

II. Nuclear and Physical Properties of Californium-252 A Prince BNL 50168 April 1969

松延 広幸 (住友原子力)

本レポートは米国原子力学会のNew York支部が後援して1968年10月22日にNew York に於て開催されたCf²⁵² に関するシンポジウムで発表された論文を基にしてまとめられたものであり, その内容はCf²⁵²の核的及び物理的性質に関するレビューである。

本レポートは大別して二つの部分から構成されている。その一つはCf²⁵² の自然崩壊に関するもので, これは α 崩壊と自然核分裂とに分けられる。 α 崩壊に関してはその崩壊スキームと簡単な記述しか与えられていないが, 自然核分裂に関しては詳細で既存の実験データに基づき, 下記の8項目について検討が加えられている。

1. Mass Distribution

2. Kinetic Energy of Fission Fragments

3. Prompt Neutrons from Fission

Energy and Angular Distribution of Neutrons

4. Nuclear Charge Distribution

5. Delayed Neutrons

6. Prompt and Delayed Gamma Rays

7. Tripartition in Spontaneous Fission

8. K-X-ray Yields from Cf²⁵² Fission Fragments

この自然核分裂に関するレビューが実験データの量から云つても本レポートのmain partとも云えるが、これに対して本レポートの残りの部分は中性子吸収によつて惹起される Cf²⁵² の反応に関するものである。この中性子反応は既存の実験データの数こそ少ないが、下記の4項目についてかなり詳細に興味ある検討がなされている。

1. Thermal Capture and Fission Cross Sections for Cf²⁵²

2. Capture and Fission Resonance Integrals for Cf²⁵²

3. High Energy Neutron Cross Sections (1 keV to 15 MeV)

4. Average Number of Prompt Neutrons per Neutron-Induced Fission

Cf²⁵² は周知の如く約20年前に始めて人工的に作られた核種であるが、この Cf²⁵² に関する実験データとして1963年以前のは Hyde, Perlman, and Seaborg によつて収集された3巻から成る "The Nuclear Properties of the Heavy Elements" に収録されているが、その後1964年迄の文献は1965年の Salzburg 会議の会議録 "Proceedings of the Symposium of Physics and Chemistry of Fission" に集められている。更にその後今日迄に発表された Cf²⁵² に関する実験データはかなりの数にのぼっているが、著者 Prince はこれらの大部分のデータ(106件)を参考文献として記載しており、且つ Appendix のテーブル(19表)とグラフ(45図)でその主なものを豊富に引用している。

本レポートの内容をここで詳細に紹介することはとてもできないので、その主な点だけを簡単にお伝えしたいと思う。

I. Cf²⁵² の崩壊に関する性質

Cf²⁵² の自然核分裂が重要視されるのは、1グラム当り毎秒 2.34×10^{12} 個の中性子を放出する点にある。これは各種の核反応や普通の原子炉で得られる中性子源に比べて極めて intensity の強いものであり、従つて neutron activation analysis のような基礎実験からガンの治療、探鉱と云つた応用部門に到る迄極めて広範囲の利用が考えられる。このような応

用はすべて Cf²⁵² の核的及び物理的性質に基づくものであり、従つて Cf²⁵² に関する多くのデータや解析が要望されるゆえんでもある。

先ず自然核分裂で創られる分裂破片の質量分布であるが、これは U²³⁵ の熱中性子による核分裂と比較して質量数が高い方へずれているのが特徴である。fission yield の山と谷の比は約 600, mass half width は 16, most probable mass number は軽グループが 107, 重グループが 141 であり重グループと軽グループの質量比は約 1.33 である。

核分裂破片の運動エネルギーの測定については double-chamber technique を用いた Smith, Bowman 達の実験や T.O.F. 法による Fraser, Whetstone 達の実験があるが、最近では solid state detector を使つた Bennett 達の測定がある。又 Terrell は核分裂破片の運動エネルギー E_K が Z²/A^{3/4} dependence を持つことを示唆している。

次に核分裂で放出される即発中性子数に関しては Terrell の実験があり、彼は下記の近似式を求めている。

$$\langle \nu \rangle = 0.08 (A - 204.5) + 0.02 (\langle M_H \rangle - 140)$$

M_H は重グループ分裂破片の most probable mass number

この近似式によると Cf²⁵² の ν は 3.88 となる。又 De Volpi による最近のデータ収集の結果では ν の値は二つのグループに分けられるようである。

自然核分裂によつて放出される中性子のエネルギー分布 (スペクトル) 及び角度分布についてはかなり詳細に記述されている。T.O.F. 法を用いて 0.2 ~ 7.0 MeV の範囲で中性子スペクトルを測つた Smith 達の実験では、中性子スペクトルとして下記の式が使われている。

$$N(E) = \alpha e^{-bE} \sinh [(CE)^{1/2}]$$

又、液体水素シンチレーターを用いた T.O.F. 法による Meadows の最近の実験に於ては、中性子スペクトルとしてマックスウエル分布を仮定している。次に放出される中性子の特性を Bowman 達は下記のように要約している。

- (a) 核分裂当りの中性子数は $\nu = 3.8$ である。
- (b) 中性子スペクトルの平均エネルギーは 2.34 ± 0.05 MeV (実験室系) であり、その両端ではスペクトルは急激に減少する。
- (c) 軽い核分裂破片, 重い核分裂破片の方向, 及び直角方向における中性子の相対的強度は夫々約 9, 5, 1 である。
- (d) 十分に加速された核分裂破片から中性子が等方的に蒸発すると仮定すると中性子の角度分布及びエネルギー分布の一般的な形状を良く再現することができる。

この(d)の記述が正しいと仮定すると、放出中性子に関して更に色々な特性を要約することができる

がこれについては省略する。

核荷電分布に関しては実験が極めて難しいのでデータが乏しいが、このレポートでは Whal, et al., Glendenin, et al. の測定が紹介されている。Glendenin 達の実験では核分裂生成物の質量と特性 K - X 線の同時測定によって核荷電分布を直接に決定している。

遅発中性子については Cox 達の測定法が記述されている。彼等の実験ではサンプルの transit time が約 0.25 秒であり、且つ Cf²⁵² の中性子源の強度が比較的弱いため period が 0.25 秒より短い遅発中性子に対しては精度が悪い。Cox 達は無限照射後に測定した遅発中性子放射能の時間変化を下記の式で与えている。

$$N(t) = \sum_{i=1}^n A_i \exp(-\lambda_i t)$$

λ_i は i 番目のグループの崩壊定数

A_i は i 番目のグループの relative abundance

上式による N の計算結果は実験データとかなり良く一致している。

次に核分裂後に放出される即発ガンマ線の平均エネルギー、或いはエネルギースペクトルに関しては、これを説明し得るしつかりした理論が今のところ見当たらないが、Cf²⁵² の自然核分裂で放出される即発ガンマ線は自然核分裂だけに限らず中性子によつて惹起される核分裂も含めて、このガンマ線放出の現象を研究するための“clean”な実験条件を提供するものとして注目される。本レポートでは Smith や Bowman 達が行なつた実験について述べているが、Bowman 達はこの実験からスペクトルの構造を見つけている。Cf²⁵² の全ガンマ放射能は Cf²⁵² の α 崩壊に伴うガンマ線、自然核分裂の際に放出される即発ガンマ線、及び自然核分裂で生ずる核分裂破片から放出されるガンマ線から構成されているが、本レポートにはこの即発ガンマ線のスペクトル及び全ガンマ線のスペクトルを Cm²⁴⁴ のデータと夫々比較したグラフが記載されている。 α 崩壊に伴うガンマ線については Cm²⁴⁸ の第 1 励起準位 (2^+) から基底状態 (0^+) へ遷移する abundance が 2.78×10^9 photons/sec ($E=0.043$ MeV) 又第 2 励起準位 (4^+) から第 1 励起準位へ遷移する abundance が 2.0×10^9 photons/sec ($E=0.100$ MeV) である。

次に Cf²⁵² が自然核分裂をする際に 3 個の核分裂破片に分かれる (tripartition) モードについては実験的にかなり調べられており、下記の三つのタイプに分類されることが判つている。

- (a) 核分裂破片中の 3 番目の粒子が有する運動エネルギーの分布巾が広く、且つ質量が小さな荷電粒子である場合
- (b) 3 番目の核分裂破片が有する運動エネルギーの分布巾が狭く、且つ軽い荷電粒子である場合
- (c) 質量が大体等しい 3 個の荷電粒子に分裂する場合

Cf²⁵² の場合自然核分裂の際に色々なエネルギーを持った軽粒子が放出されることが多くの研

究者によつて報告されているが、本レポートではCospers 達によつて詳細に調べられたデータが記載されている。彼等の実験結果によると上記の軽荷電粒子は H^1 から始まつてBe の同位元素に迄及ぶことが確かめられている。又Whetstone 達の同様な実験や、自然核分裂の際に放出される α 粒子についてその角度分布やエネルギー分布を測定したFraenkel の実験についても本レポートで記述されている。

最後に Cf^{252} の核分裂破片から放出されるK-X線に関しては、そのエネルギーが核分裂破片の電荷を決定するための手がかりを与えると云う点で重要な役割りを有している。このK-X線は核分裂破片が励起状態から内部転換によつて安定な状態に遷移する際に放出される。従つてK-X線の yield は内部転換の確率を求める手がかりを与えてくれる。K-X線の yield 及び内部転換で放出される電子の yield の測定は最近になつて幾つか報告されているが、本レポートでは改良された半導体検出器を使つて軽い核分裂破片及び重い核分裂破片の両方から放出されるK-X線の強度を測定したWatson 達の実験について解説されている。又K-X線の yield についてはWatson, Kapoor, 及びGlendenin 達の測定結果の比較が与えられている。その他、Kapoor 達の実験では即発ガンマ線は核分裂軸に対して非等方的に放出されることが報告されている。

以上が Cf^{252} の α 崩壊及び自然核分裂に関する概要であるが、次に Cf^{252} の中性子反応について簡単にその概要を述べる。

II Cf^{252} の中性子反応

高中性子束原子炉や、星の内部で起る核融合、或いは核爆発において Cf^{252} がどのように変遷して行くかを知る上で最も重要な量はその中性子捕獲断面積、中性子核分裂断面積、及び此等の共鳴積分である。ところがこの中性子反応に関する実験データは前述した自然核分裂に比べると極めて少ない。従つて Cf^{252} の微視的断面積及びこれに関連したデータを求めるためには或る程度理論解析に頼らざるを得ない。

先ず Cf^{252} の熱中性子断面積の実験値を調べてみると、極めて大きなばらつきがある。例えば $\sigma_{n,\gamma}$ に関しては 8.5 barn から 30 barn の範囲にばらついており、 σ_n に関しては Folger 達のデータは 8.6 barn, Halperin 達のデータでは 199 ± 3 barn となつている。又 Cf^{252} の中性子核分裂断面積については実験データは報告されていない。そこで Cf^{252} の中性子断面積を求めるには Breit-Wigner の式を使つて計算することが考えられるが、 Cf^{252} の場合共鳴パラメーターも判つていない。そのため著者 Prince は必要とする共鳴パラメーターと、中性子の束縛エネルギー B_n 及び核分裂しきい値 E_f との相関関係を求め、これから $\sigma_{n,\gamma}$ や σ_f を算出する方法を採つている。 $B_n - E_f$ の値を二通りの方法で求め、夫々について $\sigma_{n,\gamma}$ と σ_f の値を下記のように求めている。

$$B_n - E_f = 1.1 \text{ MeV} \text{ に対して } \sigma_{n\gamma} = 15.6 \text{ b}, \sigma_f = 4.3 \times 10^{-4} \text{ b}$$

$$B_n - E_f = -1.4 \text{ MeV} \text{ に対して } \sigma_{n\gamma} = 20.0 \text{ b}, \sigma_f = 1.2 \times 10^{-4} \text{ b}$$

上記のように何れの場合も σ_f の値は極めて小さい。

熱中性子による核分裂断面積を計算する別のモデルとして liquid-drop model に shell model 的な補正を考慮した Strutinsky のモデルや Lynn の現象論的なモデルについても簡単に紹介している。

次に Cf²⁵² の捕獲共鳴積分及び核分裂共鳴積分に関しては最近になつて Gordon と Weinstock, Halperin 達, 及び Folger 達が夫々実験を行ない下記の値を報告している。

$$\begin{aligned} I_a &= I_\gamma + I_f < 80.0 \text{ b} && \text{Gordon and Weinstock} \\ &= 42 \text{ b} && \text{Folger, et al.} \\ &= 42.5 \pm 4 \text{ b} && \text{Halperin, et al.} \end{aligned}$$

しかし I_γ は I_f についての測定は未だ無い。上記の測定は中性子を照射して創られた Cf²⁵³ の量から導出したものであり、使用した中性子フィルター及び Cf²⁵³ の核分裂断面積に多少依存する。しかし Halperin 達は Cf²⁵³ の σ_f がたとえ 3000 barn であるとしても σ_a は約 21 barn 程度迄しか増加しないと述べている点が注目される。

共鳴積分に対しても中性子断面積の場合と同様に Breit-Wigner の式を使つて値を求めることができる。共鳴積分の場合、低いエネルギー領域の二、三の共鳴単位しか積分に寄与しないと仮定して、Prince は前と同様に $\sigma_f / \sigma_{n\gamma}$ と $B_n - E_f$ との相関関係から下記の値を求めている。

$$B_n - E_f = -1.1 \text{ MeV} \text{ に対して } I_\gamma = 85 \text{ b}, I_f = 8.5 \times 10^{-4} \text{ b}$$

$$B_n - E_f = -1.4 \text{ MeV} \text{ に対して } I_\gamma = 42 \text{ b}, I_f = 9.5 \times 10^{-5} \text{ b}$$

この二通りの値は上記の Gordon, Folger, Halperin 達の測定値と、数値及び range が一致している。

次に高エネルギー中性子による Cf²⁵² の断面積に関しては実験データは全く報告されておらず、回転-光学模型を用いた解析法とその計算結果が記載されている。回転を取入れたのは、Cf²⁵² が変形核であり回転準位 (0+, 2+, 4+, ……) の直接励起による非弾性散乱を考慮するためである。こゝで Coupled Channel Code JUPITER I による田村氏の計算や、ABUCUS コードを使用した Auerbach の計算、又 NEARREX コードを用いた Molduer 達の計算を簡単に紹介している。著者 Prince が Cf²⁵² に対して使用した光学模型パラメーターは Baldoni 達がを用いたパラメーターとスピン-軌道パラメーターを除いて全く同じである。下にその値を示す。

$$V = 46.5 - 0.29 E \text{ (MeV)}, \quad r_0 = 1.25 \text{ fermi}$$

$$W_0 = 4.27 + 1.03 E^{1/2} \text{ (MeV)}, \quad a = 0.65 \text{ fermi}$$

$$V_{so} = 7.0$$

$$(\text{MeV}), \quad b = 0.47 \text{ fermi}$$

最後に中性子による核分裂において放出される即発中性子の平均数 ν_p についても、高エネルギー断面と同様に実験値は報告されていない。そこで仮定に基づいた計算から推定するしか現在のところ方法はない。本レポートでは ν_p は核分裂破片の平均運動エネルギーにユニークに関係すると仮定して下記の式を用いている。

$$\nu_p(\text{thermal}) = \nu_{p(sf)} + B_n \frac{d\nu_p}{dE_n}$$

ここで $\nu_{p(sf)}$ は自然核分裂による即発中性子の平均数

B_n は束縛エネルギー

E_n は中性子エネルギー

上式の $\frac{d\nu_p}{dE_n}$ の値は0.085 (Hopkins, et al) から0.143 (Conde, et al) 迄の範囲に亘っている。又 $\nu_{p(th)}$ の値はデータの存在する核種 (Pu 同位元素) の $\nu_{p(sf)}$ から評価される。その結果 ν_p には $Z^2/A^{1/3}$ dependence と Z^2/\sqrt{A} dependence とがあることが判つた。これらの関係から評価された Cf^{252} の ν_p は下記のようになる。

$$\frac{d\nu_p}{dE_n} = 0.085 \text{ MeV}^{-1} \text{ を仮定すると } \begin{cases} \nu_p(Z^2/A^{1/3}) = 4.16 \\ \nu_p(Z^2/\sqrt{A}) = 4.16 \end{cases}$$

$$\frac{d\nu_p}{dE_n} = 0.1 \text{ MeV}^{-1} \text{ を仮定すると } \begin{cases} \nu_p(Z^2/A^{1/3}) = 4.20 \\ \nu_p(Z^2/\sqrt{A}) = 4.22 \end{cases}$$

この評価が正しいとすると、 Cf^{252} の核分裂平均中性子数は4個以上と云うことができよう。

以上が Cf^{252} の中性子反応に関するレビューであるが、前述したように Cf^{252} に関する実験データの大部分は皆自然崩壊に関するデータであり、中性子反応に関する実験データは極めて乏しい。しかし中性子反応の重要性が高まるにつれて、実験データも段々と蓄積されて行くものと期待される。

