核データニュース, No.138 (2024)

読者の広場

新博士誕生

学位論文と論文投稿を通して学んだこと

東京工業大学 藤尾 和樹 kazuki.fujio96@gmail.com

1. はじめに

2024年3月に東京工業大学環境・社会理工学院融合理工学系原子核工学コースの博士後期 課程を修了し、博士(工学)の学位を取得しました。この度は新博士誕生ということで私の研 究内容や院生生活を紹介する記事を執筆する機会を頂いたので、博士課程で取り組んだ核分 裂反応に関する研究及び論文投稿を通して学んだことを書かせていただきます。

2. 博士課程で行った研究

2.1 核分裂反応と研究背景

まずはじめに核分裂反応について図1の概略図を用いて簡単に紹介します。中性子入射核 分裂の場合、標的核に中性子が入射することで複合核が形成されます。複合核は集団運動に より形状変化することで、球形に近い形状から次第に引き延ばされたような形になり、その 中心にくびれが生じます。ある程度引き延ばされた複合核はこのくびれから断裂し、2つの 核分裂片となります。これらの核分裂片は Coulomb 斥力により反対方向に加速された後、即 発中性子及び即発 γ 線を放出し、基底状態または準安定状態まで脱励起します。その後、中 性子過剰な核分裂生成物は β⁻ 崩壊を起こし、核分裂生成物の持つ励起エネルギーが中性子 分離エネルギーより大きい場合には遅発中性子を放出します。



図1 核分裂の概略図。

核分裂により核種が生成される量を表す核分裂収率や核分裂片から生じる中性子の多重度、 核分裂中性子のスペクトルは、使用済み核燃料中の放射性核種の総量の決定、原子炉の設計 や動特性の把握、核変換技術など、多岐にわたる原子力応用を考える上で重要な核データと なっています。放射能を伴う核分裂性核種を用いる実験は直接的な実施が難しく、測定でき ない核種も多いことから理論的手法による核分裂核データの整備も進められています。しか し、核分裂反応は上で説明したように複合核の形成、原子核の形状変化、即発崩壊、β⁻ 崩 壊と複数の異なる物理現象が関わる動的な過程であるため、理論的なギャップがそれぞれの 過程に存在します。例えば、図1の赤枠に示す複合核形成後から断裂までの過程と青枠の即 発崩壊過程に着目してみると、即発崩壊計算に必要となる断裂時の核分裂収率である一次収 率と核分裂片の全運動エネルギー (TKE) は現象論的な手法や実験結果を使用していることが 多いため、実験値の無い核種に対する即発崩壊計算は難しいのが現状です。核分裂反応の下 流の実験データは多い一方で、上流のデータは非常に限られているため、上流から一貫した 方法で核分裂核データを整備する手法の開発が必要とされています。

そこで、博士課程では複合核形成後から断裂までの過程と即発崩壊過程を系統的に評価 する理論枠組みを確立することを目的とした研究を進めました。複合核形成後から断裂まで の過程に関しては、一次収率と核分裂片の TKE を 4 次元 Langevin 模型 [1] により高精度で 計算する手法を開発しました。即発崩壊過程に関しては、Langevin 模型の結果を用いて比 較的実験結果の多い²³⁹Pu の中性子入射核分裂反応を対象に、TALYS [2] に実装されている Hauser-Feshbach 統計崩壊模型で核分裂片の即発崩壊計算を行い、核分裂観測量を実験値及び 評価値と比較することで精度を検証しました [3]。

2.2 複合核形成後から断裂までの過程:4 次元 Langevin 模型

原子核の形状変化の時間発展を記述できる4次元 Langevin 模型は、アクチノイド領域から超重原子核に亘る広い質量領域で核分裂片の質量数及び TKE 分布の系統性と異常性の理解に成功してきました [4]。その一方で、一次収率の幅やピーク位置の精度に課題が残っていました。そこで本研究では、一次収率に着目し精度向上の手法を開発しました。

一次収率の実験結果 [5] に注目すると、原子核の安定構造に関わる殻効果により、中性子の 増減で一次収率のピーク位置が変化することが知られています。このピークの変化には二重 魔法数と変形魔法数が関係していると考えられており、一次収率全体のピーク位置はこれら の魔法数の競合により決定します。この効果を取り入れるために、核分裂収率を成分別に分 類した Brosa らのアイデア [6] を採用し、質量数 A = 134、144 周辺にピークを持つ一次収率 の成分をそれぞれ Standard I (ST1)、Standard II (ST2) 成分としました。本研究では、Langevin 模型のモデルパラメータのひとつであり複合核に形成されるくびれに影響を与えるネックパ ラメータを調整することで 2 つの核分裂成分 Y_{ST1} と Y_{ST2} を別々に計算しました。そして、 全体の一次収率 $Y_{\rm ff}$ は、実験値を再現するように重みパラメータ ζ を最小二乗法で決定し、 式 (1) に示すように足し合わせることで計算しました。

$$Y_{\rm ff}(A, {\rm TKE}) = \zeta Y_{\rm ST1}(A, {\rm TKE}) + (1-\zeta)Y_{\rm ST2}(A, {\rm TKE})$$
(1)

また、対称成分である Superlong 成分は Langevin 計算では ST2 成分に含まれるため個別に足 し合わせておらず、damping factor を用いて調整しています。

図2は^{238,240,242}Puの自発核分裂、²³⁹Puの熱中性子入射核分裂における一次収率(上図) 及び平均TKE(下図)であり、緑の破線、青の1点鎖線はそれぞれ4次元Langevin 模型で計 算したST1成分、ST2成分を示しています。また、黒の実線はST1+ST2の結果でシンボル で示す実験値と比較可能な量です。自発核分裂の実験結果では²³⁸Puから中性子数が2ずつ 増加するにつれ、一次収率のピーク位置が重い領域から軽い領域に遷移する傾向が見られま す。計算結果ではST1成分とST2成分の足し合わせで一次収率を表現することによりこの傾 向を再現することに成功しました。重みパラメータくの決定は一次収率に対して行いました が、一部実験値とのずれが見られるものの、平均TKEも精度よく計算できることがわかり ました。さらに、本手法で計算する核分裂片全体の平均TKEは^{238,240,242}Pu(sf)では実験値 とおよそ2%以内で、²³⁹Pu(n_{th},f)ではおよそ1%以内で一致することもわかりました。

本手法で得られた結果を核分裂成分の足し合わせをしない従来の4次元 Langevin 模型による結果と比較したところ、一次収率のピーク位置及び幅と平均 TKE の精度向上が確認されました。また、本研究で決定した ζ は核分裂の親核である^{238,240,242}Pu それぞれの中性子数 N、陽子数 Z、質量数 A から計算できる (N - Z)/A に比例する系統性が見つかっています。 この系統性を利用することで、実験結果が存在しない反応系・エネルギー領域の一次収率と TKE を同時に計算できる可能性があるため、核データ整備に向けた研究が続いています。



図 2^{238,240,242}Puの自発核分裂、²³⁹Puの熱中性子入射核分裂における一次収率(上図)及 び平均 TKE(下図)。緑の破線、青の1点鎖線はそれぞれ4次元 Langevin 模型で計算した ST1 成分、ST2 成分。黒の実線は ST1+ST2 の結果で実験値(シンボル)と比較可能な量。

2.3 即発崩壊過程:Hauser-Feshbach 統計崩壊模型

上で得られた一次収率及び TKE を用いて TALYS に実装されている Hauser-Feshbach 統計 崩壊模型で核分裂片の即発崩壊計算を行いました。ただし、それぞれの核分裂片の即発崩壊 を計算する上で、核分裂片が持つ電荷及び励起エネルギーが必要です。本研究では実験結果 を基に作成された Wahl の Z_p 模型により、一次収率のそれぞれの質量数毎に電荷分布を用意 しました。核分裂片の励起エネルギーに関しては、Langevin 計算で得られた TKE を反応の Q 値を基に全励起エネルギーに変換し、軽い分裂片と重い分裂片の温度比を与える R_T 模型 を用いることで決定しました。

図3は²³⁹Puの中性子入射核分裂における即発中性子多重度です。左図は核分裂片の質量 数毎の結果であり、赤の実線、黒の破線はそれぞれ入射エネルギーが熱エネルギー(0.0253 eV)、5 MeV の計算結果で、シンボルは入射エネルギーが熱エネルギーのときの実験結果で す。入射エネルギーが熱エネルギーの計算結果と実験結果を比較すると、軽い分裂片では計 算値の過大評価、重い分裂片では計算値の過小評価が見られた一方で、実験結果に見られる ようなのこぎり歯状の構造の再現に成功しました。また、エネルギー依存の *R_T* 模型 [7] を 採用することで、実験で知られている入射エネルギーが上がると重い核分裂片からの多重度 が増加する傾向の再現にも成功しました。また、右図は即発中性子多重度の入射エネルギー 依存性の結果です。入射中性子のエネルギーが上がるにつれて多重度が増加する傾向の再現 に成功し、特に熱エネルギーで評価値を良く再現する結果が得られました。



図3 (左)²³⁹Pu の中性子入射核分裂における核分裂片の質量数毎の即発中性子多重度。 赤の実線、黒の破線はそれぞれ入射エネルギーが熱エネルギー (0.0253 eV)、5 MeV の計 算結果。シンボルは入射エネルギーが熱エネルギーのときの実験結果。(右) 即発中性子 多重度のエネルギー依存性。破線は評価値、赤の実線は計算結果、シンボルは実験結果。

図4は²³⁹Puの熱中性子入射核分裂における独立収率で、赤の実線は計算値、シンボルは 評価値及び実験値を示しています。計算結果では評価値及び実験値に見られる微細構造が確 認でき、独立収率のピーク位置及び幅を概ね再現する結果が得られました。

以上に示したように、4 次元 Langevin 模型で計算できる一次収率及び TKE の精度向上を 達成し、この結果を基に即発崩壊計算をすることで、原子力応用で重要な核分裂観測量の体 系的計算を可能にしました。この方法を²³⁹Pu の反応系で検証することで、さらなる改良が 一部必要であるものの直接測定が困難な核種に応用できる可能性があることが明らかになり ました。

現在も精度を高めるための研究を続けており、Bucharest 大学との新たな共同研究では、核 分裂片の変形度を考慮した方法で分裂片の励起エネルギーを取り扱うことで、Langevin 模 型を用いた計算でも質量数毎の即発中性子多重度の精度が向上することが明らかになりまし た [8]。このように、理論計算により核分裂核データを十分な精度で与えることができる手



図 4²³⁹Pu の熱中性子入射核分裂における独立収率。赤の実線は計算値、シンボルは評価値及び実験値。

3. 論文投稿を通して学んだこと

博士課程1年のときに、国外インターンシップで6か月間、IAEAのNuclear Data Section でArjan Koning 氏と奥村森氏の下でTALYSを使った業務に携わりました。ここではTALYS に内蔵されている3種類の一次収率ファイルによって、計算結果がどのように変化するかを 調査しました。また、²³⁵Uに対する中性子入射核分裂反応を対象に、中性子多重度や中性子 スペクトルに注目しTALYSで扱う核分裂片のスピン・パリティ分布や励起状態のエネルギー 準位数のパラメータを実験値や評価値と合うように決定しました[9]。このインターンシップ に参加するまで自身の研究は複合核形成後から断裂までの過程が主であったため、ミーティ ングや文献の調査を通して即発崩壊過程の理解も深めることもできました。また、専門知識 に加えて信念を強く持つことが重要であることを学ぶことができました。以下で IAEA での 成果を論文にまとめる際のエピソードを紹介します。

Monte-Carlo 法に基づき核分裂反応を計算する GEF コードで作成した一次収率を入力デー タとして、TALYS により幅広い核種で即発中性子多重度と γ 線多重度を計算しました。こ の結果と GEF コードのみで計算した多重度を比較した結果を論文に載せる予定で論文投稿 を進めていました。この2つの計算結果の比較では、中性子多重度で同じ傾向が見られた一 方、 γ 線多重度で異なる傾向が見られました。しかし、これらの結果に見られる差の原因の 詳細が明らかになっていなかったため、査読者からこの結果に関する章を省略するように助 言を頂きました。ここから共著者の方と反論の文章を作成し、査読者の方との議論が始まり ました。Arjan をして "This became the longest discussion on a resubmitted paper that I have ever had!" と言わしめ、更には TALYS コードや本論文作成の件で度々助けてくださっていた K さ んにも「まだやっていたのか」と言われてしまうほどの長期戦となりました。最終的にはや り取りを確認していたエディターが査読者の意見に従うよう仰ったため、著者の希望は通ら ず結果の一部を省略することで論文は受理されました。

正直に申し上げると、査読者の指摘は論文全体の結果を大きく変化させないため査読者の 意見に従えば良いではないか、と査読者から最初のメールを頂いたときは考えていました。 しかし、たとえ結果が大きく変化しない内容でも、自身の信念を持ちそれを相手に伝えるこ とが重要であることを他の共著者と議論を重ねる中で学びました。結局、インターンシップ が終わって1年と4か月ほど格闘していたことになりますが、この議論を通して研究を続け る上で大切なことを学ぶことができたと今では考えています。

話は脱線しますが、このインターンでは論文で良く名前を見かける研究者にお会いする機 会もあり、お話しすることができたため非常に良い経験になりました。また、環境が変化す ると取り組んだことのない研究に参加する可能性が高いため、留学やインターンシップは興 味や知識を広げる良い機会であることがわかりました。現在修士・博士課程で留学やインター ンシップの参加を考えている方は国内外問わず、積極的に参加することをお勧めします。

4. おわりに

指導教員の片渕竜也准教授には実験に参加する機会をいただいたことに加え、博士論文を 執筆する際に数多くのアドバイスをいただきました。千葉敏名誉教授には修士課程から博士 課程にわたり、核分裂反応の基礎をはじめ、研究活動の基本を教えていただきました。石塚知 香子助教には論文や文書の添削を多くしていただき、研究を円滑に進められるように環境を 整えていただきました。研究室のメンバーには研究の議論のみならず、日々の生活まで多く支 えていただきました。IAEA の Nuclear Data Section にはインターンシップ生として受け入れ ていただき、拙い英語ながらも業務をさせていただきました。中でも奥村森博士にはウィー ンでの生活から業務まで様々な面でお助けいただきました。Los Alamos National Laboratory の河野俊彦博士には統計崩壊の研究を進めるにあたり、ご助言をいただき、計算コードの確 認をしていただきました。JAEA の核データ研究グループには夏期休暇実習生として受け入 れていただき、原子核物理の学習をさせていただきお世話になりました。また、原子力学会 では質問やアドバイスを様々な方からいただきました。全ての方々のお名前を挙げることは 叶いませんが、様々な方に支えられたおかげで研究を続けられました。感謝申し上げます。

2024年6月より米国の Los Alamos National Laboratory の T-2 グループでポスドクとして、 原子核反応の研究に携わる予定です。世界最高の頭脳が集まる研究所で研究ができることに 嬉しい反面、まだまだ知識不足で、英語も未熟であるため不安もかなり大きいです。これま での研究活動で学んだ知識や頂いたアドバイスを基に、新たな研究に励みます。今後も何か の機会でお世話になることが多いかもしれませんが、何卒よろしくお願いいたします。

参考文献

 C. Ishizuka, M. D. Usang, F. A. Ivanyuk, J. A. Maruhn, K. Nishio, and S. Chiba, : "Fourdimensional Langevin approach to low-energy nuclear fission of ²³⁶U", Phys. Rev. C 96, 064616 (2017).

- [2] A. Koning, S. Hilaire, and S. Goriely, : "TALYS: modeling of nuclear reactions", Eur. Phys. J. A 59, 131 (2023).
- [3] K. Fujio, S. Okumura, C. Ishizuka, S. Chiba, and T. Katabuchi, : "Connection of fourdimensional Langevin model and Hauser-Feshbach theory to describe statistical decay of fission fragments", J. Nucl. Sci. Technol. 61, 84-97 (2024).
- [4] M. D. Usang, F. A. Ivanyuk, C. Ishizuka, and S. Chiba, : "Correlated transitions in TKE and mass distributions of fission fragments described by 4-D Langevin equation", Sci. Rep., 9, 1525 (2019).
- [5] P. Schillebeeckx, C. Wagemans, A.J. Deruytter, and R. Barthelemy, : "Comparative study of the fragments' mass and energy characteristics in the spontaneous fission of ²³⁸Pu, ²⁴⁰Pu and ²⁴²Pu and in the thermal-neutron-induced fission of ²³⁹Pu", Nucl. Phys. A 545, 623-645 (1992).
- [6] U. Brosa, S. Grossmann, and A. Müller, : "Nuclear scission", Phys. Rep. 197, 167-262 (1990).
- [7] S. Okumura, T. Kawano, A. E. Lovell, and T. Yoshida, : "Energy dependent calculations of fission product, prompt, and delayed neutron yields for neutron induced fission on ²³⁵U, ²³⁸U, and ²³⁹Pu", J. Nucl. Sci. Technol, 59, 96-109 (2022).
- [8] A. Tudora, K. Fujio, C. Ishizuka, and S. Chiba, : "Prompt emission calculations for ²³⁹Pu(n_{th},f) with the DSE model code and a pre-neutron fragment distribution Y(A,TKE) based on the four-dimensional Langevin model", Eur. Phys. J. A 60, 25 (2024).
- [9] K. Fujio, A. Al-Adili, F. Nordström, J.-F. Lemaître, S. Okumura, S. Chiba, and A. Koning, : "TALYS calculations of prompt fission observables and independent fission product yields for the neutron-induced fission of ²³⁵U", Eur. Phys. J. A 59, 178 (2023).



図5 冬のある日の Karls 教会。