

部会・連絡会セッション 核データ部会 [「シグマ」特別専門委員会共催]
「我が国における核データ計算コード開発の現状と将来ビジョン」

(1) 共鳴解析コード AMUR の開発

日本原子力研究開発機構
核データ研究グループ
国枝 賢
kunieda.satoshi@jaea.go.jp

1. はじめに

共鳴領域における核反応断面積を核反応理論やモデルのみに基づいて正確に予測することは、世界最高峰の核物理学を駆使しても現状では不可能である。従って、共鳴領域の核反応断面積を知るための最も有効な手段は「測定」である。事実、これまで半世紀に亘り、国内外の研究炉や加速器施設において測定が行われてきた。当然、各国の核データライブラリにおける共鳴断面積は、これらの測定データに基づいて評価されている。

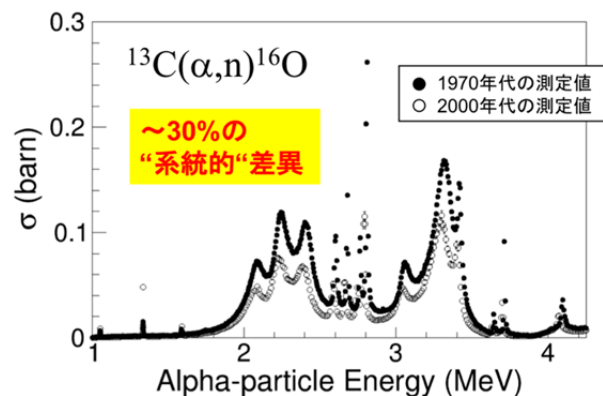


図1 $^{13}\text{C}(\alpha,n)^{16}\text{O}$ 反応断面積における測定データ間の差異

しかし、同じ核反応に対する測定データは必ずしもその不確かさの範囲内で一致しない。典型的な例として図1に $^{13}\text{C}(\alpha,n)^{16}\text{O}$ 反応断面積を示す。1970年代測定値と2000年代に測定された測定値に30%程度の大きな系統的差異が見られる。このように、測定データ同士が一致しない背景にはサンプル密度の定量限界をはじめとする種々の要因が挙げられる。文献等で確認しても原因がはっきりとわからない場合、核データライブラリの開発において参照すべき測定データはどちらであろうか？（新しいデータであろうか？

それとも別の答えがあるのだろうか?) 図1は極端な例ではあるが、測定のみでは解決し難い問題があるため、現状の核データライブラリにおいても、それに起因する不確かさが大なり小なり内在している。

さて、中性子工学のシミュレーションにおいて必要とされるのは断面積のみではない。弾性散乱であればその角度分布(微分断面積)が必要である。共鳴領域の角度分布を全てのエネルギーや放出角度点において測定することは至難の技であることは想像に難くないだろう。事実、これまで取得された測定データは部分的なエネルギー範囲に限られている。評価済み核データの中身はどうなっているだろうか。これは一部の原子核を除いて、光学模型による計算値が格納されている。光学模型はエネルギー平均の断面積を記述する上でパワフルなツールであり、数 MeV 以上の評価には有用である。しかし共鳴領域においては必ずしも理想的な評価とはなっておらず、やはり平均的な振る舞いを記述するにとどまっている。

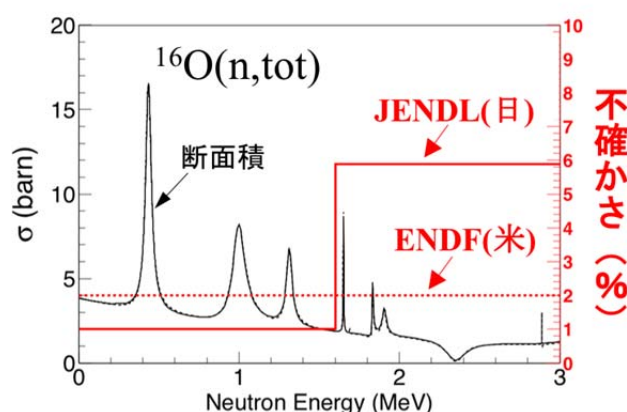


図2 JENDL-4.0 および ENDF/B-VIII.0 に格納されている ^{16}O 中性子断面積とその不確かさ

その昔、とある大学の先生が「不確かさを与えないデータ推定は単なるお遊びである」云々との趣旨を高らかにおっしゃったそうである。この表現には賛否はあると思われるが、私は本質的なコメントであると思う。例えば明日の天気予報で、予報確率が正確である場合とそうで無い場合では、明日の世の中の動き(一次産業、物流、金融、・・・)は大きく変わるに違いない。情報工学が半ば支配する現代においては、不確かさの情報は時として物事の運命を左右すると言っても過言ではないのではないだろうか。話はそれだが、現在核データの分野では、断面積の共分散をライブラリに格納する試みが積極的に行われている。また、これは核データの不確かさが原子力施設的设计裕度を左右する一つの要因となっているからである。しかし、各国のライブラリにおける断面積のノミナル値は収束する傾向に向かっている一方、不確かさの値については大きく異なって

いる場合が少なくない。例えば、図2に ^{16}O の中性子全断面積とその不確かさを米国のライブラリ（ENDF/B-VIII.0）と日本のライブラリ（JENDL-4.0）と比較する。断面積の値そのものはほぼ一致するが、不確かさに関しては、両者は異なる測定データの不確かさを参照しているため、その違いが明確に現れている。この場合、核データの利用者はどちらの値を信頼すれば良いのだろうか？なお、JENDL-4.0において不自然な段差が見られるのは、このエネルギーを境に異なる測定データを参照しているためである。

私は以上のような課題に取り組むための一般的な共鳴解析ツールが核データの信頼性を向上するために必要であると考え、新たな共鳴解析コード AMUR の開発に着手した。また近年 J-PARC/MLF において、測定装置 ANNRI を用いた共鳴核データの測定が開始されたことや、IAEA 等で整備されている測定値のデータベース EXFOR において各国共鳴データの収集が本格的に始まったことが、さらなるモチベーションとなっている。

2. R 行列理論とは

共鳴解析コード AMUR は R 行列理論と呼ばれる共鳴理論に基づく測定データの解析コードである。核データニュース No.118「R 行列共鳴解析コードに関するコンサルタント会合に参加」に投稿した記事の内容と一部重複するが、本項でも改めて理論の概要を説明したい。

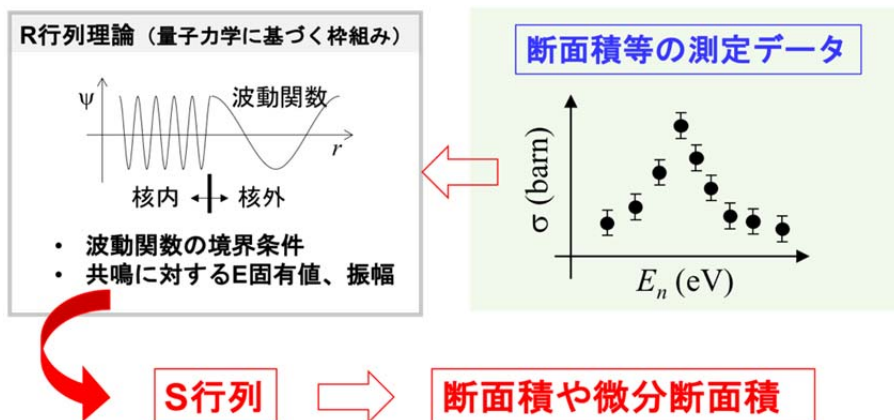


図3 R 行列理論の概要

図3にR行列理論の概要を示す。R行列理論とは、中性子・荷電粒子+原子核の反応を境界条件に基づいて量子力学的に記述し、断面積等々の測定データから散乱行列（S行列）を取得する枠組みである。計算を行うためには、まず原子核内部と外部の境界を定義するチャンネル半径および核内外の波動関数を滑らかに繋ぐための対数微分値（要するに境界条件）を定義する必要がある。測定データから取得される物理量は、複合核のエネルギー固有値とスピン・パリティ、そして個々のチャンネルに対する換算幅振幅

である。当然のことながら“チャンネル”とは粒子の種類のみならず、角運動量やチャンネルスピンによって定義される。また、換算幅振幅はざっくりいえばその名の通り、個々のチャンネルの波動関数の“振幅”で定義される物理量である。したがって R 行列理論は、核反応の描像を所謂“モデル化した”ものではなく、枠組みとしては量子力学そのものである（その意味では R 行列理論は将来、核データ測定のみならず、原子核構造理論とも連携できる可能性を秘めていると言える）。

このように、R 行列理論は核反応を記述する上で最も根幹的な物理量である S 行列を取得する枠組みである。従って、断面積の測定データを内外挿することはもちろん、角度微分断面積の予測計算を行うことが可能である。ただし、中重核に対して捕獲断面積の計算を厳密に行うとなるとチャンネル数が膨大になる為、現実的には Reich-Moore 等の近似を導入せざるを得ない状況があることを参考までに補足しておく。

3. 共鳴解析コード AMUR の開発状況

共鳴解析コード AMUR は大きく 2 つのルーチンで構成されている。一つは R 行列理論および共鳴パラメータに基づいて断面積等を計算する「理論計算ルーチン」であり、もう一つは測定データを解析（フィッティング）して共鳴パラメータを取得する「解析ルーチン」である。なお、AMUR の開発には C++ を用いており、コード自体はオブジェクト指向を強く意識した構造を有している。通常「コード」と表現はしているが、実態は所謂クラスの集合体である。従って、共鳴解析において種々のクラスを組み合わせた独自の解析が可能となる。

理論計算のルーチンに関してはほぼ完成しており、Wigner-Eisenbud の R 行列定式[1]に基づいて、断面積のみならず角度微分断面積や偏極分解能の計算が可能である。ただし、中性子捕獲断面積の計算には Reich-Moore[2]の近似を採用した。これは、中重核においてチャンネル数が膨大になるためである。また、これは ENDF-6 フォーマットの R-matrix limited (LRF=7)に相当する計算が可能であることを意味する。現在、LRF=7 で評価された核種は ENDF/B-VIII.0 における ^{35}Cl および JEFF-3.3 における $^{63,65}\text{Cu}$ の中性子断面積のみである。AMUR における計算が本当に正しく行われているか検証を行うことを目的として、これらの共鳴パラメータおよび IAEA が配布している最新版の PREPRO コードを用いた計算結果と比較を行った。図 4 は ^{35}Cl の共鳴パラメータを用いた PREPRO と AMUR の全断面積の比をとったものである。結果は、ほぼ「1」になっていることがわかる。

解析ルーチンでは測定データから共鳴パラメータを取得する。AMUR ではカルマンフィルター法に基づくパラメータサーチ、そして共鳴パラメータおよび断面積の共分散を推定することが可能である。この際に最も重要なことは、測定データが取得された条件をできる限り模擬することである。事実、データが取得された施設や環境、照射サン

プルや検出装置の違いにより、測定データには必然的に真の値からのズレが生じる。解析においてこれらの要因を考慮することが、断面積の評価や不確かさの推定における鍵となる。これまでに、米国の SAMMY[3]や欧州の REFIT[4]コードが測定施設や測定者と密接に連携しながら開発されてきたのはこのためである。しかしながら、測定条件を模擬することは容易では無い。そもそも、単一のコードで各々の測定施設に固有な問題に対処できるだろうか。AMUR をクラスの集合体として開発している理由の一つは実はこちらにある。すなわち、解析に必要な基本的なクラスを幾つも準備しておき、それらの組み合わせにより、個々の測定に最適化された最善の手法を構築できると考えている。解析ルーチンに関しては、残念ながら現在はドップラー広がりや分解能およびバックグラウンド補正ができるのみであり、SAMMY や REFIT には及ばない。今後はこのルーチンを充実させることが最も重要な課題と認識している。例えば、照射サンプルにおける自己遮蔽効果や多重散乱の計算機能は必須であろう。

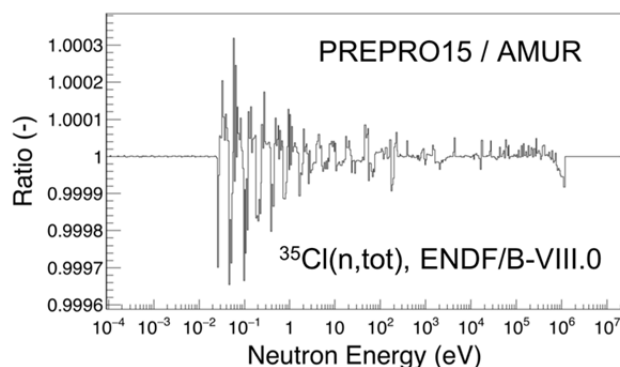


図 4 断面積計算における PREPRO コードと AMUR の比較

4. 軽核の断面積評価における AMUR の適用例

軽い原子核（ここでは原子番号が~10以下の原子核）では共鳴解析を比較的容易に行うことができる。これは中重核に比べて観測される共鳴の数が少ない（複合核の準位密度が粗である）こと、捕獲断面積がマイクロバンのオーダーであるため、測定において自己遮蔽の効果を受けにくいこと等が挙げられる。図 5（左）は EXFOR に収録されている ^{19}F 全断面積の測定データを AMUR でフィットした例である。R 行列は測定データを内外挿するための良いフィッティング関数であることがわかる。なお、JENDL-4.0 では Breit-Wigner 公式により評価されており、これもまた測定値をよく再現できている。しかし角度微分断面積に対しては状況が大きく異なる。図 5（右）は中性子エネルギー100 keVにおける弾性散乱微分断面積である。Breit-Wigner 公式では角度分布を計算できないため、JENDL-4.0 では光学模型による計算値が収録されている。一方、2節で述べたとおり、R

行列解析は S 行列（散乱行列）を導く理論である。そのため、断面積の解析で得られた共鳴パラメータから微断面積を予測することが可能である。予測結果は図に示す通り、JENDL-4.0 とは大きく異なっている。果たしてアプリケーション側では、この差異は影響するのであろうか。

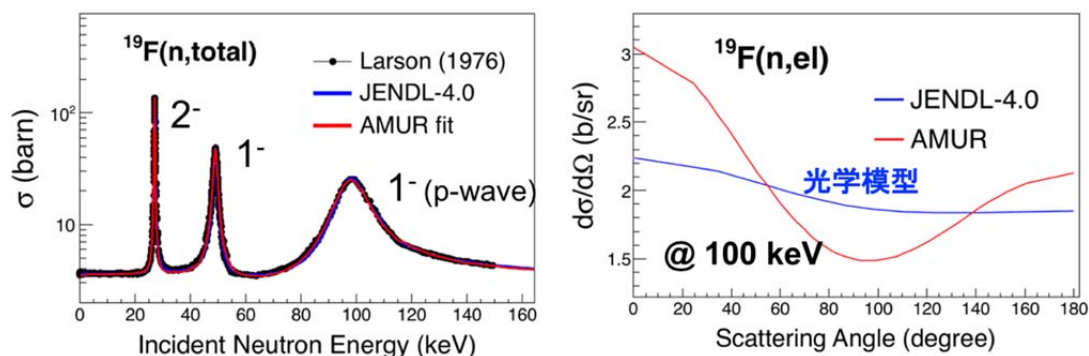


図 5 ^{19}F 中性子断面積に対する R 行列解析の例。右図は全断面積、左図は中性子エネルギー100 keV における弾性散乱微断面積の計算結果。

もう一つの例として、冒頭で示した $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ 反応断面積に対する結果を示す。この反応は宇宙における元素合成過程の一つである s -process において主要な中性子源とされており、天体核物理学における重要な基礎データの一つである。また、この逆反応である $^{16}\text{O}(n, \alpha)^{13}\text{C}$ は軽水炉の臨界計算に少なからず影響を与えることが知られている。本研究では、 ^{16}O の全断面積の測定データと同時に 2000 年代の新しい測定データをフィットした。ただし、対象とする測定データの絶対値を全て不明として解析した。これは米国ロスアラモス研究所で開発された R 行列解析コード EDA の手法に倣ったものである。 ^{16}O 中性子全断面積に対する結果の一部を図 6 に示す。測定データをよく再現できている様子がうかがえる。一方、図 7 に $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ 反応断面積の結果を示す。2000 年代の測定データをフィットしたにもかかわらず、1970 年代の測定値を支持する結果となった。これは R 行列理論における散乱行列を取得する際に“ユニタリ性”と呼ばれる強い拘束力が働くためである。“ユニタリ性”とは一言で表現するならば、“量子力学的な確率保存則”であろうか。このような物理原理を共鳴解析に効果的に用いる手法は、今後、測定値の系統的な不確かさによる評価済みデータの不確かさの低減に有効な手段となる可能性がある[6]。なお、Reich-Moore の近似を用いた場合に、どこまでこの手法が適用できるのか、調査したいと考えている。

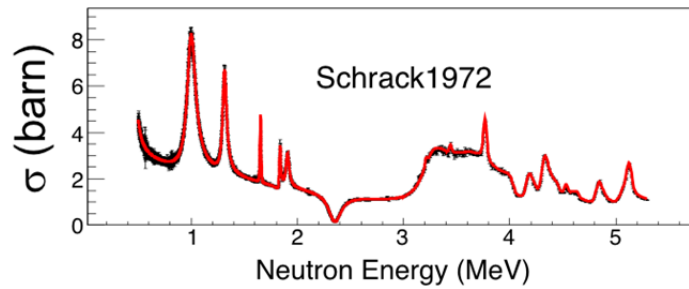


図6 ^{16}O 中性子全断面積の測定値(Schrack ら)と AMUR による解析結果

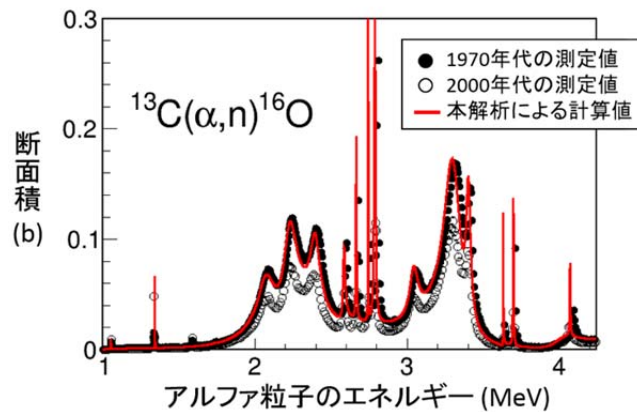


図7 $^{13}\text{C}(\alpha,n)^{16}\text{O}$ 反応断面積の測定値と AMUR による解析結果[5]

最後に、共分散の評価結果について一例を示す。図8（左）はカルマンフィルター法によって得られた ^{16}O 中性子全断面積に対するエネルギー相関の結果である。1 MeV 以下の低エネルギーにおいて相関が強い理由は ^{17}O の束縛状態(負の共鳴準位)の寄与が大きいためである。しかしこの図において最も注目すべきは(n,α)反応閾エネルギーである約 2.5 MeV 以下において、相関が局所的に小さくなっていることである。また、相関が小さくなっているところは共鳴ピーク位置と完全に一致している。このエネルギー領域では ^{16}O の中性子捕獲断面積はマイクロバールのオーダーであり、他の反応は弾性散乱のみである。したがって捕獲断面積をゼロとみなすと、ピーク位置で必然的に位相差が $\pi/2$ になり、散乱行列がユニタリ極限をとることになる[7]。図8に見られる極小値はこの効果に他ならず、相関がゼロに近い値まで弱まるということは R 行列理論そのものが強い拘束力を持っていることを顕に示している。前段で適用した EDA 手法の妥当性には疑問を投げかける学者も多い中、この図は（少なくとも ^{16}O の例においては）手法の妥当性を裏付ける内容となっている[6]。なお、図8(右)に本解析で得られた不確かさの結果を示した。低エネルギーでのピーク位置において不確かさの値が極小値をとっている様子が伺える。また、測定の情報のみならず、理

論的な知見が反映されていることを改めて強調したい。

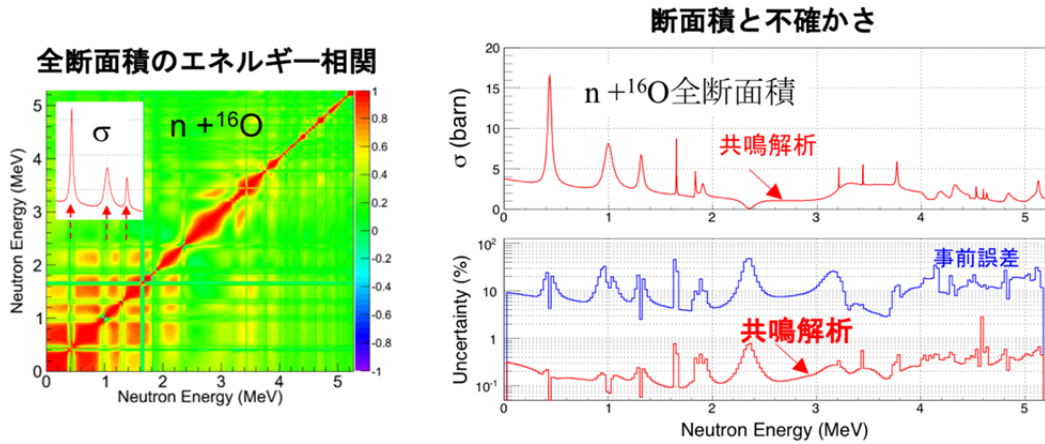


図 8 ^{16}O の中性子全面積のエネルギー相関（左）および不確かさの推定値（右）

4. 将来ビジョン

核データの応用分野は多岐に亘る。また、その傾向は以前よりも増しているように思われる。核データは原子炉安全性のための基礎データとして重要なことは変わらないが、使用済み燃料の核変換処理の研究開発のためには、共鳴領域においても LLFP や MA の断面積の整備を本格的に行う必要がある。現在 J-PARC/MLF-ANNRI において測定によるアプローチが積極的に行われている。十分な根拠をもった断面積や共分散を導くためには、かつて SAMMY や REFIT がそうであったように、測定施設や測定者と一体になって共鳴解析コードを開発する必要があると考えている。また、医療（粒子線治療や RI 製造）や非破壊分析等における核データの充実に貢献したい。そのためには、荷電粒子入射反応に対する計算機能や、解析ルーチンを充実させる必要がある。対象となる物理量や解析手法に制限を設けず、一般的な共鳴解析コードとなるよう、また将来的にはオープンソース化できるよう、これからも精進したい。

参考文献

- [1] E.P. Wigner, L. Eisenbud, Phys. Rev. 72, 29 (1947).
- [2] C.W. Reich, M.S. Moore, Phys. Rev. 111, 929 (1958)
- [3] N.M. Larson, ORNL/TM-9179/R8, ENDF-364/R2 (2008).
- [4] M.C. Moxon, T.C. Ware, C.J. Dean, UKNSF(2010) P243, (2010).
- [5] 原子力機構の研究開発成果 2016-2017, p44
- [6] S. Kunieda et al. Nuclear Data Sheets, Vol.123, p159-164 (2015).
- [7] 鷲見義雄：「原子核物理入門」、裳華房、p.132