

日本原子力学会「2019年春の年会」核データ部会セッション
「核分裂生成物核種の核データ研究のフロンティア」

(2) 核分裂収率における研究の最前線

東京工業大学
先導原子力研究所
千葉 敏

chiba.s.ae@mtitech.ac.jp

1. 背景

核分裂収率 (Fission Product Yield, FPY) は使用済み燃料中の放射能インベントリを決定し、原子炉の動特性に影響し、また廃棄物処理のシナリオに影響を及ぼす原子力におけるもっとも基本的な核データの一つである。他方、宇宙で中性子星合体時に生起する r 過程において核分裂リサイクリングが重要であると考えられており、FPY は宇宙における中重核～重核の存在比を理解する上でも必須なデータである。また核分裂自体は $Z=120$ を始めとする超重元素 (SHE) 合成を阻害する主要な過程であり、SHE 合成のためにも核分裂機構の理解が必要である。

FPY の評価は原子力の黎明期よりこれまで欧米で行われてきたが、現象論が多用されており、専門家の他界やリタイアが相次ぎそのノウハウ及びデータベースの継承が喫緊の課題である。日本ではそもそも FPY 評価の実態は無いに等しかった。このような FPY を評価する上で、最近の核分裂理論及び実験から得られた最新の知見の導入は非常に効果的である。幸い、東工大千葉研究室では核分裂機構の研究を主要なテーマの一つとして位置付けた研究をしている。このため最新の実験を参照しつつ、評価と理論を一体化した活動により FPY の評価を実施可能な土壌が形成されており、国内初の FPY の評価を3年程度以前より行ってきた。

図1は、ウランのような重い原子核に中性子が入射して複合核が形成され、その後、核分裂に至るまでの原子核形状の変化の概略を左側に、それぞれの段階を記述するために千葉研究室で開発・整備してきた理論模型を右側に示す。この左側の図は、現 IAEA 核データセクション職員の奥村 森氏 (当時千葉研所属の研究員) 作成の図で、右側は千葉が補足したものである。当研究室ではこのように核分裂の最初から最後までを研究対象としており、最近では当研究室が開発した4次元ランジュバン模型 [1] に基づいて、ウランからフェルミウム領域核における核分裂片の質量数分布と全運動エネルギーの平均値

の系統性と特異性を、対称分裂成分と主要モードの相転移的な転移によって説明することに成功した [2]。また超重金属領域の核分裂の研究も進展中である。このような基礎研究の結果得られた知見は FPY のデータ評価においても重要な指針となるため、我々はデータ評価と並行して核分裂に関する基礎研究を遂行している。

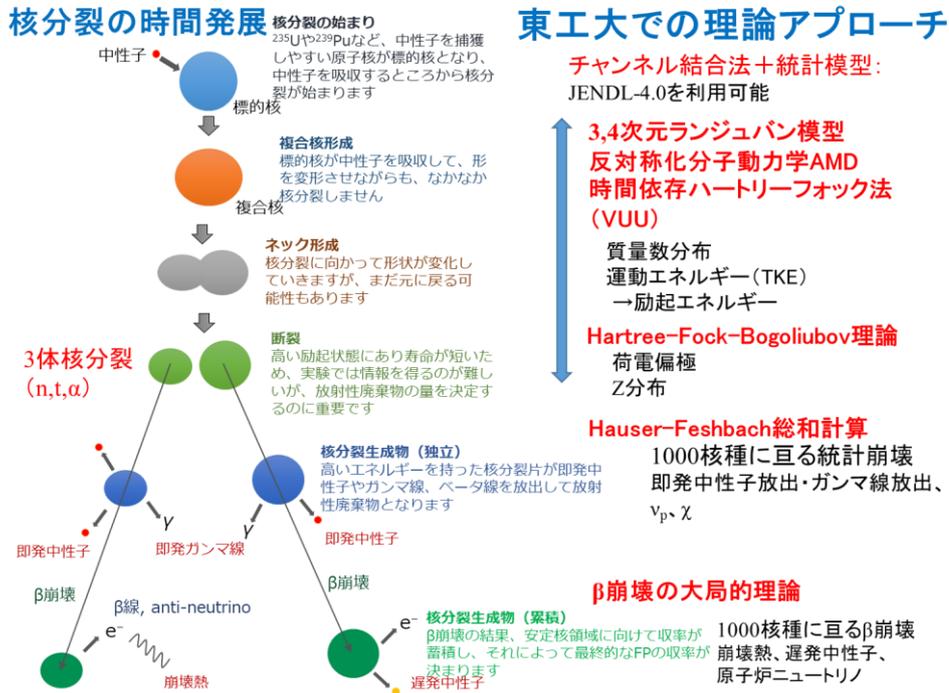


図 1 核分裂の時間発展の様相 (左) と、千葉研で開発・整備した核分裂を記述するための理論模型 (右)

原子力が必要とされる核データは断裂後、即発中性子が放出された後(post-neutron)の核分裂生成物の分布と、それが β 崩壊してできた β 崩壊後の核分裂生成物の分布である。前者を独立 (independent) 収率、後者を累積 (cumulative) 収率と言う。従ってこの二つの評価を行えば原子力上は済むのであるが、この二つを直接評価することは、実は大変困難なのである。その事情を図 2 に示す。

断裂した直後は、重い核分裂片と軽い核分裂片は一対一に対応するため、核分裂片の分布は複合核の質量の半分の値を境にして鏡対象な分布となっている。これが図 2 の一番上に書いてある Primary Fission Fragment Yield である。この段階での分布は非常に対称性が高いため、例えば 5 個のガウス分布を用いてフィットすることが可能である。この段階での核分裂片は励起しているため即発中性子が放出されるが、その分布が図 2 の上から 2 段目に示す左右非対称な鋸歯様の分布をしているため、独立収率においては核分裂片の分布が持っていたきれいな対称性が崩れて、左右非対称、かつこの場合は $A=134$

に際立って狭いピークを有する構造に変化している。この分布を少数個のガウス分布の重ね合わせなどの簡単な方法で記述することはもはや不可能である。原子力で必要な独立収率以降の分布を推定する際には、実験で直接することのできない断裂直後の分布を仮定し、そこからの即発中性子放出を統計模型で推定するなどの手続きが必要となるため、核分裂収率の評価は非常に複雑であり、直接は必要と思われない理論計算の導入が不可欠となる。それをどの程度まで導入するか、あるいはこれらの複雑な効果をどのような方法で近似するかによって、核分裂収率の評価には様々なバリエーションが可能である。

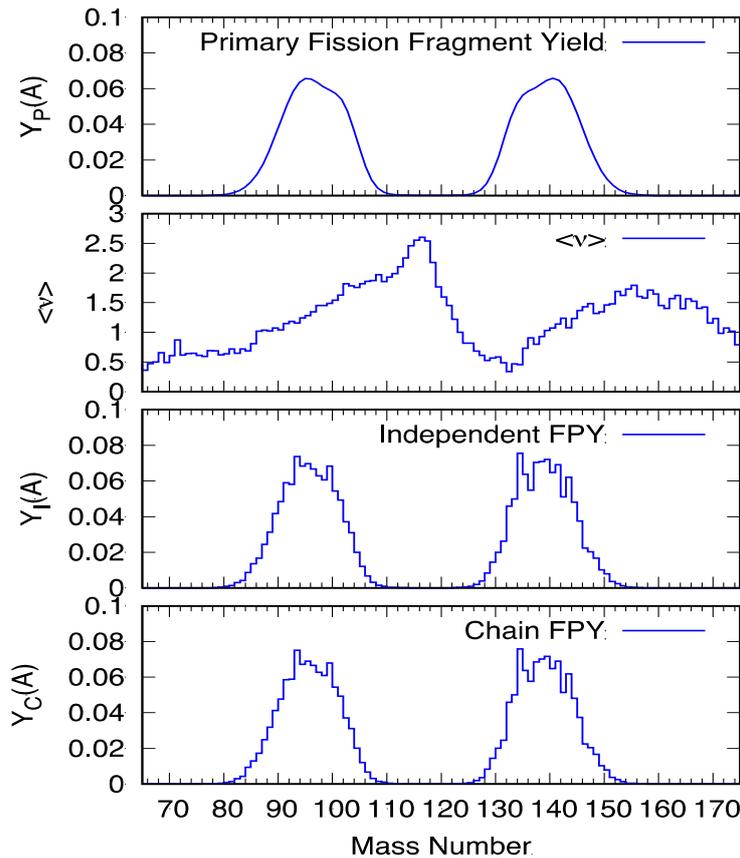


図2 断裂直後の分布 (Primary Fission Fragment Yield, 上)、即発中性子の多重度分布 (上から2段目)、即発中性子放出後の核分裂生成物の独立収率 (上から3段目)、 β 崩壊後の核分裂生成物の累積収率。これは ^{235}U に熱中性子が入った場合に相当するデータである。

核分裂の基礎研究をしている立場からは、すべてを理論で求めたい、というのが究極的な希望となる。我々の4次元ランジュバンは原子核理論としては非常に成功した精度の高い計算手法ということができるが、原子力で必要とされるデータの精度はそれよりもはるかに高く、残念ながら理論計算値を持って評価値とすることはできない、というのが我々の結論であった。従って、我々は理論計算の示唆する様々な性質を考慮しつつ、現象

論的に核分裂収率の評価を進めていった。

2. 収率の評価手法

我々は、核分裂生成物（独立収率）が、断裂点モデルなどで示唆される断裂時のボルツマン因子を、質量数分布、荷電分布とアイソマー分布に因子化できると仮定した：

$$Y(Z, N) \approx e^{-\frac{V_{LD} + \phi(E^*)E_{sh}}{T}} \approx Y(A)Y(Z:A)Y(Z:A:E_{sh})Y(Z:A:I)$$

ここで $Y(A)$ は質量数分布、 $Y(Z:A)$ は各 A 毎の Z 分布、 $Y(Z:A:E_{sh})$ は Z 分布における殻効果や偶奇効果を表す項、 $Y(Z:A:I)$ はアイソマー分布である。EXFOR データベースを検索し、いろいろな試行錯誤をした結果、 $Y(A)$ については、我々は欧米で専門家によって行われた検討以上の情報を持ち合わせていないという判断に達し、この量については米国の England-Rider による評価値を採用することとした。一方、 $Y(Z:A)$ は Wahl の Z_p モデルと同じ考え方をすることとした。ただし、Wahl の方法が $Y(Z:A:E_{sh})$ を非常に現象論的な補正として与えているのに対し、我々は原子力機構の小浦寛之氏が理論的に求めた殻補正エネルギーに基づく Boltzman 因子の形を仮定した。 $Y(Z:A:I)$ に関しても米国の評価が非常に簡単な Madland-Rider のやり方をしているのに対し、我々は全核分裂片からの統計崩壊を Hauser-Feshbach 理論 [3] で計算して求める手法を開発した。このようにこれまで欧米で行われてきた手法に対して適宜現代的な手法を取り入れることで独自の評価を遂行した。その中でさらに改良すべき点も見つかってきており、現在、それらに対して Hartree-Fock-Bogoliubov 法など、微視的な理論を駆使して研究を進めている。

累積収率については最新の JENDL-FP Decay Data Library から遅発中性子放出割合を採用し β 崩壊系列を追跡することで求めた。

3. 共分散

核分裂収率の場合、共分散には特殊な条件が求められる。すなわち、核分裂収率においては質量数毎に独立収率の和である質量収率、あるいはチェーン収率という量が非常に高精度で求まっている。それに対して個々の独立収率の精度はずっと悪いのが通常である。従って質量収率に寄与する独立収率の誤差を単純に二乗和で足して平方根を取ると、質量収率の誤差としてわかっている値よりずっと大きくなってしまうことになる。また、核分裂収率は全部足すと 2 になるという明確な物理的制約、また質量数や電荷を足すと複合核のそれら（から 3 体核分裂で発生する軽粒子の寄与分を引いたもの）と等しくなるべきであるという制約条件などもあるため、それらを考慮して整合的な共分散の評価を行った。

図 3 に示すのは、 ^{235}U に熱中性子が入射した際に発生する $A=102$ 核分裂生成物の独立収率 (IND) と累積収率 (CML) を同時にプロットしたものである。我々が評価した独立

収率は青の実線で結ばれた点であり、それぞれに対して誤差が付与されている。一方、それらを β 崩壊に従って足していったものが赤の破線で与えられる累積収率となる。累積収率に対して、緑色と紫（白黒では幅の太い濃いバンドとその中にある狭いバンドとして見える）のバンドで誤差範囲が与えられているが、緑色は独立収率の誤差を単純に二乗和したのち平方根を取ったもの、紫は我々が評価した共分散行列を用いて誤差伝搬させた結果である。この質量数の場合、累積収率は誤差 1% で求まっており、それが水平の 1% error の幅で示されている。単純に誤差の二乗和を取ると明らかに累積収率の誤差としてわかっている 1% という値よりはるかに大きな値となってしまう、独立収率と累積収率を使って計算した結果の誤差が全然違う値となってしまうが、我々が評価した結果を用いれば、両者の結果は整合的な結論を与えることになる。従って核分裂収率において相関を正しく考慮することは必要不可欠である。

最終的に、我々は JENDL/FPY データファイルに入っているすべての核の熱中性子及び高速中性子入射核分裂に対して収率及び共分散データの評価を実施した。

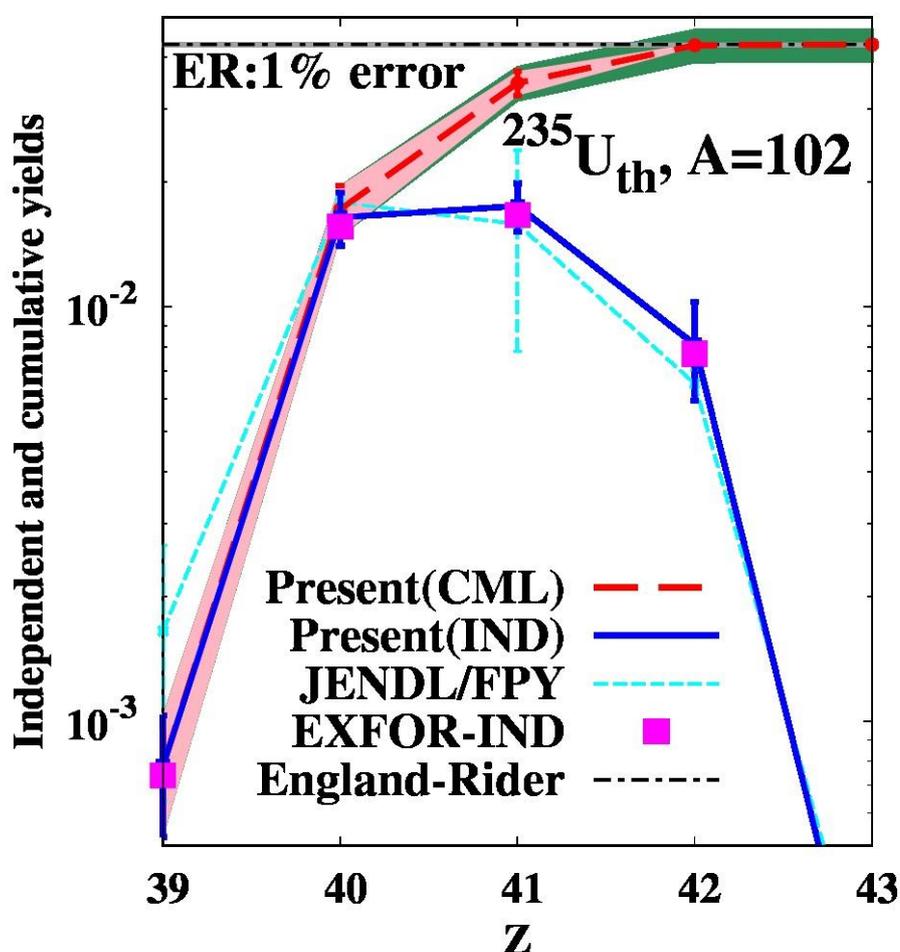


図 3 $^{235}\text{U}+n_{\text{th}}$ の系における A=102 原子核の独立(IND)及び累積(CML)収率と誤差

4. データの検証

データの検証として、崩壊熱、遅発中性子収率、PIEデータを考慮した。いずれも従来の収率データと同等以上の性能を有していることが分かった。

5. 結論

東京工業大学において、国内における初めての核分裂収率データの評価を実施した [4]。この評価には東工大において実施されている核分裂に関する基礎研究の結果得られた知見が効果的に機能した。本成果は JENDL に採用されることが決定している。

参考文献

- [1] C. Ishizuka, M.D. Usang, F.A. Ivanyuk, J.A. Maruhn, K. Nishio and S. Chiba, Phys. Rev. C 96, 064616(2017).
- [2] M.D. Usang, F.A. Ivanyuk, C. Ishizuka and S. Chiba, Scientific Reports 9, 1525 (2019).
- [3] S. Okumura, T. Kawano, P. Jaffke, P. Talou and S. Chiba, J. Nucl. Sci. Tech. 55, 1009 (2018).
- [4] K. Tsubakihara et al., to be submitted to J.N.S.T.: S. Chiba, Private communication.