

会議のトピックス(II)

日本原子力学会「2019年春の年会」

核データ部会セッション (シグマ特別専門委員会共催)

核分裂生成物核種の核データ研究のフロンティア

2019年3月22日 13:00~14:30 茨城大学 水戸キャンパス

(1) 評価研究の進展：JENDL-4.0 からその先へ

日本原子力研究開発機構

核データ研究グループ

岩本 信之

iwamoto.nobuyuki@jaea.go.jp

1. はじめに

汎用評価済核データライブラリの第4版である JENDL-4.0 [1] が 2010年5月に公開されてから、すでに9年が経過した。JENDL-4.0は、革新的原子力システム開発のための基礎データとなるよう、特に核分裂生成物 (FP) 及びマイナーアクチノイド核種の信頼性向上に重点が置かれていた。JENDL-4.0では、FP核種として半減期が10日以上不安定核、もしくは累積核分裂収率が0.1%以上となる核種が選ばれており、原子番号では30 (Zn) から68 (Er) までの範囲に亘る。もちろんこの原子番号の範囲にある安定核は収録されており、全体のFP核種数は215種となっている。これは JENDL-3.3 (2002年公開) に収録された核種数に比べて、30種も増加したことになる。共鳴領域における評価では、評価時期に依存するが、基本的には2004年までの論文発表データに基づいて、109核種の分離共鳴パラメータが改訂された。共鳴領域より高い中性子エネルギー領域 (連続領域) の評価では、チャンネル結合法に基づく光学モデルをベースに、広い質量数範囲に対応したモデルパラメータが導出され、精度の向上した中性子全断面積、弾性・直接非弾性散乱断面積や角度分布が計算可能になった [2]。また、連続領域に対しては、当時最新

の核反応理論に基づく核反応モデル計算コード CCONE [3]と POD [4]が開発され、断面積の予測性能を向上させた。このような評価ツールの開発により、JENDL-4.0 では核データの信頼性を格段に高めることができた。

2. JENDL-5の開発における取り組み

次期汎用評価済核データライブラリ JENDL-5 は原子力利用によって生じた放射性廃棄物の処理処分や原子炉施設の廃止措置等の諸課題を解決するための原子力イノベーション創出に資すると共に、加速器を用いた放射線利用などの幅広い分野において必要な基礎データベースとなるように開発が進められている。特に放射化断面積データの汎用ライブラリへの統合により、例えば、原子炉施設における中性子輸送シミュレーションに使用する核データと放射能インベントリ評価に使用する核データが整合することで、結果への信頼性や説明性が向上すると期待される。原子炉施設の廃止措置における放射能インベントリ評価に向けた放射化断面積ファイルとしては、2018年3月に公開した JENDL/AD-2017 [5]がある。このファイルには、線量告示に記載された放射性核種のうち原子炉施設で生成される可能性のある放射性核種が残留核となる反応チャンネルを持つ 311種の核種に対する核データが収録されている。また、残留核には準安定状態が長い半減期を持つものがあり、これらの生成放射エネルギーを適切に評価するために、放射化断面積ファイルには基底状態と準安定状態をそれぞれ生成する反応断面積を収録しているのが特徴である。JENDL-5 では、放射能インベントリ評価に必要な放射性核種の完備性を高めるために、JENDL/AD-2017 に収録されている核種や、放射性核種の基底状態及び準安定状態の生成断面積データ (ENDF-6形式では MF=9,10) を追加する。また、インベントリ評価において、生成される可能性が非常に低いと考えられる放射性核種についてもそれが生成される核反応が入っていないことによる計算不能という状況をできる限り避けるため、広い核種範囲に対して核データを用意しておくことが望ましい。このような要請もあり、核種範囲として JEFF-3.1/A [6] 程度を想定して開発を進めている。図 1 には、FP 領域における JENDL-4.0、JENDL/AD-2017 と JEFF-3.1/A の収録核種が示してある。JEFF-3.1/A にしかない核種の多くは不安定核であり、これらについては CCONE コードによる系統的な計算を行うことになる。

FP 領域にありながら累積核分裂収率が小さいため JENDL-4.0 には収録されなかった ^{165}Ho や、時間の都合上改訂できなかった FP 核種の評価はすでに終了している。JENDL-4.0の公開以降に評価したこれらの核種に対しては、個々の反応チャンネルに対する角度・エネルギー分布データが提供できる CCONE コードで統一的に評価を行っている。これにより、少なくとも JENDL-5 の FP 核種については、CCONE もしくは POD コードのみで反応チャンネルの計算が行われ、反応断面積間に整合性のある核データが収録されることになる。共鳴パラメータについては、2004年以降に報告のあった 69核種に対する共

鳴パラメータの評価を行い改訂する予定である。

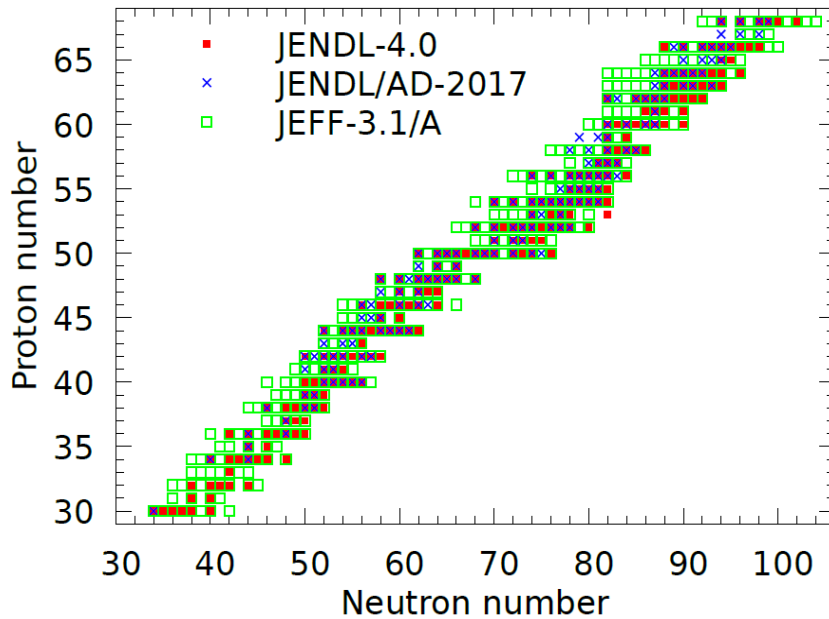


図 1 FP 領域における JENDL-4.0、JENDL/AD-2017、JEFF-3.1/A の収録核種の比較

3. JENDL-5 とこれ以降における評価研究の方向性

共鳴領域の評価では、従来、断面積測定データがある場合には共鳴パラメータから計算した断面積と測定データを比較したり、ベンチマークテストの結果を考慮するなどして、測定データの誤差範囲内で共鳴パラメータを見直すことがあった。JENDL-4.0 の公開後には、J-PARC の物質・生命科学実験施設 (MLF) に設置された中性子核反応測定装置 (ANNRI) [7] において中性子飛行時間法による捕獲断面積や全断面積の測定が行われ、断面積データが発表されている。JENDL-5 の開発では、これらのデータを活用することで、共鳴パラメータの独自導出による改訂も行っている。

また、連続領域における最近の評価研究は微視的原子核理論の知見を取り込んで、安定核近傍の評価のみならず、安定核から離れた不安定核に対する核データの信頼性を向上させる方向で進めており、これまでレベル密度やガンマ線強度関数、光学モデルポテンシャル [8] について検討を行ってきた。

これら二つの領域において実施してきた検討結果を紹介する。

(1) 測定可能な共鳴断面積の評価

J-PARC・MLF・ANNRI の Ge 検出器や NaI(Tl)検出器を用いた捕獲断面積測定では、

中性子の飛行時間スペクトル¹のみならず、ガンマ線の波高スペクトル²が同時に取得されている。そのため、中性子エネルギーとガンマ線エネルギーの2次元マップが作成可能となっている。例えば、ある1本の共鳴に対してガンマ線波高スペクトルを切り出すことで、観測された共鳴が本当に標的核由来の共鳴であるかを調べることが可能である。このようにして、誤って標的核の共鳴と割り当てられていた共鳴を取り除くことで、共鳴データの信頼性を高めることができる。実際に長寿命FPである¹⁰⁷Pd [9] や安定核の¹⁴²Nd [10] には、ミスアサインされた共鳴が見つまっている。図2には、例として¹⁰⁷Pdの捕獲断面積を示している。JENDL-4.0（青線）に収録されていた¹⁰⁷Pdの第1,2共鳴は波高スペクトルの解析により同じPdの同位体である¹⁰⁵Pdと原子番号が1だけ大きな¹⁰⁹Agのものであることが判明した。JENDL-5やこれ以降の核データライブラリにはこのような不純物由来の共鳴パラメータを取り除いたデータが収録されることになる。

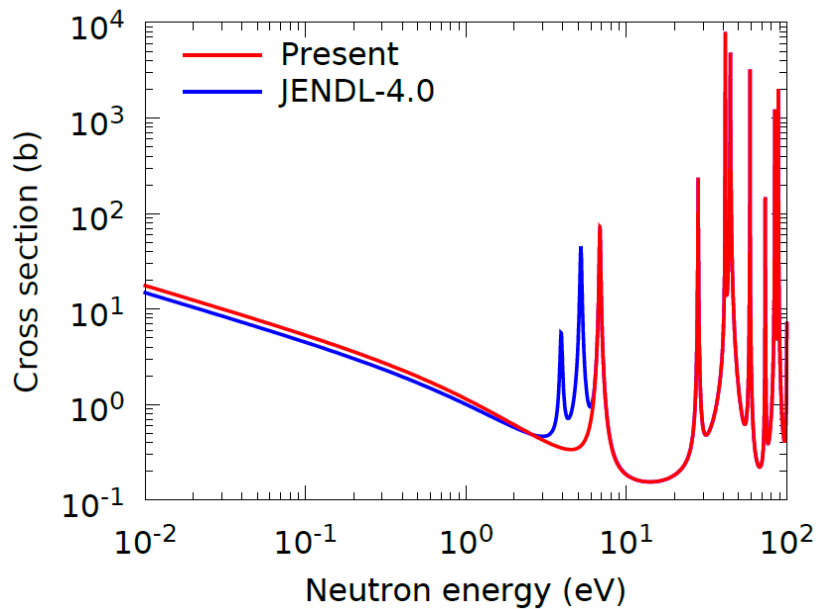


図2 ¹⁰⁷Pd の評価済捕獲断面積の比較

MLF には、陽子ビームを水銀ターゲットに入射して発生させた核破砕中性子を用いる

- ¹ 加速器からの陽子ビームが中性子源に照射されてから、中性子と標的核との捕獲反応で生じたガンマ線が検出器で検出されるまでに掛かる時間（飛行時間）に対する単位時間当たりのガンマ線の計数分布のこと。中性子の飛行時間は、中性子エネルギーの平方根と逆比例の関係にあることから、中性子エネルギー毎のガンマ線計数分布に変換することもできる。
- ² 中性子と標的核との捕獲反応で生じたガンマ線が検出器に入り、検出器で吸収されたときのエネルギー分布のこと。全てのエネルギーが吸収された場合には、入射ガンマ線のピークとして観測されるが、一定割合で低エネルギー側に連続的に分布する。この分布は検出器の性能とガンマ線エネルギーに依存し、検出器の応答関数と呼ばれる。

ことで中性子強度が大きくなるという利点がある。しかしながら、核破砕反応の利用により、あるエネルギーに対する時間的な広がりが大きくなるため、共鳴の幅が広がってしまう欠点もあり、共鳴パラメータから計算した断面積では解析することができない原因になっていた。近年、共鳴解析コード REFIT に ANNRI における時間分解能関数 [11] が実装された。これにより JENDL-5 開発においても ANNRI の測定データを基に共鳴パラメータを独自に改訂することができるようになった。また、Li ガラス検出器による中性子透過実験や NaI(Tl)検出器による捕獲断面積実験から中性子全断面積や高速中性子エネルギー領域における捕獲断面積の評価がそれぞれ可能となっている。特に $^{241,243}\text{Am}$ については透過実験と捕獲実験を組み合わせることで共鳴解析の精度を高めた共鳴パラメータがすでに導出されており、JENDL-5 に収録予定である。図 3 には、ANNRI の Ge 検出器で測定された ^{151}Eu の捕獲断面積 (緑点) に対して、REFIT コードで解析を行った結果 (赤線) が示してある。比較として示した JENDL-4.0 には、測定データを再現していない共鳴があり、改訂により精度の向上が期待できる。

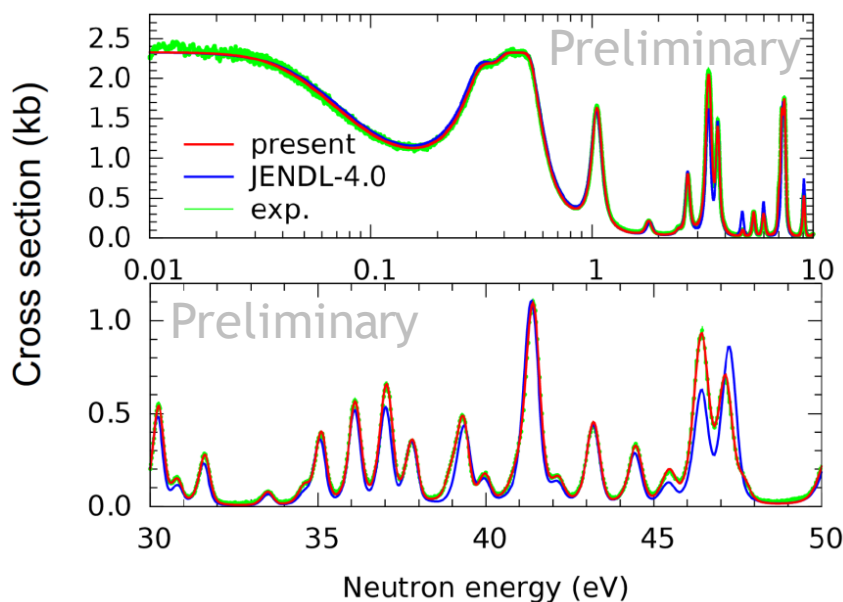


図 3 ^{151}Eu の捕獲断面積測定データ(exp.)と REFIT コードによる再現結果(present)

(2) 測定困難な共鳴断面積の評価

一般的に共鳴領域における断面積は測定してみなければ分からないと考えられている。そのため、測定ができない核種については、断面積を何らかの方法で推定する必要がある。これまでの JENDL では、熱中性子エネルギーの捕獲断面積を例えば平均 s 波共鳴間隔 D_0 との間の系統性 [12] などから推定し、これを通る $1/v$ 則に従う断面積と統計モデルによる断面積をあるエネルギー (例えば、 $D_0/2$ [13]) でつなぐことで表現してきた。このため、接続エネルギーではしばしば断面積に大きな差異を生じることがあった。現在は選

択肢の一つとして、共鳴の統計的性質を使って断面積を導出する手法を検討している [14]。これは、共鳴のエネルギー間隔や中性子幅がそれぞれ Wigner 分布や Porter-Thomas 分布に従うという性質を利用したものである。これらの分布を表現するために必要な平均値は光学モデルや微視的レベル密度を用いて計算し、それぞれの分布からランダムに値を取り出すことで共鳴エネルギーや中性子幅を導出する。なお、放射幅については、微視的ガンマ線強度関数とレベル密度を使って計算したものを仮定してある。捕獲断面積は、ネガティブ共鳴も考慮したこれらの共鳴パラメータを使って、Breit-Wigner公式で計算している。熱捕獲断面積は、ランダムな共鳴パラメータセットを1万個作り、このデータから得られた熱捕獲断面積の確率分布から、その中央値を採用した [15]。そして、この熱捕獲断面積の確率分布中央値を通るランダムな共鳴パラメータセットの一つを共鳴パラメータとして採用することを考えている。図4には、ランダムに発生させた共鳴パラメータで計算した捕獲断面積の各エネルギービンにおける中央値を黒線で示してある。赤線は熱捕獲断面積の確率分布中央値を与える共鳴パラメータセットのうちの一つで計算した断面積である。図5には、Se 同位体の熱捕獲断面積に対して、JENDL-4.0 と Mughabghab [16]、確率分布中央値との比較が示してある。 ^{79}Se については Mughabghab の推奨値がないため、JENDL-4.0 の評価値との比較のみが与えられているが、それ以外の安定核については JENDL-4.0 と Mughabghab はほぼ一致している。JENDL-4.0 の $^{74,76,77}\text{Se}$ 同位体に対する熱捕獲断面積には質量数に由来する偶奇性が見えず、今回の手法による結果は JENDL-4.0 と比べて 10-100 倍程度小さくなっているが、 $^{78,80,82}\text{Se}$ についてはある程度再現できている。

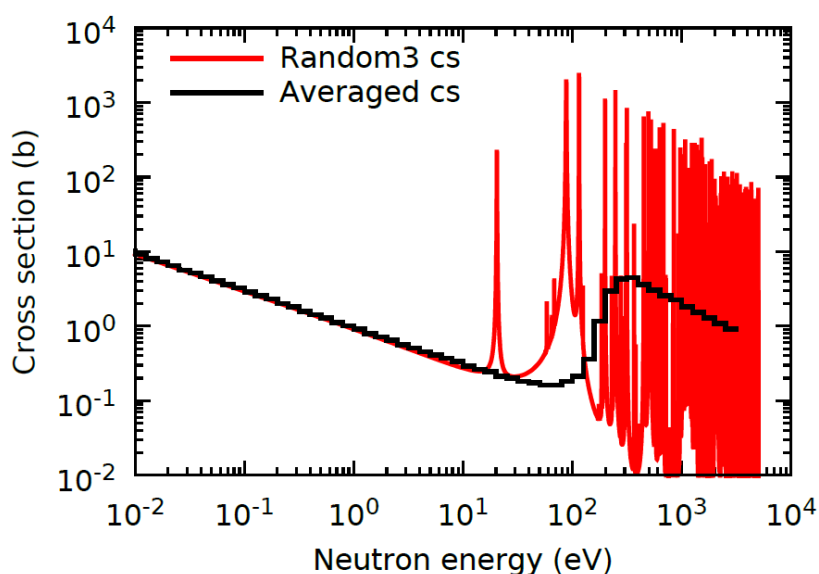


図4 ^{79}Se に対する捕獲断面積の確率分布中央値（黒線）と同じ熱捕獲断面積を持つ共鳴パラメータセットの一つから計算した捕獲断面積（赤線）

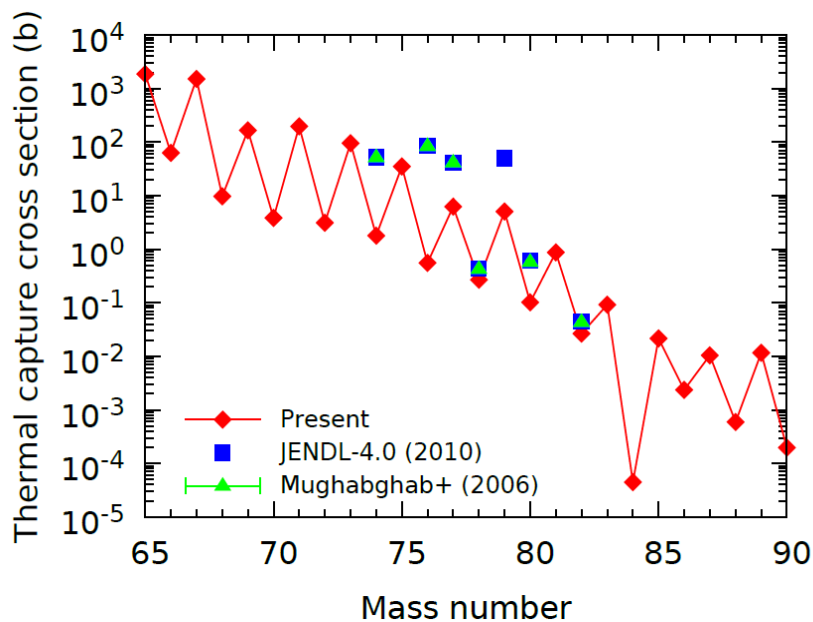


図 5 Se 同位体に対する熱捕獲断面積の比較

(3) レベル密度モデルの高度化

原子核の離散レベルは励起エネルギーが高くなると個々のレベルを分離して識別することが難しくなる。このような高い励起エネルギーにおけるレベルの状態を表すのがレベル密度モデルであり、CCONE や POD コードでは Gilbert-Cameron (GC) 型モデル [17] が採用されていた。このモデルは低励起エネルギーでは定温度モデル、高励起エネルギーではフェルミガスモデルで構成され、後者については Mengoni-Nakajima [18] により修正されたモデルが適用された。これまでの GC 型モデルを使った評価には、 $(n,2n)$ 反応断面積のしきい値付近の形状が再現できない場合が多くあり、問題となっていた。

今回は微視的原子核理論の知見からフェルミガスモデルにおけるレベル密度パラメータに原子核の形状による効果などを取り入れることで、レベル密度モデルを改良した [19]。その結果、 $(n,2n)$ 反応断面積のしきい値付近において測定データをよく再現する結果が得られている。図 6 には、 $^{78}\text{Se}(n,2n)$ 反応断面積に対して、測定データと改良モデルで得られた結果、JENDL-4.0 との比較が示してあり、改良モデルを使用した場合には測定データを良く再現していることが分かる。レベル密度モデル以外は同じ入力パラメータで計算されているにも係わらず、GC 型モデルで得られた断面積は測定データよりも大きくなってしまった。今後の評価において、この改良モデルを採用することも検討している。

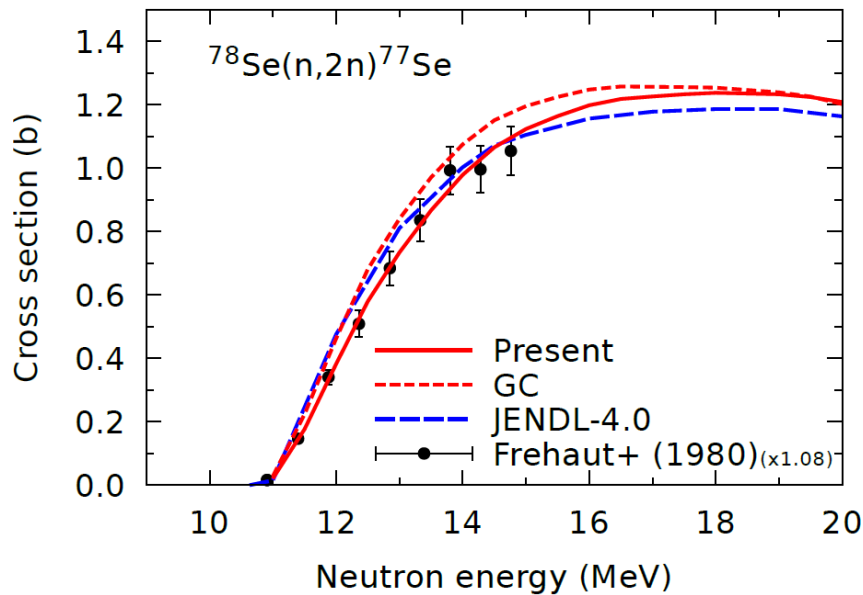


図 6 $^{78}\text{Se}(n,2n)^{77}\text{Se}$ 反応断面積の比較

4. おわりに

放射性廃棄物の処理処分や原子炉施設の廃止措置等の諸課題を解決するための原子力イノベーション創出に資すると共に、加速器を用いた放射線利用などの幅広い分野において欠かすことのできない核データライブラリとなるよう JENDL-5 の信頼性や完備性を高めるべく、これからも研究開発を進めていきたいと考えている。核データに関する要望等があれば、jendl@jaea.go.jp までご連絡頂ければ幸いである。また、本稿には書かなかったが、放射化インベントリ評価に不可欠なコンクリートや SUSなどを構成する構造材核種や軽核に対する共分散データを含む中性子核データについては、CIELOの後継の一つとして IAEA で 2018 年から始まった International Nuclear Data Evaluation Network on the Evaluated Nuclear Data (INDEN) などのプロジェクトと協力しつつ、改訂作業を行うことにしている。これに加えて、崩壊データの改訂も行い、JENDL-5 としての提供を目指している。さらに今後、FP 核種の核データや核分裂収率にも共分散データを収録していくことで、JENDL-5 の汎用性をより高めていく予定である。

参考文献

- [1] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” J. Nucl. Sci. Technol. 48, 1 (2011).
- [2] S. Kunieda, S. Chiba, K. Shibata et al., “Coupled-channels optical model analyses of nucleon-induced reactions for medium and heavy nuclei in the energy region from 1 keV to 200 MeV,” J. Nucl. Sci. Technol. 44, 838 (2007).

- [3] O. Iwamoto, “Development of a Comprehensive Code for Nuclear Data Evaluation, CCONE, and Validation Using Neutron-Induced Cross Sections for Uranium Isotopes,” *J. Nucl. Sci. Technol.* 44, 687 (2007); O. Iwamoto, N. Iwamoto, S. Kunieda et al., “The CCONE Code System and its Application to Nuclear Data Evaluation for Fission and Other Reactions,” *Nuclear Data. Sheets*, 131 259 (2016).
- [4] A. Ichihara, O. Iwamoto, S. Chiba et al., “Program POD; A Computer code to calculate cross sections for neutron-induced nuclear reactions,” *JAEA-Data/Code 2007-012* (2007).
- [5] K. Shibata, N. Iwamoto, S. Kunieda et al., “Activation Cross-section File for Decommissioning of LWRs,” *JAEA-Conf 2016-004*, pp.47-52 (2016).
- [6] JEFF-3.1 evaluated data library, Special Purpose files (2009), available from https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_31/JEFF31/JEFF31A.ASC
- [7] Y. Kiyonagi, K. Kino, M. Furusaka, et al., “The ‘Study on Nuclear Data by Using a High Intensity Pulsed Neutron Source for Advanced Nuclear System’ Nuclear Data Project and the Characteristics of the Neutron Beam Line for the Capture Cross Section Experiments at J-PARC,” *Journal of the Korean Physical Society*, 59, 1781 (2011).
- [8] F. Minato, O. Iwamoto, K. Minomo et al., “Nuclear data evaluation of long-lived fission products: Microscopic vs. phenomenological optical potentials,” *EPJ Web of Conferences*, 146, 12032 (2017).
- [9] S. Nakamura, A. Kimura, F. Kitatani et al., “Cross Section Measurements of the Radioactive ^{107}Pd and Stable $^{105,108}\text{Pd}$ Nuclei at J-PARC/MLF/ANNRI,” *Nuclear Data Sheets*, 119, 143 (2014).
- [10] T. Katabuchi, T. Matsushashi, K. Terada et al., “Misassigned neutron resonances of ^{142}Nd and stellar neutron capture cross sections,” *Phys. Rev. C*, 91, 037603 (2015).
- [11] K. Kino, M. Furusaka, F. Hiraga et al., “Energy resolution of pulsed neutron beam provided by the ANNRI beamline at the J-PARC/MLF,” *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A* 736, 66 (2014).
- [12] M. Kawai, S. Iijima, T. Nakagawa et al., “JENDL-3 fission product nuclear data library,” *J. Nucl. Sci. Technol.* 29, 195 (1992).
- [13] S. Iijima, T. Nakagawa, Y. Kikuchi et al., “Evaluation of Neutron Cross Section of 27 Fission Product Nuclides Important for Fast Reactor,” *J. Nucl. Sci. Technol.* 14, 161 (1977).
- [14] 古立直也、湊太志、岩本修：「共鳴パラメータの統計的性質を用いた共鳴領域断面積計算」、日本原子力学会 2018 年春の年会 (2018).
- [15] 古立直也、湊太志、岩本修：「モンテカルロ法による熱中性子捕獲断面積の予測」、日本原子力学会 2016 年春の年会 (2016).
- [16] S.F. Mughabghab, “Atlas of Neutron Resonances: Resonance Parameters and Thermal Cross

Sections, $Z = 1-100$," 5th Edition, Elsevier, Amsterdam (2006).

- [17] A. Gilbert, A.G.W. Cameron, "A composite nuclear-level density formula with shell corrections," *Can. J. Phys.* 43, 1446 (1965).
- [18] A. Mengoni, Y. Nakajima, "Fermi-gas model parametrization of nuclear level density," *J. Nucl. Sci. Technol.* 31, 151 (1994).
- [19] N. Furutachi, F. Minato, O. Iwamoto, "Phenomenological level density model with hybrid parameterization of deformed and spherical state densities," *J. Nucl. Sci. Technol.* 56, 412 (2019).