

科学と技術のための核データ国際会議 (ND2019)

(4) 核分裂反応

IAEA, Nuclear Data Section 奥村 森

s.okumura@iaea.org

東京工業大学 科学技術創成研究院 千葉 敏

chiba.satoshi@nr.titech.ac.jp

1. はじめに

本稿では、核分裂反応関連 (Fission Physics and Observables) セッションについて報告する。核分裂関連のセッションの報告に先立ち、Keynote 及び Plenary セッションで触れられた核分裂関連の話題を紹介する。まず、Keynote セッションでは、IAEA の深堀智生氏から福島第一原子力発電所の Decommissioning で求められる核データについての紹介があり、臨界管理、燃料デブリの組成予測、崩壊熱除去、放射線防護、廃棄物管理等の幅広い観点から核分裂収率データが重要であることが示された。(本論とは関係ありませんが、この時に使われた“JENDLman” が個人的に大変気に入りました。) また、IAEA の Nuclear Data Section が属する Division of Physical and Chemical Sciences 部長の Melissa Deneck 氏 (米国人ですが漢字では、梅丽莎・德奈克と書くようです。) からは、2019 年から FPY に関わる新たな Coordinated Research Project (CRP) が始まる予定であることが告知された。“Updating Fission Yield Data for Applications” というタイトルが予定されており、EXFOR データベースへの未採録実験データの整備、計算モデルの整備、不確かさや共分散データの扱い、新たな評価データの妥当性検証をそのスコープとして含む方針が示された¹。

また、Plenary セッションでは、実験および理論から 1 件ずつの核分裂関連の発表があった。LLNL の Bowden 氏からは、米国国立研究所が参加する NIFFTE (Neutron Induced Fission Fragment Tracking Experiment) コラボレーションにおける Time Projection Chamber を用いた (n,f) 断面積測定の結果が報告された。次に、筆者 (東京工業大学 千葉) から、東工大で開発した 4 次元 Langevin モデルを駆使した核分裂片の Total Kinetic Energy (TKE) と核分裂片の Mass Distribution ($Y(A)$) の幅広いアクチナイド核種での相関の解析から得られた系統性についての報告がなされた。また、フラグメントの四重極モーメントが即発中性子多重度の示す鋸歯状の構造と非常に似た形をしていることや、超重元素領域の核分裂の系統性など、その予測性能や理論的解釈について聴衆の興味を惹いた。

¹CRP: <https://www.iaea.org/projects/crp/f42007>



図1 Plenary Session で発表する東京工業大学の千葉

核分裂関連のセッションは、1. 核分裂収率（FPY）の測定-5件、2. PFNS や即発中性子多重度の測定-5件、3. 核分裂に関する理論とモデル-13件、4. (n,f) 断面積の測定-4件、で構成された。前回の ND 会議の報告によると、3日間に渡ってセッションが続いたようだが、今回はアメリカからの参加者が限られたこともあり、丸2日間となった。それでも、近年の核分裂収率への注目の増加に伴ってか2日間を通じてコンスタントに聴講者があった。

2. 核分裂収率（FPY）の測定

核分裂収率（FPY）は、核分裂を特徴づけるもっとも基本的な物理量だが、現在でもその測定データは十分にあるとは言えない。このため、評価済み核データは、複数のモデルで補完されおり、入射エネルギーも Thermal、Fast、14 MeV の3点しか与えられていない。増加する多様なアプリケーションからのニーズに応えるため、評価済み核データは、多くの核種の幅広いエネルギーでの FPY データを提供することが求められている。

このような中、入射中性子エネルギー依存での FPY の測定が良い精度で行われはじめている。はじめに、LLNL の Anton Tonchev 氏から、TUNL の Monoenergetic 中性子源を用いた ^{235}U 、 ^{238}U 、及び ^{239}Pu の入射中性子エネルギー 0.1–15 MeV における累積収率の測定結果が紹介された。例えば $^{239}\text{Pu}(n,f)$ 系の測定では、エネルギー変化に対して変化しないと予測された ^{99}Mo と ^{147}Nd について、2–4 MeV あたりまでは増加しその後減少に転ずる変化が示された。その他の核種については、FP の質量数に対応して、Symmetric 領域に位置する核種では増加、Peak・Wing 領域に位置する核種では減少するという傾向が示された。このようなエネルギー依存性は、独立収率が即発中性子放出の影響を受けて歪んだ複雑なものとなっているため、結果の解釈には即発中性子放出機構に関する知見も必要となるが、それ自体が良く理解されているわけではない。一般に、独立収率は寿命が短く測定が困難であるため、多くの実験では累積収率が測定されてきた。本発表では、比較的短寿命の核種の測定も行われており、将来的に独立収率の直接測定に辿り着きたいとの方針が示された。

また、同グループの Jack Silano 氏らは、複合核の励起エネルギーとスピン・パリティが同



図2 会議場近くの水辺。湿度がなくカラっとしており外での飲食に良い季節でした。

じであれば、崩壊様式はその複合核がどのように形成されたのかとは関係がないという Bohr の理論を FPY から検証した。精密な γ 線実験が可能で TUNL に建設されている HI γ S という自由電子レーザーを用い、中性子入射の代理反応としての $^{240}\text{Pu}(\gamma, f)(E_\gamma=11.2 \text{ MeV})$ について、 $^{239}\text{Pu}(n, f)$ と全く同じ装置を用いて累積収率を測定し比較された。結論として、軽 FPY ではほぼ同じ収率が得られたが、重 FPY では少し違いが出るとの報告があったが、カイ二乗検定からほぼ一致するとしても良いとの結論が紹介された。ただし中性子反応で生成された複合核と HI γ S による実験で生成されたもののスピン及びパリティ分布は微妙に異なっており、本当に Bohr 仮説の検証となっているかは注意深く検証する必要があると思われる。

核分裂片が有する大きな角運動量の起源については、いまだよく理解されていない。直接測定する方法はないことから、異性体収率比から平均平方二乗角運動量 $J_{\text{rms}} (\sqrt{\langle J^2 \rangle})$ を推定する手法が、間接的に生成直後の核分裂片の状態を知る手がかりとして使われてきた。この情報は一次核分裂片の統計崩壊を考慮する際に入力データとして必要となる。しかし、その測定データは非常に少ない。今回、Uppsala University の研究チームは、Finland の University of Jyväskylä の IGISOL にて、比較的測定しやすい（寿命 0.1 s 以上、異性体間のエネルギー差が 100 keV 以上、生成断面積大）Cd や In の同位体での測定結果を報告した。また、CEA の研究チームからは、Grenoble の LOHENGRIN Mass Spectrometer を用いた異性体収率比の測定も行われており、実験データの充実が期待される。

筆者 (IAEA 奥村) からは、FPY の CRP に先立ち、評価に有用な実験データの EXFOR への採録漏れがないかのアセスメントを行った結果を発表した。具体的には、(1) ENDF/B-VI の評価に使用された T.R. England と B.F. Rider 両氏による LANL レポート、及び (2) UKFY3.0 の評価に使用された Robert Mills 氏の博士論文に含まれる実験データの EXFOR への採録状況を調査し、総数にして 200 件以上が未採録であることを報告した。今後、NRDC のネットワークで分担し、採録作業を進める予定である。

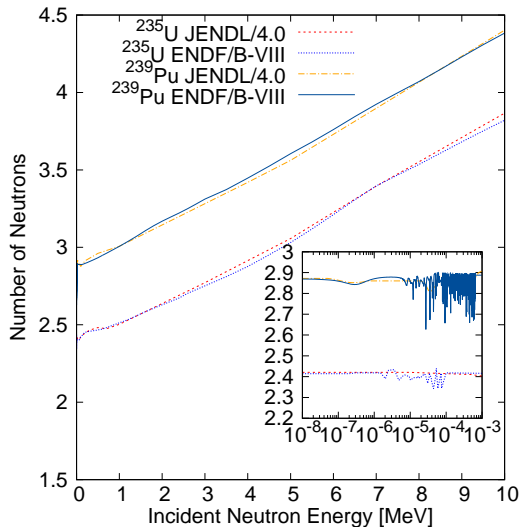


図3 即発中性子多重度 $\bar{\nu}$ の ENDF/B-VIII に入った Fluctuation

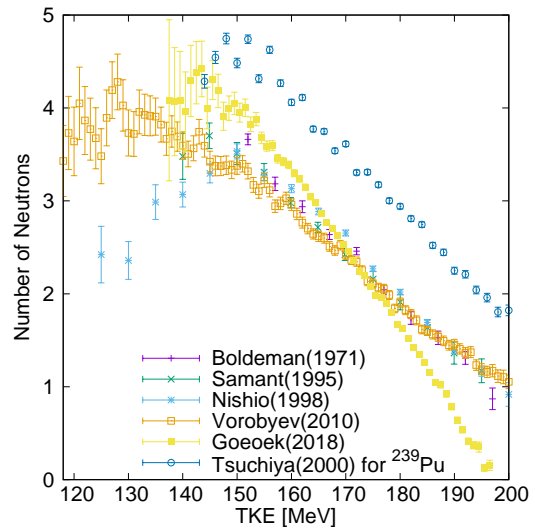


図4 即発中性子多重度 $\bar{\nu}$ と全運動エネルギー (TKE) の関係

3. Prompt Fission Neutron Spectrum, Multiplicity 測定

PFNS の測定データは少なく、今も不確実性が大きい。CERN の n_TOF 実験からは、2015–2016 に行われた ^{235}U 、2018 年に行われた ^{239}Pu の測定結果が示された。また、LANL の Matt Devlin, Keegan J. Kelly 両氏からは、LANCE の Chi-Nu 実験による入射エネルギー依存の ^{235}U 、 ^{239}Pu の PFNS の測定結果と、PFNS への Multi-chance Fission 及び Pre-equilibrium の寄与についての考察があった。ENDF/B-VII では、Second-chance Fission が部分的にしか考慮されていないとのことで、ENDF/B-VII 及び B-VIII との比較がされていた。総じて ENDF/B-VIII の再現性が良いと結論されていたが、たとえば入射中性子エネルギーが 1–2 MeV あたりにおける PFNS の 1 MeV 以下では、ENDF/B-VIII の評価値よりもかなり高い実験結果が得られ、その理由として Scission Neutron の存在が指摘された。また、 ^{239}Pu の PFNS の Pre-equilibrium の寄与を初めて観測したと報告し、これが過去に LANL の河野氏が発表されていた FKK モデルによる計算値とよく合致するとのことだった。

Geel の Alf Göök 氏からは、 $^{239}\text{Pu}(n,f)$ 系における PFNS、核分裂片質量ごとの即発中性子多重度 $\bar{\nu}(A)$ のほか、入射中性子エネルギー依存での $\bar{\nu}(A, \text{TKE})$ についての報告があった。図 3 に示すように、平均の $\bar{\nu}$ が共鳴により核分裂片の $Y(A)$ と TKE に変動が起こるために呼応して変動する。この現象を検証すべく、入射中性子エネルギーが 0.3–45 keV の範囲で、 $\bar{\nu}(A, \text{TKE})$ と PFNS を測定した結果が報告された。 ν -TKE の関係では、過去の報告と異なる傾向が示された。図 4 に示すのは、既に発表済みの $^{235}\text{U}(n,f)$ 系の ν -TKE プロットである。Göök 氏らの測定値は過去の他の測定と比較して傾きが大きくなっていることがわかる。今回、 $^{239}\text{Pu}(n,f)$ 系においても同様に、過去の Tsuchiya 氏らの測定をフォローしないと報告された。図 4 にある $^{235}\text{U}(n,f)$ 系については、Uppsala University の Ali Al-adili 氏らによるポスター発表でも報告されており、これら 2 測定はほぼ同じ傾きを示していた。ただ、 $\bar{\nu}(A)$ の Symmetric 領域では、彼らの測定は一致していなかった。



図5 雑技の写真や動画を撮る参加者を撮る。Banquet でのワンシーン。

4. 理論計算・モデル構築

核分裂の物理的な理解に踏み込んだものから、核データの評価に適用するための半経験的モデルまで多様な報告があった。

CEA の Olivier Serot 氏は、 $^{235}\text{U}(n,f)$ の Resolved Resonance 領域における即発中性子多重度 $\bar{\nu}$ の予測について報告した。図 3 に示されるように、ENDF/B-VIII の $\bar{\nu}$ には、低エネルギー (<100 eV) に共鳴の影響による揺らぎが入っている。自身が開発する Monte Carlo コードである FIFRELIN に、近年 Geel で行われた即発中性子放出前の $Y(A)$ 及び $\text{TKE}(A)$ の測定結果を入力として取り込み、Hauser-Feshbach 統計崩壊モデルを適用している。検討の結果、 $\bar{\nu}$ の揺らぎは、各 Resonance における即発中性子放出前の $Y(A)$ 及び $\text{TKE}(A)$ にのみ依存することが示されていた。FIFRELIN の公開についての質問があり、ソースは公開できないが Windows の実行ファイル形式で今年中を目処に配布準備をしているとのこと。

ランニングウェアで現れたのは、LLNL の Ramona Vogt 氏。同氏が開発する FREYA では、初期励起エネルギー、レベル密度、スピン温度、全励起エネルギー、フラグメント間の温度差の 5 つの物理パラメータが導入されている。今回の発表では、自発核分裂で観測される物理量をより精度よく計算するためのパラメータの最適化手法と結果が紹介された。

また、筆者 (IAEA 奥村) からも、個々の核分裂片の統計崩壊を取り扱う HF^3D モデルに東工大の千葉のグループが開発した 4 次元 Langevin モデルから得られた即発中性子放出前の $Y(A)$ 及び $\text{TKE}(A)$ 分布を初期値として取り込んで統計崩壊計算を行い、さらに得られた独立収率 $Y(Z, A, M)$ をベータ崩壊及び Summation Calculation に接続することで累積収率、崩壊熱、遅発中性子収率までを計算するモデル構築を紹介した。

上記 3 モデルはいずれも、2 体核分裂を前提として、即発中性子放出前の $Y(A)$ や $\text{TKE}(A)$ から、各フラグメントの統計崩壊計算を行う点において共通している。 HF^3D モデルでは、そこからさらに、Multi-chance 核分裂の影響を考慮しなくてよい 5 MeV 以下でエネルギー依存の計算や β 崩壊まで加味することで、前段で紹介した LLNL の Tonchev 氏らの実験データと



図6 壇上で真面目にメモを見ながらコメントする NDS Section Head の Arjan Koning 氏。Banquet にて。

の比較を可能にし、リーズナブルな結果を得ている。

中国からは、3次元 Langevin モデルや、Potential Energy Surface 上での Brownian Shape Motion と Random Neck Rupture モデルの組み合わせによる計算の紹介や、Monte Carlo 法による幅広い Actinide 核についての FPY(A)、TKE(A)、PFNS 等を再現する半経験的モデルなどが紹介された。しかし、いずれも計算結果と比較している実験値や評価済みデータが即発中性子放出前なのか後なのか不明瞭なケースがあった。これは、中国に限ったことではないが、核分裂片なのか核分裂生成物なのか、 β 崩壊前なのか後なのかを神経質に区別していないように感じた。ひょっとしたら単なる言葉の問題なのかもしれない。

5. Fission Cross Section 測定

(n,f) 断面積の測定について、CERN の n_TOF Facility から合計4件の報告があった。 $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ 燃料サイクルの副産物である ^{234}U の崩壊の生成物である ^{230}Th についてこれまでの実験には大きな偏差があるため精度良い測定が求められているとして、同様に ^{234}U は ^{233}U からの生成物として重要であるとして、また、ADS による核変換や G-IV 高速炉などでの Minor Actinide の核変換のための ^{241}Am 、 ^{237}Np の測定の報告があった。Ionization Chamber における核分裂片の検出効率の推定のために FLUKA と GEF コードを用いた Monte Carlo 計算を行っているとのことだった。

6. おわりに

(IAEA 奥村) 今回の ND では、アメリカからの参加者が非常に少なく、また、参加者のキャンセルが主催者に伝わっていないケースもあり、発表者不在によるセッションの中断や早めの終了が散見された。一方、IAEA からは部長を除いて6名の参加があった。それぞれ

1人2件以上、多い人では1人で4件もの発表を行う事態になった。その煽りをうけ、私まで2件の発表の機会を頂くことになった。また元ボスと現ボスが Plenary で発表するのを拝見して（現 NDS Section Head の Arjan Koning 氏（写真6）は、1991年からの参加で、今回が10回目とのこと）、私も末長くこの分野になんらかの貢献をして立派な JENDLman になりたいと思いました。

往路・復路ともに、日本人以外の IAEA スタッフは旅程に恵まれず、会議後の帰国便に至っては、便がテクニカルな理由（旅客機の窓が壊れている！）によりキャンセル。バンコク経由でウィーンまで30時間かけて帰国したそうだ。さらに、1人は、そもそもビザの問題で中国を出国することができず、週明けの大使館の営業を待ってから仮ビザで数日遅れの帰国となったそうである。昨今の IAEA では出張が非常に厳しくなっており、次回の ND には IAEA からは誰も参加できないという事態にならないことを祈ってやみません。

（東工大千葉）今回は JAEA 深堀氏の陰謀により Plenary セッションでの発表の機会を得たことは JENDLman の一人として大変ありがたかった。東工大における核分裂の理論研究は世界で最高峰（最初の変換では最後方と出た）の一翼を担っている（と勝手に思っているだけであるが）。ただ、国内での、特に核分裂機構に関する実験のアクティビティーが JAEA のタンデム加速器施設で重イオンを用いて行われているだけであることが寂しい。欧米では様々な機関で工夫を凝らした装置が開発され中性子ビームによる核分裂研究が非常に盛んである。核分裂は原子炉用のみならず、近年は福島廃炉、核セキュリティ等でこれまでとは異なるデータが必要とされるようになっており、また異なる物理量間の相関の測定等、実験家としても腕の見せ所と言える職人芸が必要とされる。今後、核データとして最重要の核分裂実験のアクティビティーが国内で高まることを期待する。



図7 JENDLman 深堀さんと筆者ら（撮影：IAEA-NDS 大塚さん）“JENDLman”とは、核データに貢献する日本人であると理解しています。