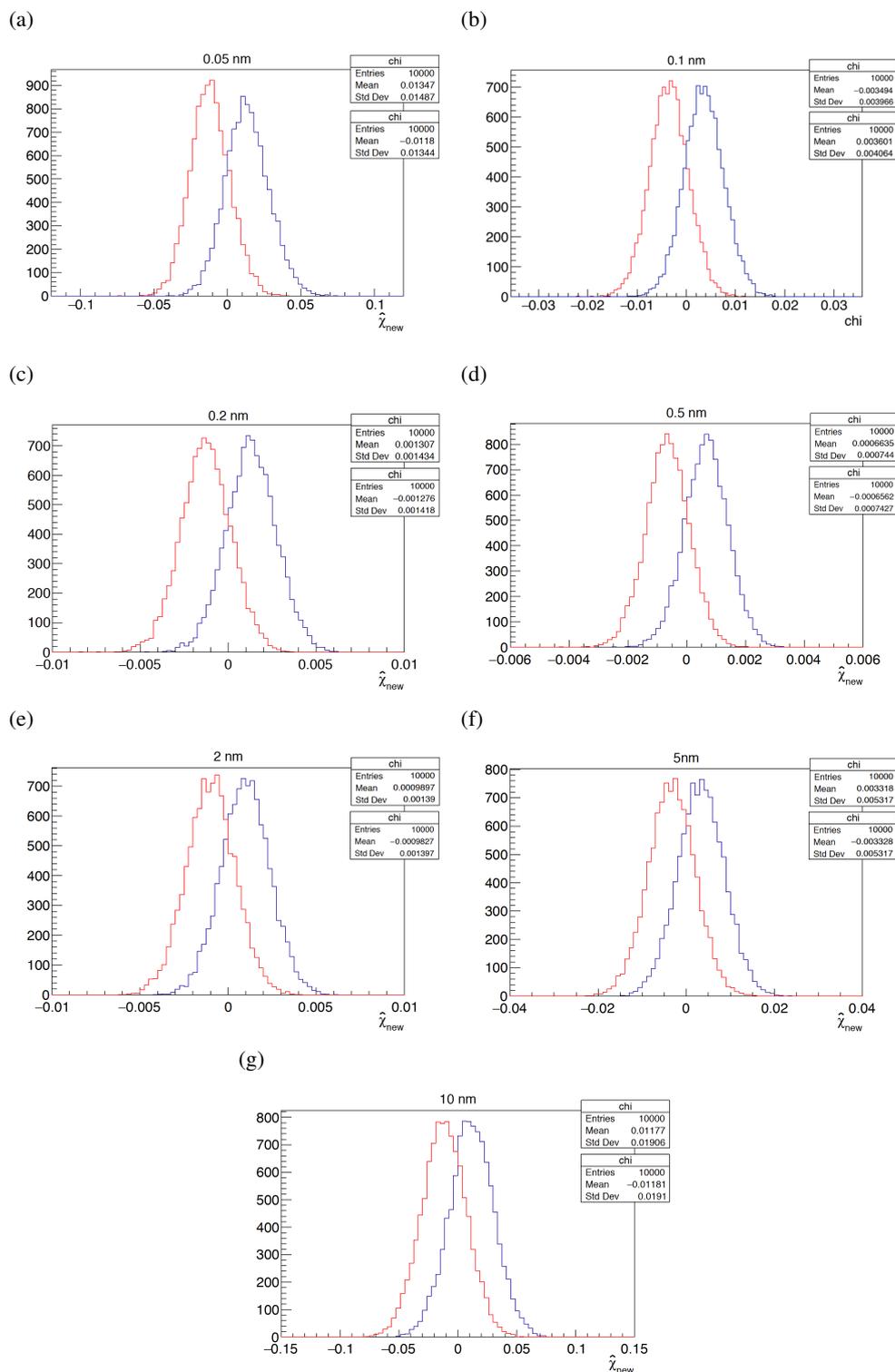
E  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の温度依存性

図 E.3 フィッティング結果の温度依存性

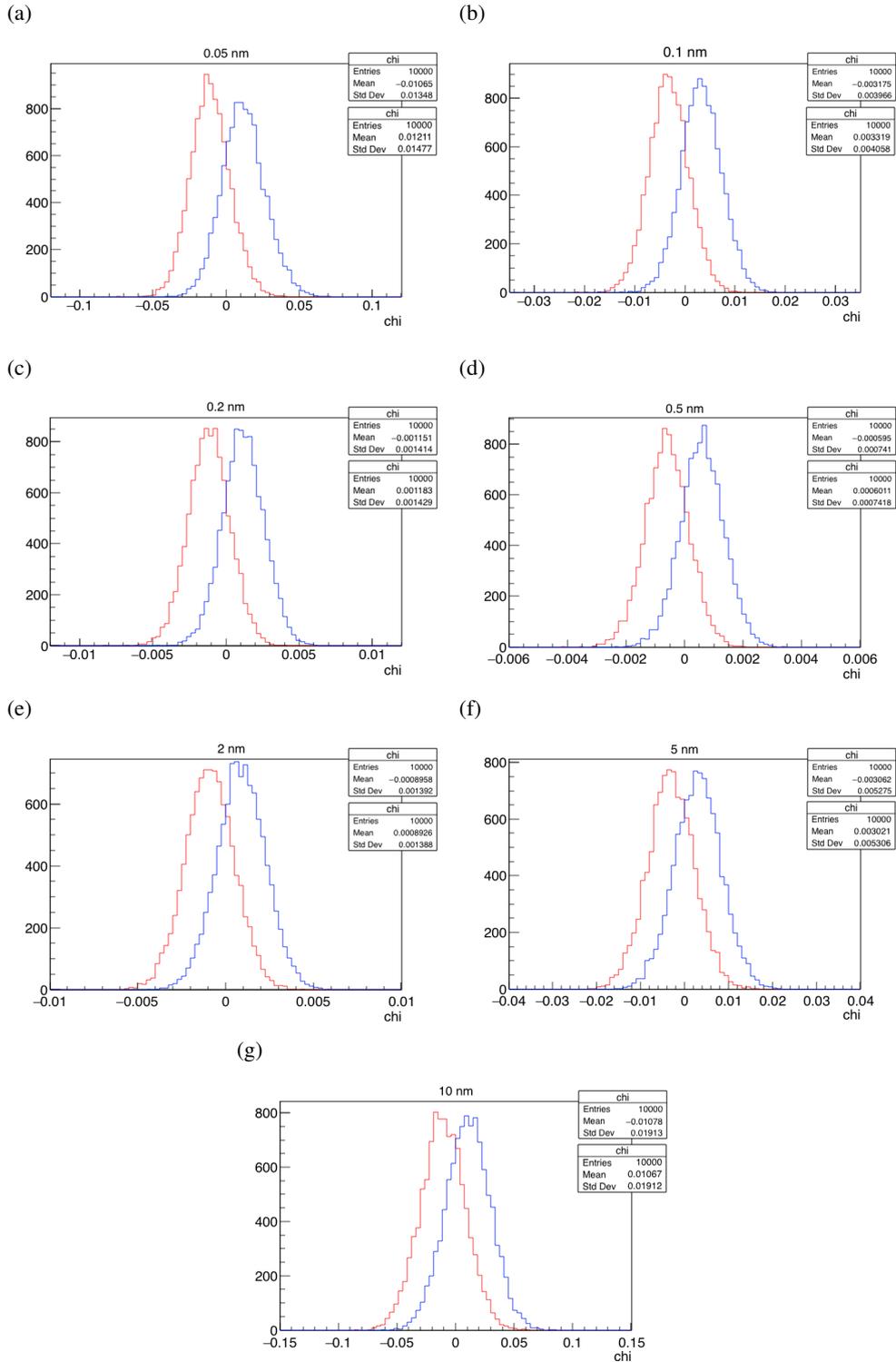
F  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の ddd3 強度依存性

図 F.4 フィッティング結果の 3 体間ポテンシャル強度依存性

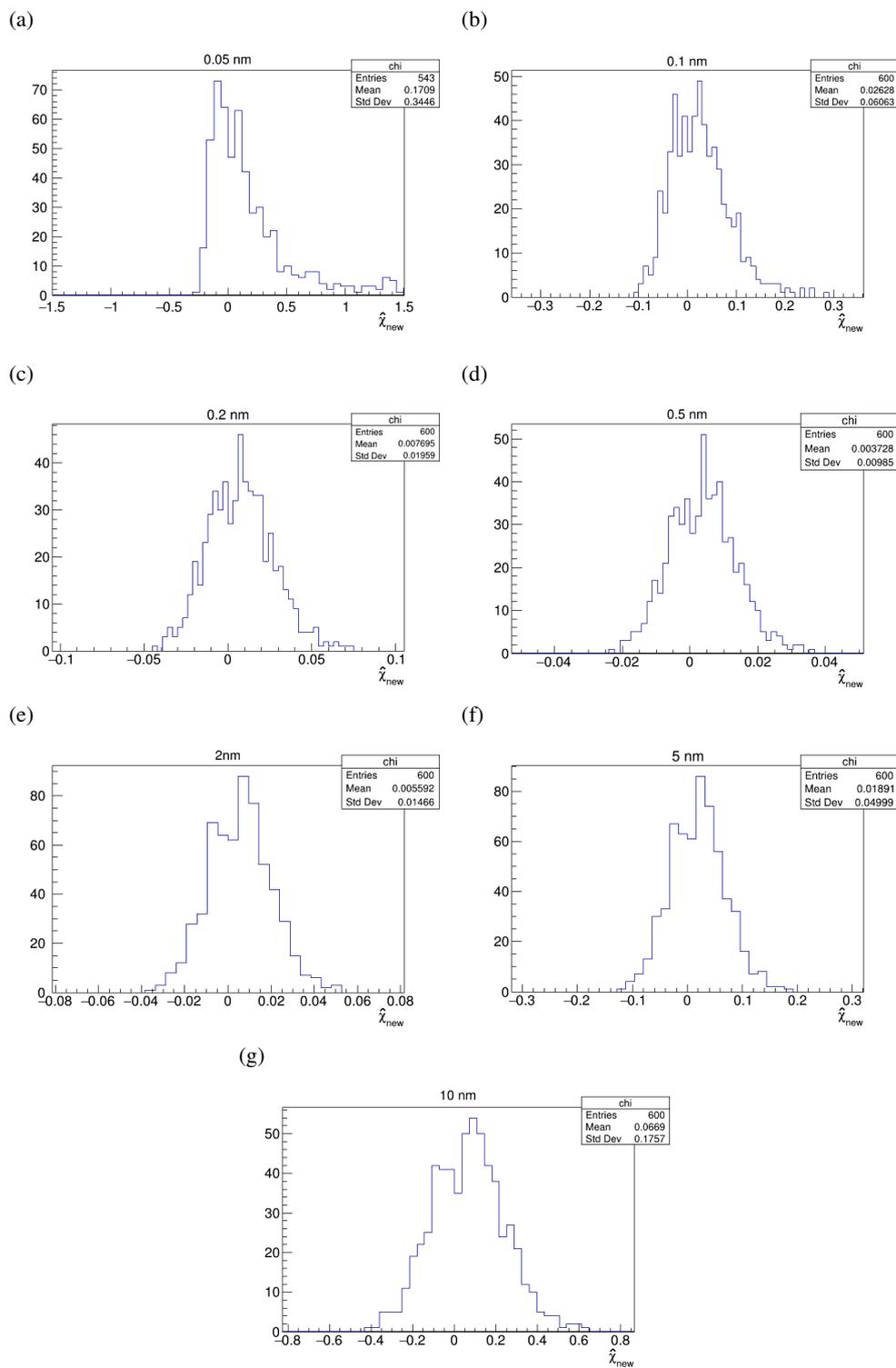
G  $\hat{\chi}_{\text{new}}$  の 2 体間ポテンシャル依存性

図 G.5 フィッティング結果の 2 体間ポテンシャル依存性



# 謝辞

たくさんの方々の支えがあって、本研究を行うことができました。心よりお礼申し上げます。

指導教員である駒宮幸男教授には、入学以来、温かく熱心なご指導をいただきました。深く感謝いたします。神谷好郎助教には研究の手法について丁寧なアドバイスをいただき、研究を前に進めることができました。日下研助教の木内健司助教にはプログラミングに関する助言をいただきました。

ILLの実験においてもスタッフの方々に大変お世話になりました。特に Dr. Robert Cubitt には温かくもてなしていただき、解析のアドバイスもいただきました。

研究室秘書の河野久仁子さんには、研究生活を滞りなく送るうえであらゆる面でのサポートをいただきました。また、研究室の先輩方、同期の安居孝晃君とは日々の議論を通じて物理への理解を深めることができました。

最後に、遠く離れた故郷からいつも励ましてくれた家族に感謝いたします。



## 引用文献

- [1] P Fayet. New interactions and the standard models. *Classical and Quantum Gravity*, Vol. 13, No. 11A, p. A19, 1996.
- [2] Pierre Fayet. Equivalence principle tests, equivalence theorems, and new long-range forces. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IV - Physics*, Vol. 2, No. 9, pp. 1257 – 1270, 2001.
- [3] Nima Arkani-Hamed and Savvas Dimopoulos. New origin for approximate symmetries from distant breaking in extra dimensions. *Phys. Rev. D*, Vol. 65, p. 052003, Jan 2002.
- [4] Savvas Dimopoulos and Andrew A. Geraci. Probing submicron forces by interferometry of Bose-Einstein condensed atoms. *Phys. Rev. D*, Vol. 68, p. 124021, Dec 2003.
- [5] M. Bordag, U. Mohideen, and V.M. Mostepanenko. New developments in the casimir effect. *Physics Reports*, Vol. 353, No. 1 – 3, pp. 1 – 205, 2001.
- [6] Y.-J. Chen, W. K. Tham, D. E. Krause, D. López, E. Fischbach, and R. S. Decca. Stronger limits on hypothetical yukawa interactions in the 30–8000 nm range. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 116, p. 221102, Jun 2016.
- [7] Andrew A. Geraci, Sylvia J. Smullin, David M. Weld, John Chiaverini, and Aharon Kapitulnik. Improved constraints on non-newtonian forces at 10 microns. *Phys. Rev. D*, Vol. 78, p. 022002, Jul 2008.
- [8] D. J. Kapner, T. S. Cook, E. G. Adelberger, J. H. Gundlach, B. R. Heckel, C. D. Hoyle, and H. E. Swanson. Tests of the gravitational inverse-square law below the dark-energy length scale. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 98, p. 021101, Jan 2007.
- [9] Wen-Hai Tan, Shan-Qing Yang, Cheng-Gang Shao, Jia Li, An-Bin Du, Bi-Fu Zhan, Qing-Lan Wang, Peng-Shun Luo, Liang-Cheng Tu, and Jun Luo. New test of the gravitational inverse-square law at the submillimeter range with dual modulation and compensation. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 116, p. 131101, Mar 2016.
- [10] Shan-Qing Yang, Bi-Fu Zhan, Qing-Lan Wang, Cheng-Gang Shao, Liang-Cheng Tu, Wen-Hai Tan, and Jun Luo. Test of the gravitational inverse square law at millimeter ranges. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 108, p. 081101, Feb 2012.
- [11] Yu. N. Pokotilovski. Constraints on new interactions from neutron scattering experiments. *Physics of Atomic Nuclei*, Vol. 69, No. 6, pp. 924–931, 2006.
- [12] Y. Kamiya, K. Itagaki, M. Tani, G. N. Kim, and S. Komamiya. Constraints on new gravitylike

- forces in the nanometer range. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 114, p. 161101, Apr 2015.
- [13] V. V. Nesvizhevsky, G. Pignol, and K. V. Protasov. Neutron scattering and extra-short-range interactions. *Phys. Rev. D*, Vol. 77, p. 034020, Feb 2008.
- [14] S. W. Lovesey. *Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter*, Vol. 1. Clarendon Press, 1986.
- [15] V. F. Sears. Electromagnetic neutron-atom interactions. *Physics Reports*, Vol. 141, No. 5, pp. 281–317, 1986.
- [16] C. Patrignani, et al. Review of Particle Physics. *Chin. Phys.*, Vol. C40, No. 10, p. 100001, 2016.
- [17] Albert-Jose Dianoux and Gerry Lander. *ILL Neutron Data Booklet second edition*. OCP Science, 2003.
- [18] NIST. Neutron scattering lengths and cross sections of Xe. <https://www.ncnr.nist.gov/resources/n-lengths/elements/xe.html>.
- [19] Varley F. Sears. Neutron scattering lengths and cross sections. *Neutron News*, Vol. 3, No. 3, pp. 26–37, 1992.
- [20] 笹山悦宏. 低速中性子散乱を用いた未知短距離力の探索. Master's thesis, 東京大学大学院 理学系研究科, 1 2016.
- [21] M. Tau, L. Reatto, R. Maglis, P. A. Egelstaff, and F. Barocchi. Three-body potential effects in the structure of fluid krypton. *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 1, No. 39, p. 7131, 1989.
- [22] R. J. Bell and I. J. Zucker. Long-range forces. In M. L. Klein and J. A. Venables, editors, *Rare Gas Solids*, Vol. 1, chapter 2. Academic Press, 1976.
- [23] R. A. Aziz and M. J. Slaman. The argon and krypton interatomic potentials revisited. *Molecular Physics*, Vol. 58, No. 4, pp. 679–697, 1986.
- [24] W. L. Bade. Drude-model calculation of dispersion forces. I. general theory. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 27, No. 6, pp. 1280–1284, 1957.
- [25] W. L. Bade. Drude-model calculation of dispersion forces. III. the fourth-order contribution. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 28, No. 2, pp. 282–284, 1958.
- [26] R. J. Bell. Multipolar expansion for the non-additive third-order interaction energy of three atoms. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 3, No. 6, p. 751, 1970.
- [27] M. B. Doran and I. J. Zucker. Higher order multipole three-body van der Waals interactions and stability of rare gas solids. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, Vol. 4, No. 3, p. 307, 1971.
- [28] B. M. Axilrod and E. Teller. Interaction of the van der Waals type between three atoms. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 11, No. 6, pp. 299–300, 1943.
- [29] Y. Muto. Force between nonpolar molecules. *Proceedings of the Physico-Mathematical Society of Japan*, Vol. 17, pp. 629–631, 1943.
- [30] E. Proynov, F. Liu, Z. Gan, M. Wang, and J. Kong. Density-functional approach to the three-body dispersion interaction based on the exchange dipole moment. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 143, No. 8, p. 084125, 2015.
- [31] Li-Yan Tang, Zong-Chao Yan, Ting-Yun Shi, James F. Babb, and J. Mitroy. The long-range non-

- additive three-body dispersion interactions for the rare gases, alkali, and alkaline-earth atoms. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 136, No. 10, p. 104104, 2012.
- [32] Ajit J. Thakkar, Hinne Hettema, and Paul E. S. Wormer. Ab initio dispersion coefficients for interactions involving rare gas atoms. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 97, No. 5, pp. 3252–3257, 1992.
- [33] ILL. ILL annual report 2016. [https://www.ill.eu/fileadmin/users\\_files/Annual\\_Report/AR-16/ILLS\\_2016.pdf](https://www.ill.eu/fileadmin/users_files/Annual_Report/AR-16/ILLS_2016.pdf).
- [34] Paul Ageron. Cold neutron sources at ILL. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 284, No. 1, pp. 197 – 199, 1989.
- [35] EADS astrium. Neutron velocity selector. [https://www.sii.co.jp/jp/segg/files/2013/03/file\\_PRODUCT\\_MASTER\\_1381\\_GRAPHIC02.pdf](https://www.sii.co.jp/jp/segg/files/2013/03/file_PRODUCT_MASTER_1381_GRAPHIC02.pdf).
- [36] F. Issa, A. Khaplanov, R. Hall-Wilton, I. Llamas, M. Dalseth Riktor, S. R. Brattheim, and H. Perrey. Characterization of Thermal Neutron Beam Monitors. *Phys. Rev. Accel. Beams*, Vol. 20, No. 9, p. 092801, 2017. [Phys. Rev. Accel. Beams.20,092801(2017)].
- [37] ILL. D22 manual. <https://www.ill.eu/instruments-support/instruments-groups/instruments/d22/more/documentation/d22-manual/>.
- [38] The HDF Group. Hdf. <https://www.hdfgroup.org/>.
- [39] 谷美慧. 低速中性子散乱実験による新しい近接力の探索. Master's thesis, 東京大学大学院 理学系研究科, 1 2013.
- [40] Y. Kamiya. private communication.
- [41] Glen Cowan. *Statistical Data Analysis*, chapter 6. Clarendon Press, 1998.
- [42] D. Richard and M. A. Gonzalez. A user manual for analyzing small angle neutron scattering data using LAMP-SANS spreadsheet. [ftp://ftp.ill.fr/pub/cs/lamp\\_compiled\\_V53\\_later/SANS\\_sheet\\_manual\\_distrib.pdf](ftp://ftp.ill.fr/pub/cs/lamp_compiled_V53_later/SANS_sheet_manual_distrib.pdf).
- [43] Lukas Karge, Ralph Gilles, and Sebastian Busch. Calibrating sans data for instrument geometry and pixel sensitivity effects: access to an extended q range. Vol. 50, pp. 1–1, 10 2017.
- [44] C. J. Benmore, F. Formisano, R. Magli, U. Bafle, P. Verkerk, P. A. Egelstaff, and F. Barocchi. Neutron diffraction study of long-range interactions in gaseous krypton. *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 11, No. 15, p. 3091, 1999.
- [45] A. Teitsma and P. A. Egelstaff. Three-body-potential contribution to the structure of krypton gas. *Phys. Rev. A*, Vol. 21, pp. 367–378, Jan 1980.
- [46] Gary J. Feldman and Robert D. Cousins. Unified approach to the classical statistical analysis of small signals. *Phys. Rev. D*, Vol. 57, pp. 3873–3889, Apr 1998.
- [47] Kim Lefmann and Kristian Nielsen. McStas, a general software package for neutron ray-tracing simulations. *Neutron News*, Vol. 10, No. 3, pp. 20–23, 1999.
- [48] Peter Willendrup, Emmanuel Farhi, and Kim Lefmann. McStas 1.7 - a new version of the flexible Monte Carlo neutron scattering package. *Physica B: Condensed Matter*, Vol. 350, No. 1,

---

Supplement, pp. E735 – E737, 2004. Proceedings of the Third European Conference on Neutron Scattering.