

IAEA 国際技術会合 (TM) 「放射線損傷に関する核反応データと不確かさ」 に関する報告

日本原子力研究開発機構
原子力基礎工学研究センター
放射線挙動解析研究グループ
岩元 洋介

iwamoto.yosuke@jaea.go.jp
炉物理標準コード研究グループ
今野 力

konno.chikara@jaea.go.jp

1. はじめに

放射線損傷断面積は、標的原子 1 個あたりのはじき出し数を近似的に導出する NRT モデルと一次はじき出し原子 (PKA) エネルギースペクトルに基づき算出される。しかし、はじき出し数を導出する近似モデルには欠陥の再結合の効果等の最新の材料損傷研究の知見が取り入れられておらず、また PKA スペクトルも十分に検証されていない問題がある。筆者の一人の岩元が参加している国際原子力機関 (IAEA) 主催の国際共同研究活動 (CRP) 「初期の放射線損傷断面積」では、2013 年から 2017 年の期間で、これらの問題を解決し、放射線損傷断面積、PKA スペクトルを含む放射線損傷データ (カーマ係数、原子あたりのはじき出し数、材料中のガスの生成断面積等) の評価を行っている。2015 年 7 月に開催された CRP の第 2 回会合においては、最も広く使用されている核データ処理コード NJOY により計算された PKA スペクトル、中性子カーマ係数、放射線損傷断面積等の検証と、放射線損傷データの不確かさの評価を行うことが提言された。

そこで、IAEA は、これらの課題の解決をはじめとする CRP の核データに関する作業について議論を深めるため、CRP のメンバーに加えて、本研究に関連する専門家をコンサルタントとして招聘して、今回の技術会合 (TM) を開催した。本会合へは、イギリス 2 名、スウェーデン 2 名、ドイツ 2 名、スイス 1 名、米国 1 名、フランス 1 名、フィンラ

ンド1名、ベルギー1名、韓国1名、ロシア1名、OECD1名、IAEA7名（ただし、部分的参加）、日本2名（筆者2名 [岩元はCRPメンバー、今野はコンサルタント]）の計23名が参加した（参加者リストは参考資料1）。主催者は、IAEAの核データセクションリーダーのKoning氏で、会議のとりまとめは、今年3月までIAEAにおられたカールスルーエ工科大学（KIT）のSimakov氏が担当した。なお、本技術会合の発表資料、議事録（INDC(NDS)-0719として公刊済み）は以下のホームページで公開されているので、興味ある方はご参照いただきたい（会議のアジェンダは参考資料2）。

<https://www-nds.iaea.org/CRPdpa/TM-2016.htm>



参加者集合写真（右から1番目（今野）と2番目（岩元）が筆者）

2. 発表内容

ここでは、著者らの発表内容を中心にいくつか紹介する。

岩元は、「粒子輸送計算コードPHITSと核データ処理コードNJOYを用いたPKAスペクトル及びカーマ係数に関する比較研究」という題目で発表を行った。概要は以下のとおりである。

- 原子炉等の構造材として多く使用される炭素、鉄、タングステン等の22核種について、JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1及びTENDL-2015の核データライブラリを用いて、中性子照射環境下でのPKAスペクトル及びカーマ係数を計算した。ここでは、イベント毎にエネルギー・運動量が保存されるPHITSのイベントジェネレータモード（PHITS-EGM）及びエネルギーバランス法によるNJOYの2つの手法を採用した。
- ENDF/B-VII.1とTENDL-2015の多くの核種に対して、PHITS-EGMとNJOYの両手法によるPKAスペクトルの差異は小さいことがわかった。JENDL-4.0の多くの核種対

する NJOY を用いた計算は、二次荷電粒子のエネルギー・角度分布のデータが不足していることから、PKA スペクトルを正しく導出できなかった。一方で、二次粒子のエネルギー・角度分布を PHITS に組み込まれている物理モデルに従い計算できる PHITS-EGM は、正しく PKA スペクトルを計算できることを示した。

- 中性子捕獲反応が支配的なエネルギー10 eV 以下の中性子照射において、TENDL-2015 の多くの核種に対する NJOY を用いたカーマ係数の計算は、TENDL-2015 の生成 γ 線エネルギーデータが適当でないため、カーマ係数を正しく導出しないことがわかった。一方で、 γ 線エネルギーを評価済核構造データファイル (ENSDF) とモデルに従い計算できる PHITS-EGM は、カーマ係数を正しく計算できることを示した。

上記の報告について、IAEA の Koning 氏から、今後 TENDL-2015 の γ 線データの修正を行うとのコメントがあった。UK Atomic Energy Authority の Sublet 氏からは、PHITS-EGM について、放射線損傷データ導出に標準的に使われている NJOY とは異なる計算手法であるとのコメントがあり、参加者に PHITS-EGM の放射線損傷計算に対する有用性が認められた。今後も CRP の活動の一環として、PHITS-EGM を用いて、多くの核種に対する NJOY による材料損傷に関連した物理量の計算値との比較・検討を継続することになった。発表資料は、1 の最後に記載したホームページから見るできるので、ご興味ある方は是非ご一読いただきたい。

もう一人の筆者である今野は、「JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2、FENDL-3.1b から NJOY で計算されたカーマ係数、放射線損傷断面積間の差」という題目で発表を行った。JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2、FENDL-3.1b の全ての核種 (497 核種) について、公式の ACE ファイルに格納されている 20 MeV 以下のカーマ係数、放射線損傷断面積を詳細に比較し、その差の原因について報告した。発表の概要は以下の通りである。

- JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2、FENDL-3.1b の多くの核種でカーマ係数、放射線損傷断面積の間に顕著な差がある。
- 差の原因は大きく分けて核データに起因するものと NJOY コードに起因するものの 2 つがある。
- 核データに起因する原因は、① 反応前後でのエネルギーが保存されていないこと、② 反応断面積が核データ間で異なっていること、③ 反応の Q 値が間違っていること、④ 2 次荷電粒子のエネルギー角度データがないこと、⑤ 2 次 γ 線スペクトルが核データ間で異なっていること、である。
- NJOY コードに起因する原因は、① ^1H の捕獲反応の 2 次 γ 線データを処理する際の NJOY コードのバグ、② 2 次荷電粒子のエネルギー角度データがない場合、運動学的カーマ係数を正しく計算できないこと、③ 2 次 γ 線データがない場合、運動学的カーマ係数を正しく計算できないこと、④ NJOY が未対応の格納形式で 2 次 γ 線データが格納されていること、である。

今野以外の参加者は、核データライブラリ間でカーマ係数、放射線損傷断面積に差があることは認識していてもその原因を検討したことは無いようで、今野の報告は大きな反響を呼んだ。今回の今野の発表は 20 MeV 以下のカーマ係数と放射線損傷断面積に限定していたが、ベルギー原子核研究センターの Fiorito 氏が会合の中で、JEFF-3.2 の ^{184}W の放射線損傷断面積が 30 MeV 以上で ENDF/B-VII.1 や TENDL-2015 より 2 桁以上大きくなることを報告していたので、今野が現地でその原因を調べた。その結果、JEFF-3.2 に内蔵されている $^{184}\text{W}(n,t)^{182}\text{Ta}$ 反応での ^{182}Ta の生成収率が 30 MeV 以上で TENDL-2015 より 2 桁以上大きく、それを修正することで 30 MeV 以上での放射線損傷断面積の問題を解決できることがわかったので、速報として追加で報告した。この問題は JEFF-3.2 の ^{182}W 、 ^{183}W 、 ^{186}W でも生じており、欧州の参加者に JEFF-3.2 の ^{182}W 、 ^{183}W 、 ^{186}W データも改訂する必要があることを伝えた。

他の参加者の発表として、ポール・シェラー研究所の Rochman 氏、カールスルーエ工科大学の Simakov 氏、Konobeev 氏らから、核データライブラリの反応断面積の不確かさを示す共分散データと、誤差伝搬を計算する TALYS コードのトータルモンテカルロ法 (TMC) を用いた放射線損傷データの誤差計算について紹介があった。これらの物理量は、入射中性子スペクトルと反応チャンネル毎の PKA スペクトル等の積分であらわされることから、誤差計算手法の誤差も検討する必要があるとのことであった。ランダムサンプリングデータについては、それを核データの誤差ファイルから作るための SANDY コードがベルギー原子核研究センターにおいて開発中で、早ければ年内に OECD/NEA データバンクから公開されるとベルギー原子力研究センターの Fiorito 氏から報告があった。

材料損傷の専門家であるヘルシンキ大学の Nordlund 氏から、材料中に形成される照射欠陥の生成効率について紹介があり、PKA エネルギーが大きくなるにつれて、生成効率の誤差が大きくなることが示された。欠陥生成効率は、放射線損傷断面積を導出する際に必要となるパラメータで、将来、NJOY で考慮されるとともに、PHITS の放射線損傷断面積計算にも役立てたいと考えている。

3. 本 TM から CRP 活動計画への提言

本 TM を通して、今後の CRP 「初期の放射線損傷断面積」活動に対しての提言等の議論を行った。以下、提言の抜粋を示す。

- 1) 放射線損傷データは放射線損傷研究のサポートに必要である。本 TM では、以下の誤差付きの放射線損傷データのセットを推奨する。
 - ・入射中性子エネルギー、放出粒子の角度・エネルギー等を関数とした PKA スペクトル
 - ・カーマ係数

- ・水素、ヘリウム等のガス生成断面積
 - ・粒子生成断面積、放射線損傷断面積
 - ・材料の損傷エネルギー
- 2) 本 TM では放射線損傷データの誤差の導出手法として、例えば TALYS コードといった、モンテカルロ法に基づいたランダムサンプリングの使用を推奨する。
 - 3) カーマ係数や放射線損傷断面積等の放射線損傷データは、入射中性子スペクトルと反応チャンネル毎の PKA スペクトル等の積分であらわされる。よって、中性子スペクトル、材料の組成、考えられる反応チャンネル等の全ての誤差が必要となる。
 - 4) カーマ係数を計算するために最も広く利用されているデータ処理コードは、NJOY/HEATR モジュールという認識で一致した。一方で、利用者によりカーマ係数等の計算条件(NJOY のバージョン、入力ファイル、処理方法等)が異なるため、IAEA/NDS が推奨の計算条件を提示することが望ましい。NJOY/HEATR モジュールによるカーマ係数、PKA スペクトル等を検証する有用なコードとして、PHITS-EGM、TRIPOLI コードがある。
 - 5) 原子炉、核融合炉、加速器施設等で重要となる Fe, Ni, Al, Ti, Si, Cr, Cu, W, Zr, Be に対して、1) に示した放射線損傷データの計算、評価等を行う。その際、可能な限り、誤差を考慮する。計算、評価等の役割分担を以下のとおりとする。
 - ・ Si: P. Griffin, Sandia National Lab, USA;
 - ・ Be: A. Konobeev and S. Simakov, KIT, Germany;
 - ・ Fe, Cu: S. Simakov, KIT, Germany;
 - ・ Ni, Al, Ti, Si, Cr, Cu, W and Zr, UKAEA, UK;
 - ・ Fe: O. Cabellos, OECD, NEA.
 - ・ Fe, Ni, Al, Ti, Cr, Cu, W, Zr: Y. Iwamoto, JAEA, Japan;
 (ただし、岩元は放射線損傷データに対する NJOY と PHITS-EGM の計算値の比較・検証を行う)
 - 6) 放射線損傷データ（ガス生成断面積、カーマ係数、放射線損傷断面積）の実験値による検証は重要である。

4. おわりに

材料照射損傷の起点は核反応であるので、核データ側に求められることは、様々な材料に対する精度良い PKA スペクトル等を材料損傷の研究者に提供することである。そのためにも、誤差つきの放射線損傷データを提供することは材料損傷研究の発展に有意義であり、核データ側の責任は大きいと感じた。PHITS-EGM がやっと放射線損傷データを計算するツールとして認められたので、引き続き、広く使われている NJOY/HEATR モジュールの検証を行って行く。また、今まで材料損傷研究で行われていなかった、高エネルギー

一領域の放射線損傷断面積の実験を岩元が照射損傷や低温の研究者らと共同で装置開発や測定を進めている。将来、実験成果が、検証のために使用されること、核データと材料損傷の橋渡し研究になればと考えている。

一方で、今回の会合の最大の目的はカーマ係数、放射線損傷断面積の誤差を議論することであったが、報告された誤差は最大でも数 10%程度で、この誤差以上に核データライブラリ間でカーマ係数、放射線損傷断面積が違う核種が多数あるため、今回報告された誤差にどの程度の意味があるのか疑問に思った。核データライブラリ間でカーマ係数、放射線損傷断面積の差を引き起こしている原因の多くは、NJOY コードの HEATR モジュールにあり、HEATR モジュールの大幅な改訂が必要であるが、NJOY の開発者は ENDF/B-VIII データ処理に追われていて無理であろうとのコメントが IAEA からあった。このような状況を鑑みると、原子力機構で開発が進められている国産の断面積処理コード FRENDDY に NJOY の HEATR モジュールに対応する機能（HEATR モジュールの問題を修正した）が追加されれば、世界中の研究者が NJOY から FRENDDY に乗り換えることは間違いない。できるだけ早く（遅くとも、米国が NJOY の HEATR モジュールの問題を修正する前に）FRENDDY に HEATR モジュールに対応する機能を整備することが、今後の FRENDDY 開発戦略の要になると強く感じた。

最後に、現地での夕食などで大変お世話になった IAEA 核データセクションの大塚直彦氏に深く御礼申し上げます。

参考資料 1 : 参加者リスト

BELGIUM Mr Luca Fiorito Belgian Nuclear Research Centre	FINLAND Mr Kai Nordlund University of Helsinki
FRANCE Mr David Bernard Centre d'Etudes Nucleaires de Cadarache	GERMANY Mr Alexandre Konobeev Karlsruhe Institute of Technology
GERMANY Mr Stanislav Simakov Karlsruhe Institute of Technology	JAPAN Mr Yosuke Iwamoto Japan Atomic Energy Agency
KOREA Rep. Mr Choong-Sup Gil Korea Atomic Energy Research Institute	OECD Mr Oscar Cabellos Nuclear Energy Agency (NEA)
SWEDEN Mr Petter Helgesson Uppsala University	SWEDEN Mr Henrik Sjöstrand Uppsala University
SWITZERLAND Mr Dimitri Rochman Paul Scherrer Institute (PSI)	UNITED KINGDOM Mr Mark Gilbert UK Atomic Energy Authority
UNITED KINGDOM Mr Jean-Christophe Sublet UK Atomic Energy Authority	UNITED STATES OF AMERICA Mr Patrick Griffin Sandia National Laboratories
CONSULTANT Mr Chikara Konno Japan Atomic Energy Agency	CONSULTANT Mr Valentin Sinita National Research Centre - Kurchatov Institute
IAEA Mr Arjan Koning Nuclear Data Section	IAEA Mr Bastian Braams Nuclear Data Section
IAEA Mr Vivian (Paraskevi) Dimiriou Nuclear Data Section	IAEA Mr Naohiko Otsuka Nuclear Data Section
IAEA Ms Valentina Semkova Nuclear Data Section	IAEA Mr Andrej Trkov Nuclear Data Section
IAEA Ms Ian Swenson Physics Section	

参考資料 2 : 会合アジェンダ

Technical Meeting (TM)

“Nuclear Reaction Data and Uncertainties for Radiation Damage”

13 - 16 June 2016
IAEA Headquarters, Vienna, Austria
Meeting Room MOE05

Approved AGENDA

(presentations' time is approximate, it also includes questions and breaks)

Monday, 13 June

Opening (9:30 - 10:00)
Welcome address – A. Koning (NDS, Section Head) Administrative announcements – A. Öchs (NDS) Self-introductions and Election of Chairperson and Rapporteur - All Approval of Agenda - All
Session 1: Individual Presentations
<i>morning 10:00 - 12:00</i>
D. Rochman, “TENDL-TMC for the dpa and pka Uncertainties” S. Simakov, “Uncertainties and correlations for the ⁵⁶ Fe damage cross sections and spectra averaged quantities based on TENDL-TMC” A. Konobeev, “Estimation of uncertainties of displacement cross-sections for iron and tungsten at neutron irradiation energies above 0.1 MeV”
<i>12:00 - 13:30 Lunch break + Administrative issues</i>
<i>evening 13:30 - 18:00</i>
D. Bernard, “Estimation of Bias and Uncertainties for Radiation Damage calculation (Fission Reactors)”. P. Helgesson, "Justified and complete gas-production cross sections with uncertainties for Ni-59 and consequences for stainless steel in LWR spectra" P. Griffin, “A Rigorous Treatment of Uncertainty Quantification for Silicon Damage Metrics” Y. Iwamoto, "Comparative study of Monte Carlo particle transport code PHITS and nuclear data processing code NJOY for energy spectra of PKA and kerma under neutron irradiation"
<i>Coffee breaks as needed</i>

Tuesday, 14 June

<i>morning 9:00 - 13:00</i>	
M.R. Gilbert and J.-Ch. Sublet,	"Scoping of material damage with FISPACT-II and different nuclear data libraries: transmutation, activation, and PKAs"
C. Konno,	"Differences among KERMA or DPA data calculated from JENDL-4.0, ENDF/B-VII.1, JEFF-3.2 and FENDL-3.1b with NJOY"
V. Sinitsa,	"ROSFOND Based Heating-Damage Cross Sections Sub-Library: Preliminary Uncertainty Assessment"
C.S. Gil	"Some experiences of dpa assessments using MCNP and SPECTER codes"
<i>13:00 - 14:00 Lunch break</i>	
<i>evening 14:00 - 18:00</i>	
K. Nordlund,	"Damage clustering in metals: importance, advances, and challenges"
B. Braams	"Remarks for TM on <i>Nuclear Reaction Data and Uncertainties for Radiation Damage</i> "
L. Fiorito,	"A methodology to assess dpa uncertainties from nuclear data covariances"
<i>Coffee breaks as needed</i>	
Hospitality Event: 18:30 in Restaurant "Rembetiko" (http://www.rembetiko.at/) on rebuild Copa Cagrana	

Wednesday, 15 June

<i>morning 9:00 - 13:00</i>	
O. Cabellos,	"Links with NEA activities: Nuclear Data Services and WPs"
C. Konno,	"Preliminary study on DPA cross section of 184W in JEFF-3.2"
J.-C. Sublet,	"NJOY's processing steps and processed forms"
<i>13:00 - 14:00 Lunch break</i>	
Session 2: Joint Discussion, writing-up Summary and Recommendation for TM Report	
<i>evening 14:00 - 18:00</i>	
<i>Coffee breaks as needed</i>	

Thursday, 16 July

Session 3: Finalization of the Meeting Report Draft	
<i>morning 9:00 - 13:00</i>	
<i>13:00 - 14:00 Lunch break</i>	
<i>ending</i>	
<i>Coffee breaks as needed</i>	