

## 話題・解説 (II)

### 2022 年度核データ部会賞

#### 奨励賞

## 核分裂片の平均全運動エネルギーの励起エネルギー依存性

東京工業大学

環境・社会理工学院 融合理工学系

原子核工学コース

島田 和弥

[shimada.k.af@m.titech.ac.jp](mailto:shimada.k.af@m.titech.ac.jp)

### 1. はじめに

ウクライナ危機の勃発以来、エネルギーセキュリティの重要性がクローズアップされるようになり、それ以前のカーボンニュートラルの潮流と相まって原子力に対する期待がかつてないほどに高まっている。原子力は核分裂で発生する熱をエネルギー源とするが、核分裂で放出されるエネルギー、すなわち Q 値は約 200 MeV である。これに対し、化学反応の Q 値は約 10 eV であり、このスケールの違いこそが少量の燃料で大量の熱を生み出すことのできる原子力の特徴となっている。200 MeV のうち、核分裂片の持つ平均全運動エネルギー (TKE) は約 170~180 MeV であり、核分裂で放出されるエネルギーの大部分を占めている。従って原子力においては核分裂片の TKE が発電の主要なエネルギー源となっている。また、宇宙における重い原子核の合成において、原子核が中性子を急激に吸収する r 過程があるが、そこでは核分裂リサイクルが起こっていると考えられており、核分裂片の TKE はこのような重い元素の合成過程での局所的な発熱源としても重要である。これらのことから、宇宙における元素合成などの基礎研究と、原子力における核分裂生成物の生成量把握、廃棄物管理といった工学的応用の観点から、核分裂片の TKE 挙動を定量的に理解することが必要である。

図 1 に核分裂反応の時間発展を模式的に示す [1]。まず、標的核が中性子を吸収し複合核が形成される。この複合核は球形に近い形からある方向への変形度を増加させて行く。このプロセスは、物理的には『有限核子多体系の大振幅集団運動』に分類される、現在でも完全には理解されていない非常に複雑な過程である。その途上で複合核にネックが形成され、一定以上にネックが伸びると複合核は 2 つの核分裂片に断裂する。断裂して生成された核分裂片はお互いプラスに帯電しているため、クーロン斥力により加速度的に離れて運動エネルギーを獲得する。その和が核分裂片の全運動エネルギー (TKE) である。断裂直後の核分裂片は一

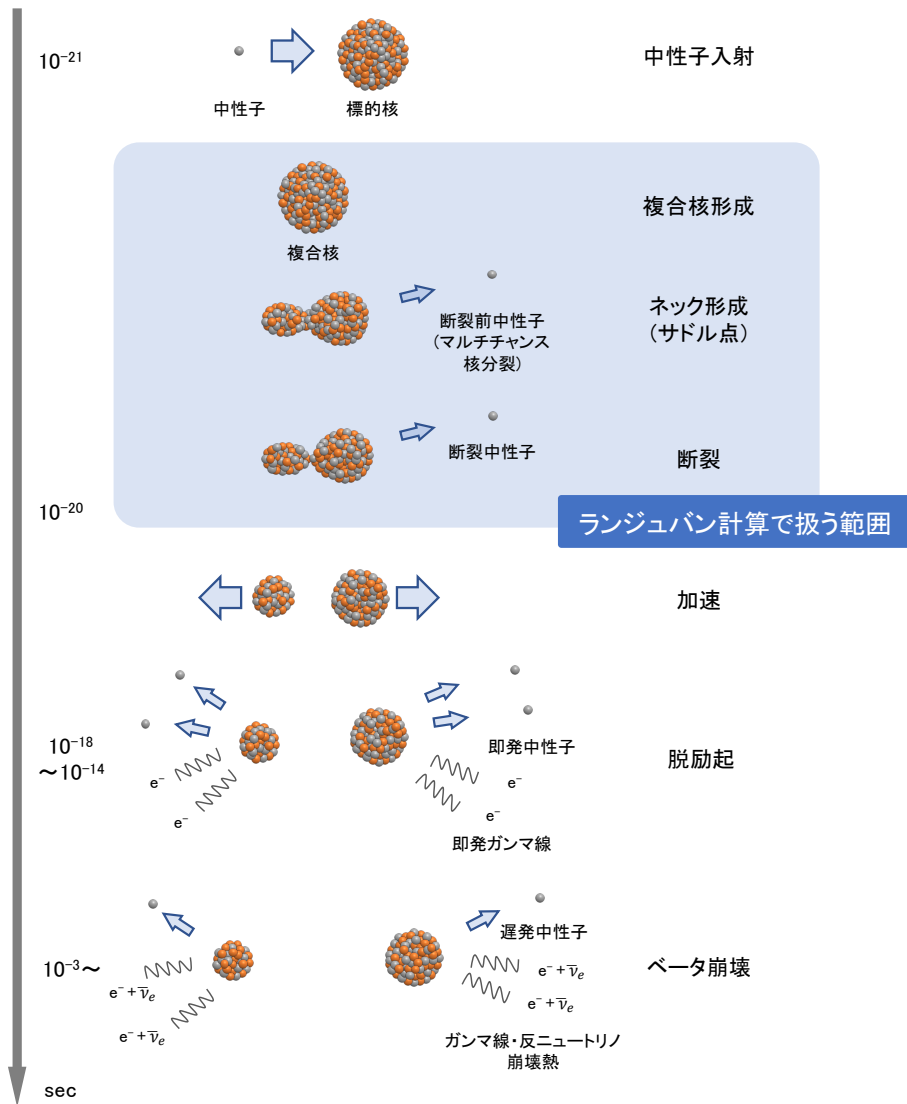


図1 核分裂反応の時間発展の模式図 [1]

般に高い励起状態にあるため、即発中性子や即発ガンマ線を放出し脱励起する。一般に、安定した原子核は陽子数が多いほど中性子数も多くなる。しかし重い核種では、内部のクーロン力による反発を緩和するために、より多くの中性子が必要となる。ここで核分裂を起こすと、得られた核分裂片は安定な原子核に比べて中性子が占める割合が多いため、脱励起して生成された核分裂生成物のほとんどが中性子過剰核である。このため、さらに安定した状態になるために数回の $\beta$ 崩壊が起こり、その過程で電子、反電子ニュートリノや極まれに遅発中性子の放出が起きる。

本研究でのランジュバン計算の研究は、図1の青い領域で示した、複合核が形成され断裂に至る瞬間までを対象としている。ここで核分裂現象では、マルチチャンス核分裂と呼ばれる現象が生じる。マルチチャンス核分裂とは、断裂する前に1つもしくは複数個の中性子(断裂前中性子)が放出された後で断裂に至る現象である。この場合、元の複合核に比べて中性子が1つ以上少ない核種となり、中性子の放出に伴って励起エネルギーも減少した複合核か

らの核分裂が重畳する。実験ではこれらの核を区別して観測できないため、複数の核種を考慮した評価や予測を行うと、実験に近い状況での結果を得ることができる。マルチチャンス核分裂計算は、中性子を放出しなかったファーストチャンス核分裂の計算結果を基に求められることから、本研究ではファーストチャンス核分裂の入射中性子エネルギー依存性について調べることにする。マルチチャンス核分裂を考慮した結果が実験を再現できていれば、本研究の結論は正しいと主張することができると考えている。

単純に考えると、入射中性子エネルギーが増加すると複合核の有する(励起)エネルギーが増加することから、核分裂で生じる核分裂片の平均 TKE も増加することが予想される。しかし、実験データはこの単純な予想に反し、入射中性子エネルギーの増加とともに平均 TKE が減少することを示している [2, 3, 4, 5, 6]。そこで本研究では、4次元ランジュバン模型を用いて、核分裂片の持つ TKE の励起エネルギー依存性を計算し、励起エネルギー増加により TKE が減少する原因を調べた [7]。

## 2. 計算方法

ランジュバン動力学模型では原子核の形状を表す変数の時間発展を確率微分方程式により表現する。原子核内の個々の核子の運動は白色ノイズとして表されるランダム力として粗視化して取り扱われる。このため、微視的模型に比べればはるかに少ない計算量であるにも関わらず、大振幅集団運動としての核分裂を記述する有効な模型となっており、一定の条件下では核分裂片質量数や TKE 分布などの性質を精度良く再現できることが実証されている [8]。

そうは言っても計算量の制限から、これまで核分裂の TKE 計算には、3次元程度以下のランジュバン模型が多く用いられてきた。しかし、パラメータを原子核毎に設定する必要があり、物理的根拠や予測能力に欠け、低エネルギーにおける核分裂計算には不向きであるなど、改善の余地があった。核分裂では多くの物理量が相関関係を持っているため、統一的な記述を行えることが望ましい。そこで各核分裂片の変形度を個別に記述できる4次元ランジュバン模型が東工大の本グループによって開発された [9]。この改良により、重い核分裂片のみが強い殻効果の影響を受けているというアクチノイド領域における核分裂過程に対して、よりの確な記述を行うことができるようになった。以下、その計算手法を説明する。

まず、原子核形状を表すパラメータの定義について説明する。本研究の4次元ランジュバン模型では、原子核形状を文献 [10] に基づき、図2の二中心模型(TCM:Two-center model)で表現した。この図は回転体の断面図である。二中心模型では、核分裂に至るまでの原子核形状は異なる中心を有する二つの回転楕円体が滑らかに接続されていると仮定している。

これらのパラメータを用い、次のようにランジュバン計算で直接用いる集団座標を定義する。第一の集団座標は2つの分裂片間の中心間距離  $zz_0$  である。複合核の質量数を  $A_{CN}$  とおくと、複合核の半径  $R$  は、

$$R = 1.2A_{CN}^{1/3} \quad (1)$$

と計算でき、この半径で規格化した分裂片の中心間距離  $zz_0$  は、中心間距離  $z_0$  を用いて、

$$zz_0 = \frac{z_0}{R} \quad (2)$$

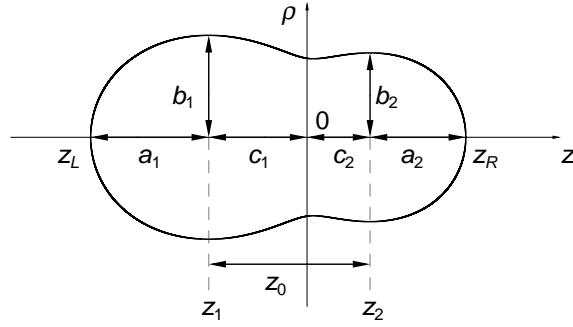


図2 二中心模型での各パラメータの定義

と定義される。また、2つの分裂片の変形度を表す集団座標  $\delta_1, \delta_2$  を、回転楕円体のパラメータ  $a_i, b_i$  ( $i = 1, 2$ ) を用いて以下の様に定義する：

$$\delta_i = \frac{3(a_i - b_i)}{2a_i + b_i}, \quad i = 1, 2. \quad (3)$$

$a > b$  の時  $\delta_i > 0$  となり、分裂片は Prolate 形状、すなわちラグビーボールのような横長形状をしている。一方、 $a < b$  の時は  $\delta_i < 0$  となり、分裂片は Oblate 形状、すなわちミカンのような扁平な縦長形状をしている。

また、質量非対称度  $\alpha$  を、左の分裂片質量を  $A_1$  右の分裂片質量を  $A_2$  として、次のように定義する：

$$\alpha = \frac{A_1 - A_2}{A_1 + A_2} \quad \left( = \frac{A_1 - A_2}{A_{CN}} \right). \quad (4)$$

この4つの無次元のパラメータ  $zz_0, \delta_1, \delta_2, \alpha$  をもって原子核の変形度を表す。また、これらがランジュバン方程式の変数となり、その時間発展を求めることとなる。

ここで、二つの回転楕円体が滑らかにつながっている部分について説明する [11]。単純に対称な二つの分裂片が合体していると考え、等ポテンシャル面は図3の下図の黒い実線のようになる。これは二つの調和振動子ポテンシャルが点  $z_m$  で接続し、合体している状況である。しかし、この考え方では接続面でポテンシャルの勾配が不連続となってしまう、数値計算がうまく収束しなくなる。そこで、接続付近で滑らかなポテンシャル面を持つように考えたのが、図3の下図の赤い実線である。赤い実線の導入によって、接続付近のポテンシャル面が滑らかになった。

この時、二つの分裂片の中心を含む軸状でのポテンシャルを表したものが、図3の上図である。二つの調和振動子のポテンシャルを表したのが黒い実線であり、滑らかな接続面を考えたことで、接続点付近で赤いポテンシャルの実線のように変化する。黒線の接続点の高さ  $E_0$  に対し、赤い実線の接続点の高さ  $E$  は小さいことが分かる。この比率がネックパラメータ  $\epsilon$  である：

$$\epsilon = \frac{E}{E_0}. \quad (5)$$

ネックパラメータ  $\epsilon$  は、二つの調和振動子の接続の度合いを表現している。 $\epsilon$  が1に近づくほどネックが細い形状となり、 $\epsilon$  が0に近づくほどネックが太い形状となる。本研究ではネックパラメータをある程度調整した後、一定値として計算を行った。

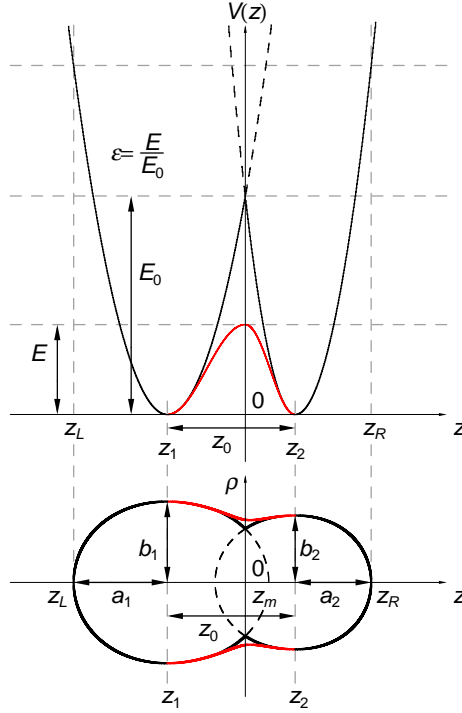


図3 二中心模型とネックパラメータの関係

次に、この複合核の形状を表す4つの集団座標の時間発展を4次元ランジュバン方程式に基づいて計算した [12]。すなわち、規格化された分裂片中心間距離  $z z_0$ 、左右の分裂片変形度  $\delta_1$ 、 $\delta_2$ 、質量非対称度  $\alpha$  の4つのパラメータを  $\{q_i : i = 1 \dots 4\}$  と一般化し、その時間発展を、式 (6)、(7) に従い解いた。これらは対応するラグランジアンから時間依存の変分原理により導出される。

$$\frac{dq_i}{dt} = m_{ij}^{-1} p_j \quad i = 1 \dots 4, \quad (6)$$

$$\frac{dp_i}{dt} = \frac{\partial F}{\partial q_i} - \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial q_i} m_{jk}^{-1} p_j p_k - \gamma_{ij} m_{jk}^{-1} p_k + \sqrt{T_i^{eff}} g_{ij} R_j(t). \quad (7)$$

ただし式 (7) の右辺第4項では  $i$  の和をとらない。変数  $p_i$  は  $q_i$  に共役な運動量であり、式 (6) で定義される。式 (7) において、第一項は自由エネルギー  $F$  に従うドリフト力、第二項は慣性質量が集団座標  $\{q_i\}$  に依存するために生じる項であり、第三項は集団座標が熱浴粒子から受ける摩擦力、第四項が集団座標が熱浴粒子の熱運動から受けるランダム力に対応する。記号  $m_{ij}$  は慣性質量テンソル、 $\gamma_{ij}$  は摩擦テンソルであり、まとめて輸送係数と呼ばれている。慣性質量テンソル  $m_{ij}$  は Werner-Wheeler 模型を、摩擦テンソル  $\gamma_{ij}$  は Wall and Window friction 模型を基に計算した。

式 (7) の第一項の  $F$  は Helmholtz(ヘルムホルツ) の自由エネルギーで、ポテンシャル  $V$ 、温度  $T$ 、エントロピー  $S$  と次の関係がある：

$$F = V - TS. \quad (8)$$

ここで、二中心模型の液滴形状ポテンシャルの自由エネルギー  $F_{LDM}$ 、Strutinski 法に基づく殻補正  $F_{shell}$ 、BCS 理論に基づく対補正  $F_{pair}$  とおく。量子補正を考慮した場合の自由エ

エネルギー  $F$  は、Strutinsky 法と BCS ペアリングの微視的エネルギー補正を取り入れているため、次のように書ける：

$$F = F_{LDM} + F_{shell} + F_{pair} = V(T=0)\Phi(E^*). \quad (9)$$

ここで  $E^*$  は全励起エネルギーから集団座標の運動エネルギーを引いた内部自由度のエネルギーであり、熱浴の温度  $T$  と以下のフェルミガス公式により関係している。

$$E^* = aT^2, \quad (10)$$

ただし  $a$  は準位密度パラメータである。また、関数  $\Phi$  は文献 [12] で導かれている。なお、量子補正を考慮していない場合は  $F$  は  $F_{LDM}$  のみであり、複合核は液滴模型として扱われる。

式 (7) の右辺第 4 項において、白色ノイズ  $R_j$ 、強度係数  $g_{ij}$  を用い、ランダム力を表現している。白色ノイズ  $R_j$  は以下の性質を有する：

$$\langle R_j(t) \rangle = 0, \quad (11)$$

$$\langle R_i(t)R_j(s) \rangle = 2\delta_{ij}\delta(t-s). \quad (12)$$

ここで  $\langle \dots \rangle$  は集合平均を表す。また、ランダム力の強度係数  $g_{ij}$  は揺動散逸定理 (Einstein relation) の関係式) により、式 (13) により決定される：

$$g_{ik}g_{kj} = T\gamma_{ij}. \quad (13)$$

我々は  $T = 1 \text{ MeV}$  としてこの式を用いて  $g_{ik}$  を計算し、式 (7) のように有効温度  $T_i^{eff}$  を集団変数毎に適用することにより、自由度毎に異なるゼロ点振動エネルギー  $\hbar\omega_i$  の補正を考慮するよう模型を改良した [13]。また、有効温度は Fröbrich [14] に従って以下の様に計算した：

$$T_i^{eff} = \frac{1}{2}\hbar\omega_i \coth \frac{\hbar\omega_i}{2T}. \quad (14)$$

### 3. 計算結果と核分裂片変形度が TKE に及ぼす影響

まず、4次元ランジュバン計算による複合核  $^{236}\text{U}$  及び  $^{240}\text{Pu}$  の分裂片質量数分布の計算結果は図 4 のようになった。図中の白丸は JENDL/FPY-2011 の独立分布の質量数分布 [15, 16]、+印はそれぞれ奥村 [17]、Schillebeeckx [18] らの核分裂片一次収率の質量数分布である。核分裂片質量数分布の実験データは、二山構造をとる。そして、4次元ランジュバン計算は量子効果の導入により、質量数分布のピーク位置や幅、高さ、山全体の形状などで良い再現性を見せた。

TKE の入射中性子エネルギー依存性の計算結果は図 5 のようになった。先に述べた通り、 $^{236}\text{U}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  いずれでも、TKE の実験データ (赤点) は入射中性子エネルギーが増加するにつれて減少している [2, 3, 4, 5, 6]。そして、4次元ランジュバン模型による計算結果は TKE の絶対値、並びに励起エネルギー増加に伴う TKE 減少をよく再現できることが分った。ただし黒い実線がファーストチャンス核分裂の計算結果、青い点線がマルチチャンス核分裂を考慮に入れた計算結果である。マルチチャンス核分裂生起後の結果では、とりわけ  $^{236}\text{U}$  でそ

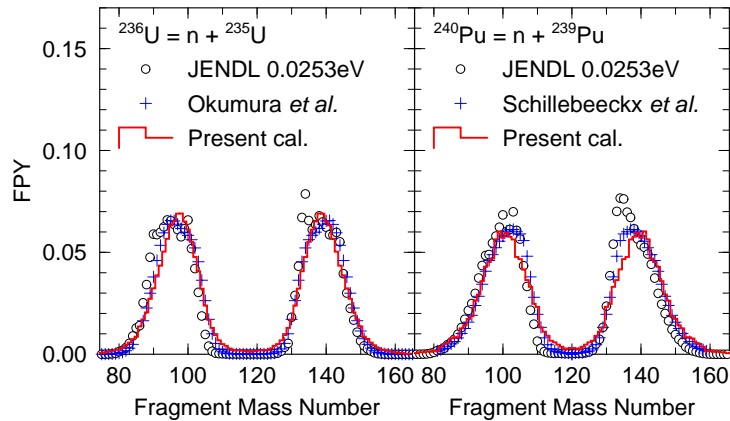


図4 複合核 $^{236}\text{U}$ (左図)、複合核 $^{240}\text{Pu}$ (右図)の励起エネルギー7 MeVにおける分裂片質量数の計算結果(赤線)である。黒い丸印はJENDL/FPY-2011による熱中性子エネルギーでの独立収率分布のデータである[15, 16]。青十字はそれぞれ奥村ら[17]、Schillebeecxら[18]による熱中性子での核分裂片質量数分布のデータである。

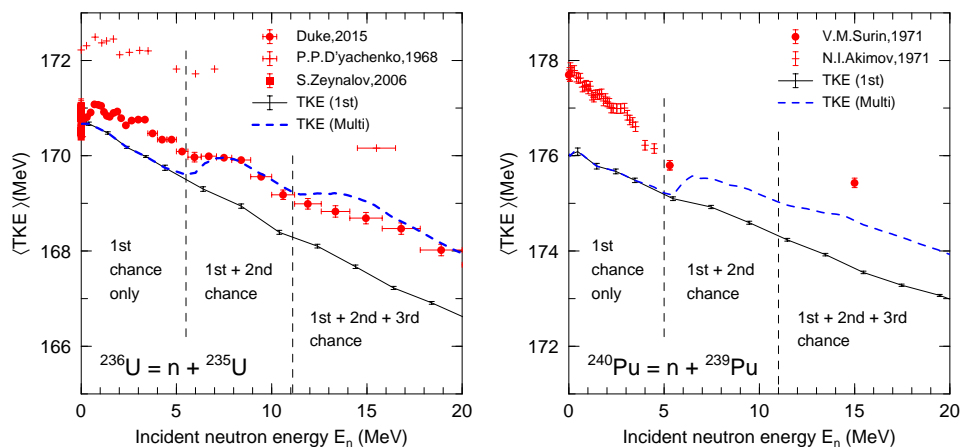


図5 複合核 $^{236}\text{U}$ (左図)、複合核 $^{240}\text{Pu}$ (右図)の平均TKEの入射中性子エネルギー依存性である。黒線はファーストチャンス核分裂の計算結果、青点線がマルチチャンス核分裂を考慮に入れた計算結果、赤点が実験データ[2, 3, 4, 5, 6]である。数 MeV を超える実験データには、マルチチャンス核分裂の効果が含まれている。

の絶対値や傾きの再現性でよい結果が得られたことが分かる。一方で、0 から 5 MeV 付近での計算結果(ファーストチャンス核分裂のみの領域)で完全に再現できていないが、本研究のテーマである平均TKEのエネルギー依存性(傾き)については非常に良く再現できている。また、その誤差は絶対値で0.6%程度であること、実験データは実際に測定された即発中性子発生後のデータを補正して核分裂片のTKEを求めているために生じる不確かさを有していることを考慮すると、全体として十分に高い再現性であると言える。

TKE減少の理由を探るため、核分裂片の変形度を求めた。図6は、分裂片が断裂した瞬間の分裂片形状の一例を円筒座標で表したものである。実線は励起エネルギーが7 MeV、点線は27 MeVの時の分裂片の形状である。左の軽い核分裂片と右の重い核分裂片に対応している。断裂直後の為、原子核は断裂点方向に伸びた非対称な形状に変形していることが分かる。

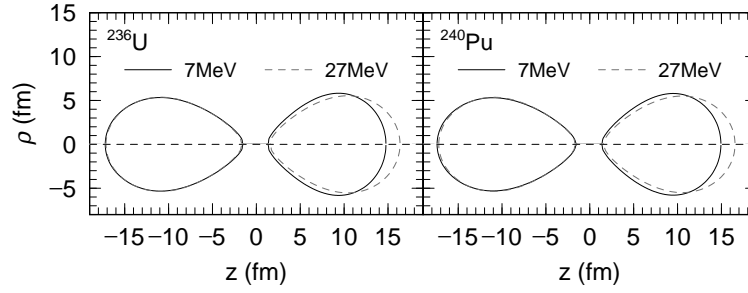


図6 複合核  $^{236}\text{U}$ (左図)、複合核  $^{240}\text{Pu}$ (右図)の分裂片が断裂した瞬間の分裂片形状の一例。実線は励起エネルギー 7 MeV、点線は 27 MeV の時の分裂片の形状である。

そして複合核  $^{236}\text{U}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  いずれでも、軽い分裂片の形状(変形度)は励起エネルギーによらずほぼ一定である一方、右側に描かれている重い分裂片は励起エネルギー 7 MeV で変形度は小さいが、27 MeV では変形が大きくなっていることが分かる。そこで、核分裂片の変形度を四重極モーメント  $Q_{20}$  (式(15))で評価することにした。密度分布は式(16)のように、核内で  $\rho_0$  の一定値、核外では 0 のシャープカット分布とした。

$$Q_{20}^{L,H} = \sqrt{\frac{5}{16\pi}} \int \rho^{L,H}(\mathbf{r})(2z^2 - x^2 - y^2)d^3r, \quad (15)$$

$$\rho^{L,H}(\mathbf{r}) = \rho_0 \cdot 1_{\{\mathbf{r} \subset V_{L,H}\}}. \quad (16)$$

ただし記号  $1_{\{\dots\}}$  は下添え字の条件が成り立てば 1、それ以外は 0 となる Dirac の指示関数である。 $L, H$  は軽いフラグメント、重いフラグメントを指す。図7は励起エネルギー 10 MeV での四重極モーメント  $Q_{20}$  の分布である。黒いヒストグラムは分裂片の各質量数に対する  $Q_{20}$  の平均値を示す。そして、分裂数の分布を表すグラデーションを重ねた。すなわち、右のスケールバーに従い青色から赤色に変化すると、ある質量数と  $Q_{20}$  の値に分裂片が集中していることを示す。

核分裂片は2つの場所に集中している。一つ目は質量数 85 から 110 までの軽い分裂片の部分である。ここの変形度は平均  $Q_{20}$  が 5 b 前後である。この領域では分裂片はラグビーボール状の形をしていることが分かる。二つ目は、分裂片質量数 125 から 145 程度までの重い分裂片の部分である。ここの変形度は平均  $Q_{20}$  が 0 に近く、分裂片は球形に近い形状をしていることが分かる。その典型的な状況が図6に描かれたものとなる。重い分裂片の変形度が小さいことは、二重魔法数核  $^{132}\text{Sn}$  の影響である。また、このように低励起エネルギーでの核分裂片の平均  $Q_{20}$  は、中性子多重度と同様の鋸歯構造となっていることが分かった。

次に励起エネルギーを変えて  $^{236}\text{U}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  の四重極モーメント  $Q_{20}$  の核分裂片の質量数依存性を計算し、図8に示す結果を得た。軽い核分裂片では変形度は励起エネルギーにほとんど関係なく  $Q_{20}$  として 5 b 前後の値を取ることが分る。一方、重い核分裂片では、低励起エネルギーでの変形度  $Q_{20}$  は 0 前後に達する鋭い谷を有するが、励起エネルギー増加とともにこの谷が浅くなる特徴的な励起エネルギー依存性を示すことが分かる。すなわち重い分裂片は、低励起エネルギーでは球形に近い形状を有するが、励起エネルギーの増加と共にラグビーボール場への変形度が増加することが分る。この変化は励起エネルギー増加に伴い、 $^{132}\text{Sn}$  による重い核分裂片の殻効果が消失するためと考えられる。



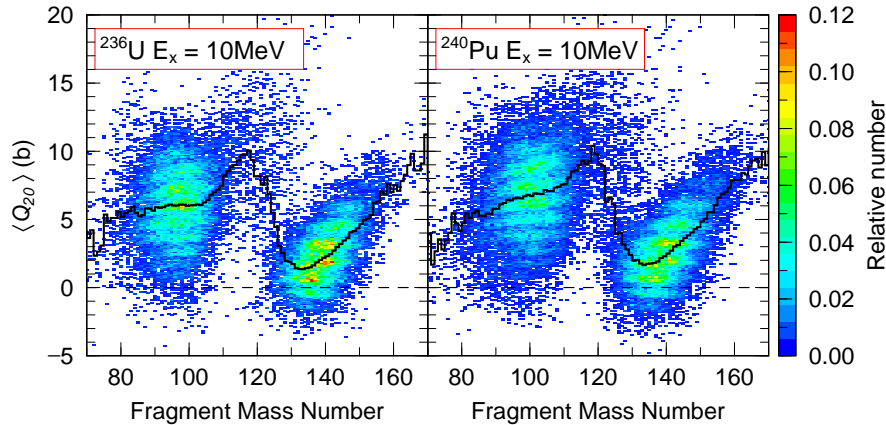


図7 複合核  $^{236}\text{U}$ (左図)、複合核  $^{240}\text{Pu}$ (右図) の励起エネルギー 10 MeV における、核分裂片の変形度を表す四重極モーメント  $Q_{20}$  の分布である。黒いヒストグラムは分裂片の各質量数に対する  $Q_{20}$  の平均値を示す。グラデーションは核分裂片の集中の度合いを表す。右のスケールバーに従い青色から赤色に色が変化すると、ある質量数と  $Q_{20}$  の値に分裂片が集中していることを示す。

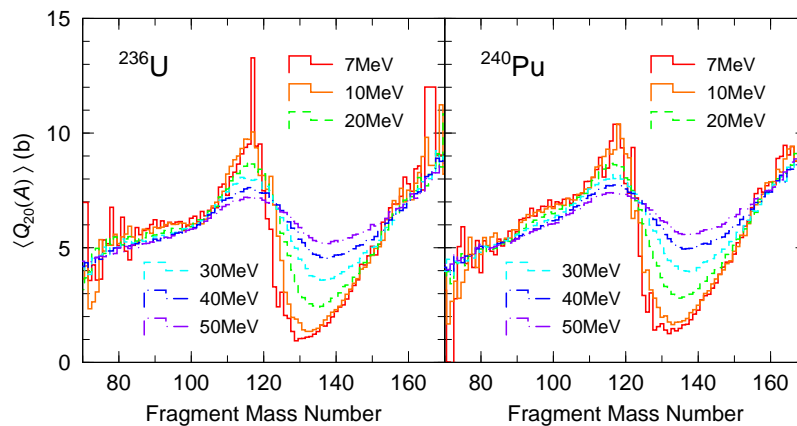


図8 複合核  $^{236}\text{U}$ (左図)、複合核  $^{240}\text{Pu}$ (右図) の、核分裂片の変形度を表す四重極モーメント  $Q_{20}$  の励起エネルギー依存性を示す。赤色の実線は励起エネルギー 7 MeV、橙色の実線は 10 MeV、緑色の破線は 20 MeV、シヤンの破線は 30 MeV、青色の一点破線は 40 MeV、紫色の一点破線は 50 MeV である。

この現象を模式的に考える。図9は断裂瞬間の分裂片が変形した様子を表したもので、上の図は低励起エネルギーの場合、下の図は高励起エネルギーの場合である。 $Q_{20}$  の励起エネルギー依存性より、左側の軽い分裂片は励起エネルギーによらず、常に同じラグビーボール状の形に変形している。一方、重い分裂片は励起エネルギーが低いと球形に近く、励起エネルギーが大きくなるとラグビーボールに変化する。この時、重い核分裂片の形状の変化のため、二つの分裂片の平均重心間距離  $d_{cm}$  は増加すると考えられる。

そこで断裂時における核分裂片間の平均重心間距離  $d_{cm}$  を計算し、図10を得た。 $^{236}\text{U}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  共に、入射中性子エネルギーが増加すると、平均重心間距離  $d_{cm}$  が増加することが分かる。そこで、TKEの主要部分である核分裂片間のクーロンエネルギーを考える。クーロン

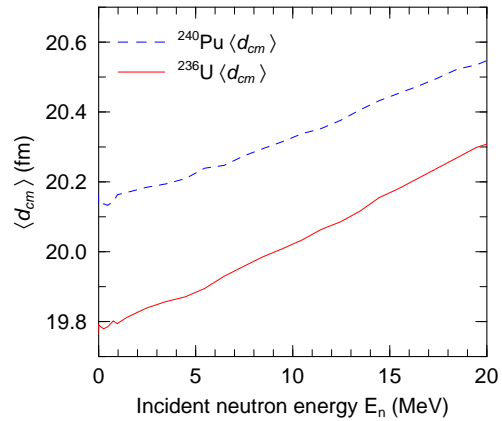
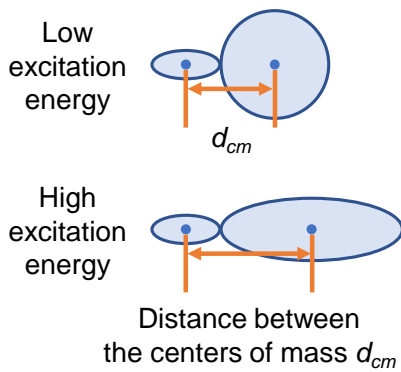


図9 低励起エネルギーと高励起エネルギーにおける核分裂片断裂瞬間の概念図

図10 平均重心間距離  $d_{cm}$  の入射中性子エネルギー依存性。赤い実線は  $^{236}\text{U}$ 、青い点線は  $^{240}\text{Pu}$  の計算結果である。

エネルギーは平均重心間距離  $d_{cm}$  と反比例の関係がある (式 (17))。このため、平均重心間距離  $d_{cm}$  が増加すると、核分裂片間のクーロンエネルギーが減少し、分裂片の TKE が減少したと解釈することができる。

$$KE_{coulomb} = \frac{Z_L Z_H e^2}{d_{cm}}. \quad (17)$$

従って入射中性子エネルギー、あるいは分裂核の励起エネルギーの増加に伴う核分裂片の TKE 減少は、重い核分裂片の形状が球形からラグビーボール状に変化することが主要因であると結論づけることができる。すなわち、低励起エネルギーで特徴的な二山分布を形成させる  $^{132}\text{Sn}$  の殻効果が励起エネルギーの増加とともに消失することがこの現象の主要因である。正確を期すると、二山分布を与えるもう一つの要因である  $A=144$  近辺の八重極変形核種に対する殻効果の消失も同時に起こるものと考えられる。

#### 4. 核分裂 mode が TKE に与える影響

従来、TKE 減少の原因として、主として実験家によってなされてきた解釈を検討した。図 11 の左図は、複合核  $^{236}\text{U}$  の励起エネルギー 10 MeV における、核分裂片の質量と TKE の分布を表したものである。右隣のスケールバーに従い、どの質量と TKE に核分裂片が集中しているかを示している。分裂片は3か所に集中していることが分かる。赤の線で示している、質量数 95 付近と 140 付近の2か所の集中は、大きい TKE を有する非対称分裂の Standard mode である。緑の線で示している、質量数 118 付近の集中は、小さい TKE を有する対称分裂の Super-long mode である。図 11 の右図に、断裂時の分裂片の様子を示す。

図 12 に、励起エネルギーを変化させたときの複合核  $^{236}\text{U}$  核分裂片分布図を示す。励起エネルギー増加とともに、全体の核分裂の数は増加している。そして非対称分裂の Standard mode の数の増え方よりも、対称分裂の Super-long mode の数の増え方のほうが大きいことが分かる。ここから、相対的に TKE の大きい Standard mode の数の割合が減少し、TKE の小さい

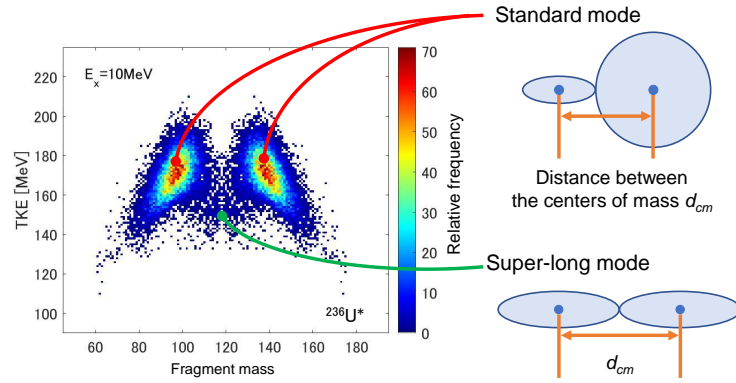


図 11 非対称分裂の Standard mode と、対称分裂の Super-long mode を示す。左のグラデーションは複合核  $^{236}\text{U}$  の励起エネルギー 10 MeV における、核分裂片の質量と TKE の分布を表したものである。分裂片は 3 か所に集中していることが分かる。非対称成分は Standard mode、対称成分は Super-long mode である。右の図に、それぞれの mode での核分裂瞬間の分裂片の様子を模式的に示す。

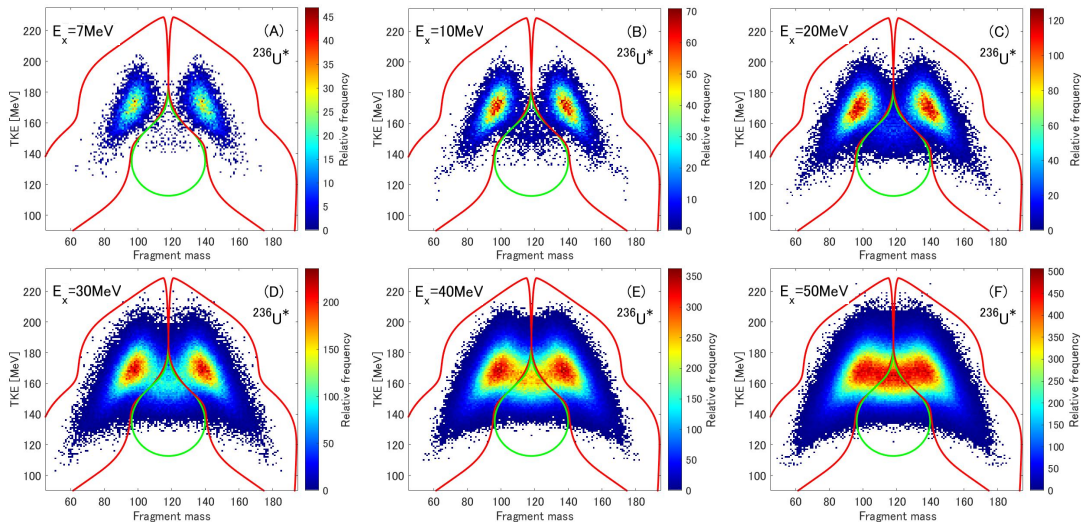


図 12 励起エネルギーを変化させたときの複合核  $^{236}\text{U}$  核分裂片の質量数と TKE の相関を示す。左上から励起エネルギー (A)7、(B)10、(C)20、(D)30、(E)40、(F)50 MeV である。右隣のスケールバーが数の多さを表わしている。それぞれの励起エネルギーでスケールバーの示す数は異なり、一番大きな値が一番濃い赤色となるようにしている。

Super-long mode の数の割合が増加したことが分かる。ゆえに、全体としての TKE は減少するものと考えられる。これが従来の解釈である。そこで、Standard mode と Super-long mode の平均 TKE の入射中性子エネルギー依存性を計算し、TKE 減少の 2 つの要因、すなわち 1) 重い核分裂片 (非対称成分) の変形度変化と、2) 対称成分の増加、がどのような割合で全体の TKE 減少に寄与するのか影響を調べた。

まず、Standard mode と Super-long mode の区切り方を検討しなくてはならない。図 13 は 4 つの区切り方の考え方である。図 13 の (A) では、複合核質量数の 2 分の 1 (図 13 では  $^{236}\text{U}$  なので 118) を中心として、 $\pm 5$  の区間を Super-long mode とし、その外側を Standard mode と

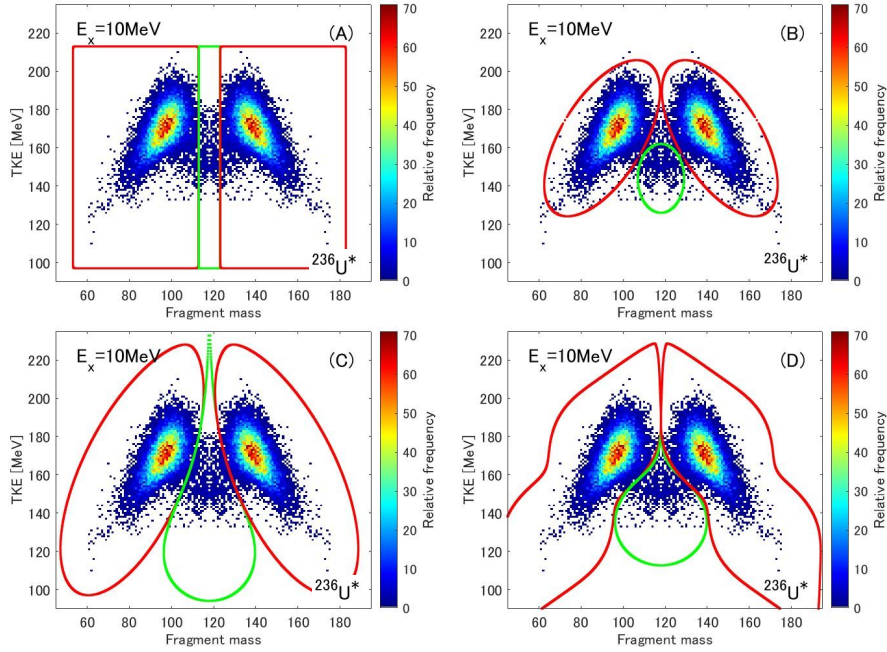


図 13 複合核  $^{236}\text{U}^*$ 、励起エネルギー 10 MeV での核分裂の mode の 4 通りの分類方法。Super-long mode の視点で、左上から (A) 分裂核質量数を基に区切る (四角)、(B) 楕円、(C) 液滴型の曲線、(D) さらなる調整後の液滴型の曲線の 4 つの分類方法を示す。

した区切り方である。この区切り方は実験で用いられる切り方である。しかし、Super-long mode と Standard mode の双方の成分がもう片方にも含まれており、うまい分類であるとは言えない。そこで、(B) では楕円を用いた。しかし、いずれの mode にも分類できなかった分裂片が比較的多く、取りこぼしが多いという問題がある。また、楕円の設定を各励起エネルギーにおいて調整しなければならず、取り方に一貫性がないといった問題がある。そこで、(C) では液滴型の曲線を用いた。この曲線は Johan Gielis が提唱した曲線であり、パラメータの調整で様々な形の曲線をとることができる [19]。この数式を加工し、今回の分別のために用いる曲線として式 (18)(極座標表示) を得た：

$$r(t) = c \left[ \left\{ \left| \frac{1}{a} \cos \left( \left( t - \frac{\pi}{2} \right) \cdot \frac{m}{4} \right) \right| \right\}^{n_2} + \left\{ \left| \frac{1}{b} \sin \left( \left( t - \frac{\pi}{2} \right) \cdot \frac{m}{4} \right) \right| \right\}^{n_3} \right]^{-1/n_1}. \quad (18)$$

この液滴型の曲線は、(B) での楕円の取り方に比べ、Super-long mode の範囲をより良く捉えていることが分かる。しかし、若干の Standard mode の成分が Super-long mode としてカウントされてしまっている。そこでさらにパラメータの調整を行って、(D) の液滴型の曲線を得た。以下ではこの (D) の区切り方でそれぞれの mode の TKE を求めた。

Mode 分けした TKE の計算結果は図 14 の通りとなった。入射中性子エネルギーの増加とともに、赤色の破線の Standard mode の TKE は減少し、緑色の一点破線の Super-long mode の TKE は増加することが分かる。Standard mode の TKE 減少は、先ほど述べた重い核分裂片の変形度増加によるものである。そして、全体としての平均 TKE(黒い実線) は減少を示している。その大きさは灰色の破線で表される入射中性子エネルギー 0 MeV の時の TKE と比べて、Standard mode の TKE 減少分 (灰色の破線から赤破線への変化) とさらなる減少分 で成り立っている。さらなる減少分は、TKE の小さい Super-long mode の割合増加の影響によ



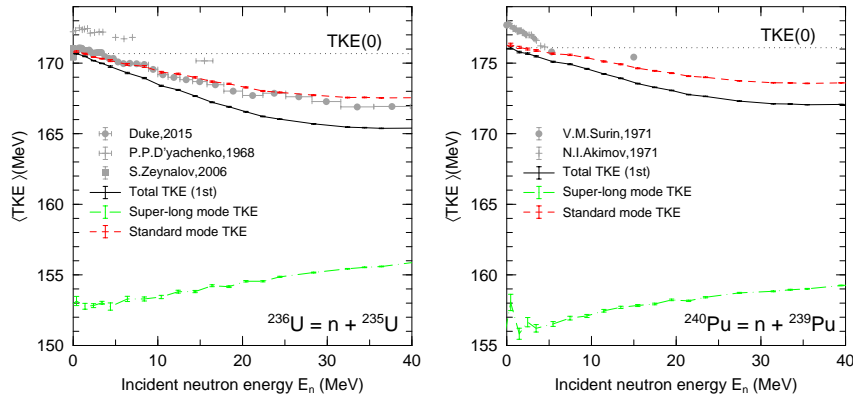


図 14 複合核  $^{236}\text{U}$ (左図)、複合核  $^{240}\text{Pu}$ (右図) の mode 分けした平均 TKE の入射中性子エネルギー依存性。灰色のドットは実験データ、灰色の破線は 0 エネルギーにおける TKE の計算値、黒い実線は分裂片全体の平均 TKE(ファーストチャンス核分裂) の計算結果、赤色の破線が Standard モードの平均 TKE 計算結果、緑色の一点破線が Super-long モードの平均 TKE 計算結果である。

るものである。そして、Standard mode の TKE 減少分を 3 とすると、Super-long mode の割合増加にともなう TKE 減少分は約 2 であり、3:2 で Standard mode の TKE 減少分が大きいことが分かった。つまり、核分裂片の平均 TKE の減少は、TKE の小さい Super-long mode の増加にともなう TKE 減少より、重い分裂片の形状変化による Standard mode の TKE 減少が支配的であると結論付けることができる。従って、従来議論されていたような、核分裂片の平均 TKE の減少が Super-long mode の増加によるものであるとの単純な描像は正しくないことが分かる。

## 5. おわりに

実験的に、入射中性子エネルギー(励起エネルギー)が増加すると、核分裂片の平均 TKE(全運動エネルギー)が減少することが知られていた。直観的な予想に反するこの現象について、その理由の解明を目指した。東工大の 4 次元ランジュバンモデルを利用し TKE を計算した結果、 $^{236}\text{U}$  の平均 TKE は約 1% 以下の精度で導出できた。平均 TKE が入射中性子エネルギーの増加とともに減少する原因として、入射中性子エネルギーが増加すると重い核分裂片の変形度が増加することを見出した。それにより核分裂片の平均重心間距離が増加し、断裂時における分裂片間のクーロン斥力のエネルギーが減少することが明らかになった。

核分裂には TKE の大きい Standard mode と、TKE の小さい Super-Long mode が存在する。従来、平均 TKE 減少の理由は、核分裂の mode の割合が変化するためと説明されてきた。そこで、ランジュバン計算で得られる核分裂片の質量数と TKE の相関図を基に、分裂片を Standard mode と Super-long mode に分類し、それぞれの平均 TKE の励起エネルギー依存性を調べた。その結果、TKE 減少に与える影響は、Super-long mode の割合の増加にともなう TKE 減少よりも、Standard mode の重い核分裂片の形状変化による TKE 減少のほうが支配的であることが分かった。

将来展望としては、核分裂過程の背景を解明するために、TKE のさらなる分析を進めることを考えている。特に、本研究では  $^{236}\text{U}$  系の TKE の変化については良く理解できたが、図 5 の右側パネルに示すように、 $^{240}\text{Pu}$  系の低エネルギーでの TKE の急激な変化は十分に説明できていない。直接観測にかかる TKE は即発中性子放出後のものであり、核分裂片の TKE に変換する際はモデルが介在するため実験データにも問題のある可能性があると思われるため、より多くのデータが蓄積されることを希望する。

## 6. 謝辞

本研究の遂行にあたり、作成されたランジュバンコードの提供、計算方法の教示、計算結果の解釈等のすべてにあたり指導をいただいた東工大の千葉 敏教授を始め、石塚 知香子助教、Fedir Ivanyuk 博士のご協力に感謝します。相関図のモード分け解析には研究室 OB である Mark Denis Usang 博士（マレーシア原子力庁）の作成した MATLAB プログラムを参考にしました。最後に、本研究の一部は JSPS 科研費 基盤研究 (C)18K03642 および 基盤研究 (B)21H 01856 の助成を受けたものです。

## 参考文献

- [1] 奥村森. 分裂片が核分裂生成物となるまで 即発中性子・ガンマ線放出. 日本原子力学会誌 ATOMOS, Vol. 61, No. 11, p. 775, 2019.
- [2] Dana Lynn Duke. Fission Fragment Mass Distributions and Total Kinetic Energy Release of 235-Uranium and 238-Uranium in Neutron-Induced Fission at Intermediate and Fast Neutron Energies. Technical Report LA-UR-15-28829, Los Alamos National Lab.(LANL), Los Alamos, NM (United States), 2015.
- [3] P. P. Dyachenko, B. D. Kuzminov, and M. Z. Tarasko. Energy and mass distribution of fragments from fission of  $\text{U}^{235}$  by monoenergetic neutrons from 0. to 15.5 MeV. *Yad.Fiz.*, Vol. 8, p. 286, 1968. ; *Sov. J. Nucl. Phys.* Vol.8, p.165, 1969.
- [4] S. Zeynalov, V. Furman, F. J. Hamsch, M. Florec, V. Yu. Konovalov, V. A. Khryachkov, and Yu. S. Zamyatnin. Investigation of mass-TKE distributions of fission fragments from the  $\text{U-235}(n,f)$ - reaction in resonances. In *Conference Proceedings: Proceedings of the 13th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei (ISINN-13), Dubna (Russia)*, p. 351, 2006.
- [5] V. M. Surin, A. I. Sergachev, N. I. Rezhnikov, and B. D. Kuzminov. Yields and kinetic energies of fragments in the fission of  $\text{U}^{233}$  and  $\text{Pu}^{239}$  by 5.5 and 15 MeV neutrons. *Yad.Fiz.*, Vol. 14, No. 5, p. 935, 1971. ; *Sov. J. Nucl. Phys.* Vol. 14, p.523, 1972.
- [6] N. I. Akimov, V. G. Vorobeva, V. N. Kabenin, N. P. Kolosov, B. D. Kuzminov, A. I. Sergachev, L. D. Smirenkina, and M. Z. Tarasko. Effect of Excitation Energy on Yields and Kinetic En-

- ergies of Fragments in Fission of  $\text{Pu}^{239}$  by neutrons. *Yad.Fiz.*, Vol. 13, p. 484, 1971. ; Sov. J. Nucl. Phys. Vol. 13, p.272, 1971.
- [7] Kazuya Shimada, Chikako Ishizuka, Fedir A Ivanyuk, and Satoshi Chiba. Dependence of total kinetic energy of fission fragments on the excitation energy of fissioning systems. *Physical Review C*, Vol. 104, No. 5, p. 054609, 2021.
- [8] 石塚知香子, 千葉敏. 核分裂の理論研究最前線 分裂する原子核の変化する形を追って. 日本原子力学会誌 *ATOMOS*, Vol. 62, No. 9, p. 499, 2020.
- [9] Chikako Ishizuka, Mark D Usang, Fedir A Ivanyuk, Joachim A Maruhn, Katsuhisa Nishio, and Satoshi Chiba. Four-dimensional langevin approach to low-energy nuclear fission of  $^{236}\text{U}$ . *Physical Review C*, Vol. 96, No. 6, p. 064616, 2017.
- [10] Joachim Maruhn and Walter Greiner. The asymmetric two center shell model. *Zeitschrift für Physik*, Vol. 251, No. 5, p. 431, 1972.
- [11] 末包昌太, 山路修平, 岩本昭, 山本徹, 原田吉之助. 二中心殻模型. 重イオン科学に関する原研-理研共催研究会報告 Report JAERI 1221, p. 77. JAERI, 1972.
- [12] FA Ivanyuk, C Ishizuka, MD Usang, and S Chiba. Temperature dependence of shell corrections. *Physical Review C*, Vol. 97, No. 5, p. 054331, 2018.
- [13] David Lawrence Hill and John Archibald Wheeler. Nuclear constitution and the interpretation of fission phenomena. *Physical Review*, Vol. 89, No. 5, p. 1102, 1953.
- [14] Peter Fröbrich and II Gontchar. Langevin description of fusion, deep-inelastic collisions and heavy-ion-induced fission. *Physics reports*, Vol. 292, No. 3-4, p. 131, 1998.
- [15] Jun-ichi Katakura. Jendl fp decay data file 2011 and fission yields data file 2011. 2012.
- [16] Jun-ichi Katakura, Futoshi Minato, and Kazuya Ohgama. Revision of the jendl fp fission yield data. In *EPJ web of conferences*, Vol. 111, p. 08004. EDP Sciences, 2016.
- [17] Shin Okumura, Toshihiko Kawano, Patrick Jaffke, Patrick Talou, and Satoshi Chiba.  $^{235}\text{U}$  (n, f) independent fission product yield and isomeric ratio calculated with the statistical hauser-feshbach theory. *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 55, No. 9, p. 1009, 2018.
- [18] P Schillebeeckx, Cyrillus Wagemans, AJ Deruytter, and R Barthélémy. Comparative study of the fragments' mass and energy characteristics in the spontaneous fission of  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{242}\text{Pu}$  and in the thermal-neutron-induced fission of  $^{239}\text{Pu}$ . *Nuclear Physics A*, Vol. 545, No. 3, p. 623, 1992.
- [19] Johan Gielis. A generic geometric transformation that unifies a wide range of natural and abstract shapes. *American journal of botany*, Vol. 90, No. 3, p. 333, 2003.