

話題・解説(I)

## 2019 年度原子力学会賞

### 論文賞

微視的核構造計算から得られる知見に基づいた

### 準位密度モデルの開発

古立 直也

[naoyafurutachi@gmail.com](mailto:naoyafurutachi@gmail.com)

#### 1. はじめに

準位密度は統計模型を用いた核反応計算の精度に直結する重要な基礎データである。準位密度モデルには、簡易な関数形と調整可能パラメータを持つ“現象論的準位密度モデル”と、Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) 理論などを用いた微視的核構造計算に基づいた“微視的準位密度モデル”が存在する。JENDL-4.0 [1]のような評価済み核データライブラリで連続領域の核データ評価に用いられているのは前者であり [2]、個々の原子核について実験値を用いてパラメータ調整が行われる。また、平均共鳴間隔の実験データを再現するように決定された準位密度パラメータ系統式が用いられており [3]、安定線近傍では実験データの乏しい原子核であっても一定の予言性があると考えられる。一方で、微視的準位密度モデルはパラメータに依存しないため、安定線から離れた不安定核の核反応の予言に適していると考えられている。また、準位密度の性質を理解するための基礎研究として重要な意味を持つ。

本稿では、“Phenomenological level density model with hybrid parameterization of deformed and spherical state densities”[4]において提案された新たな準位密度モデル—混成準位密度モデル(Hybrid level density model)—について解説する。混成準位密度モデルは個別の準位密度パラメータを持つ球形・変形状態密度の混成により記述される現象論的準位密度モデルである。一方で、原子核の変形と励起エネルギーの増加に伴う変形の消失に関連す

る複数のモデルパラメータについて HFB 理論を用いた微視的核構造計算の結果を導入している。

この研究開発は革新的研究開発推進プログラム ImPACT の核変換処理に関わるプログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」(2018 年度に終了)の一環として行なわれたものであり、その目的は長寿命核分裂生成物(LLFP)の核変換に関わる核反応データを高精度化することであった。このため、混成準位密度モデルの開発ではこのプログラムで検討されている LLFP の核破砕反応に関わる高励起複合核の統計崩壊計算精度が念頭に置かれた。ただし、特定の原子核、反応チャンネルに限定して計算精度を向上させることは意図しておらず、汎用的なモデルベース核データ評価の精度を向上させるものであること、また核反応の物理的な理解に資する研究開発となることを目指した。最終的に、混成準位密度モデルは核データライブラリ ImPACT/LLFP-2018 [5]の作成に適用された。

準位密度モデルの開発にあたって先行研究で提案されている様々な現象論的・微視的準位密度モデルを試行しており、混成準位密度モデルの完成以前には筆者は HFB 理論に基づいた独自の微視的準位密度モデルの開発 [6,7]を行っていた。これらの研究開発を経て、最終的には微視的準位密度モデル開発で得られたエッセンスを導入した上で、より高精度かつ核データ評価への適用が容易な現象論的準位密度モデルを開発する形となった。

混成準位密度モデルの着想に至るまでの経緯を振り返ると、ポイントとなったのは開発の早い段階で準位密度モデルを核反応計算コード CCONE [8]に導入し、核反応断面積の実験値と系統的な比較を行ったことであったと考える。準位密度への sensitivity が大きな低エネルギー中性子捕獲反応だけでなく、 $(n,2n)$ ,  $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$ 反応といったより高エネルギーの反応についても系統的に調査した結果、微視的準位密度モデルを用いた場合に  $(n,2n)$ 反応断面積の実験再現性が多くの原子核で向上することを発見した。準位密度への sensitivity が大きな核反応の場合、個々の原子核の実験再現性が大きくばらつき系統性が見えないため、微視的準位密度モデルは現象論的モデルに比べ総合的に精度が劣る点が目についてしまう。一方で  $(n,2n)$ 反応の場合、準位密度への sensitivity が他の反応に比べ低く、結果的に実験値再現性の変化に系統性を見出すことができたため、そこに明確な物理があると考えた。この点を追及した結果得られた知見が“原子核変形による準位密度の増幅効果が核反応に影響するメカニズム”である。微視的準位密度モデルにより  $(n,2n)$ 反応断面積の実験再現性が向上する原子核の多くは変形核であり、断面積の振る舞いは変形状態密度と球形状態密度の混成の手法に依存していた。それならば、微視的準位密

度モデルの球形・変形状態密度の混成手法を現象論的準位密度モデルに導入し、変形に関連するパラメータを微視的核構造計算から導出すれば、微視的準位密度モデルの良さはそのままにより高精度で汎用性の高いモデルになると考えた。これが、混成準位密度モデル開発に至った経緯の一部である。

結果として、混成準位密度モデルは個別の準位密度パラメータを持つ球形・変形状態密度を混成することで球形核の計算精度を保ったままで変形核に対する核反応計算精度を向上させ、また変形の消失が影響するより高エネルギーの核反応計算精度を改善するものとなった。次章で混成準位密度モデルの詳細について説明する。

## 2. 混成準位密度モデル

混成準位密度モデルについて説明する。このモデルでは、以下の式に示すように準位密度を球形状態密度  $\rho_{\text{sph}}$  と変形状態密度  $\rho_{\text{def}}$  の混成により表現する。

$$\rho_{\text{h}}(U, J) = (1 - f_{\text{dam}}(E_x))\rho_{\text{sph}}(U - E_{\text{def}}, J) + f_{\text{dam}}(E_x)\rho_{\text{def}}(U, J)$$

$$f_{\text{dam}}(E_x) = \frac{1}{1 + e^{(E_x - E_{\text{ts}})/d_c}}$$

ここで  $E_x$  は複合核の励起エネルギー、 $U$  は対相関で補正した励起エネルギーである。この関数形は Goriely, Hilaire らの一連の微視的準位密度モデル研究 [9,10,11] で用いられたものと類似しているが、球形状態の励起エネルギーを  $U - E_{\text{def}}$  としている点が先行研究と大きく異なる（先行研究では  $U$  としている）。 $E_{\text{def}}$  は HFB 理論を用いた微視的核構造計算から得られる球形状態と変形した基底状態のエネルギー差である。つまり、球形状態の励起には基底状態から見て  $E_{\text{def}}$  の分だけ余計にエネルギーが必要と考える式となっている。一粒子状態を励起するにはまず対相関のエネルギーを消費すると考え励起エネルギーを補正するのと同様の考え方である。

この式は球形・変形状態の競合を現象論的に表現したものであると考えており、より厳密な微視的核構造計算の観点からいえば変形度を生成座標とした生成座標法などの手法を用いて状態間の相互作用を真面目に考慮すべきであろう。ただし、そのような計算は大変な理論的・数値計算的困難を伴い、高い励起エネルギーまでの準位密度を計算する実用的な手法にはなりえないと考える。

$E_{\text{def}}$  に加えて、球形・変形状態を遷移させる関数  $f_{\text{dam}}$  の中心エネルギー  $E_{\text{ts}}$  にも微視的核構造計算の結果を用いている。励起エネルギーの増加に伴う球形・変形状態の遷移については直接的な実験情報は存在せず、理論的にも大変難しい問題である。そこで、球形・

変形状態の遷移に関連した量として、HFB 理論を用いた核構造計算から得られる有限温度での原子核変形の情報を利用することを考えた。ある温度におけるエネルギー期待値を励起エネルギーと解釈した場合、図 1 に示すように励起エネルギーの関数としての変形度  $\beta_2$  を得ることができる。図 1 の  $^{80}\text{Se}$ ,  $^{133}\text{Cs}$  の例では励起エネルギーの増加に伴い変形度  $\beta_2$  が減少し、励起エネルギーが約 10 MeV で変形度が 0 となっている。この変形度が 0 となる励起エネルギーを  $E_{ts}$  と定義し、 $f_{\text{dam}}$  を用いた球形・変形状態遷移の指標とした。図 1 右に系統的な有限温度 HFB 計算により得られた  $E_{ts}$  を示しており、質量数 150 以下程度の変形核の多くが 10~20 MeV 程度の  $E_{ts}$  となっていることがわかる。安定核の中性子閾値は励起エネルギー 10 MeV 付近に存在するため、混成準位密度モデルの上では球形・変形状態の遷移が平均 s 波中性子共鳴間隔  $D_0$  の計算に影響する。混成準位密度モデルにおける変形遷移の記述は現象論的なものであり、 $E_{ts}$  が妥当な指標となっているかは議論の余地があるため、変形遷移が真に  $D_0$  に影響しているかはわからない。しかし、そうであるとするなら  $D_0$  の実験値再現性は変形遷移の妥当性の傍証となり得ることを示している。

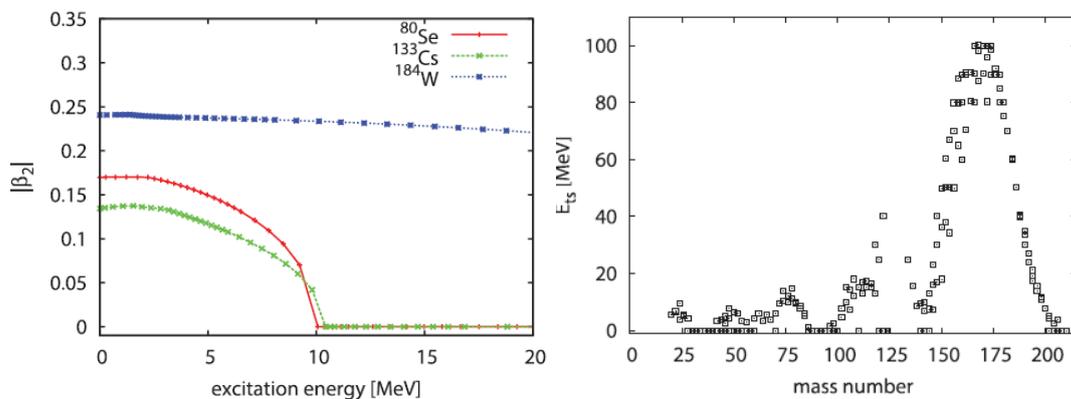


図 1 左図：有限温度 HFB 計算により得られる励起エネルギーの関数としての原子核変形度。右図：変形度が 0 となる励起エネルギー  $E_{ts}$  の系統性。

混成準位密度モデルでは、従来の現象論的準位密度モデルと同様に  $D_0$  の実験値を再現するように漸近準位密度パラメータの系統式を決定する。ただし、 $\rho_{\text{sph}}$  と  $\rho_{\text{def}}$  のパラメータは共通ではなく、それぞれ球形核、変形核の実験値を用いてパラメータが決定される。従来モデルは、大雑把に言えば混成準位密度モデルにおける  $\rho_{\text{sph}}$  もしくは  $\rho_{\text{def}}$  の片方のみのパラメータを球形核、変形核の区別なく全実験データを用いて決定したモデルである。図 2 に混成準位密度モデルの漸近準位密度パラメータを示す。 $a_s(^*)$ ,  $a_d(^*)$  がそれぞれ  $\rho_{\text{sph}}$ ,

$\rho_{\text{def}}$  の漸近準位密度パラメータである。従来モデルの結果とも比較しており、 $\rho_{\text{sph}}$  もしくは  $\rho_{\text{def}}$  のみを用いた計算に対応する従来モデルをそれぞれ effective モデル、collective モデルとして示している。図中の記号が個々の原子核の  $D_0$  を再現するように決定した値で、実線・点線がそれらをフィッティングすることで得られる系統式である。

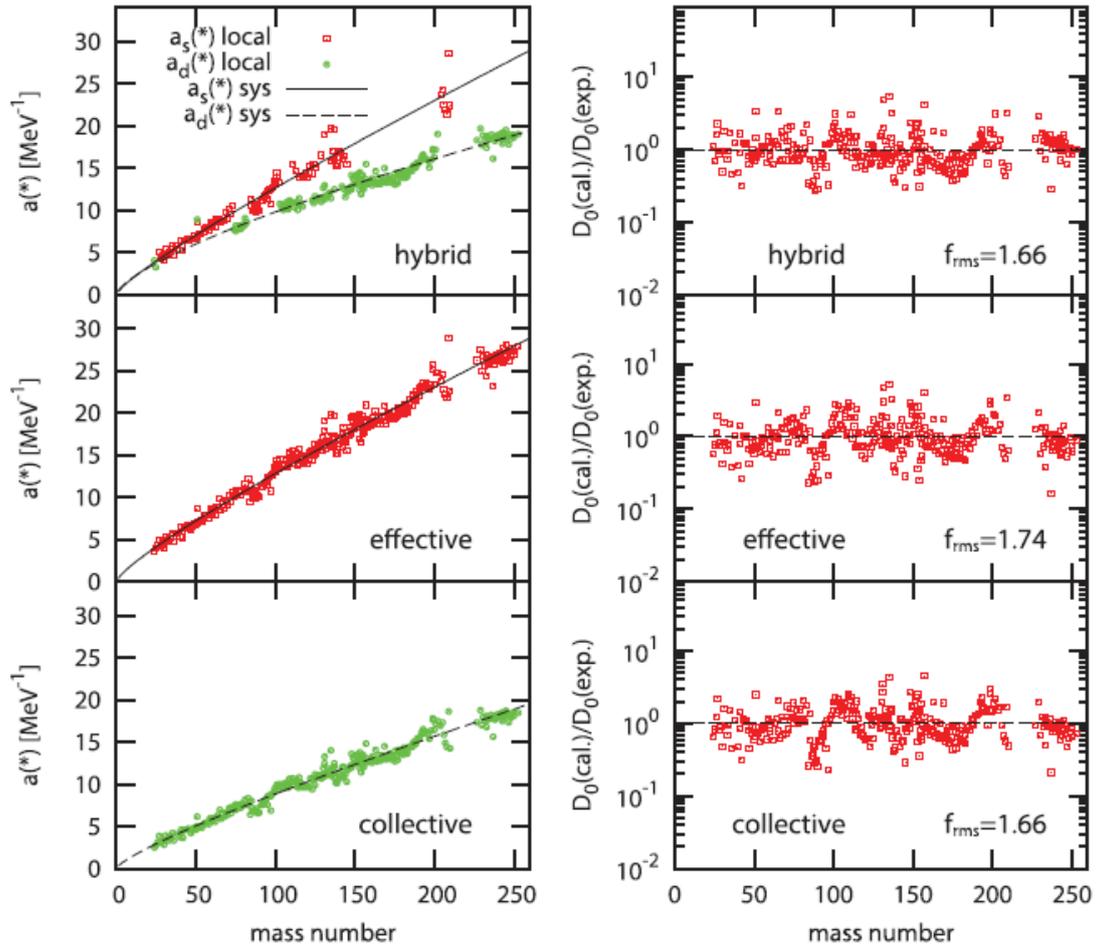


図2 左図：混成準位密度モデル(hybrid)、effective モデル、collective モデルそれぞれの漸近準位密度パラメータ（記号）とその系統式（実線、点線）。右図：漸近準位密度パラメータの系統式を用いて計算した  $D_0$  の C/E 値。

右図には  $a_s^{(*)}$ ,  $a_d^{(*)}$  の系統式を用いて計算した  $D_0$  の C/E 値を示しており、 $f_{\text{rms}}$  は C/E 値の log の root mean square の値である。この結果からまず明らかなのは、 $a_s^{(*)}$  と  $a_d^{(*)}$  の系統性が大きく異なっているという点である。本来漸近準位密度パラメータとは対相関、殻補正などの核構造効果が消失する十分に高い励起エネルギーにおいて成立する準位密度パラメータを意味しており、核構造に依存して変化する性質のものではない。 $\rho_{\text{def}}$  の変形

による準位密度増幅効果は励起エネルギーの増加と共に消失するべき核構造効果であるため、 $a_s(*)$ と $a_d(*)$ の系統性が異なっているということは、真に漸近準位密度パラメータとしての物理的意味を持っているのは $a_s(*)$ のみであると言える。 $a_d(*)$ は漸近準位密度パラメータと呼称しているものの、厳密には励起エネルギーの増加により変形が消失しなかった場合の“仮定の”パラメータである。従来モデルである collective モデルの $a(*)$ は混成準位密度モデルの $a_d(*)$ と非常に近い系統性となっているため、collective モデルでは励起エネルギーが上昇すると漸近準位密度パラメータとしての物理的意味を持たない準位密度パラメータに収束することになり、この点が従来モデルの問題点であると考えている。混成準位密度モデルは遷移関数 $f_{dam}$ の関数形から明らかなように、十分に高い励起エネルギーにおいて $a_s(*)$ を持つ $\rho_{sph}$ に一致するため、この問題点を解決している。

### 3. 混成準位密度モデルの核反応計算への適用

混成準位密度モデルを核反応計算コード CCONE に適用し、断面積実験値と計算値の比較を行った結果の一部を図 3 に示す。(n,2n) 反応については核反応実験データベース EXFOR[12]に存在したほぼ全てのデータと系統的に比較を行ったが、図 3 に示しているのはその中でも(n,3n)反応まで含む比較的多くの実験データが存在する球形核( $^{90}\text{Zr}$ )、変形核( $^{169}\text{Tm}$ )の例である。混成準位密度モデルは、 $^{90}\text{Zr}$ については collective モデルよりも実験値をよく再現しており、 $^{169}\text{Tm}$ については中性子入射エネルギー約 15 MeV 以上の(n,2n), (n,3n)データを effective モデルよりもよく再現していることがわかる。

混成準位密度モデルの特徴として、基本的に球形核については effective モデルの結果とほぼ一致し、変形核については入射エネルギーと $E_{ts}$ の大きさに応じて collective モデルの性質に近づくか、effective モデルの性質に近づくかが決まる。 $^{169}\text{Tm}$ の例では $E_{ts}=90$  MeV と大きな値となっているため、図 3 に示した中性子エネルギー30 MeV までの反応ではほぼ collective モデルの結果と一致している。

図 3 の結果だけ見ると球形核であれば effective モデル、変形核であれば collective モデルを用いれば良いのかと思えるが、そうではない。入射エネルギーが高くなれば、変形が消失するようより高い励起エネルギーを持った複合核の準位密度が断面積に影響するためである。図 4 に、 $^{197}\text{Au}$ の中性子入射反応の計算例を示す。この例では、有限温度 HFB 計算により得られる $E_{ts}$ は 13 MeV であるものの、 $E_{ts}$ が変化した場合にどのように断面積に影響するかを調べるため、人為的に $E_{ts}=8$  MeV とした場合の結果とも比較している。入射エネルギーが低い(n,2n)断面積については混成準位密度モデルの結果は collective モデルに近いが、(n,3n)断面積では約 28 MeV 程度から effective モデルの振る舞いに近づ

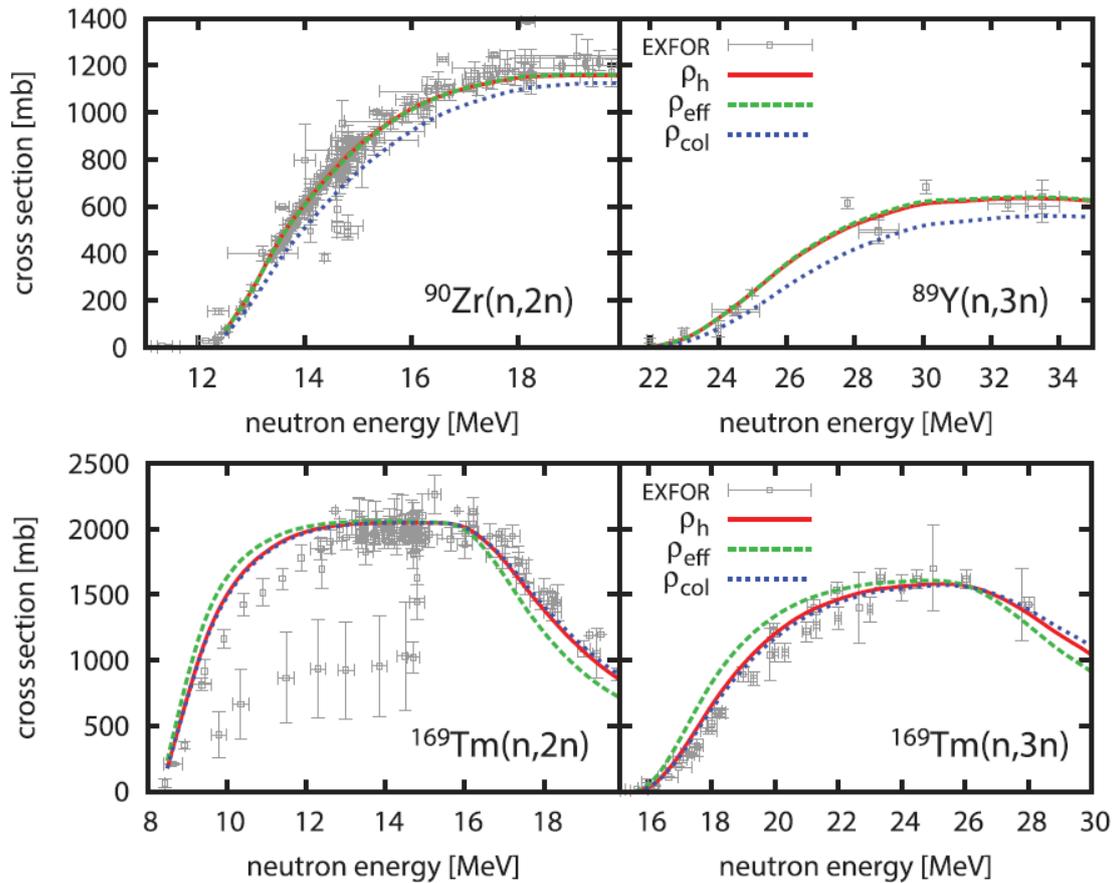


図3 混成準位密度モデル( $\rho_h$ )、effective モデル( $\rho_{\text{eff}}$ )、collective モデル( $\rho_{\text{col}}$ )を用いて計算した(n,2n)、(n,3n)断面積と実験値(EXFOR[12])との比較。

き、(n,4n)、(n,5n)断面積は effective モデルとほぼ一致している。また、 $E_{\text{ts}}=8$  MeV の場合の結果を見ると、より低いエネルギーで effective モデルの結果に近づいていることがわかる。結果として、入射エネルギー8~12 MeV の(n,2n)断面積立ち上がり部分は effective モデルよりも実験値をよく再現し、(n,4n)、(n,5n)断面積は collective モデルより実験値をよく再現しているように見える。

これらの結果は、混成準位密度モデルの優位性を示すと同時に、原子核変形が核反応の断面積にどのように影響するかを明らかにしている。原子核が変形していると、(n,2n)断面積の立ち上がり部分が球形を仮定した場合に比べ抑制される。これは、変形による準位密度の増幅効果がある場合準位密度パラメータは球形の場合に比べ小さくなり、励起エネルギーの増加に伴う準位密度の増加量が小さくなるためであると考えられる。中性子入射反応を考えた場合、まず標的核に中性子が入射して複合核が形成され、その後1中性子が放出された時に原子核の励起エネルギーが中性子閾値より大きければさらに1

中性子を放出する可能性があり、(n,2n)反応となる。標的核の中性子閾値近傍の励起エネルギーにおける準位密度の増加量が小さいと、複合核から1中性子を放出した後に中性子閾値以下の励起エネルギーとなる可能性が高くなり、(n,2n)断面積が減少するのではないかと考えられる。

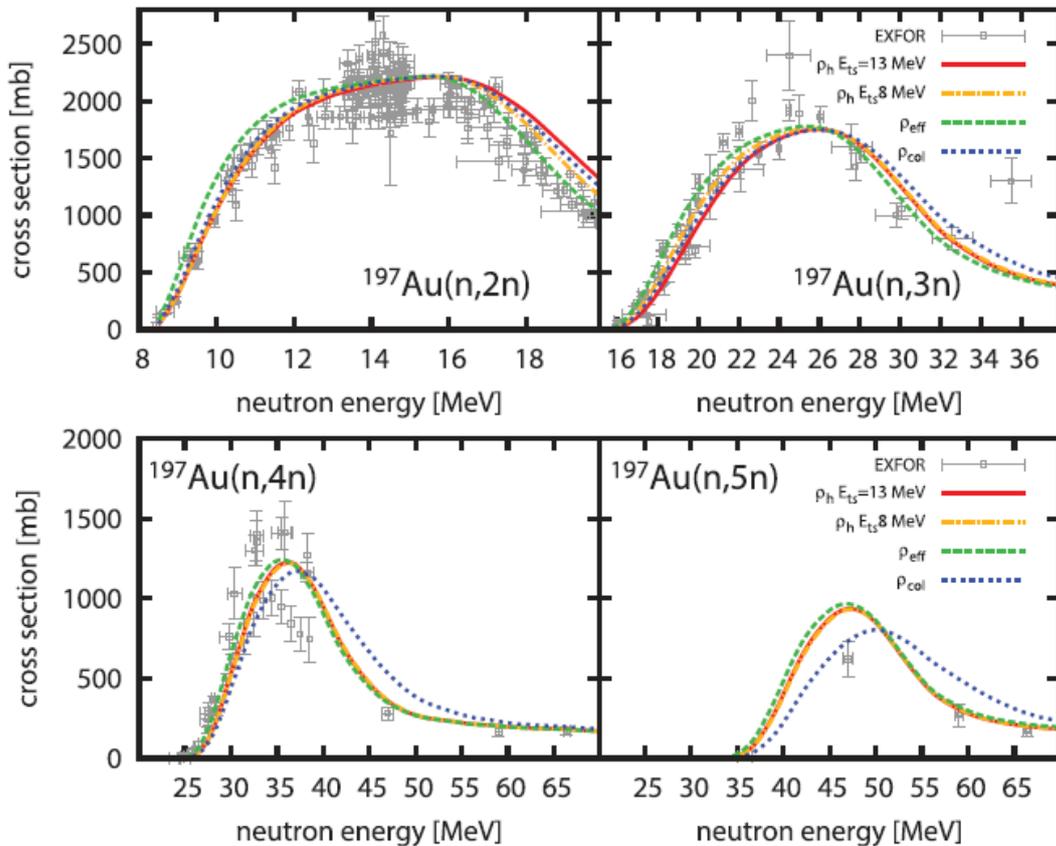


図4 混成準位密度モデル( $\rho_h$ )、effective モデル( $\rho_{\text{eff}}$ )、collective モデル( $\rho_{\text{col}}$ )を用いて計算した(n,xn)断面積と実験値 (EXFOR) との比較。

原子核が変形している場合の(n,2n)反応断面積の振る舞いについては図3, 4の例以外にも系統的な実験値との比較により検証しており、effective モデルに比べ断面積の立ち上がり部分が抑制されることで実験値の存在する大半の原子核で計算精度が向上することがわかっている。一方で、図3の $^{169}\text{Tm}$ 入射エネルギー8~12 MeV部分のデータのように、effective モデルに比べ実験値に近づきはするものの、依然として実験値を過大評価しているケースも多く見られた。このようなケースが本研究が提案するメカニズムに基づいて定量性を改善することで説明可能であるかは検討の余地がある。

#### 4. 終わりに

本稿では新たな現象論的準位密度モデル-混成準位密度モデルについて解説した。混成準位密度モデルは個別の準位密度パラメータを持つ球形・変形状態密度を混成することで球形核の計算精度を保ったままで変形核に対する核反応計算精度を向上させ、また変形の消失が影響するより高エネルギーの核反応計算精度を改善するものであることを示した。

混成準位密度モデルは核データライブラリ ImPACT/LLFP-2018 に適用する前提で開発を行った。準位密度は連続領域核データ評価の精度に直結する非常に重要なインプットであるため、総合的な核反応計算精度が従来モデルに比べて劣るものであってはならないということ、核データ評価に適用できる調整可能パラメータや簡易な関数形を保っていることなどを条件としてモデルの構築を行った。混成準位密度モデル開発の土台となったのは、独自の微視的準位密度モデル開発で得られた知見-変形による準位密度増幅効果がより高エネルギーの核反応断面積に影響するメカニズム-や、球形・球形状態密度を混成する手法などである。また、微視的準位密度モデル開発の過程で得られた核構造データをパラメータとして導入している。

従来モデルに対して核反応計算精度が劣るものでなく、かつ新規性のあるモデルの構築は簡単な課題ではなかった。なにしろ、より新しい  $D_0$  の実験値を用いた準位密度パラメータ系統式の発展などはあるにせよ、JENDL の作成に用いられている準位密度モデルのベースは 50 年以上前に提案された Gilbert-Cameron モデルであり、これまで大きな問題なく用いられてきたわけである。本稿で紹介した核反応計算の結果を見ればわかると思うが、混成準位密度モデルは従来モデルと比較して劇的に計算結果が変化する類のものではない。むしろ、従来モデルでうまくいっている部分を絶対に変えてはいけないという考えのもとでモデルを構築している（実際に、入射エネルギーが高くない場合の球形核計算結果については従来モデルからほぼ変化していない）。特に、低エネルギー中性子捕獲反応の計算精度に直接的に影響する  $D_0$  の計算精度には細心の注意を払った。対相関や殻補正エネルギーとして様々な種類のを試したり、独自の微視的核構造計算から得られるものを用いたりといったことも行ったが、これらは  $D_0$  の計算精度が従来モデルから悪化する結果としかならなかったため、採用することはなかった。最終的にモデルの新規性としては球形・変形状態密度の混成に関する部分に集中し、準位密度パラメータについては球形・変形状態に対して個別のパラメータを用いる点以外ほぼ Mengoni-Nakajima の方式を踏襲した。ただし、論文中では特に言及していないが、Mengoni-Nakajima の系統式にくらべより少ないパラメータで  $D_0$  の再現性をわずかに向上

することに成功している。

混成準位密度モデルは従来模型に比べ核反応の計算精度に優れているだけでなく、複合核反応における励起状態の原子核変形の効果、また励起エネルギーの増加に伴う変形の消失効果を理解するためのツールとなり得る。原子核の集団運動と一粒子励起の共存・競合を discrete な励起準位のエネルギーや電磁気遷移の実験値を用いて議論できる低励起状態とは異なり、励起エネルギーの上昇に伴う核構造の遷移と核構造効果の消失を直接的に実験で検証することは非常に難しいと考えられる。直接的な検証が難しい一方で、理論モデルを介することで核反応断面積データから間接的に高励起エネルギーの核構造を議論することは可能であろう。混成準位密度モデルはその分析の用途に適していると考えられる。

最後に、本稿で解説した準位密度モデルの開発は、論文の共著者である湊太志氏、岩本修氏の多大な貢献、また議論に参加していただいた JAEA 核データ研究グループの中山梓介氏、国枝賢氏、岩本信之氏らの貴重なご意見なくして成し得なかったこと申し上げたい。湊氏には本開発の礎となった微視的核構造計算、微視的準位密度モデル開発にご協力いただき、岩本修氏には CCONE を用いた核反応計算についてご教授いただいた。また、準位密度モデルを最終的に現象論モデルをベースとして開発し、総合的な計算精度が既存モデルより優れたものとするのを目指したのは国枝氏の強い励ましがあつたからであつた。岩本信之氏には、開発した準位密度モデルを用いた(n,2n)断面積計算の議論を行った際に実験再現性が向上していたことの重要性を強く指摘していただいたことを記憶しており、この点は新モデル開発の重要な動機の一つとなつた。中山氏に議論に参加いただいたのは開発の終盤であつたが、日々の議論などでお世話になつた。筆者自身はこの開発を行った JAEA に着任する以前は核構造研究を中心とした研究者であつたが、これらの方々のご尽力により、核構造と核反応、核反応の物理的な理解と実用のための断面積データとしての側面、これらを結びつける研究開発となつたのではないかと考える。

## 謝辞

Informa UK Limited, trading as Taylor & Francis Group, [www.tandfonline.com](http://www.tandfonline.com) on behalf of Atomic Energy Society of Japan の許可を得て Furutachi N, Minato F, Iwamoto O. Phenomenological level density model with hybrid parameterization of deformed and spherical state densities. Journal of Nuclear Science and Technology, copyright©Atomic Energy Society of Japan の内容を転載しています。

## 参考文献

- [1] Shibata K, Osamu I, Tsuneo N, et al. JENDL-4.0:A new library for nuclear science and engineering. *J. Nucl. Sci. Technol.* **2011**; **48**: 1.
- [2] Gilbert A, Cameron AGW. A composite nuclear level density formula with shell corrections. *Can. J. Phys.* **1965**; **43**: 1446.
- [3] Mengoni A, Nakajima Y. Fermi-gas model parametrization of nuclear level density. *J Nucl. Sci. Technol.* **1994**; **31**: 151–162.
- [4] Furutachi N, Minato F, Iwamoto O. Phenomenological level density model with hybrid parameterization of deformed and spherical state densities. *J. Nucl. Sci. Technol.* **2019**; **56**: 412.
- [5] Kunieda S, Furutachi N, Minato F, Iwamoto N, Iwamoto O, Nakayama S, Ebata S, Yoshida T, Nishihara K, Watanabe Y, and Niita K. JENDL/ImPACT-2018: A New Nuclear Data Library for Innovative Studies on Transmutation of Long-lived Fission Product. *J. Nucl. Sci. Technol.* **2019**; **56**: 1073.
- [6] 古立直也, 湊太志, 岩本修, “微視的核構造計算から得られる準位密度を用いた断面積計算”, 日本原子力学会 2017 年春の年会, 東海大学湘南キャンパス, 2017 年 3 月
- [7] 古立直也, 湊太志, 岩本修, “LLFP 安定核種化・短寿命化のための核変換法の開発,15; 微視的核構造計算に基づいた LLFP 核種及びその周辺核種の準位密度計算”, 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 北海道大学, 2017 年 9 月
- [8] Iwamoto O, Iwamoto N, Kunieda S, et al. The CCONE code system and its application to nuclear data evaluation for fission and other reactions. *Nucl. Data Sheets.* **2016**; **131**: 259–288.
- [9] Demetriou P, Goriely S. Microscopic nuclear level densities for practical applications. *Nucl. Phys. A.* **2001**; **695**: 95–108.
- [10] Hilaire S, Goriely S. Global microscopic nuclear level densities within the HFB plus combinatorial method for practical applications. *Nucl. Phys. A.* **2006**; **779**: 63–81.
- [11] Goriely S, Hilaire S, Koning AJ. Improved microscopic nuclear level densities within the hartree-fock-bogoliubov plus combinatorial method. *Phys. Rev. C.* **2008**; **78**: 064307.
- [12] Otuka N, Dupont E, Semkova V, et al. Towards a more complete and accurate experimental

nuclear reaction data library (EXFOR): international collaboration between nuclear reaction data centres (NRDC). Nucl. Data Sheets. [2014](#); **120**: 272–276.