

---

# 冷中性子源解析と関連コード開発 (メシチレン散乱断面積の解析)

京大院工： 安部 豊, 船間史晃, 田崎誠司  
京大炉： 日野正裕

# はじめに

---

## □ 背景

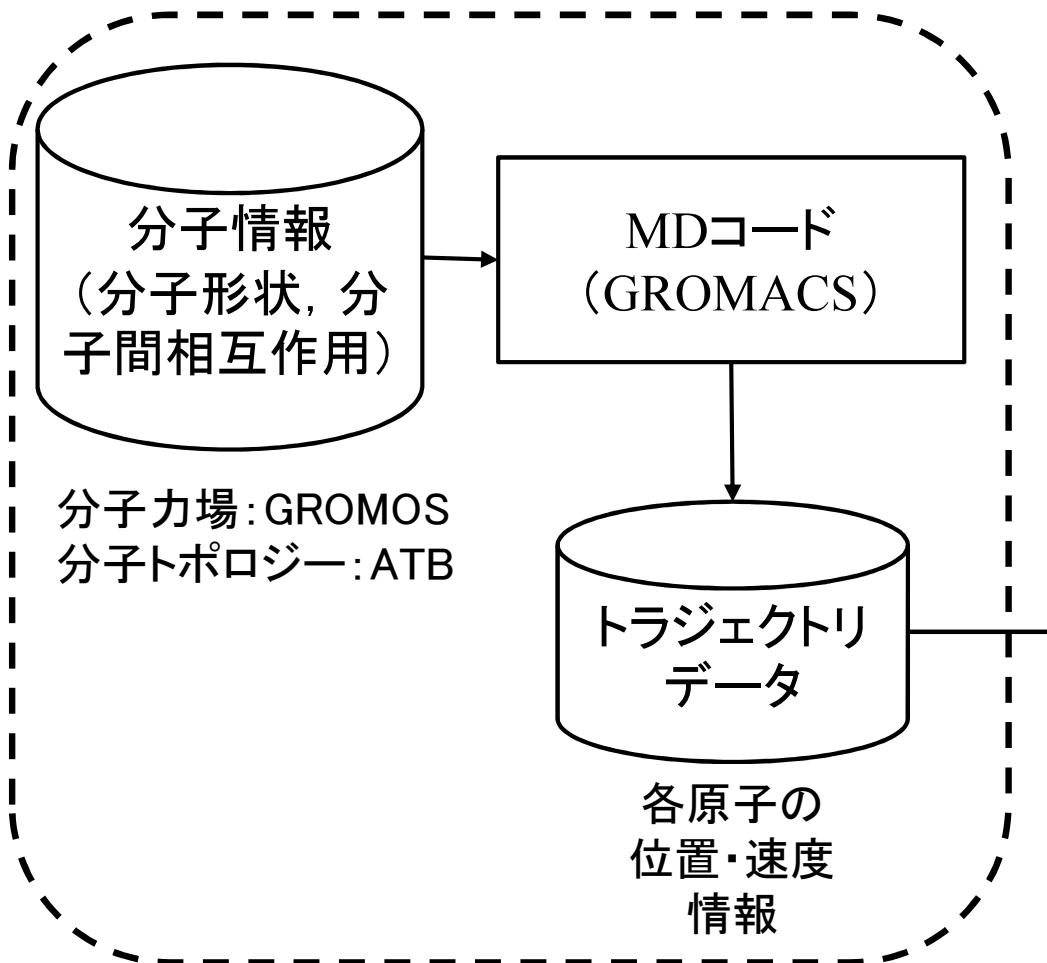
- 冷中性子源の解析・設計:  
中性子輸送コード(PHITS, MCNP), 核データ(JENDL, ENDF, JEFF)
- 核データ: 熱中性子散乱断面積データ(散乱則 $S(\alpha, \beta)$ )  
⇒ 16種類の物質に限定(ENDFとJEFFを併せて)  
⇒ メシチレンなど新規冷減速材の検討には別途必要
- 散乱則データの作成: 核計算コード(NJOY/LEAPRなど)  
⇒ 物理モデルや関連パラメータが必要  
⇒ 様々な物質に対する汎用的な適用性に難点

## □ 目的

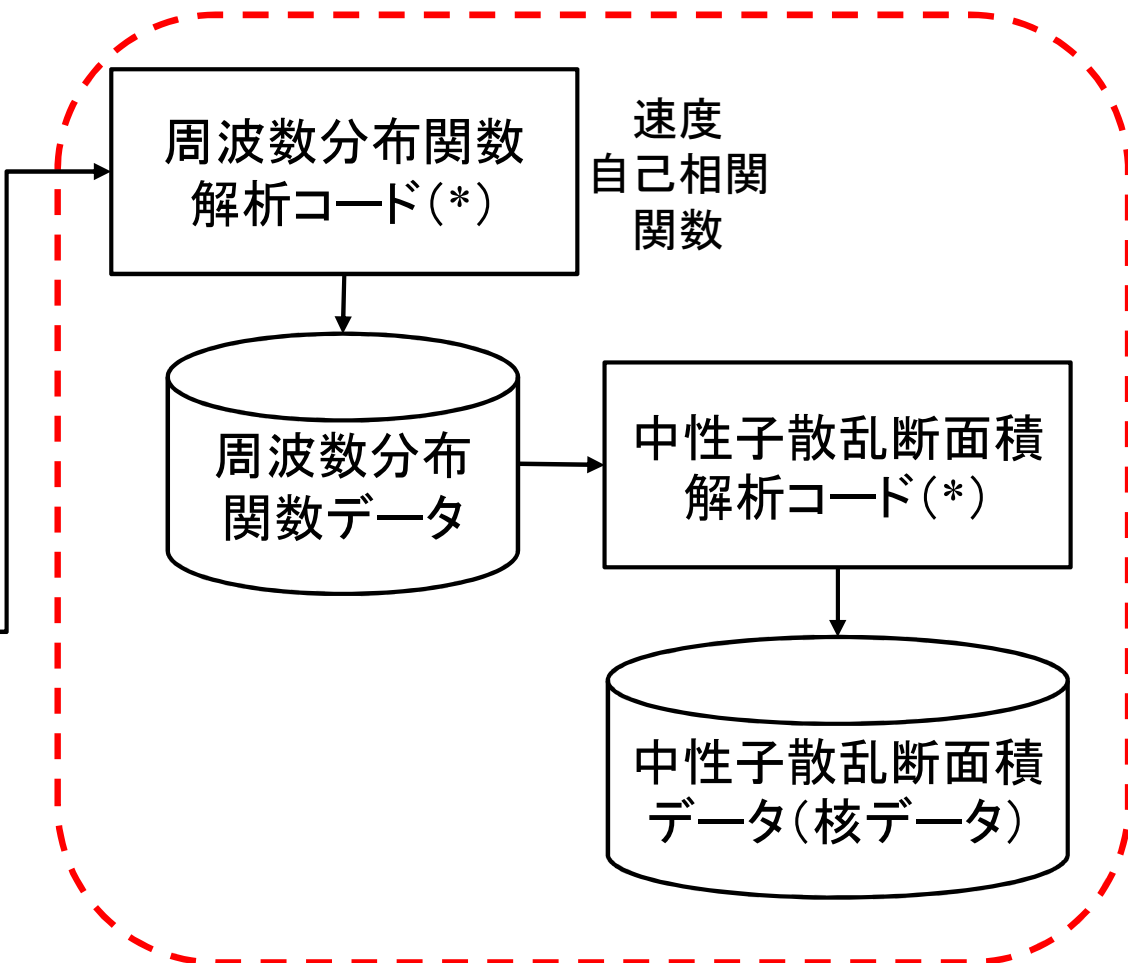
- 様々な物質に対して, 原子・分子の運動を詳細に考慮した熱中性子散乱断面積データを簡便に作成可能にする  
⇒ 分子動力学法による熱中性子散乱断面積の汎用解析コードの開発  
(今回は主として冷減速材の候補となる含水素物質を対象)

# 熱中性子散乱断面積の解析方法の概要

## ■ 分子動力学(MD)解析 (既存MDコードの利用)



## ■ 熱中性子散乱断面積解析 (新規コードの開発)



(\*)解析方法の詳細: Y. Abe et al., NIMA 735 (2014) 568-573.

# 熱中性子散乱断面積の評価式

- 二重微分散乱断面積と自己散乱則 (含水素物質に対する非干渉性散乱近似)

二重微分散乱断面積 (分子あたり)

$$\frac{d^2\sigma_s}{d\Omega d\varepsilon} = \sum_{X=1}^{N_m} \frac{\sigma_b^X}{4\pi\hbar} \sqrt{\frac{E}{E_0}} S_s^X(\kappa, \omega)$$

分子あたりの原子数  $N_m$

自己散乱則 (原子X)

	H	<sup>12</sup> C	<sup>16</sup> O
$\sigma_{coh}$ (b)	1.8	5.6	4.2
$\sigma_{inc}$ (b)	<b>80</b>	0	0

- 自己中間散乱関数のガウス近似 (原子X)

$$S_s^X(\kappa, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \exp\left[-\frac{\kappa^2}{2} \Gamma^X(t)\right]$$

自己中間散乱関数  $\Gamma^X(t)$

幅関数:  $\langle (r(t) - r(0))^2 \rangle / 3$   
平均自乗変位

- 幅関数と周波数分布関数 (A. Rahman(1962))

$$\Gamma^X(t) = \frac{\hbar}{m_X} \int_0^{\infty} d\omega \frac{g^X(\omega)}{\omega} \left\{ \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) (1 - \cos\omega t) - i \sin\omega t \right\}$$

幅関数  $\Gamma^X(t)$

周波数分布関数 (状態密度関数)  $g^X(\omega)$

- 周波数分布関数と速度自己相関関数

$$g_c^X(\omega) = \frac{2m_X}{3\pi k_B T} \int_0^{\infty} dt \langle \mathbf{v}^X(0) \cdot \mathbf{v}^X(t) \rangle_c \cos\omega t$$

速度自己相関関数  $\langle \mathbf{v}^X(0) \cdot \mathbf{v}^X(t) \rangle_c$

分子動力学解析

# 分子動力学解析(1) 分子情報

- 相互作用ポテンシャル: 分子力場 (GROMOS モデル)

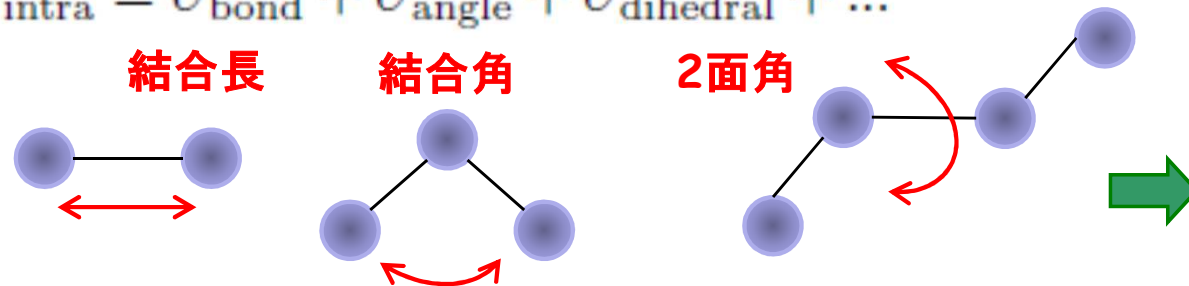
・非結合  
(分子間):

$$U_{\text{inter}} = \sum_{i,j} \left( \frac{A_{i,j}}{r_{i,j}^{12}} - \frac{B_{i,j}}{r_{i,j}^6} + \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon r_{i,j}} \right)$$

L-Jポテンシャル      分極によるクーロン  
ポテンシャル

・結合  
(分子内):

$$U_{\text{intra}} = U_{\text{bond}} + U_{\text{angle}} + U_{\text{dihedral}} + \dots$$



多様な分子種に  
適用可能

分子内の原子集団ごとに相互作用モデルとパラメータを設定

- 分子トポロジー(分子形状, 分子内の各原子の座標)

データベース: Automated Topology Builder(ATB) から取得.  
(豪クイーンズランド大, 約1万9千種の分子データが登録)


量子化学解析(密度汎関数法)によりエネルギー最小形状を評価

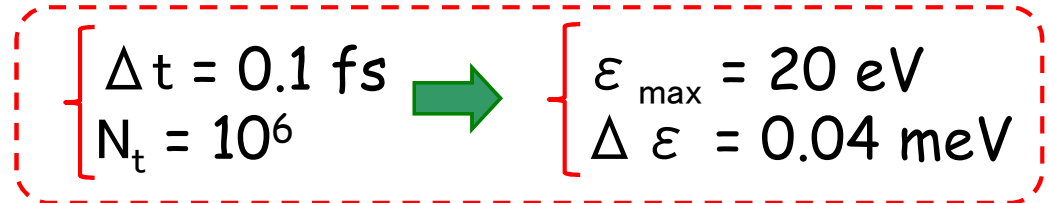
# 分子動力学解析(2) シミュレーション条件


- シミュレーション設定(典型例)

- 分子数: 1000
- 時間ステップ間隔  $\Delta t$ : 0.1~0.2 fs
- 時間ステップ数  $N_t$ :  $10^6$
- 定温-定積アンサンブル  
(常温300K, 一部100K程度)
- MDコード: GROMACS

- エネルギー遷移 $\epsilon$ の範囲


$$\left\{ \begin{array}{l} \epsilon_{\max} = \frac{\pi \hbar}{\Delta t} \\ \Delta \epsilon = \frac{2\pi \hbar}{N_t \Delta t} \end{array} \right. \begin{array}{l} \text{サンプリング} \\ \text{定理} \end{array}$$


$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta t = 0.1 \text{ fs} \\ N_t = 10^6 \end{array} \right. \rightarrow \left\{ \begin{array}{l} \epsilon_{\max} = 20 \text{ eV} \\ \Delta \epsilon = 0.04 \text{ meV} \end{array} \right.$$




熱中性子散乱の典型的な  
エネルギー遷移をカバー

- 対象物質(含水素物質)

- メシチレン**, 軽水, メタノール,  
エタノール, グリセリン, ベンゼン,  
トルエン, o, m, p-キシレン

全断面積の実験データの有無  
⇒ 計10種類



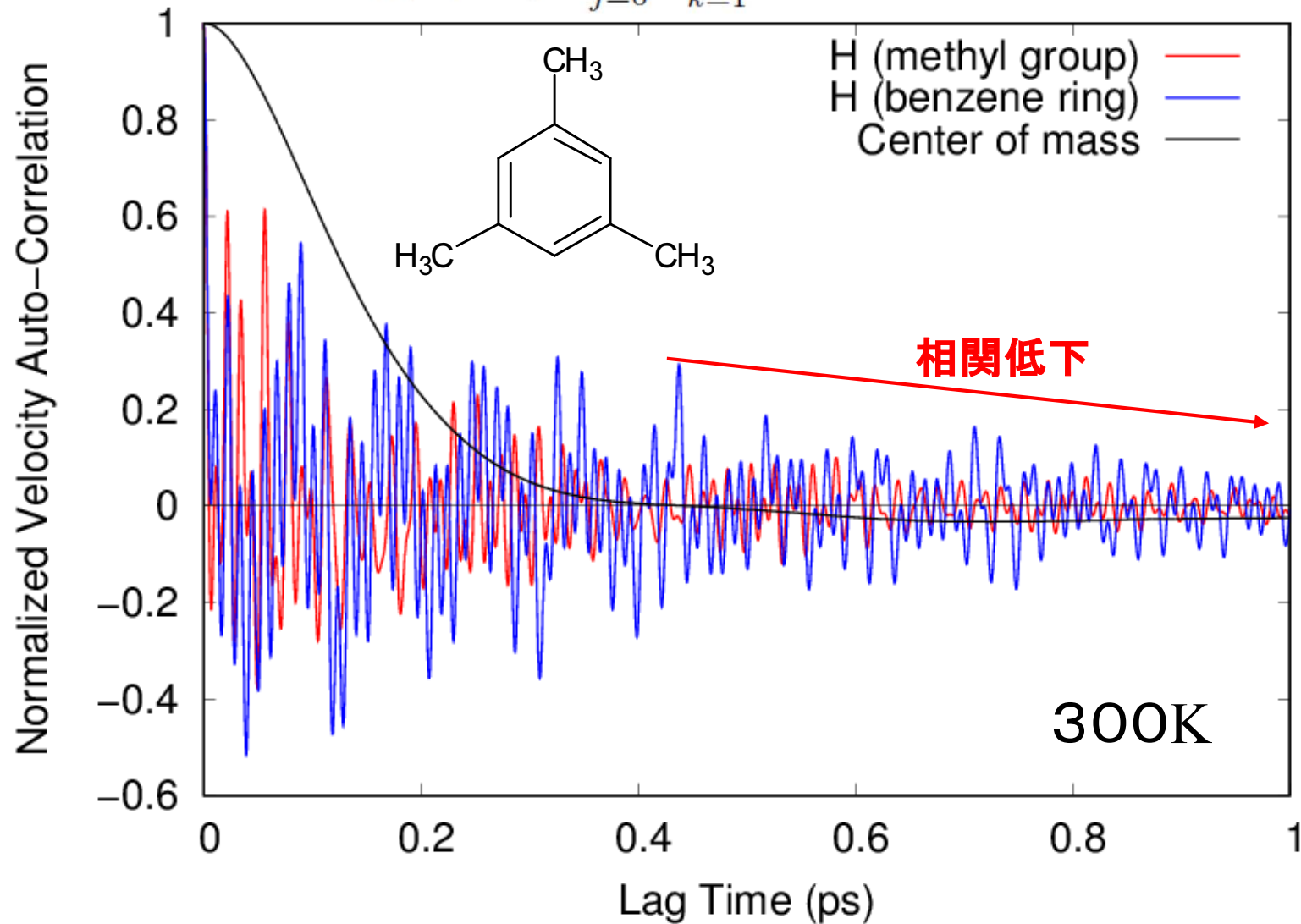
メシチレンの解析例

# 速度自己相関(液体メシチレン)

- 速度自己相関

$$\langle \mathbf{v}^X(0) \cdot \mathbf{v}^X(t_i) \rangle_c = \frac{1}{N_X(N_t - i)} \sum_{j=0}^{N_t-1-i} \sum_{k=1}^{N_X} \mathbf{v}_k^X(t_j) \cdot \mathbf{v}_k^X(t_j + t_i)$$

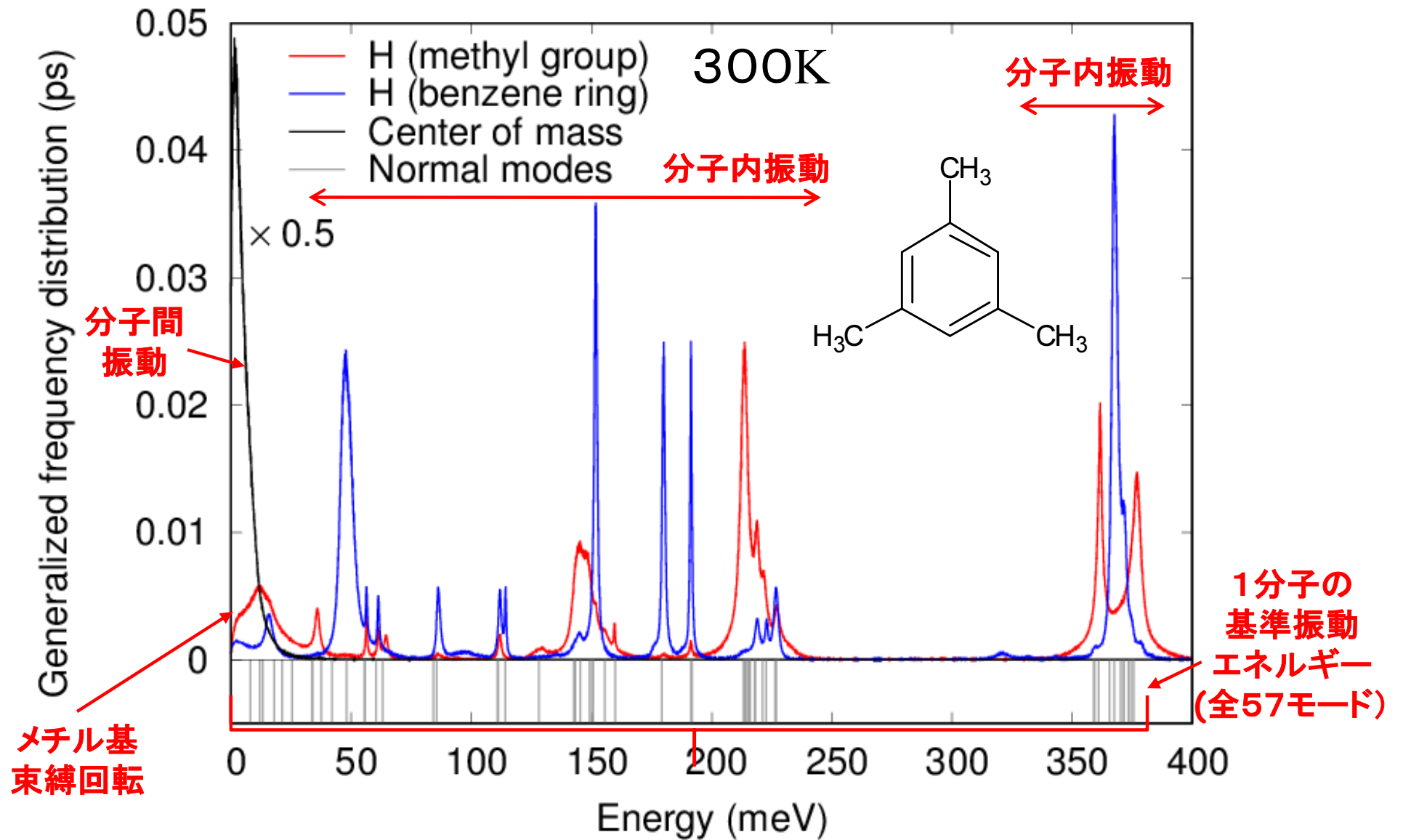
MDトラジェクトリ  
速度データ



# 周波数分布関数(液体メシチレン)

- 周波数分布関数

$$g_c^X(\omega) = \frac{2m_X}{3\pi k_B T} \int_0^\infty dt \langle v^X(0) \cdot v^X(t) \rangle_c \cos \omega t.$$

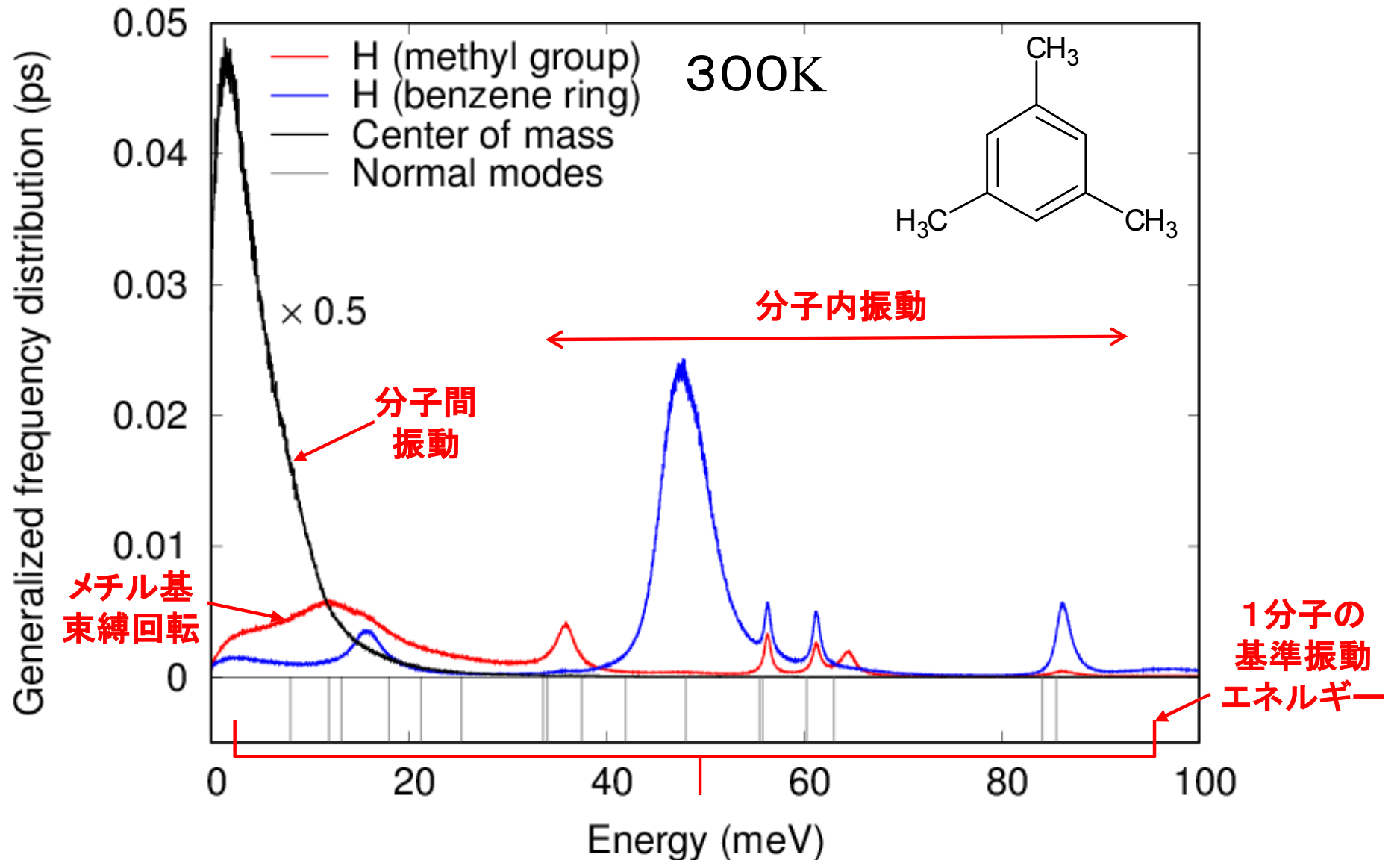




# 周波数分布関数 拡大図 (液体メシチレン)

- 周波数分布関数

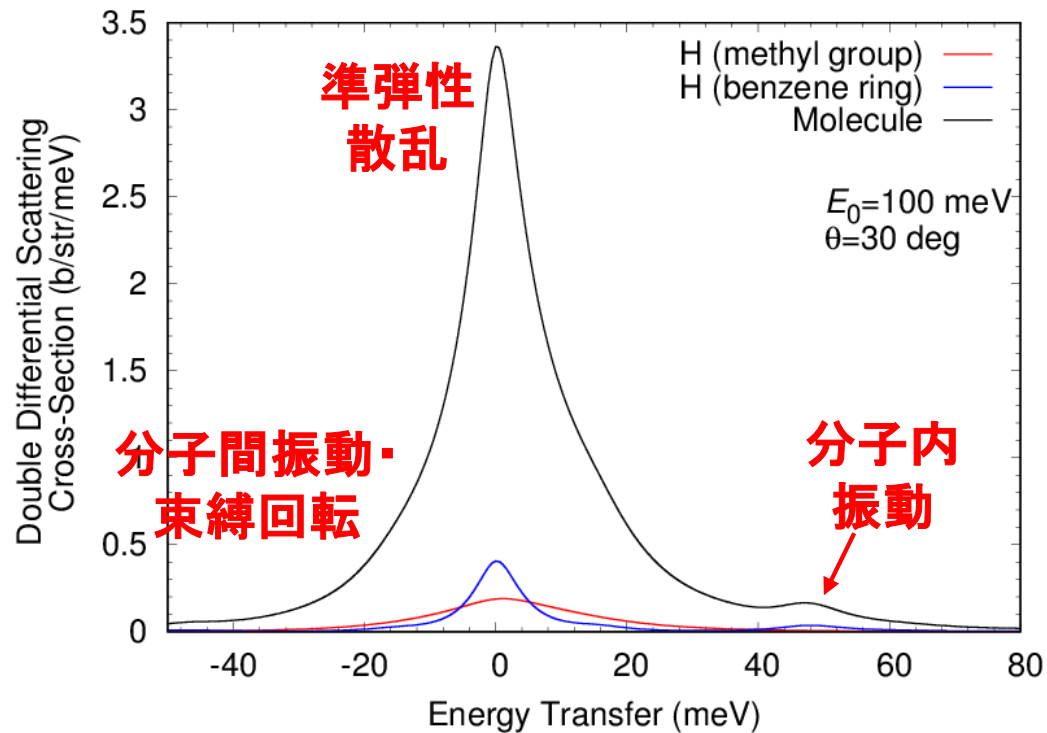
$$g_c^X(\omega) = \frac{2m_X}{3\pi k_B T} \int_0^\infty dt \langle v^X(0) \cdot v^X(t) \rangle_c \cos \omega t.$$



# 二重微分散乱断面積（液体メシチレン）

• T=300K,  $E_0 = 100$  meV

低散乱角: 30度

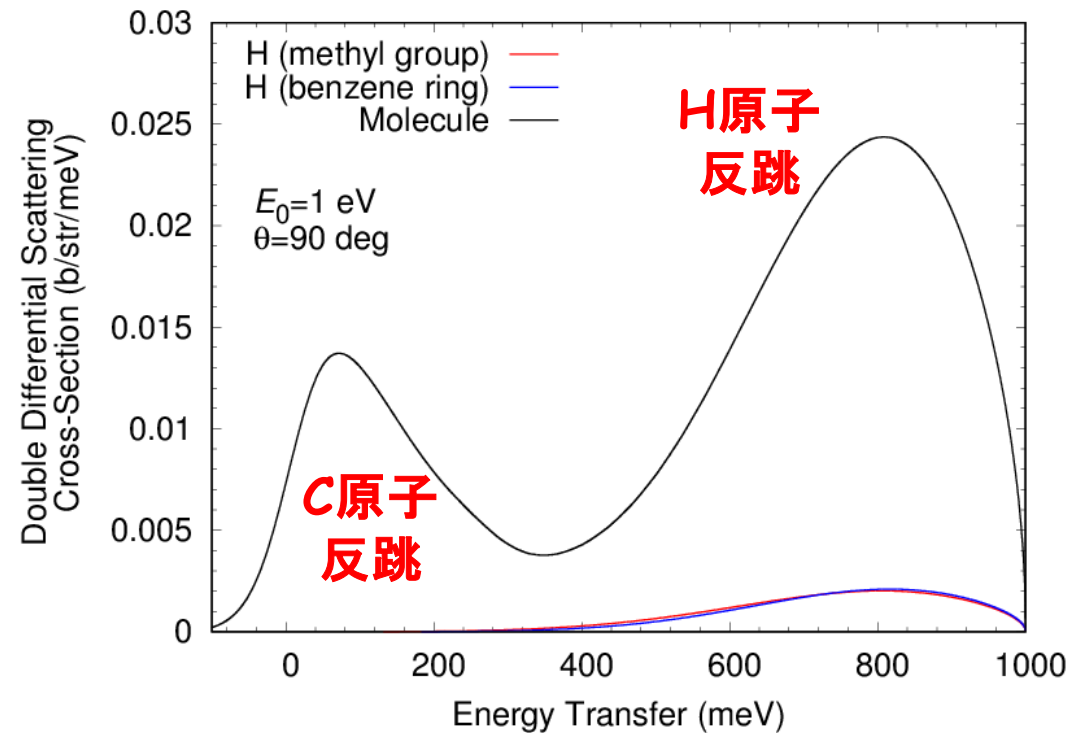


$\epsilon < 0$   
上方散乱

$\epsilon > 0$   
下方散乱

• T=300K,  $E_0 = 1000$  meV

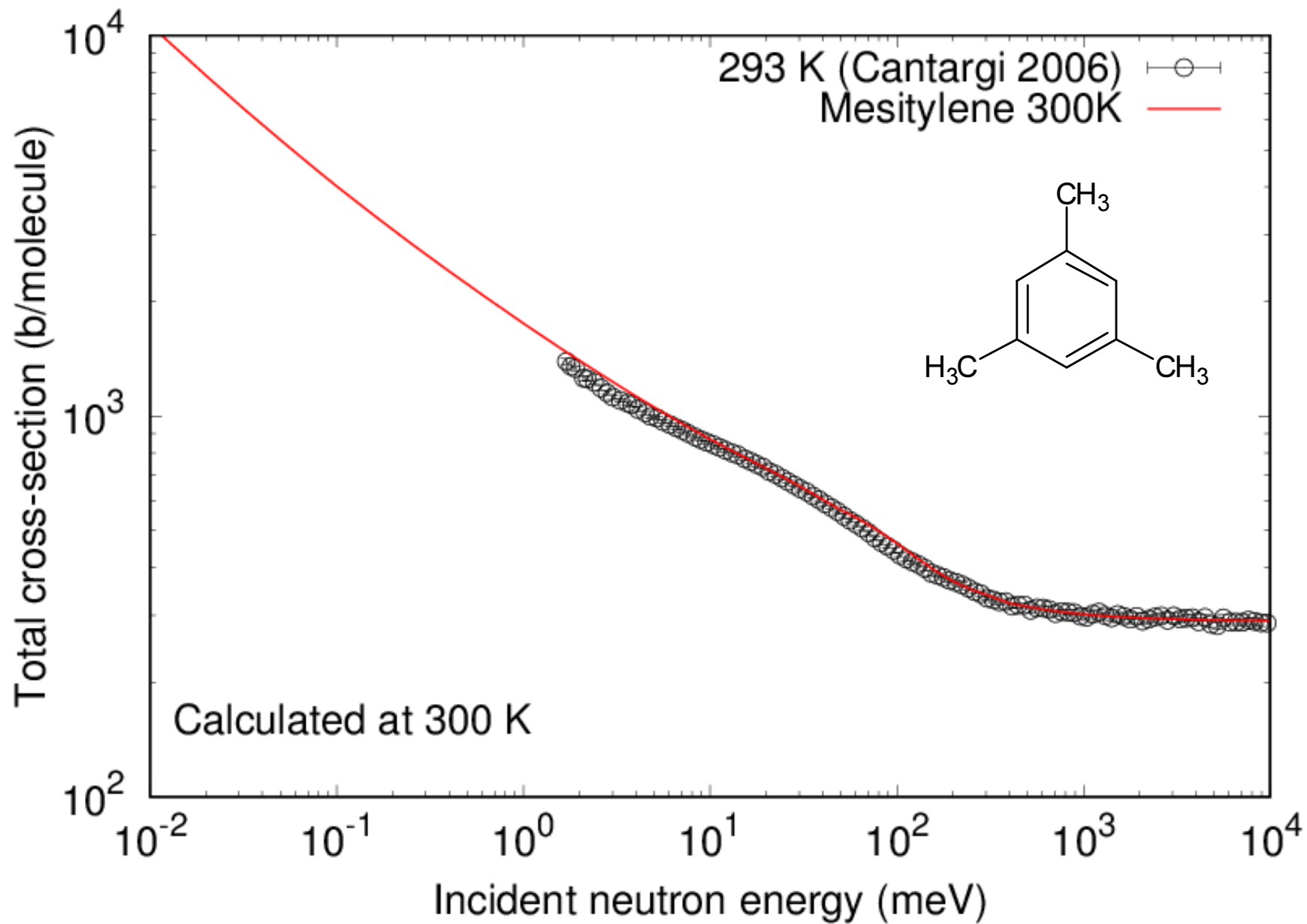
高散乱角: 90度



$\epsilon < 0$   
上方散乱

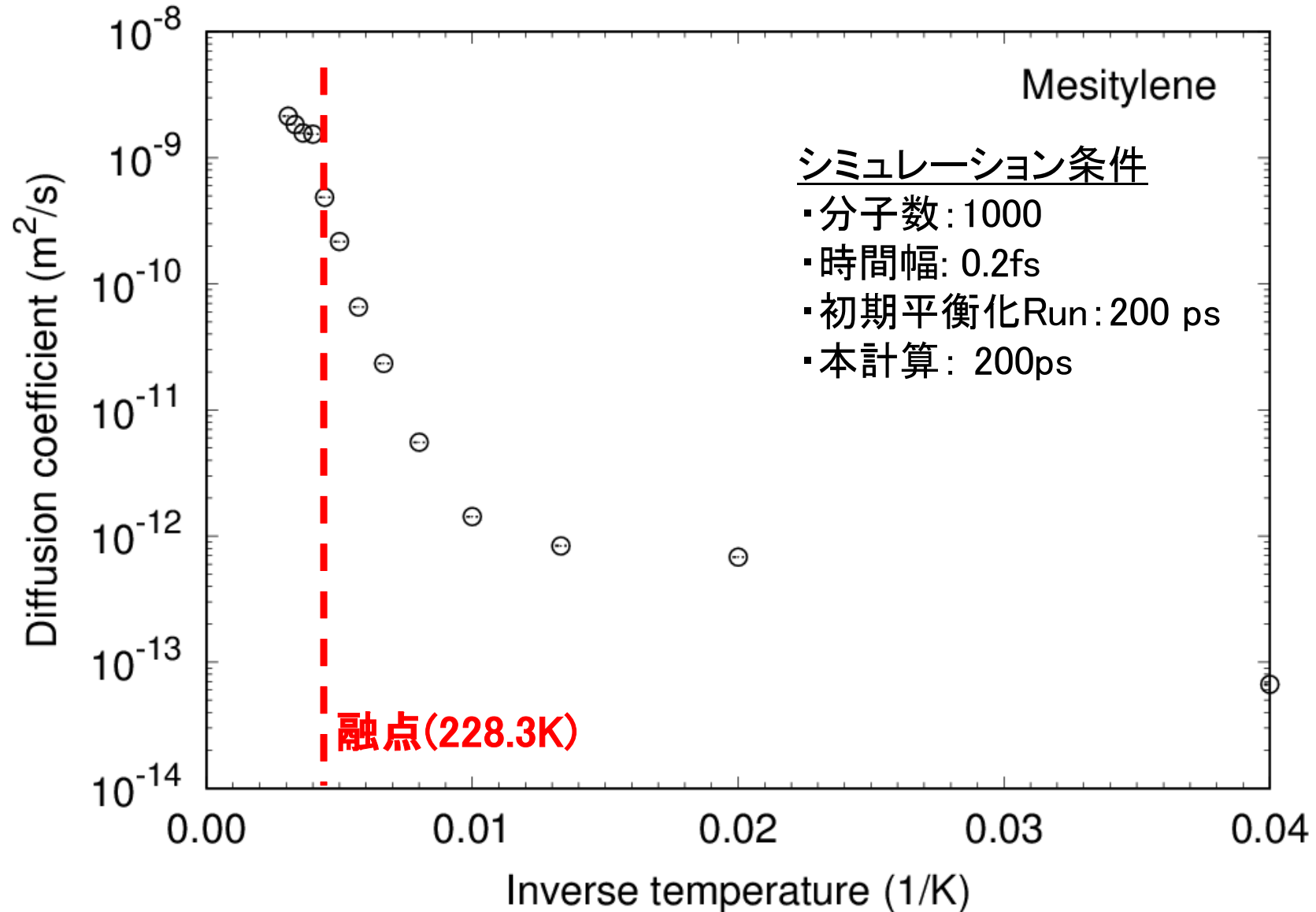
$\epsilon > 0$   
下方散乱

# 全断面積（液体メシチレン）



# MDシミュレーションによるメシチレンの固化

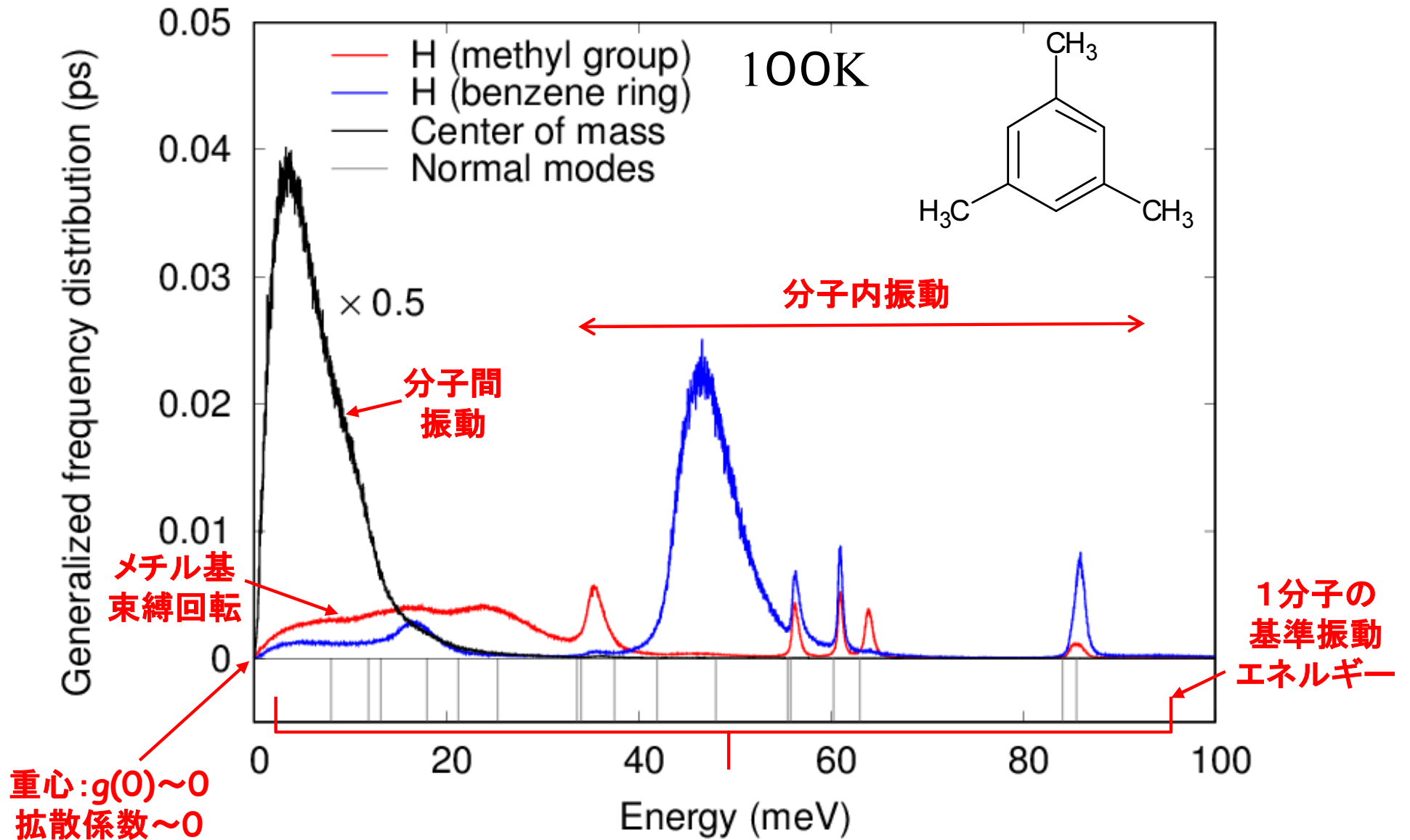
拡散係数の温度依存性 (325Kから25Kへ冷却)



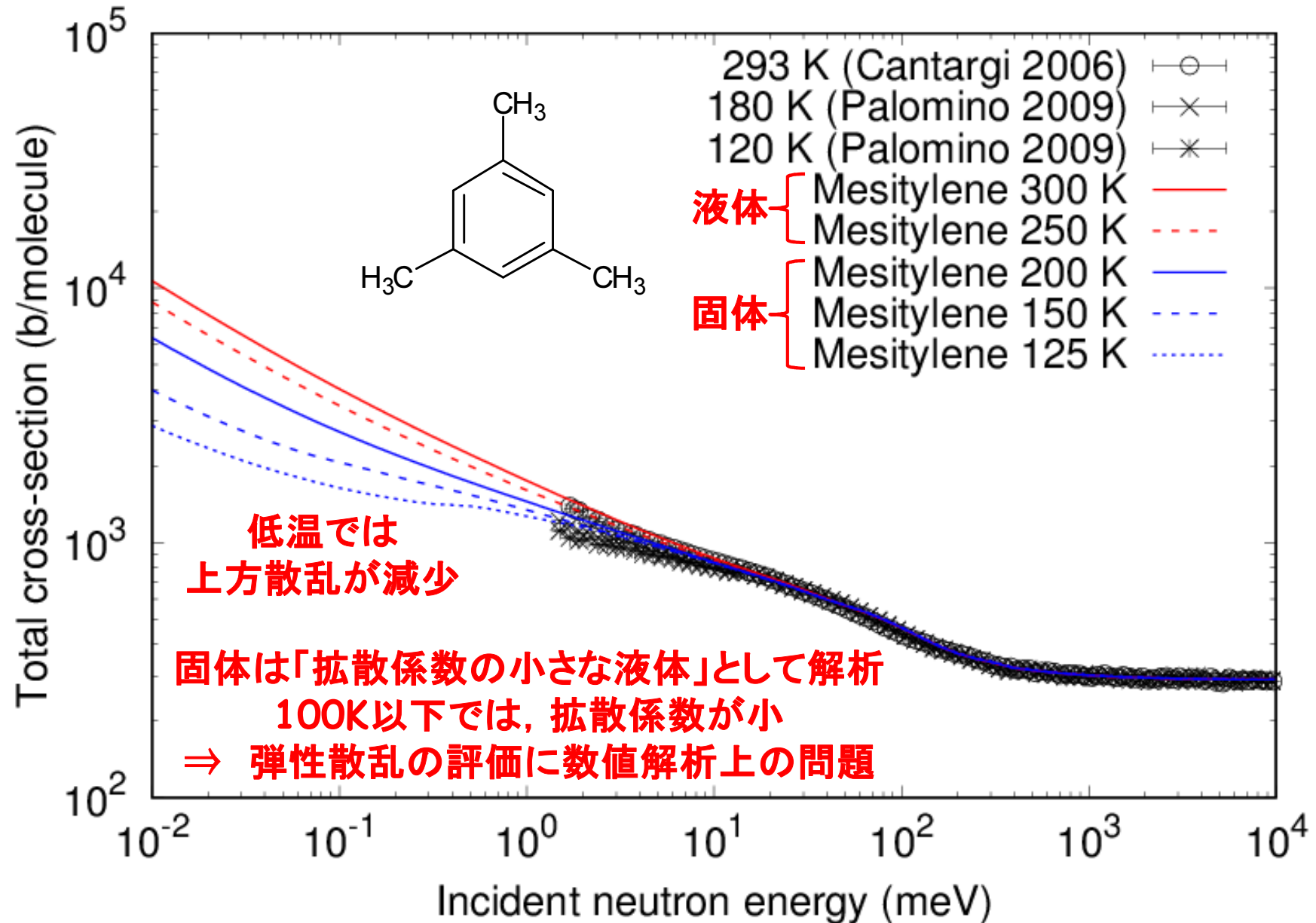
# 周波数分布関数 拡大図 (固体メシチレン)

- 周波数分布関数

$$g_c^X(\omega) = \frac{2m_X}{3\pi k_B T} \int_0^\infty dt \langle v^X(0) \cdot v^X(t) \rangle_c \cos \omega t.$$



# 全断面積 (固体メシチレン)



# 長時間での幅関数実部の振舞い

- 幅関数

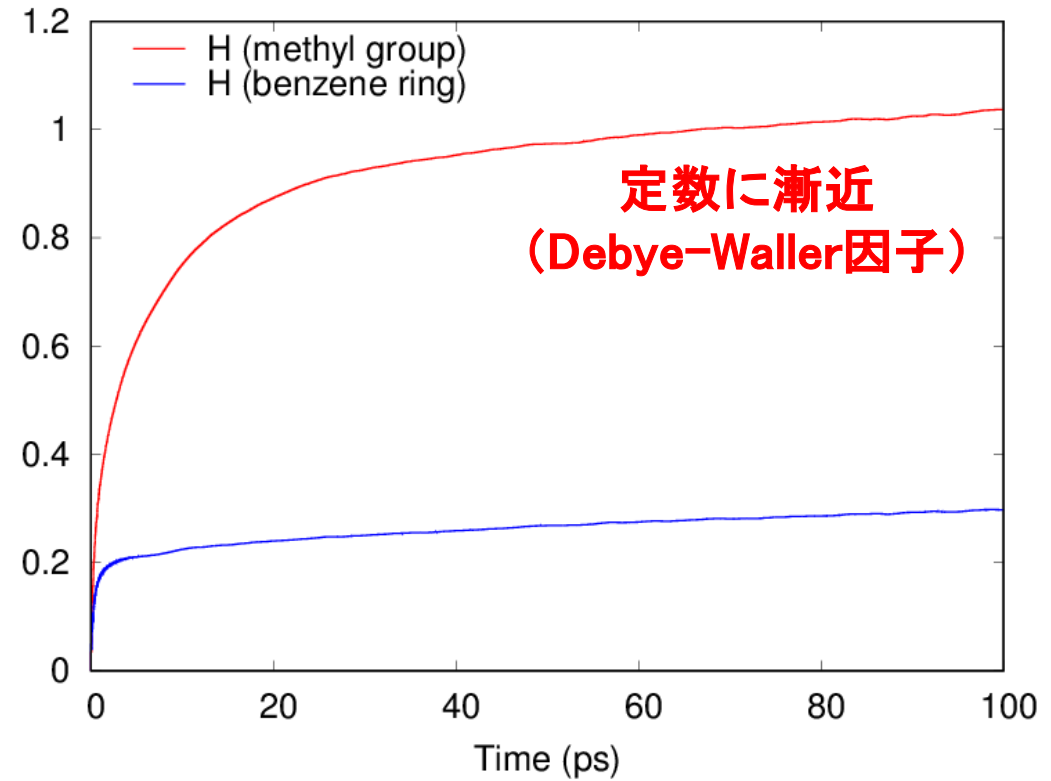
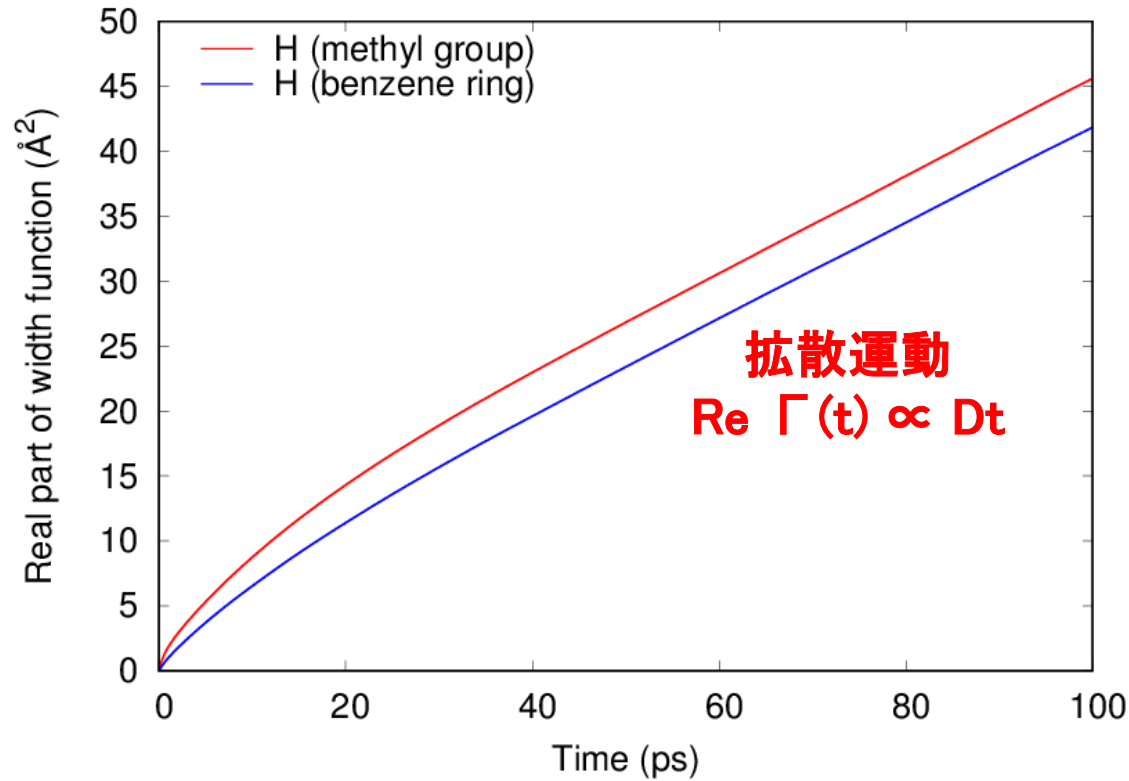
$$\Gamma^X(t) = \frac{\hbar}{m_X} \int_0^\infty d\omega \frac{g^X(\omega)}{\omega} \left\{ \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) (1 - \cos \omega t) - i \sin \omega t \right\}$$

平均自乗変位の1/3

実部

液体 (300K)

固体 (100K)



# 固体に対する熱中性子散乱断面積の評価式

- 二重微分散乱断面積と自己散乱則 (非干渉性散乱近似)

分子あたりの原子数

二重  
微分散乱  
断面積  
(分子あたり)

$$\frac{d^2\sigma_s}{d\Omega d\varepsilon} = \sum_{X=1}^{N_m} \frac{\sigma_b^X}{4\pi\hbar} \sqrt{\frac{E}{E_0}} S_s^X(\kappa, \omega)$$

自己散乱則 (原子X)

- 自己散乱則 の弾性・非弾性散乱成分の分離

$$S_s^X(\kappa, \omega) = \exp\left[-\frac{\kappa^2}{2}\Gamma^X(\infty)\right] \left\{ \delta(\omega) + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} F_s^{\text{ine},X}(\kappa, t) \right\}$$

Debye-Waller因子

弾性散乱

非弾性散乱

- 自己中間散関数 の非弾性散乱成分

$$F_s^{\text{ine},X}(\kappa, t) = \exp\left[-\frac{\kappa^2}{2} (\Gamma^X(t) - \Gamma^X(\infty))\right] - 1$$

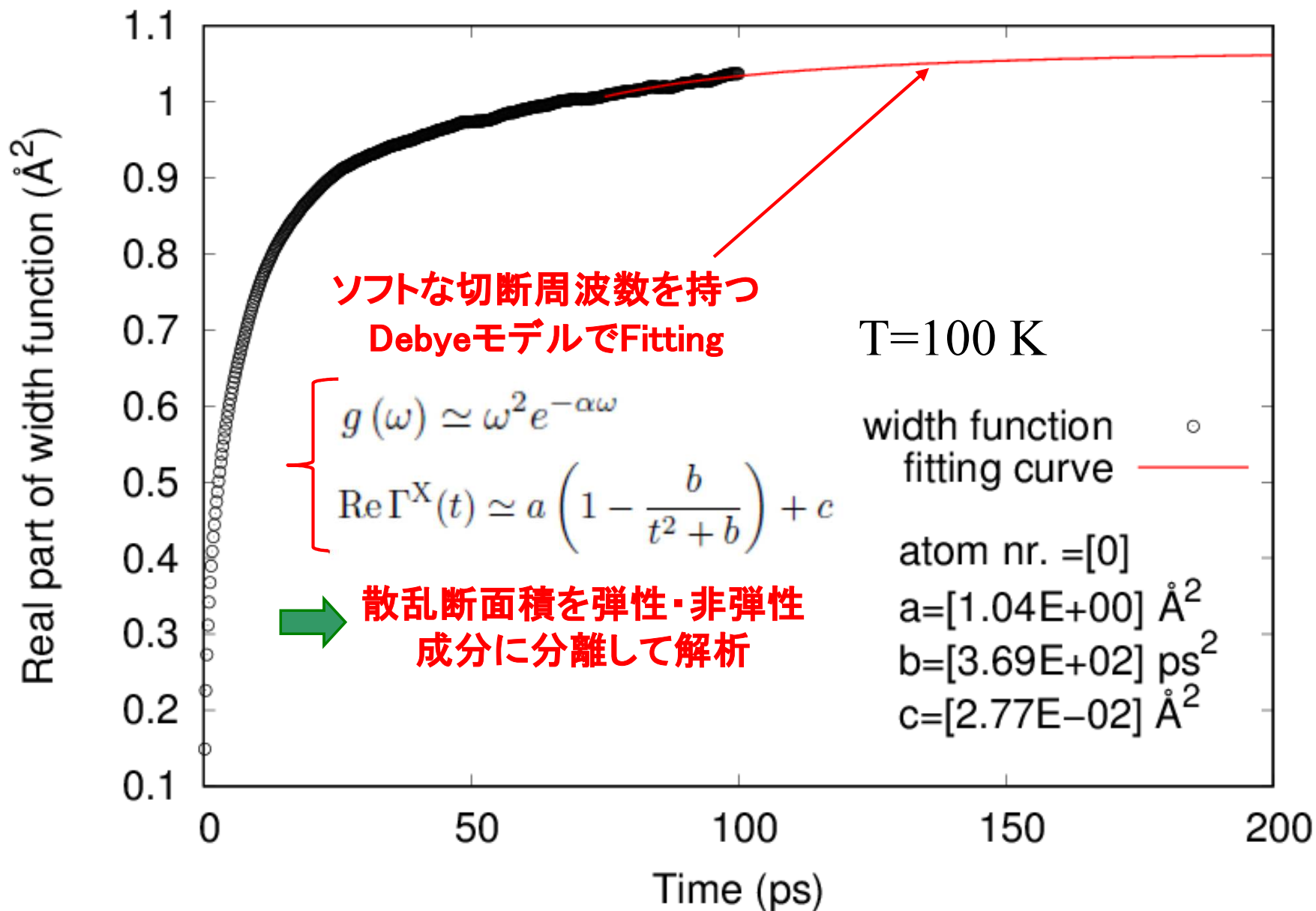
幅関数の漸近値



長時間における幅関数をモデルに Fittingして幅関数の漸近値を推定



# 長時間での幅関数実部のモデル化



# 中性子散乱断面積解析コードについて

## □ 動作環境・インターフェース

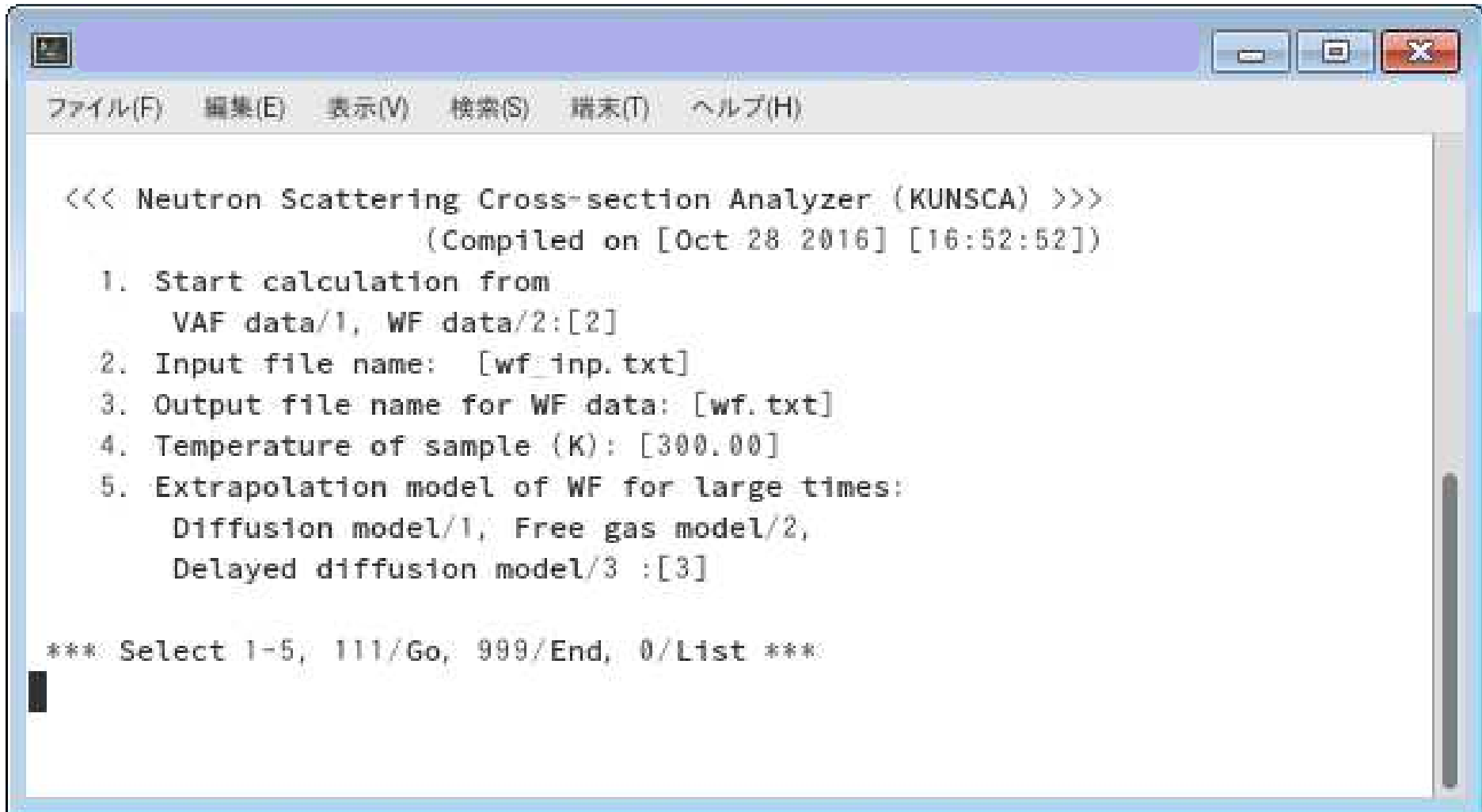
- ・Linux 上で動作 (gcc で build)
- ・数値解析ライブラリー: GSL, FFTW3
- ・キャラクタベースの対話型処理
- ・バッチ処理も可能

## □ 解析機能

- |               |                                      |
|---------------|--------------------------------------|
| (1) 速度自己相関関数  | (7) 微分散乱断面積                          |
| (2) 周波数分布関数   | (8) 全散乱断面積                           |
| (3) 幅関数       | (9) 散乱角平均余弦                          |
| (4) 自己中間散乱関数  | (10) 散乱後平均エネルギー                      |
| (5) 自己散乱則     | (11) 中性子熱化時間                         |
| (6) 二重微分散乱断面積 | (実装予定) 散乱カーネル ( $S(\alpha, \beta)$ ) |

# 中性子散乱断面積解析コード 画面例(1)

- ・初期設定(入力ファイルなどを指定)



The screenshot shows a Windows-style application window titled "Neutron Scattering Cross-section Analyzer (KUNSCA)". The window has a menu bar with options: ファイル(F), 編集(E), 表示(V), 検索(S), 端末(T), ヘルプ(H). The main text area contains the following text:

```
<<< Neutron Scattering Cross-section Analyzer (KUNSCA) >>>
      (Compiled on [Oct 28 2016] [16:52:52])

1. Start calculation from
   VAF data/1, WF data/2:[2]
2. Input file name: [wf_inp.txt]
3. Output file name for WF data: [wf.txt]
4. Temperature of sample (K): [300.00]
5. Extrapolation model of WF for large times:
   Diffusion model/1, Free gas model/2,
   Delayed diffusion model/3 :[3]

*** Select 1-5, 111/Go, 999/End, 0/List ***
```

# 中性子散乱断面積解析コード 画面例(2)

## ・解析内容選択




The screenshot shows a terminal window with a menu for selecting calculation options. The menu items are listed as follows:

```
<<< Select calculation menu >>>  
1. Calculation menu (Select below): [8]  
   VAF/1,   FDF/2,   WF/3,   SISF/4,   SSL/5  
   DDSCS/6, DSCS/7, TCS/8,  AVC/9,   AVE/10  
   TTH/11  
  
*** 1/Select, 111/Go, 999/Return ***
```

# 中性子散乱断面積解析コード 画面例(3)

## ・全散乱断面積解析



```
ファイル(F) 編集(E) 表示(V) 検索(S) 端末(T) ヘルプ(H)

<<< TCS calculation >>>
  1. Incident En. (meV). Min:[ 1.00E-03], Max:[ 1.00E+03], Nr. of data:[61]
  2. Output in file/1, Type on monitor/2 :[1]
  3. Output file name:[TCS.txt]

*** Select 1-3, 111/Go, 999/Return ***
```

# 散乱断面積の計算時間について

- 計算条件 (メシチレンの場合)
  - 分子数: 1000 (系の全原子数: 21000)
  - 時間ステップ間隔: 0.2 fs
  - 時間ステップ数:  $10^6$  (トラジェクトリデータ量: 496 Gbyte)
  - MDシミュレーション: 初期平衡化Run + 本計算Run (同じシミュレーション時間)
  - 計算機CPU: Xeon2463  $\times$  2 (3.6 GHz, 6 Core  $\times$  2)
  - 計算機メモリ: 128 Gbyte
- 計算時間内訳
  - MDシミュレーション(12スレッド) : 3.3 hour (初期平衡化Runも含む)
  - 速度自己相関関数(12スレッド) : 3.3 hour (File IO: 1.3 hour)
  - 全散乱断面積: 0.78 hour (散乱則  $S(\alpha, \beta)$  も同程度の時間)
  - **合計: 7.4 hour**

# まとめと今後の課題

---

- 分子動力学法による熱中性子散乱断面積の汎用解析コードを開発中
- 本コードを液体メシチレンの散乱断面積に適用し、二重微分散乱断面積の主な特徴や全断面積の実験値との比較から、概ね良好な結果を得た。
- 100K以下の固体では、弾性散乱の評価に数値解析上の問題が生じている。  
⇒ 弾性・非弾性散乱を分離して評価する方法を検討中
- 本コードの機能拡張(散乱則  $S(\alpha, \beta)$  作成など)  
⇒ 中性子輸送コード(PHITS等)への適用