

炉物理部会, 核データ部会, 「シグマ」調査専門委員会合同セッション
「JENDL-5 の完成と数値解析への適用の展望」

(2) 核分裂収率および共分散データの評価

東京工業大学

千葉 敏

chiba.s.ae@m.titech.ac.jp

1. 背景

原子力は核分裂により生成される中性子が媒介する連鎖反応の元で持続的に発生するエネルギーを利用する技術である。従って核分裂に関連する核データは原子力利用における最も基本的な情報として広くかつ高い精度が必要とされる。その中でも核分裂収率は使用済み核燃料に含まれる放射性物質の量、高燃焼度炉心における中性子毒物生成による臨界性、燃料ペレットのスウェリング、破損燃料や燃焼度検知核種の生成比等を決定し、崩壊熱や即発及び遅発中性子収量等にも関連する重要な物理量である。また近年では核分裂生成物の β 崩壊に伴う反電子ニュートリノを用いる保障措置としての原子炉の監視や使用済み燃料の所在検知、基礎研究としてのニュートリノ振動現象が注目されている。核分裂収率データは米国、欧州で独立に評価済みデータが整備されてきているが、これまでの担当が高齢化し続々とリタイアする状況となっているため、最近では後継者の育成に目が向けられている。これに対し、我が国では核分裂収率ライブラリーは米国 ENDF の核分裂収率ライブラリーをコピーして利用して来た経緯があり、核分裂収率評価の技術的基盤が形成されていない状況にあった。本研究ではわが国で初めてとなる核分裂収率データ及びその共分散データの評価を行った[1]。本稿ではその手法と結果、今後の展望について述べる。

2. 核分裂収率の評価

2.1 手法

図 1 に本研究で行った核分裂生成物 (FP) 収率データの評価の流れを示す。本研究では独立収率を実験データを基に評価し、累積収率は崩壊データを基に計算した。評価を開始した当初、利用可能ないくつかの理論計算コードを導入し、最も精度良く測定されている ^{235}U の熱中性子核分裂収率の質量数分布データの測定値との比較を行った結果、どのコードも $A=134$ に存在するピークを適切に再現できないことが分かった。このため理論計算による評価は断念し、質量数分布、Z 分布、アイソマー比の順で実験データを基に現

象論的に評価していく方針とした。そのため、図 1 左上にあるように EXFOR 及び文献データをサーベイし、独立収率と認識されたものについて独自の中間データベース (図の FPY database) を作成した。核分裂では多様な物理量が観測されるため、EXFOR に収納されている核分裂核データは非常に複雑でありミスも多く発見された、例えば収率のデータにおいて独立収率と累積収率が間違えられていたり、累積収率を独立収率に変換する際の崩壊データが古い場合などが見受けられた。また異なる FP 核種の収率の比や“比の比”などという複雑怪奇なデータなども存在するが、これらのデータについては評価済みデータに複雑な相関をもたらすため採用せず、独立収率が測定されたと報告があるものだけを採用した。また、評価済みデータのベンチマークとして総和計算を行い、崩壊熱、遅発中性子収率、照射後試験(PIE)、原子炉 β 線・ニュートリノスペクトルの計算を行い、利用可能な実験データと比較し大きなミスのないことを確認することまでを評価の活動とした。

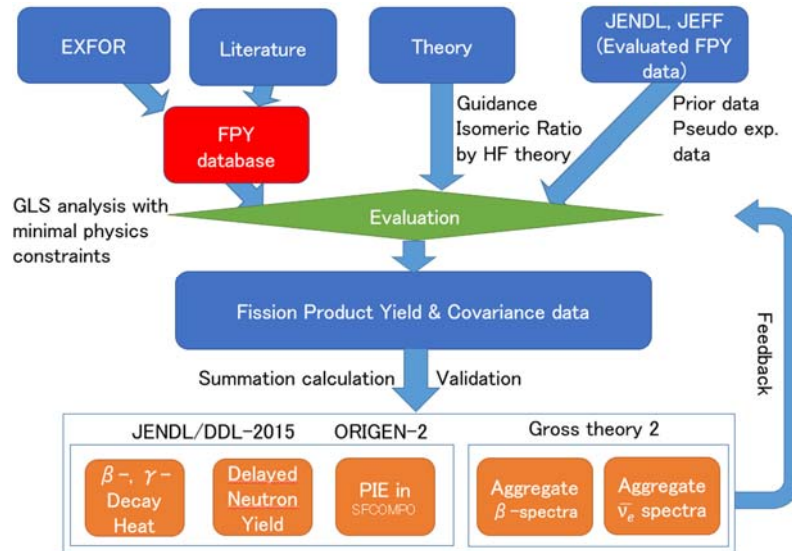


図 1 本研究で用いた FP 収率データ評価およびベンチマークの流れ

実際の評価であるが、核分裂系 (標的核+入射中性子エネルギーの組、または自発核分裂核種) の FP の(A,Z)点毎にデータがあるものはそれを採用し、複数のデータがある場合はその最小二乗平均値とその誤差、まったくデータがない場合は JENDL や JEFF の評価値を事前情報として採用し、核分裂の断裂点モデル[2]から inspire される以下のような新たな公式を提案して地道にフィッティングを行いパラメータを決定した。

$$Y(Z, A, m) \propto \exp \left[-\frac{E_{LD}(Z, A) + \Phi(E^*) \Delta E_{sh}(Z, A, m)}{T(Z, A)} \right]$$

$$\approx Y_I(A) \times \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma(A)} \int_{-0.5}^{0.5} \exp \left[-\frac{(Z - Z_p(A) + t)^2}{2\sigma(A)^2} \right] dt \times e^{-\frac{\Delta E_{sh}(Z, A)}{E_d(A)}} \times B_{Z, A}^{HF}(m)$$

ここで $Y(Z, A, m)$ は陽子数 Z 、質量数 A 、アイソマー状態 m の FP 核種の独立収率である。アイソマー状態は通常基底状態を $m = 0$ とし、励起状態を下から $m = 1, 2, \dots$ としている。上式の 1 行目が断裂点モデルによる収率の表式で、断裂点における温度を T とするボルツマン因子である。 $E_{LD}(Z, A)$ は液滴エネルギー、 $\Delta E_{sh}(Z, A, m)$ は殻補正エネルギー、 $\Phi(E^*)$ は励起エネルギーに依存する殻補正のダンピング因子である。この式の指数因子の分子は断裂点における全ポテンシャルエネルギーと解釈される。一方、2 行目はそれを評価に便利なように因子化したものであり、左の因子から順に質量数分布 $Y_I(A)$ 、 Z 分布 $\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma(A)} \int_{-0.5}^{0.5} \exp\left[-\frac{(Z-Z_p(A)+t)^2}{2\sigma(A)^2}\right] dt$ 、殻および偶奇効果 (pairing 効果) の補正係数 $e^{-\frac{\Delta E_{sh}(Z,A)}{E_d(A)}}$ 、アイソマー比 $B_{Z,A}^{HF}(m)$ の積となっている。殻および偶奇効果の補正係数が断裂点モデルの殻補正の部分を受け継いだ形となっている。

これらのうち、質量数分布 $Y_I(A)$ については、当初は理論計算コードを用いて計算する予定であったが、上述の通りいずれのコードも最重要な ^{235}U の熱中性子核分裂における質量数分布の微細構造($A=134$ における特異的に狭いピーク) を再現できなかったため、本評価では先人の努力に敬意を表して、England-Rider の mass-chain yield データ[3]を採用した。また、文献[3]には誤差情報も与えられていたので、その値も事前データとして採用した。今回の評価で他者のデータを採用した部分はここだけである。今後は我々が行っているランジュバン模型[4]等による理論計算結果を採用できるよう理論の精度向上を目指そうと考えている。

Z 分布は、FP の質量数に依存する平均値 $Z_p(A)$ 、分散 $\sigma(A)^2$ をパラメータとして含んでいる。このうち $Z_p(A)$ は、核分裂する核種 ($n+^{235}\text{U}$ 系では ^{236}U) の Z/A 比と等しい値 (Unchanged charge distribution: UCD)からのずれ ΔZ_p をパラメータとして、 $\sigma(A)$ とともに核分裂系ごとに地道にフィッティングすることで決定した。 ΔZ_p は荷電偏極と呼ばれる量で、England-Rider や Wahl[5]のレポートでは $Z_p(A)$ または ΔZ_p が与えられているので、それらを参考にした。現在、我々の研究グループでは微視的計算による ΔZ_p の理論計算も進めており、将来的には理論計算値で置き換えることを予定している。

殻効果の補正係数 $e^{-\frac{\Delta E_{sh}(Z,A)}{E_d(A)}}$ は、殻補正エネルギー $\Delta E_{sh}(Z, A)$ とダンピング因子 $E_d(A)$ を含んでいる、このうち殻補正エネルギー $\Delta E_{sh}(Z, A)$ は、いわゆる shell correction energy と pairing correction energy の和であり、本研究では前者として小浦等の値[6]を採用し、後者としては核子数の偶奇性に対応してシンプルに $\left\{\pm 11/\sqrt{A}, 0\right\}$ を採用した。これによって質量数が偶数の FP 系列に対して、下図 2 のように、順に現れる偶々核と奇々核の収率における staggering を少ないパラメータで効率的に表すことができた。従来用いられてきた

Wahl モデルでは[5]、この部分が非常に現象論的に決定されており、十分なデータの無い場合の外挿性に問題があると認識されていたが、今回は小浦の shell correction energy と広く認められている pairing 補正を用いることで全体の見通しが良くなった。

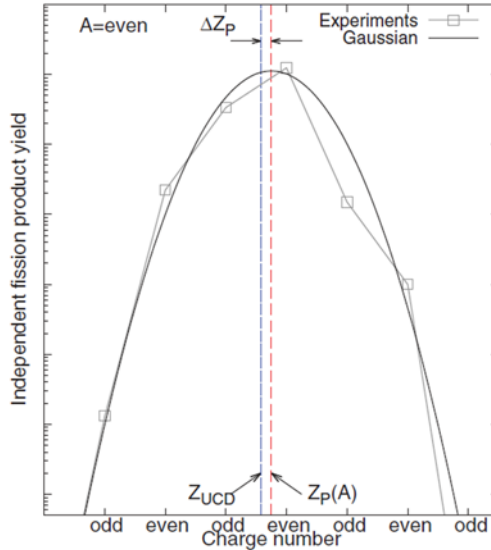


図 2 FP の質量数が偶数の場合の Z 分布における staggering を表す模式図。 ΔZ_p は UCD 仮定からの Z 分布平均値のずれを表す荷電偏極、滑らかな実線は $Z_{UCD} + \Delta Z_p$ を平均値とする正規分布、 \square およびそれを結ぶ線は殻および対補正の効果を含む FP 収率で、因子 $e^{\frac{\Delta E_{sh}(Z,A)}{E_d(A)}}$ により偶々核の場合は正規分布より増強され、奇々核の場合はダンプされる。

[1]

アイソマー比 $B_{ZA}^{HF}(m)$ は、従来は FP の質量数とスピン値のみに基づく現象論的な式が用いられてきた[5,7]が、その物理的根拠は明確ではなかった。本研究では励起した核分裂片の統計崩壊という明確なモデルを導入し、Hauser-Feshbach 模型により計算される核分裂生成物の基底状態とアイソマーの生成比として $B_{ZA}^{HF}(m)$ を決定した。 ^{235}U 系に対しては奥村等の詳細な計算結果[8]を用い、それ以外の系については TALYS1.9[9]の GEF+Hauser-Feshbach オプションを用いて計算を行った。核分裂片の統計崩壊に基づく評価は、その後の核分裂収率評価の標準的な手法として定着してきており、最近では $A=134$ のピークもある程度再現できるようである。

このようにして求めた核分裂収率は、引き続き一般化最小二乗法 (ベイズ解析) の事前情報として用いられた。一般化最小二乗法解析では、5 つの物理的拘束条件を満たすようにシーケンシャルにベイズ解析を行い、最終的な収率と共分散行列を導出した。この解析で用いた 5 つの拘束条件は

1. Mass-chain yield と誤差が England-Rider の値となること
2. 質量数の保存則を満たすこと
3. 陽子数の保存則を満たすこと
4. 質量数分布が 2 に規格化されていること
5. 軽い FP、重い FP の収率がそれぞれ 1 に規格化されていること

である。これらの自明な拘束条件を課すことによって、“minimal”な制約を加えた収率と共分散行列が導出された。実は、独立収率の各点における誤差は非常に大きいことが通常である。しかし、それらを足していった質量数分布は England-Rider の評価値として与えられており、また実験データも豊富にあることから高い精度で決められている。単純な FP 収率の誤差の二乗和で質量数分布の誤差を与えると、England-Rider の誤差を大幅に上回る値となってしまうことが分かっている。そこで本評価ではこのような不整合が生じないように共分散行列を導出した。ただし FP 収率の共分散行列は ENDF フォーマットにおける収納方法も決められておらず、本評価で初めて導入されたものである。

図 3 に示すのは ^{235}U の熱中性子核分裂において、FP の質量数 102 における誤差伝播の様子である。青線が独立収率とその誤差を表している。一方、赤線はそれを Z の小さい方から足していった mass-chain yield であるが、単純に独立収率の誤差を二乗和していくと緑のバンドのように最終的な mass-chain yield の誤差として大きな値を与える。一方、mass-chain yield とその誤差は England-Rider により評価されおり、その結果が黒の横線の幅で示されている。図を見て分かる通り England-Rider の与える誤差 (1%) は、独立収率の単純な誤差の二乗和に比べるとずっと小さい値であることが分かる。一方、本評価で得られた共分散行列を使って誤差伝播を行うと赤のバンドのような誤差となり、England-Rider の結果と一致する結果となった。

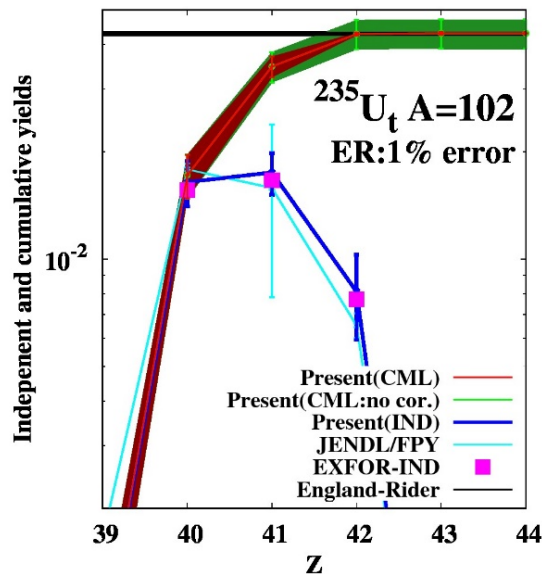


図 3 ^{235}U の熱中性子核分裂に対する FP の質量数 102 における誤差伝播の様子[1]

なお、個人的には England-Rider の与える質量数分布の誤差は、多くの場合小さすぎるのではないかという感想を持っているが、今回はそれを証明するだけの知見を有しておらず、今後の課題であると認識している。

図 4 に示すのは ^{235}U の熱中性子核分裂に対するいくつかの偶々核の独立収率である。Present と書いてある赤点および赤線が今回の結果である。JENDL/FPY-2011[7]では、図の左側、すなわち中性子過剰核側に不自然な肩やピークがある場合が散見された。それは遅発中性子収量や原子炉ニュートリノスペクトルの高エネルギー部分に無視できない影響（いずれも過大評価側となる）を与えていた。今回の結果は実験データのある点ではそれを採用し、全体的な形状は基本的に正規分布であり、それに殻効果による小さな上げ下げが staggering として重畳した形となっており、全体としては物理的に合理的であると判断している。

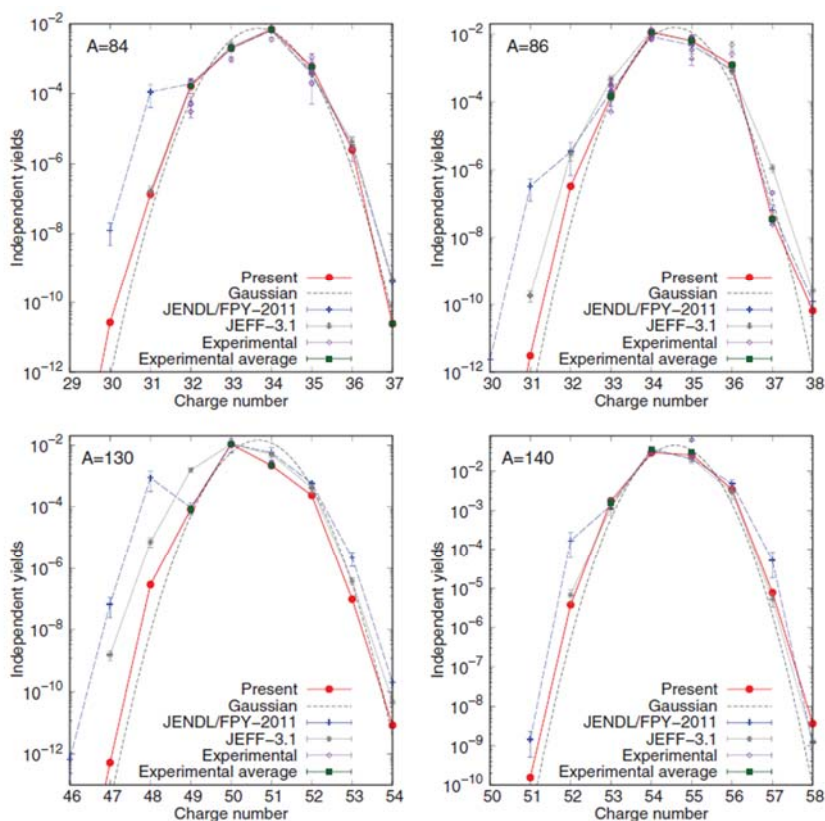


図 4 ^{235}U の熱中性子核分裂に対して得られた独立収率の同重体分布の例[1]

これらにより JENDL/FPY2011[7]に存在した同重体内のアイソトープ分布の不自然なバンプ構造は一掃された。また、累積収率及びその共分散は独立収率を基に JENDL/DDF-2015[10]の崩壊データを適用して作成した。

2.2 独立収率データの妥当性検証

作成された独立収率データを基に図1の下部分に示すような総和計算および燃焼計算を行い、崩壊熱、遅発中性子収率、PIE、原子炉 β 線及び反ニュートリノスペクトルを求め、実験データと比較することでその妥当性を検証した。特に遅発中性子収率及びSm領域核のPIE結果が向上した[1]。ニュートリノスペクトルにおいても高エネルギー部分の過大評価が改良される方向に変化した。この計算過程でこれまで核データの対象とされていなかった原子炉ニュートリノ計算に必要な各FPの β 崩壊で放出される電子および反ニュートリノスペクトルのデータベースを大局的理論[11,12]を基に構築し、原子炉ニュートリノを用いる保障措置や核セキュリティーの新たな手法に必要なデータベース開発に加え、ニュートリノ振動の検証それによるステライルニュートリノの存在可能性についての検討を行う基盤データとして整備した。これまでも核データが基礎研究のデータベースとして利用される機会は多くあったが、標準模型を超える新素粒子の探索にまで利用されることはエキサイティングではないでしょうか？

3. まとめと今後の展望

本研究で得られたパラメータの系統性は、今後実験データの乏しい核種の収率を推定するために利用可能である。また本研究を通して核分裂収率評価の知見の蓄積と人材育成が達成された。我々のグループでは、今後、機械学習や深層学習などを用いる核分裂収率評価へと発展させていく予定である。今後、質量数分布については理論計算を適用し、データの無い核種やエネルギー領域での評価を遂行することも検討の対象となると思われる。核分裂理論は欧米や中国、そして国内でも我々のグループを含めて急速に進展しており、それがこのような核データ評価のバックグラウンドとして適用されることが検討されており、引き続き我が国でも核分裂に関する理論研究を着実に推進することが必要である。

本評価は、東工大でポスドクとして雇用した2名の研究者が中心となって遂行された。両名ともその後無事にポストを得て就職したが、国内の原子力研究者としてのポストを得たわけではないので、本研究で得られた知見や経験が国内の若い世代に継承されて原子力利用において重要な核分裂データの精度が着実に向上されていくことを切に希望している。

参考文献

- [1] K. Tsubakihara et al., J. Nucl. Sci. Technol. **58** (2020) 151.
- [2] B.D. Wilkins, E.P. Steingerg and R.R. Chasman, Phys. Rev. C **14** (1976) 1832.
- [3] T.R. England, B.F. Rider Evaluation and compilation of fission product yields. Los Alamos National Laboratory; 1994. ENDF-349, LA-UR-94-3106.

- [4] 例えば K. Shimada et al., Phys. Rev. C 104 (2021) 054609 及びその参考文献[11-15].
- [5] A.C. Wahl, Systematics of Fission-Product Yields, LA-13928(2002).
- [6] H. Koura, T. Tachibana, M. Uno and M. Yamada, Prog. Theor. Phys. **113** (2005) 305.
- [7] J. Katakura, JENDL FP Decay data file 2011 and fission yields data file 2011. Japan Atomic Energy Agency; 2012. JAEA-Data/Code 2011-025.
- [8] S. Okumura et al., J. Nucl. Sci. Technol. **55** (2018) 1009.
- [9] <https://www-nds.iaea.org/talys/>
- [10] <https://www.ndc.jaea.go.jp/ftpnd/jendl/jendl-ddf-2015.html>
- [11] T. Tachibana, M. Yamada and T. Yoshida, Prog. Theor. Phys. **84** (1990) 641.
- [12] H. Nakata, T. Tachibana, and M. Yamada, Nucl. Phys. **A594**, (1995) 27.