

10～20MeV中性子に対する ^{12}C のカーマファクタの計算

篠原, 博之
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

樫本, 寛徳
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

渡辺, 信幸
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

<https://doi.org/10.15017/17271>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 14 (2), pp.205-211, 1992-09-01. 九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン :
権利関係 :

10~20MeV 中性子に対する ^{12}C のカーマファクタの計算

篠原 博之*・檜本 寛徳*・渡辺 幸信**

(平成4年5月29日 受理)

Calculations of Kerma Factors for ^{12}C at Neutron Energies of 10~20 MeV

Hiroyuki Shinohara*, Hironori Kashimoto*, and Yukinobu Watanabe**

Kerma factors of ^{12}C in the neutron energy region from 10 to 20 MeV are calculated using the latest nuclear data library JENDL-3. The partial kerma factor for $(n, n') 3\alpha$ reaction process shows the most important contribution to the total kerma factor at energies more than 14 MeV. The phase space model is applied to the modelling of the $(n, n') 3\alpha$ process. The calculated result by the phase space model provides rather better agreement with experimental values than that by the evaporation model at higher neutron energies.

1. 緒 言

近年、核融合炉の核熱設計や中性子検出器の効率評価、さらに高速中性子を利用した癌治療の線量評価において、高精度のカーマファクタ¹⁾(単位中性子束当たりの中性子が単位質量の物質に付与するエネルギー値)が必要とされており、特に癌治療の場合には、200MeV までのデータが要求されている。

カーマファクタとは、単位中性子束あたりの Kerma (Kinetic energy release in matter) を意味し、その導出法は大別すると、(I) 直接、中性子を吸収線量測定用の比例計数管か電離箱に照射して、そのエネルギー付与を計測する方法²⁾と、(II) 中性子反応断面積とエネルギー付与に対する原子核反応の運動学から微視的に計算する方法³⁾の2つがある。本研究では、核融合炉材料や中性子シンチレータ検出器、および人体組織の構成元素である炭素に注目し、入射エネルギー10~20MeV 領域における ^{12}C のカーマファクタを (II) の手法で導出することを目的とする。

カーマファクタの計算には、角度と放出中性子のエネルギーに関する微分断面積データ(二重微分断面積)が必要とされる。一般に、入射エネルギーが高く

なると、直接過程の寄与が大きくなり、放出粒子は前方に強く放出されることが知られている。微分データから計算されるカーマファクタは放出粒子の角度分布に依存するため、その非等方性を考慮した取り扱いが必要とされる。また、中性子と ^{12}C などの軽核との相互作用では、入射エネルギーが10MeV 以上になると多粒子ブレイクアップ反応過程の寄与が大きくなる。そのため、このようなブレイクアップ反応を厳密に考慮したカーマファクタの導出方法を検討する必要がある。

そこで本研究では、各反応ごとの部分カーマファクタを計算するとともに、10~20MeV 領域において全カーマファクタへの寄与が大きいブレイクアップ反応に特に着目して、位相空間モデルを用いた計算を行い、他のモデル計算と相互比較を行う。さらに、カーマファクタ計算に使用する中性子反応断面積データとして評価済み核データファイル JENDL-3⁴⁾ と ENDF/B-V⁵⁾ を用いた場合の比較も併せて行う。

2. カーマファクタと ^{12}C の中性子入射反応

2.1 カーマファクタ

カーマファクタは、中性子と原子核との相互作用により放出される荷電粒子並びに反跳原子核の運動エネルギーの平均値として与えられる。したがって、重要となるのはその反応が中性子を放出するかしないかである。中性子が放出される場合は、その放出エネルギー

*エネルギー変換工学専攻修士課程

**エネルギー変換工学専攻

ギーはカーマファクタ計算に含まれないことになる。よって、中性子放出反応の場合には、放出角度ごとの放出中性子エネルギー分布の情報（二重微分断面積として与えられる）並びに反応の運動学の知識が必要となる。

ここで、中性子放出反応における部分カーマファクタ K_j^j の計算式を表すと次のようになる。

$$K_j^j = N \iint (E'_{tr}) \cdot \left(\frac{d^2 \sigma_j}{dE_n d\Omega_n} \right) dE_n d\Omega_n \quad (1)$$

式中の N は ^{12}C の単位質量当たりの原子数密度を示しており、 $\left(\frac{d^2 \sigma_j}{dE_n d\Omega_n} \right)$ は反応 j の放出中性子の二重微分断面積を表している。

また、 E'_{tr} は物質に付与されるエネルギーであり、次式で与えられる。

$$E'_{tr} = E_n + Q - E'_n \quad (2)$$

但し、 E_n は中性子の入射エネルギー、 Q は反応の Q 値、 E'_n は実験室系で放出中性子のエネルギーをそれぞれ表している。 E'_n は放出角度の関数として与えられ、反応の運動学から計算できる。

また、中性子を放出しない反応については、入射中性子のエネルギーが反応の Q 値以外、すべて物質に付与されるので、容易に計算でき、次式で与えられる。

$$K_j = N (E_n + Q) \sigma_j \quad (3)$$

ここで、 σ_j は反応 j の断面積を指す。

2.2 ^{12}C の中性子入射反応の分類

^{12}C に対する十数 MeV 中性子入射反応については、次のような反応過程が考えられる。

- (a) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow n + ^{12}\text{C}$
- (b) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow n' + ^{12}\text{C}^*$
- (c) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow n' + ^{12}\text{C}^* \rightarrow \alpha + \alpha + \alpha$
- (d) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow p + ^{12}\text{B}$
- (e) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow d + ^{11}\text{B}$
- (f) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow \alpha + ^9\text{Be}$
- (g) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow n' + \alpha + \alpha + \alpha$
- (h) $n + ^{12}\text{C} \rightarrow n' + \alpha + ^8\text{Be} \rightarrow \alpha + \alpha$

(a) は弾性散乱過程である。(b) と (c) は非弾性散乱過程を示しており、本研究では、 ^{12}C が 2^+ (4.4391

MeV), 0^+ (7.654MeV), 3^- (9.641MeV) の3つの励起準位へ遷移する過程を考慮する。 0^+ , 3^- 準位については、 3α ブレークアップ反応（以後、 $(n, n')3\alpha$ 反応と記す）のしきいエネルギー (7.275MeV) 以上の励起エネルギーをもっており、最終的には3つの α 粒子に分解されるので、(c) 過程に属する。この(c)過程は順次崩壊ブレークアップ反応過程と呼ばれる。これに対して、(g) と (h) 過程は同時ブレークアップ反応過程と呼ばれる反応過程である。(g) は一度に ^{12}C が3つの α 粒子に分解する反応である。終状態は放出された中性子も含めて4体となるので、4体同時ブレークアップ反応過程(4BSB)と呼ばれる。一方、(h) は1段階の反応で中性子、 α 粒子、 ^8Be の3粒子が放出された後に、 ^8Be が2つの α 粒子に崩壊する反応であり、3体同時ブレークアップ反応過程(3BSB)と呼ばれる。この反応の中間生成核 ^8Be は、

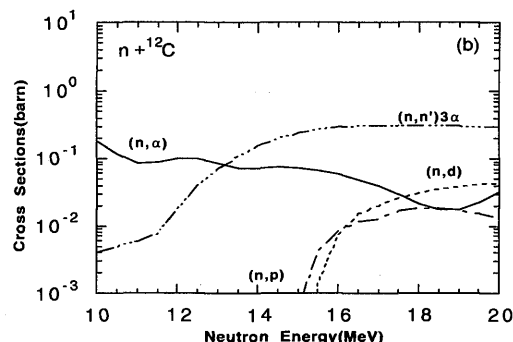
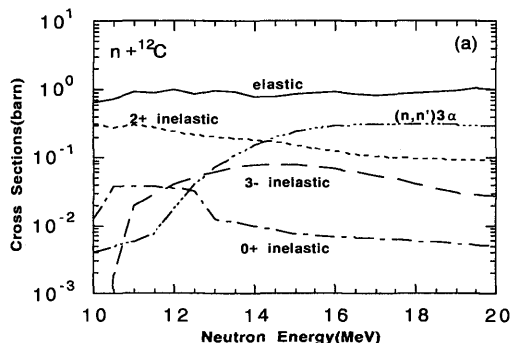


Fig. 1 Cross sections of the $n + ^{12}\text{C}$ reactions in the neutron energy region from 10 to 20 MeV. (a) the cross sections for neutron emission reactions and (b) for charged particle emission reactions. Those data are from JENDL-3.

基底状態あるいは2.94MeVの第一励起状態を経由する可能性をもっている。さらに、(d), (e), (f)過程は荷電粒子(陽子, 重陽子, α 粒子)のみが放出される反応を示している。これらの過程の残留核が励起状態に移移する場合, その励起エネルギーが中性子放出のしきいエネルギー以上であれば中性子を放出することが可能である。以下に述べる計算においては, このような順次崩壊過程による中性子放出は無視して, すべて(g), (h)過程に含まれていると仮定する。

これらの各反応過程に対する反応断面積を入射エネルギーの関数としてプロットした結果をFig. 1に示す。断面積データは評価済み核データファイルJENDL-3のデータに基づいている。図からわかるように, 14MeV以上のエネルギーでは弾性散乱断面積について, (n, n') 3α 反応断面積が大きくなり, 高速中性子と ^{12}C の相互作用における 3α ブレイクアップ反応過程の重要性を示している。また, (a)~(h)以外に (n, γ) 反応があるが, 入射エネルギー10~20MeV領域ではその寄与は(a)~(h)に比べ小さく(10MeVで0.08mb, 20MeVで0.22mb), さらに, γ 線放出による反跳エネルギーも十分小さいため, 以下のカーマファクタ計算ではこの反応は無視する。

3. 計算手法

3.1 2体の運動学で計算可能な反応過程

弾性散乱及び離散的単位への非弾性散乱については, 反応が2体の運動であるので物質に付与されるエネルギーの計算が容易な上, 放出中性子のエネルギーも一意的に決まってしまう, (1)式の積分も角度に関してのみの積分となる。さらに, 反応断面積の角度分布がルジャンドル展開されている場合には, その直交性を利用して, 次の式が導ける。

$$K^j = N \cdot \frac{\sigma_j}{2\pi} \cdot (A_0 + A_1 f_1) \quad (3)$$

$$A_0 = \frac{E_{\max}}{2} - \frac{m_n}{m_n + m_t} E_f^* \quad (3a)$$

$$A_1 = -\frac{E_{\max}}{2} \left[1 - \frac{m_n + m_t}{m_t} \cdot \frac{E_f^*}{E_n} \right] \frac{1}{2} \quad (3b)$$

$$E_{\max} = \frac{4m_n m_t}{(m_n + m_t)^2} E_n \quad (3c)$$

式中の m_n , m_t はそれぞれ中性子, ^{12}C の質量, E_f^*

は ^{12}C の励起エネルギーを表し, f_1 はルジャンドル関数の第1次の係数を表す。

なお, ガンマ線放射の際に残留核が反跳されて得られるエネルギーは, 中性子放出の場合に得られるエネルギーに比べ無視できるほど小さい(2^+ で0.2keV程度)ので考慮せず, 全てガンマ線のエネルギーとして逃げ, 物質へのエネルギー付与には寄与しないものとする。

3.2 多粒子ブレイクアップ反応過程

中性子と ^{12}C との反応に関しては, 2.2節の(g), (h)に相当する反応生成物が中性子を含めて3個以上になる (n, n') 3α 反応がある⁶⁾。本研究では, 陽子入射反応実験の解析結果⁷⁾に基づいて, 同時ブレイクアップ反応過程が主要な過程であると仮定した理論モデルを採用し, カーマファクタの計算を行う。

(1) 蒸発モデル

蒸発モデルによると, 放射中性子のエネルギー分布は次式で与えられる⁴⁾。

$$\left(\frac{d\sigma_j}{dE_n'} \right) = \frac{\sigma_j}{2\pi} \cdot \frac{E_n'}{I} \cdot \exp\left(-\frac{E_n'}{\theta}\right) \quad (5)$$

$$I = \theta^2 \left[1 - \left(1 + \frac{E_n - U}{\theta} \right) \exp\left(-\frac{E_n - U}{\theta}\right) \right] \quad (5a)$$

θ が入射エネルギーごとに与えられる核温度パラメータであり, E_n は中性子入射エネルギーを表している。また, U は反応のしきいエネルギーを与えており, JENDL-3では, $U = 7.887\text{MeV}$ となっている。

角度分布を重心系で等方と仮定すると, 次のように(1)式から解析的に計算可能なカーマファクタを導出することができる。

$$K^j = N \cdot \sigma_j \cdot \left[(E_n + Q) - \frac{2\theta^3 - \theta \cdot \exp\left(-\frac{E_n}{\theta}\right) \cdot \left\{ (E_n - U)^2 + 2\theta(E_n - U) + 2\theta^2 \right\}}{I} \right] \quad (6)$$

(2) 位相空間モデル

このモデルを適用すると, 放出中性子の二重微分断面積は, 複数個の反応生成粒子がはる位相空間内での状態数, 即ち状態密度(以下位相空間因子と記す)に比例する形で次式のように与えられる。

$$\frac{d^2 \sigma_j}{dE_n d\Omega_n} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \cdot \frac{\mu_p}{k_p} \cdot |M|^2 \cdot \rho_f(E_n, \theta_n) \quad (7)$$

但し、 μ_p は換算質量、 k_p は波数、 $|M|^2$ は相互作用行列要素の2乗平均、 $\rho_f(E_n, \theta_n)$ は位相空間因子をそれぞれ表している。

これを重心系で考えると、位相空間因子が放出中性子のエネルギーのみの関数となるので、 $|M|^2$ が角度のみに依存すると仮定すると次のようにエネルギー分布と角度分布を分離した形で式を展開することができる。

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \sigma_j}{dE_n d\Omega_n} &= \sigma_j \cdot \frac{|M|^2 \rho_f(E_n^c)}{\int \int |M|^2 \rho_f(E_n^c) dE_n^c d\Omega_n^c} \\ &= \sigma_j \cdot \frac{|M|^2}{\int |M|^2 d\Omega_n^c} \cdot \frac{\rho_f(E_n^c)}{\int \rho_f(E_n^c) dE_n^c} \quad (8) \end{aligned}$$

式中での添字 c は重心系を表す。

また、物質に付与されるエネルギーが (2) 式より、

$$E_{tr}^i = A_0(E_n^c) + A_1(E_n^c) \cos \theta_n^c \quad (9)$$

のように放出中性子の放出角度の余弦で表されるので、角度積分については弾性散乱及び離散的単位への非弾性散乱の場合と同様の扱いが可能となる。そのため、重心系での反応の等方性を仮定すると、次式のように放出中性子のエネルギーについての一重積分の形でカーマファクタが与えられる。

$$K_f^j = \sigma_j \int \rho_0(E_n^c) \cdot A_0(E_n^c) dE_n^c \quad (10)$$

$$\rho_0(E_n^c) = \frac{\rho(E_n^c)}{\int \rho(E_n^c) dE_n^c} \quad (10a)$$

このモデルを用いて、先に述べた2つの反応過程(3BSB と 4BSB) に対する位相空間因子⁷⁾⁸⁾を求めてカーマファクタの計算を行った。実際は3BSB と4BSB 過程は同時に起こりうる競合過程であると考えられるが、本計算ではそれぞれの過程が100%起こっ

た場合を想定してそれぞれのカーマファクタを導出した。

3BSB については、 ^8Be が2つの α 粒子に分解される過程が続いて起こる。この過程を評価する際に2つの α 粒子間の終状態相互作用 FSI (Final State Interaction) の効果⁹⁾を考慮した。また、 ^8Be の取りうる中間状態は、基底状態と2.94MeV の第1準位とがある。その分岐比については、中性子入射反応の類似反応である陽子入射反応実験の解析結果⁷⁾に従って決定し、基底状態遷移が12%、第一励起状態遷移が残りの88%とした。

4. 計算結果と議論

4.1 部分カーマファクタの計算結果

Fig. 2 に各反応に対して計算された部分カーマファクタの全カーマファクタに対する割合を示す。これによると、14, 15MeV あたりから、入射エネルギーが高くなるにしたがって、 (n, n') 3α 反応のカーマファクタが他の反応に比べて圧倒的に大きくなる(約6割を占めるようになる)様子が分かる。この傾向は、**Fig. 1** に示された (n, n') 3α 反応断面積の増大により説明できるが、終状態が3つの α 粒子になるため、物質へのエネルギー付与が他の反応に比べてもかなり大きいということにも関与している。

4.2 位相空間モデルおよび蒸発モデルに基づくカーマファクタの計算結果

(n, n') 3α 反応については、位相空間モデル(4BSB, 3BSB) と蒸発モデルのそれぞれについて計算を行った。**Fig. 3** に、3つのモデルに基づく部分カーマファクタの計算結果を示す。低エネルギー領域ではそれぞれのモデルによる計算結果はほぼ同じであるが、入射エネルギーが高くなるにしたがって、蒸発モデルと位相空間モデル間の差がはっきりしてくる。

次に、4BSB での計算結果に対する他の結果との比を **Fig. 4** に示す。図を見て明らかのように、このエネルギー領域(10–20MeV)において、低エネルギー側では、位相空間モデルが蒸発モデルに比べ、大きなカーマファクタを与え、高エネルギー側では逆に小さくなる。これは、二重微分断面積のスペクトルの形状から以下のように説明できる。

入射中性子エネルギーが14.1MeV と18MeV の反応において、放出角 60° に対する放出中性子の二重微分断面積の計算値と実験値¹⁰⁾との比較を **Fig. 5** と

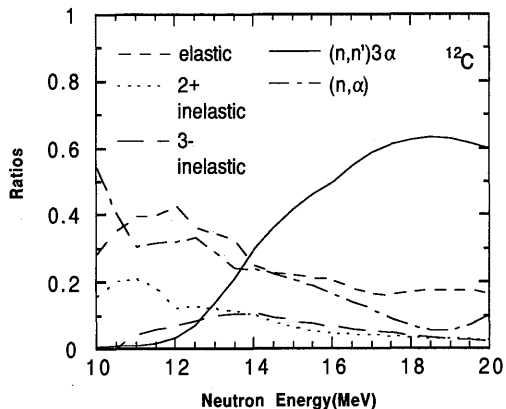


Fig. 2 Ratios of the partial kerma factors for each reaction process to the total kerma factor.

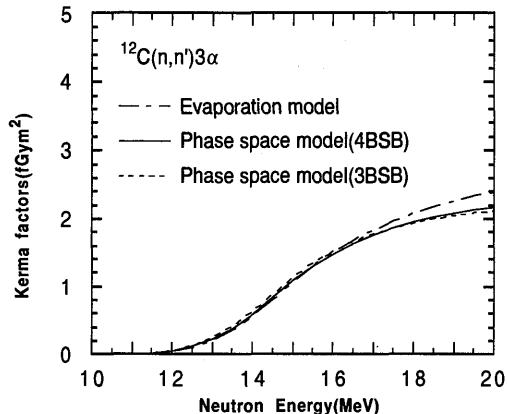


Fig. 3 Calculated kerma factors for the $(n, n') 3\alpha$ reaction.

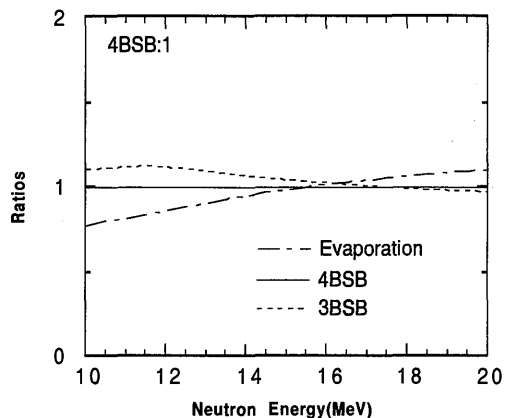


Fig. 4 Comparisons of the kerma factors calculated using the 3BSB and 4BSB phase space model and the evaporation model. The result is given as the ratio to the 4BSB result.

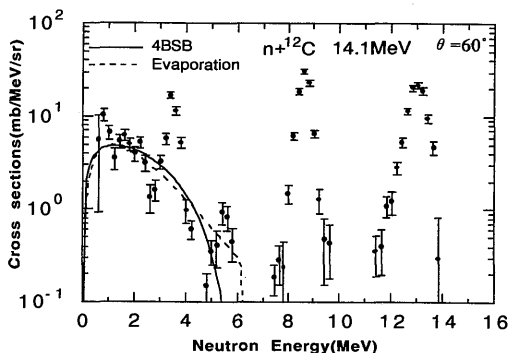


Fig. 5 Calculated double differential neutron emission cross sections and experimental ones for outgoing angle $\Theta_{lab} = 60^\circ$ at an incident neutron energy of 14.1 MeV. The solid line and the dashed line indicate the calculated results by the 4BSB phase model and the evaporation model, respectively. Experimental data are from ref. 10).

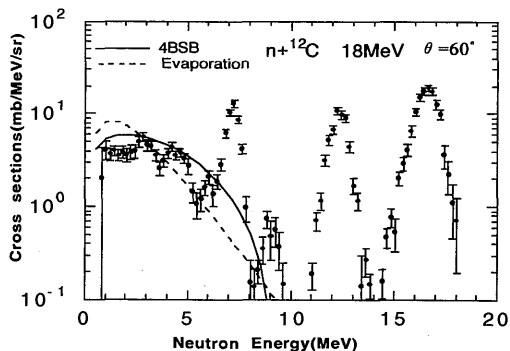


Fig. 6 Same as in fig. 5 for an incident energy of 18 MeV.

Fig. 6 に示す。但し、位相空間モデルは、4BSB を仮定した計算結果である。 $(n, n') 3\alpha$ 反応により放出される中性子のエネルギー分布は、Figs. 5, 6 から分かるように低エネルギー領域に連続スペクトルを形成している。JENDL-3 で用いられている蒸発モデルの公式によると、放出中性子の最大エネルギーが実験室系の角度によって変化しないので、全ての角度ともスペクトルが似た形状となる。しかしながら、実験データからも分かるように、実験室系では角度により連続スペクトルの立ち上がりのエネルギーが異なってくる。この点を正しく運動学で取り入れられている位相空間

モデルに比べ、蒸発モデルは放出中性子の二重微分断面積を十分に再現できていない。14.1MeV では、放出中性子の高エネルギー部で過大評価をして、18MeV では、低エネルギー部で過大評価をしている。以上の理由から、中性子の入射エネルギーが高くなるにしたがって、蒸発モデルによるカーマファクタが大きくなっていくことが理解できる。

次に 3BSB と 4BSB との比較であるが、Fig. 4 から分かるように低エネルギー領域 (10~14MeV) では、3BSB が 4BSB に比べて大きなカーマファクタを与え、高エネルギー領域 (16~20MeV) では小さくなる。これも放出中性子の二重微分断面積の分析から、先程と同様に説明できる。入射中性子エネルギーが低い領域では、放出中性子の低エネルギー部 (つまり、物質に与えるエネルギーが高い部分) で 3BSB の方が大きい、高い領域になると逆に 4BSB の方が大きくなっていくからである。

4.3 実験値及び ENDF/B-V での計算値との比較

実験によって直接測定されたカーマファクタ^{2), 11)-15)} 及び他のグループが ENDF/B-V のデータから算出したカーマファクタの値³⁾ と今回の計算結果との比較を

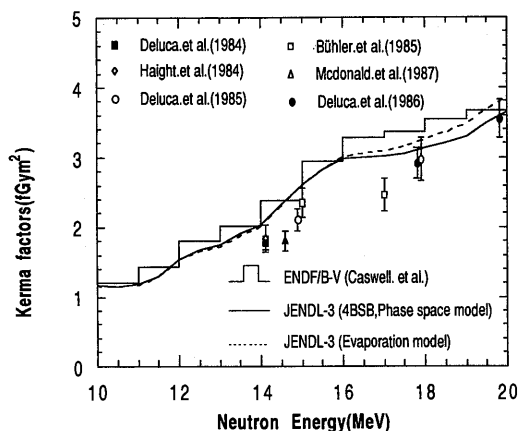


Fig. 7 Comparisons of the calculated kerma factors and the measured ones. The solid line and the dashed line represent the kerma factors calculated on the basis of the 4BSB phase space model and the evaporation model, respectively. The cross section data taken from JENDL-3 are used in both calculations. The histogram is the kerma factor calculated by Caswell et al. [ref. 3] using the cross section data taken from ENDF/B-V.

行った。その結果を Fig. 7 に示す。図から分かるように、ENDF/B-V のデータによる計算値 (ヒストグラム) よりも今回の JENDL-3 のデータによる計算値 (実線及び破線) の方が、特に高エネルギー領域で実験値との一致が良くなっている。但し、両者とも全体的に実験データを過大評価の傾向は残っている。また、 (n, n') 3α 反応のカーマファクタ計算の際に、蒸発モデル (破線) を用いるよりも、位相空間モデル (実線) を用いた方が、高エネルギー領域で実験値との一致が改善されることが分かった。

5. 結 論

入射中性子のエネルギーが 10~20MeV 領域における ^{12}C のカーマファクタの計算を行った。この領域においては入射エネルギーが高くなるにつれて (n, n') 3α 反応過程がすべての反応過程の中で最も大きな寄与を示すことがわかった。 (n, n') 3α 反応過程については、位相空間モデル (3BSB と 4BSB) と蒸発モデルを用いて計算を行った結果、全カーマファクタで考える限り、そのモデル間の差異は余り顕著ではなかった。しかしながら、 (n, n') 3α 反応断面積が大きくなる高エネルギー領域で位相空間モデルを用いたほうが実験値との一致が良いことと、微分データである放出中性子のエネルギースペクトルの実験値の再現性もよいことの 2 点を考慮すると、 (n, n') 3α 反応に対しては位相空間モデルの方が有効であることが分かった。

本研究では、 3α ブレークアップ過程により放出される連続エネルギー分布を持った中性子に対して、すべて同時ブレークアップ過程を仮定した。しかしながら、 α 粒子放出後の残留核 $^9\text{Be}^*$ からの順次崩壊過程の寄与も実験的に観測されている⁶⁾。今後の 10MeV 以上の高エネルギー中性子に対する ^{12}C のカーマファクタ評価においては、 3α ブレークアップ反応メカニズムの詳細な研究ならびに順次崩壊過程のカーマファクタへの影響を調べていくことが主要な課題となろう。

謝 辞

本研究に際し、核データ JENDL-3 を提供して頂いた日本原子力研究所核データセンターの方々、並びに、中性子反応の実験データを提供して頂いた東北大学の馬場護助教授に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 飯島俊吾：核データニュース No. 37, 日本原子力研究所核データセンター (1990).
- 2) See for example, DeLUCA. P. M. et al.: Nucl. Sci. Eng., **94**, 192 (1986).
- 3) See for example, CASWELL, R. S. et al.: Radiat. Res., **83**, 217 (1980).
- 4) SHIBATA, K. et al.: "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3, JENDL-3", JAERI-1319 (1990).
- 5) "Evaluated Nuclear Data File, ENDF/B-V", Brookhaven National Laboratory (1979).
- 6) ANTOLKOVIC, B. et al.: Nucl. Sci. Eng., **107**, 1 (1991).
- 7) WATANABE, Y. et al.: Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, May 13-17, 1991, Jülich Germany, (Springer-Verlag, 1992), P. 1002.
- 8) OHLSEN, G. G.: Nucl. Inst. and Meth., **37**, 340 (1965).
- 9) BARKER, F. C., TREACY, P. B.: Nucl. Phys., **38**, 33 (1962).
- 10) MATSUYAMA, S. et al.: ProgressReport, NETU-52, p. 5, Fast Neutron Laboratory, Tohoku University (1990).
- 11) DeLUCA. P. M. et al.: Radiat. Res., **100**, 78 (1984).
- 12) HAIGHT, R. C. et al.: Nucl. Sci. Eng., **87**, 41 (1984).
- 13) DeLUCA. P. M. et al.: Proc. 5th Symp. Neutron Dosimetry Munich/Neuherberg, FRG, EUR-9762, p. 193, Commission of the European Communities, Luxembourg (1985).
- 14) BÜHLER, G. et al.: *ibid*, p. 309.
- 15) McDONALD, J. C.: Radiat Res. **109**, 28 (1987).