核データニュース, No.122 (2019)

話題・解説 (IV)

奨励賞

- 統計崩壊理論を用いた 即発中性子多重度と核分裂収率に関する研究 --

(元)東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所(現) NAPC-Nuclear Data Section, International Atomic Energy Agency奥村 森

s.okumura@iaea.org

²³⁵Uの熱中性子誘起核分裂では、1,000を越える核分裂生成物(FP)が生成されます。FP には非常に多く生成されるものから稀にしか生成されないものまで、その収率は10⁻¹⁵~10⁻² 程のオーダーに広く分布しています。これらの質量数分布が、質量数 90 と 140 にピークを 持つふた山の構造をしているということは、教科書にも載っているような事柄です。しかし、 このようなふた山構造が核分裂過程のいつの時点で決まるのかを正確に予測できる模型がま だ存在していないのだということが、私がこの分野で最初に教えていただき、魅了された研 究課題です。

1. はじめに

日本では、放射性廃棄物の処理・処分に伴って発生する高レベル放射性廃棄物は、全量ガ ラス固化体として深地層に処分することを基本方針としています。一方で、廃棄物の減容を 目的として、高レベル放射性廃棄物中に含まれるマイナーアクチノイド(MA)等の長寿命 核種、¹³⁷Cs や⁹⁰Sr などの発熱性核種、貴金属などの有用元素など特徴に応じて化学分離し、 炉心や加速器(ADS)などでの核変換により短寿命または安定核種に変換する分離・変換技 術も検討されてきました。

このような分離・変換技術は、前段階である分離ができてこそ成立するものです。しかし、 再利用可能なUやPuを取り除いた再処理後の廃棄物には、原子番号が25から70近くまで の元素からなる1,000を超える核種と、燃料中に含まれる²³⁸U等が中性子を吸収してできた 高次のアクチノイド核種や構造材が含まれており、化学種の分離も結構大変です。特に、MA については、様々な方法での核変換が検討されていますが、周期律表で上下関係にあり核分 裂生成物中に含まれるランタノイド(希土類元素)と化学的挙動が酷似しているために分離 が難しいことが知られています。分離で求められる MA の純度は、99%以上です。苦労して 分離された MA は、燃料や核変換ターゲットとして装荷され核変換されますが、MA を核変 換して生成されるのは、やはり核分裂生成物なのです。当然のことですが、核変換によって MAという長寿命核種は消滅し長期的毒性は低下しますが、別の長寿命核分裂生成物(LLFP) が増えることも考えられます。そのような意味でも、MAのみならず様々な高次のアクチノ イドがどのようなエネルギーで反応するとどんな FPの分布になるのかを正確に把握するこ とは、燃料の処理・処分の分野の進展にも重要な情報源となり得ます。

例えば図1に示したのは、JENDL/FPY-2011における 235 U、 239 Pu、及び 241 Am の熱及び 高速中性子による核分裂による即発中性子放出後の核分裂収率(独立収率)です。熱と高速エ ネルギーで大きな違いはありませんが、核種単位で見ると重いアクチノイドほど軽いフラグ メントのピーク位置は重元素側にシフトしています。従って、LLFP である 79 Se、 93 Zr、 99 Tc、 107 Pd、 126 Sn、 129 I、 135 Cs などの一部は、生成量が変化する可能性が見て取れます。



図1 ²³⁵U、²³⁹Pu、及び²⁴¹Amの独立収率

また、いずれのケースでも対数スケールでは気づかないような収率の小さなピークが質量 数 134 に現れます。このピークは、²³⁵U などの主要核種について実際に質量数分布測定の実 験値が複数存在しており、ENDF や JENDL などの評価済み核データは、それを採用してい るようです。質量数分布は、実際には個々の FP 核種を測定した実験値も矛盾なく再現する ように、質量数中における同重体の分布が決定されています。

では、このような収率のピークを、理論計算により再現することは可能なのでしょうか?

2. 核分裂のプロセスと核分裂生成物収率

核分裂のプロセスは、量子多体系の大集団振幅運動であり、なぜ多体系が破れてフラグメ ントに分かれて行くのかなど、いまだ物理的に解明されていないことの多い現象です。図2 に示すのは、核分裂プロセスの模式図です。核分裂収率は、基本的には個々の核種の生成割 合ですが、少なくとも3つの段階における核分裂収率を考える必要があります。



図2 核分裂のプロセス

1. 核分裂片 一次収率 (Primary Fission Fragment Yield)

中性子の入射により複合核が形成され原子核が軸方向に伸長して断裂が起こった直後で、かつ、即発中性子やy線放出前の核分裂片(Z,A)の収率を一次収率と呼びます。 ここで、Zは原子番号、Aは質量数を表します。これらの核分裂片は、クーロン反発により加速し高い励起状態に至ります。この核分裂片の収率の質量数分布は、複合核の質量数を A_{CN} とすると A_{CN}/2 について鏡面対称となります。

2. 核分裂生成物 独立収率 (Independent Fission Product Yield)

高い励起状態にある核分裂片は、基底状態もしくは準安定状態に到るまで即発中性子 と γ 線を放出して脱励起します。この脱励起した核分裂生成物 (Z', A') の収率を独立 収率と呼びます。収率の質量数分布は、即発中性子の放出により対称構造を失い、図 1 に見られたような微細構造が現れます。

3. 核分裂生成物 累積収率(Cumulative Fission Product Yield)

核種 (Z', A') が β 崩壊により、安定な原子核となるまで崩壊を繰り返し、また稀に 遅発中性子を放出する場合もあります。ある一定期間経過後の自分自身の独立収率と、 (Z', A') の全ての先行核の独立収率の和を累積収率と呼びます。

独立・累積の核分裂収率を予測するためには、断裂直後の核分裂片に関する情報を出発点 とすることが不可欠です。しかし、核分裂のタイムスケールは、10⁻²⁰ 秒オーダーと非常に 短いため、核分裂片を実験的に観測するのは大変困難です。これまでに収率が観測がされて きたのは、主にβ崩壊後の累積収率です。独立収率については、判明している崩壊系列や崩 壊定数などから逆算しているケースも少なくありません。1980年代頃から、オンラインで核 分裂片を直接イオン源として観測する技術が整い、独立収率の直接観測が可能になってきま した[1]。しかし、今でも独立収率のの実験値は限られており、断裂直後の一次収率の実験値 はさらに限られているのが現状です。 これまで、多くの巨視的+微視的模型や微視的模型により核分裂過程の解明が試みられて きました。これらの模型では、実験では得ることが難しい核分裂片に関する一次収率や運動 エネルギー、核分裂片の変形度などの情報を得ることができます。しかし、実験値や評価済 み核データの独立収率とは直接比較することはできず、比較するためには核分裂片から放出 される即発中性子多重度の質量数依存 $\overline{\nu}(A)$ データ等をもとに何らかの減算を行わなければ なりません。

また、核分裂後の観測可能な物理量には、即発中性子・γ線多重度、それらのスペクトル、 独立収率、運動エネルギーや角度分布などがあります。これら観測量を再現することを目的 として、多くのモデルやコードが開発されてきました。例えば、即発中性子スペクトルにつ いては、Watt のモデル [2] や ENDF の評価に用いられた Los Alamos モデル [3] などがありま す。独立収率については、J.C.Wahl による Systematics[4] による値が現在でも収率データの 評価に用いられています。Wahl Systematics では、収率の質量数分布を 5 つの Gauss 関数で フィッティングし、それら Gauss 関数のパラメータを Fissile ごとに与えています。また、同 じ質量数の中での電荷の違いによる独立収率の分布(電荷分布)を最確電荷を中心値とした 1つの Gauss 関数で表す Z_P モデルと呼ばれるモデルで構成されています。主要なアクチノイ ド核について、熱、高速、および 20 MeV までの高エネルギー中性子による核反応での独立収 率の数値を与えることができるようになっており、実験値の存在しない領域における分布を 与える主要ツールとして活用されてきました。また、アイソマー生成比(Isomeric Ratio)は 励起状態にある核分裂片が即発中性子やγ線を放出して脱励起していく過程において断裂時 に付与された角運動量に応じて基底状態と準安定状態との生成比が異なるために観測される 収率の比です。このため、IR は、核分裂片の角運動量の起源を探る意味で核分裂研究におけ る重要な情報の一つと考えられていますが、特に実験が困難で実験値が少ないため、現在で も ENDF や JENDL では、Madland-England によるモデル [5] による値が与えられています。

近年は、半経験的なモデルを含んだ GEF[6] の他、CGMF[7] や FIFRELIN[8] など Monte Carlo 法を用いて核分裂片の脱励起過程を蒸発理論や Hauser-Feshbach 統計崩壊理論を適用することで独立収率を求めるコード開発も行われてきました。これらのシミュレーションには、原子核の準位密度や核構造についての情報、さらに中性子や γ 線の放出の透過係数などが必要とされますが、基底状態の原子核ならともかく、核分裂直後の非常に高い励起状態にある原子核については、わかっていないことがほとんどです。このため、一般に、核分裂片を特徴づける初期状態の物理量の多重分布(質量数・電荷分布を含む一次収率、全運動エネルギー分布、スピン・パリティー分布)を考慮するために Monte Carlo 法による積分が採用されてきました。しかしながら、Monte Carlo 法で収率の非常に小さな核種をサンプリングするためには非常に長時間の計算が要求されます。このため、収率は小さいが半減期が長い、強い γ 線を放出する、など重要な核種が見過ごされる可能性がありました。

3. Hauser-Feshbach Fission Fragment Decay - HF³D モデル

このような問題を解決すべく、本研究 [9] では、多重分布をすべて決定論的に与え解析的 に積分を行う手法を新たに開発しました。Hauser-Feshbach Fission Fragment Decay - HF³D モ デル [9] では、1,000 核種を超える核分裂片の統計崩壊に対して Hauser-Feshbach 統計崩壊理 論を適用し、種々の核分裂観測量を同時に中性子入射エネルギー依存で計算できるようにしたものです。Hauser-Feshbach 統計崩壊部分は、Los Alamos の河野さんが CoH₃ [10] として 開発されていたものをベースとしました。また、Hauser-Feshbach 統計崩壊理論については、 同じく河野さんの記事に詳しく解説されています [11]。

3.1 核分裂片への Hauser-Feshbach 統計崩壊理論の適用

HF³D モデルの特徴は、核分裂片を特徴づける多重分布を決定論的に与えて解析的に積分 を行っていることです。また、複合核である核分裂片の即発中性子とγ線放出による脱励起 におけるスピン・パリティの保存を厳密に考慮することで、アイソマー生成の計算も可能に しています。図3は、励起状態にある核(Z,A)からの段階的な中性子放出(赤線)及びγ線放



図3 励起状態にある核(Z,A)からの中性子及び γ 線放出による統計崩壊過程の概念図

出(青線)による統計崩壊過程の概念図です。一番上の経路では、励起エネルギーとスピン・ パリティの分布を有する核 (Z,A)から1つの中性子が放出され、それにより生成した (Z,A-1) からも1つの中性子が放出され、合計2つの中性子が放出された後、(Z,A-2)において γ 線 を放出して基底状態に至ります。他にも、(Z,A)が γ 線だけを放出する可能性や、(Z,A)が1 つの中性子を放出後、 γ 線を放出して基底状態に至るなどあらゆるケースが存在します。こ れら全ての中性子・ γ 線放出における競合を勘案し確率を足し上げることで、この核分裂片 (Z,A)の脱励起による即発中性子や γ 線の多重度とスペクトル求めています。その結果、仮 定した一次収率から独立収率を、多重度やスペクトルといった他の観測量との整合性を持っ た計算を可能にしています。

3.2 核分裂片ペアの生成

HF³D モデルでは、核分裂片の分布を Monte Carlo 法等でサンプリングする代わりに、決 定論的に核分裂片収率・全運動エネルギー (TKE)・全励起エネルギー (TXE)・スピンパリ ティを与えています。はじめに、²³⁵U(n_{th},f)における一次収率の質量量数分布 $Y_P(A)$ の実験 値(実際には、独立収率から逆算して求められている値)を用い、5 つの Gauss 関数の重ね 合わせとしてフィッティングしました。これは Brosa モデル [12] の Standard 1、2 及び Super Long モードを考慮したことに対応しています。次に、Wahl systematics の Z_P モデルを導入 して電荷分布を与えることで $Y_P(Z, A)$ の分布を生成します。また、このような分布を、中 性子入射エネルギー毎に生成できるよう、数点の $Y_P(A)$ 実験値を同様にフィッテイングし、 エネルギー間は内挿しています。 Z_P モデルのエネルギー依存のパラメータを活用し、電荷 分布も $Y_P(Z, A)$ エネルギー依存で分布を生成できるようにしました。ただし、現時点では マルチチャンス核分裂の考慮が取り入れられていないため、最大エネルギーを5 MeV までと 制限しています。

さらに、核分裂片の励起エネルギー分布を与えるため、熱中性子領域における TKE 分布 の質量数依存性 TKE(A)の実験値を関数によりフィッティングすることで Y(Z, A, TKE)の 分布を生成します。TKE と TXE は、エネルギー保存により関連づけられますので、これに より Y(Z, A, TXE)の分布を得ます。この TXE は、非等温モデル [13] により軽・重それぞれ の核分裂片に分配します。スピン・パリティは、過去の研究 [14] を参考に分布を与えていま す。以上により生成した核分裂片の多重分布 $Y(Z, A, TXE, J, \Pi)$ を Hauser-Feshbach 計算の インプットとしています。HF³D モデルでは、これを1つ1つの核分裂片について数値積分 することで、最終的に即発中性子多重度 ν を求め、独立収率を計算しています。

実際の計算結果については本文[9] に譲りたいと思いますが、HF³D モデルによる計算に て、最初に提示した疑問である²³⁵U の熱中性子による核分裂生成物収率の質量数分布で質 量数 134 に現れるピークを再現することが可能になりました。このピークは、即発中性子多 重度と密接に関係しており、即発中性子多重度の鋸歯構造が、質量数 130 前後で最小値を有 するため、質量数が大きな核種から中性子を放出して崩壊してきた核種がこの質量数 134 辺 りに蓄積されてしまうことが原因であるようです。このように、核分裂で観測される物理量 は、収率だけでなく相互に関係しており、同時に整合性を確保して評価することが大切であ ると考えられます。

3.3 HF³D モデルが実現したことと今後の展望

HF³D モデルで取り入れた初期分布を決定論的に生成しそれを数値積分するという方法は、 Monte Carlo 法ではサンプリングに時間がかかりすぎるような収率の小さな核種や確率の小 さい状態まで計算に含めることができるため、このような状態にある核種からのスペクトル 等の物理量に対する寄与も考慮することができます。また、最大の利点は、エネルギー依存 での計算ができる点です。例えば、計算する前は、入射エネルギーによりアイソマー生成比 も変化するのかを予測することはできませんでした。計算結果では、入射エネルギーが上昇 すると収率そのものも変化するため、結果としてアイソマー生成比はさほど変化しないとい う結果が得られました。このように、アイソマー生成比を入射エネルギー依存で計算できる ようにしたのは初めての成果ではないかと思われます。ただ、実験値が存在しないため結果 の評価が難しく、その確度については確信がない状態であります。 また、HF³Dモデルによる計算は、あらゆる初期分布を取り込むことができるため、Langevin 模型をはじめとした分布を生成するような理論模型と接続することが容易にできるようになっ ています。このため、実験では得られないような核種の $Y_P(A)$ 、TKE(A) から統計崩壊の計 算が可能です。また、得られた独立収率を β 崩壊や総和計算に活用することで、累積収率や 崩壊熱、遅発中性子収率などの計算に繋げることも可能です。実際に、Langevin 模型で得ら れた初期分布を用いての統計崩壊計算や、HF³Dモデルで計算した独立収率を使って β 崩壊 時の物理量の計算を行いつつあります [15]。これらの成果は、論文投稿準備中です。



図4 2018年、ウィーン市庁舎前のクリスマスマーケット

おわりに

この度、本研究テーマ[9]で日本原子力学会核データ部会賞を頂きました。関係者の皆様 に深く御礼申し上げます。

核データの分野に来て右も左もわからない私に、核データと理論計算や核物理学を、基本 から根気よく教えて下さった東京工業大学の千葉敏教授に心からの感謝を申し上げます。研 究員という立場でありながら学生さんに混じって勉強させて頂き研究をさせていただいた期 間は、本当に充実したものでありました。吉田正先生をはじめ、研究室でお世話になった皆 さんにも心から御礼を申し上げます。また、受賞対象となりました本論文は、1ヶ月間ロスア ラモスに滞在し、研究させていただいた時に行ったものです[16]。このような機会を下さり、 1ヶ月間毎日コードの詳細を解き伝えて下さり論文としてまとめる道筋を作って下さったロ スアラモスの河野俊彦さんに改めて感謝を申し上げたいと思います。

現在は、縁あって IAEA に職場を移しました。核分裂収率をはじめとした実験値に IAEA の立場で関わることになりました。核分裂収率については、現在、再び注目が高まっており IAEA でも 2019 年から新たな CRP が始まる予定です。しかし、本研究を通じて、核分裂収 率だけを評価するだけでは不十分であり随伴する物理量を同時に評価していくことの重要性 も認識しました。そのような意見も折を見て発言していくことができればと思っています。 理論模型と統計崩壊とβ崩壊とをつないで核分裂収率を計算するモデルを構築するという ことは、当初から千葉先生が目指されていたことでありました。今後、広く同様の手法が検 討・活用され、実験も含めて議論が活発になり、当該分野が活発になっていくことを心から 期待しています。

参考文献

- [1] J. P. Bocquet, R. Brissot, and H. R. Faust. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 267(2):466 472, 1988.
- [2] B. E. Watt. Phys. Rev., 87:1037-1041, Sep 1952.
- [3] D. G. Madland and J. R. Nix. Nucl. Sci. and Eng., 81(2):213–271, 1982.
- [4] A. C. Wahl. (LA-13928), 2002.
- [5] D. G. Madland and T. R. England. (LA-6595-MS), 1994.
- [6] K.-H. Schmidt, B. Jurado, C. Amouroux, and C. Schmitt. *Nucl. Data Sheets*, 131:107 221, 2016.
- [7] B. Becker, P. Talou, T. Kawano, Y. Danon, and I. Stetcu. Phys. Rev. C, 87:014617, Jan 2013.
- [8] O. Litaize and O. Serot. Phys. Rev. C, 82:054616, Nov 2010.
- [9] S. Okumura, T. Kawano, P. Jaffke, P. Talou, and S. Chiba. J. Nucl. Sci. Technol. 55(9):1009– 1023, 2018.
- [10] T. Kawano, P. Talou, M. B. Chadwick, and T. Watanabe. J. Nucl. Sci. Technol., 47(5):462 469, 2010.
- [11] 河野 俊彦. 核データニュース, 117:65, 2017.
- [12] U. Brosa, S. Grossmann, and A. Müller. Physics Reports, 197(4):167 262, 1990.
- [13] T. Ohsawa and T. Horiguchi and H. Hayashi Nucl. Phys. A, 653(1):17 26, 1999.
- [14] T. Kawano, P. Talou, I. Stetcu, and M. B. Chadwick. Nucl. Phys. A, 913(2):51 70, 2013.
- [15] S. Okumura, T. Kawano, P. Jaffke, P. Talou, T. Yoshida, and S. Chiba CERN Proceedings series. 2018;In preparation.
- [16] 奥村森. 核データニュース, 119:78, 2018.