

核分裂遅発ガンマ線スペクトルの特徴とデータの現状

(NAIG) 吉田 正

はじめに

原子炉炉心とその周辺に話を限っても、核反応によって生成されるガンマ線の挙動の正確な把握は、核設計・解析計算の最も重要なアイテムの一つであることは論をまたない。たとえば、FBR 炉心での核発熱の1割強はガンマ線によるものであるし、ブランケットではこの割合は30%から80%に達する。また、炉心で発生するガンマ線量の評価は原子炉遮蔽計算の出発点となる。従って、炉心とその周辺で生起する種々の中性子反応、特に核分裂反応、に際してどんなエネルギーのガンマ線がどれだけ発生するかを与える基礎核データの整備は特に重要であり、JENDL-3 や ENDF/B-VI, -V といった総合的なデータファイルにはこのガンマ線生成データが評価・収納されている。しかし、これから述べる核分裂遅発ガンマ線に関してはこれらのデータファイルに納められているデータは断片的なものでしかなく、ユーザーが生成量評価計算を行うには極めて不十分であり、これが本稿のテーマとなる。

即発ガンマ線と遅発ガンマ線

炉心で発生するガンマ線の大半は、核分裂ガンマ線である。しかし、一口に核分裂ガンマ線と言っても、それは生成メカニズムの全く異なる2つの成分、即発成分と遅発成分とに分けられる。前者が核分裂事象と同時に時を置かず放出されるのに対し、後者は核分裂によって生じる核分裂生核種(FP)のベータ崩壊に伴って放出される。従って、遅発ガンマ線を直接に放出するのは寿命その他が異なる極めて多くのFP核種であって、実際に観測されるものは関与する全てのFP核種からの寄与が足し合わさった複合スペクトルである。

このように両者は発生の機構が大きく異なるが、その大きさはほぼ同程度であり、核分裂に伴って放出されるガンマ線のほぼ半分は遅発成分である。表1に、核分裂によって放出されるエネルギーをその形態によって分類して示す。例えばU-235の場合、即発ガンマ線6.97MeV に対して遅発ガンマ線6.33MeV と殆ど同程度であり、さらにU-238では遅発ガンマ線のほうが大きな値になっている。従って、核分裂によって生成するガンマ線を計算する際に遅発ガンマ線を無視するのは片手落ちである。

遅発ガンマ線データ整備の現状

上述の様に遅発ガンマ線の生成には極めて多数のFP核種とそのベータ崩壊が関与し、その結果、即発ガンマ線とは異なるつぎの様な特殊な事情が発生する。

(1) 即発ガンマ線は核分裂事象と同時に放出されるのに対し、遅発ガンマ線の放出が完了するまでには核分裂事象終了後（原理的には）ほぼ無限の時間を必要とする。（表1の値は1核分裂事象後、無限時間まで放出エネルギーを積算したものである。）

(2) 遅発ガンマ線のエネルギースペクトルは、核分裂事象終了後の経過時間（以後冷却時間と言う）の関数であり、この冷却時間とともに高エネルギー成分が減少しスペクトルは軟化して行く。

上記(1),(2)の結果、遅発ガンマ線の生成量とそのエネルギースペクトルを特定するには、核分裂反応の継続時間（原子炉の運転時間）と冷却時間を特定する必要が生じる。しかし、運転時間と冷却時間のすべての組み合わせ毎に生成量とそのエネルギースペクトルを与えるのは、データファイルの編集乃至使用上の観点からも実際的でない。この困難を避けるために、実際の遅発ガンマ線のemitterである（不安定）なFP核種毎にスペクトルを与え、データユーザーが個々のFP核種毎の寄与を足し合せて生成量とスペクトルを計算するようにすることも可能である。しかし、その場合ユーザーはガンマ線線源計算に先立ち常に大掛りな（崩壊熱計算でやるような）総和計算を要求され、これも実際的ではない。

核分裂即発ガンマ線や中性子捕獲ガンマ線等が中性子核データの重要な一部分と認識され、JENDL-3やENDF/Bといった主要なデータライブラリーに収納されているのに反し、遅発ガンマ線データが事実上収納されていない大きな理由がここにある。

平衡スペクトル

前節で遅発ガンマ線の生成量とそのエネルギースペクトルは核分裂反応の継続時間（運転時間）と冷却時間に依存すると述べた。しかし、原子炉がある程度の時間継続して運転を続けると遅発ガンマ線の発生は一種の平衡状態に達し、時間あたりの生成量とそのスペクトルは定常となる。そして、運転中の原子炉のガンマ線発熱や遮蔽計算を問題とする限り、この平衡スペクトルを知れば十分であると言える。（平衡エネルギー生成量は表1の値と同じになる。）

しかし、この平衡スペクトルを評価しファイルに収納するとしても、問題は残る。ひとつは、現在評価済みデータファイルのフォーマットとして世界の標準となっているENDF/Bフォーマットには遅発ガンマ線のためのエントリーが用意されていないことであるが、これは必ずしも本質的な困難ではない。これよりもっと本質的なのは、平衡スペクトルの測定が困難で、実際測定データもない事である。遅発ガンマ線の測定としては、東大の秋山らの測定²⁾、Oak RidgeのDickensらの測定³⁾があるが、これらは共に瞬時の核分裂事象後、ガンマ線スペクトルを冷却時間毎に測定したものである。これらのデータだけから平衡スペクトルを構築することは出来ず、どうしても計算に頼らない訳に行かない。

遅発ガンマ線スペクトルの計算

遅発ガンマ線スペクトルの計算は以下の手順で行われる。1)核分裂によって生じるFP核種の量を核分裂収率データより算出し、2)生成消滅の方程式を解いてその運転・冷却時間でのFP核種の存在量 N_i を求める。(i は核種を特定するインデックス)。3)次に、各核種の放出するガンマ線のスペクトルと崩壊定数を N_i に乗じて総和をとる。(最後の3)のステップでスペクトルのかわりに総放出エネルギーを乗じれば崩壊熱計算となる。)このような計算を行い平衡スペクトルを得ようとする、ひとつの本質的な困難に達する。それは、概して大きなガンマ線エネルギーを放出する短寿命のFP核種の大半はガンマ線スペクトルの測定データが無い、あっても断片的で不完全であることである。これが、これまで、遅発ガンマ線平衡スペクトル計算の試みが殆ど為されていなかった理由である。

筆者らは、これら測定データの無い短寿命FP核種のガンマ線スペクトルを、ベータ崩壊の大局的理論とガンマ崩壊のカスケードモデルにより計算する方法を提案し、⁴⁾ これに基づいて計算したスペクトルを、既出の東大²⁾およびOak Ridge³⁾のデータと詳細に比較して手法の有効性を示した。⁵⁾ 比較の一例を図 1に示す。理論スペクトルの導入により、実験との一致が大幅に改善されているのがわかる。測定データの無い短寿命FP核種のガンマ線スペクトルを理論計算によって得ようとする試みは、米国のMannらのBETAコード⁶⁾でも計画されているようだが、今のところ内容は報告されていない。

筆者らは上記の理論スペクトルを必要に応じて採用し、文献5)の方法に準じて1年および3年核分裂が継続した(原子炉を運転した)後の遅発ガンマ線スペクトルを計算した。対象とした核分裂核種はU-235, -238, Pu-239, -240, -241 の5核種で、計算結果はガンマ線エネルギーを50及び10群に分割した上で表のかたちにとまとめた。上記の短寿命核種の測定データの不足のため、この種の計算を広範に行った例は今のところ他に殆どない。結果はJAER-Mレポートとして別途刊行するが、⁷⁾ ここでは計算結果の特徴を概観しておく。

遅発ガンマ線スペクトルの特徴

図 2に実験で得られたスペクトルだけで計算した平衡スペクトル(脚注)と、不足分を理論計算で補って計算した平衡スペクトルを比較して示す。不足分は斜線の部分に相当しこれは総エネルギーの約25%である。即ち、理論スペクトルを導入しない場合はエネルギーにして約25%の過少評価となる訳である。

表 2に遅発ガンマ線総エネルギーを今回の計算と、Sherによる評価値¹⁾とを比較して示

脚注) Pu-239を例にとると、1年運転後の1核分裂あたりの遅発ガンマ線エネルギーは5.29MeVであり、これは3年運転の場合99.2%に達する。更に運転を続ければエネルギーは漸増するが、1~2%を問題にせずこれを平衡スペクトルとみなす。

す。Pu-240を別にすると両者はかなり良く一致している。Sherの評価は我々の計算とは全く別の方法で為されていることを考えると、この一致は今回の計算の妥当性の傍証となっていると言って差支えない。(計算の妥当性は文献5)の測定スペクトルとの比較により、より直接的に示されている)。Pu-240に関しては、今回の計算に問題があるとする核分裂収率データを疑う余地が生じる。この場合には、同じ核分裂収率データを採用しているJNDC FP崩壊データライブラリーによるPu-240崩壊熱計算値には注意が必要となる。同ライブラリーによる崩壊熱計算値はTh-232からPu-241にいたる殆どの核に対して測定との良好な一致を示すが、Pu-240崩壊熱はこれまでのところ測定が全く為されていない。

図 3に、U-235の遅発ガンマ線平衡スペクトル計算値と即発ガンマ線スペクトルを比較して示す。両者は互いにかかなり類似しており、ここから、総エネルギーさえ正しく補正しておけば、遅発ガンマ線平衡スペクトルを即発ガンマ線スペクトルで置換えても近似として悪くないという重要な結論が導ける。(近似の精度を定量的に別途把握しておく必要が残るとしても)。

図 4に遅発ガンマ線スペクトルの冷却時間依存性を示す。ここに見られるように、スペクトルの硬い成分は冷却時間とともに急激に減少して行き、スペクトルの冷却時間依存性は非常に大きい。

図 5に平衡スペクトルの核種依存性の例として、U-235とU-238の比較を示す。ここには示さないが、Pu同位体を含めて考えても、核種依存性は比較的穏やかであることがわかる。

まとめ

本稿では、これまであまり議論のされたことの無い平衡スペクトルを中心に、遅発ガンマ線の特徴を観視した。なかでも、この平衡スペクトルが即発ガンマ線のエネルギースペクトルに類似しているという点は重要である。なぜなら、運転中の原子炉を問題にする限り、遅発ガンマ線のスペクトルをJENDLやENDF/B等にデータの用意されている即発ガンマ線のそれで代用できれば、計算が格段に簡単になるからである。⁸⁾

いずれにせよ、シャットダウン後ばかりでなく運転中の原子炉に於いても、遅発ガンマ線は発生するガンマ線のうちの主要な成分であり、計算上必要とされる精度に応じたやり方でこれを正しく考慮する必要がある。この種の検討に際しては、別途準備中の遅発ガンマ線スペクトルデータ集⁷⁾が参考となる事を期待し、本稿のまとめとしたい。

References

- 1) R.Sher, 'Fission Energy Release for 16 Fissioning Nuclides,' Proc. Specialist Mtg. on Nucl. Data Evaluation and Procedures, Brookhaven (1983)
- 2) M.Akiyama, Doctoral Thesis, University of Tokyo, (1980); see also M.Akiyama and J.Katakura, JAERI-M 88-252 (1988)
- 3) J.K.Dickens, et al., ORNL/NUREG-39 (1978) and ORNL/NUREG-66 (1980)
- 4) T.Yoshida and J.Katakura, Nucl. Sci. Engn., **93**, 193 (1986)
- 5) J.Katakura and T.Yoshida, 'Gamma-Ray Spectrum Data Library of Fission Product Nuclides and Its Assessment,' JAERI 1131 (1987)
- 6) F.M.Mann, C.Dann and R.E.Schenter, Phys. Rev., **C25**, 524 (1982)
- 7) T.Yoshida, J.Katakura and H.Ihara, preparing for publication
- 8) M.Kawashima, T.Yoshida, T.Yokayama and T.Yamamoto, 'An Analysis of the Gamma-Ray Deposition in a Heterogeneous LMFBR,' Proc. Int. Conf. on Reactor Phys., Jackson Hole, (1988)

Table 1 Recoverable Energy Released per Fission Event
(all in MeV, due to Sher, ref. 1)

	U-235	U-238	Pu-239	Pu-241
Gamma-Ray Energy				
Prompt Gamma-Ray	6.97	6.54	7.76	7.64
Delayed Gamma-Ray	6.33	8.02	5.17	6.40
Other Forms of Energy Release				
Fragment Kinetic Energy	169.12	169.57	175.78	175.36
Neutron Kinetic Energy	4.79	5.51	5.9	5.99
Beta-Ray Energy	6.50	8.25	5.31	6.58

Table 2 Evaluated and Calculated Total Delayed Gamma-Ray Energy
(all in MeV)

	U-235	U-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241
Sher's Evaluation	6.33	8.02	5.17	6.31	6.40
Present Calculation	6.42	7.80	5.33	5.74	6.45

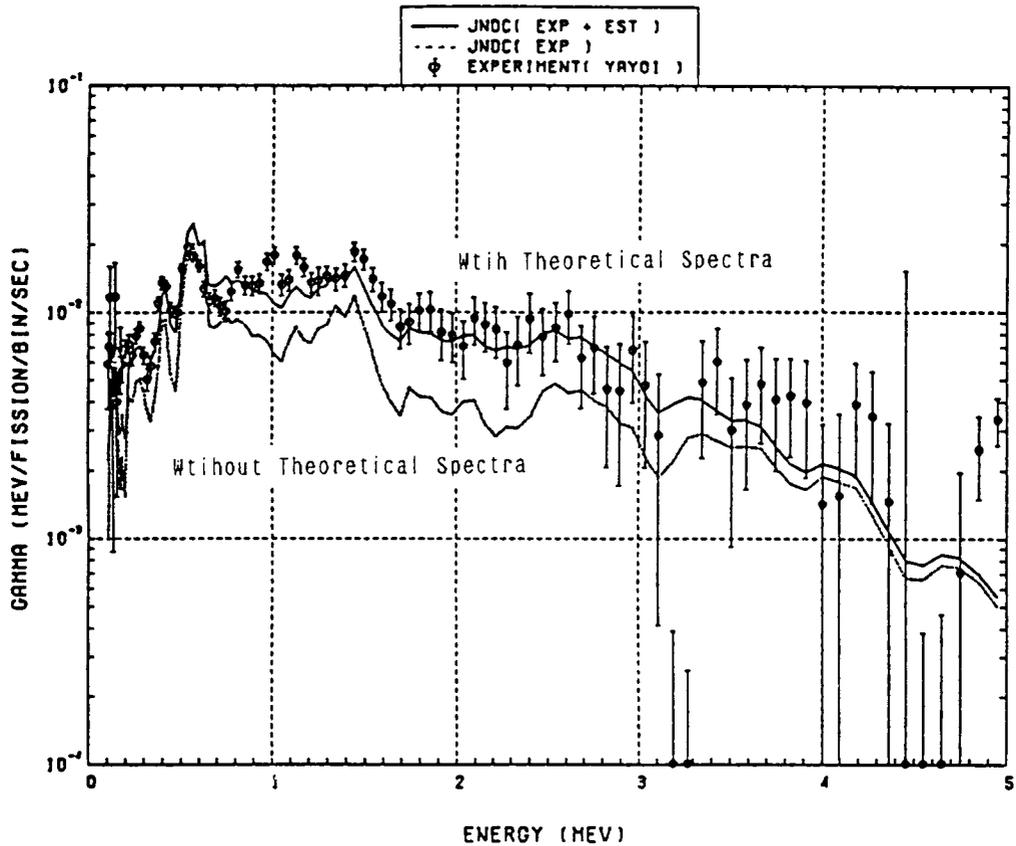


Fig.1 Comparison of gamma-ray energy spectrum at 19 sec after a fission burst of ^{235}U by fast neutron. Solid line is a calculation complemented by the estimated spectra and dotted line a calculation excluding them. The measurements were performed at the University of Tokyo/2/.

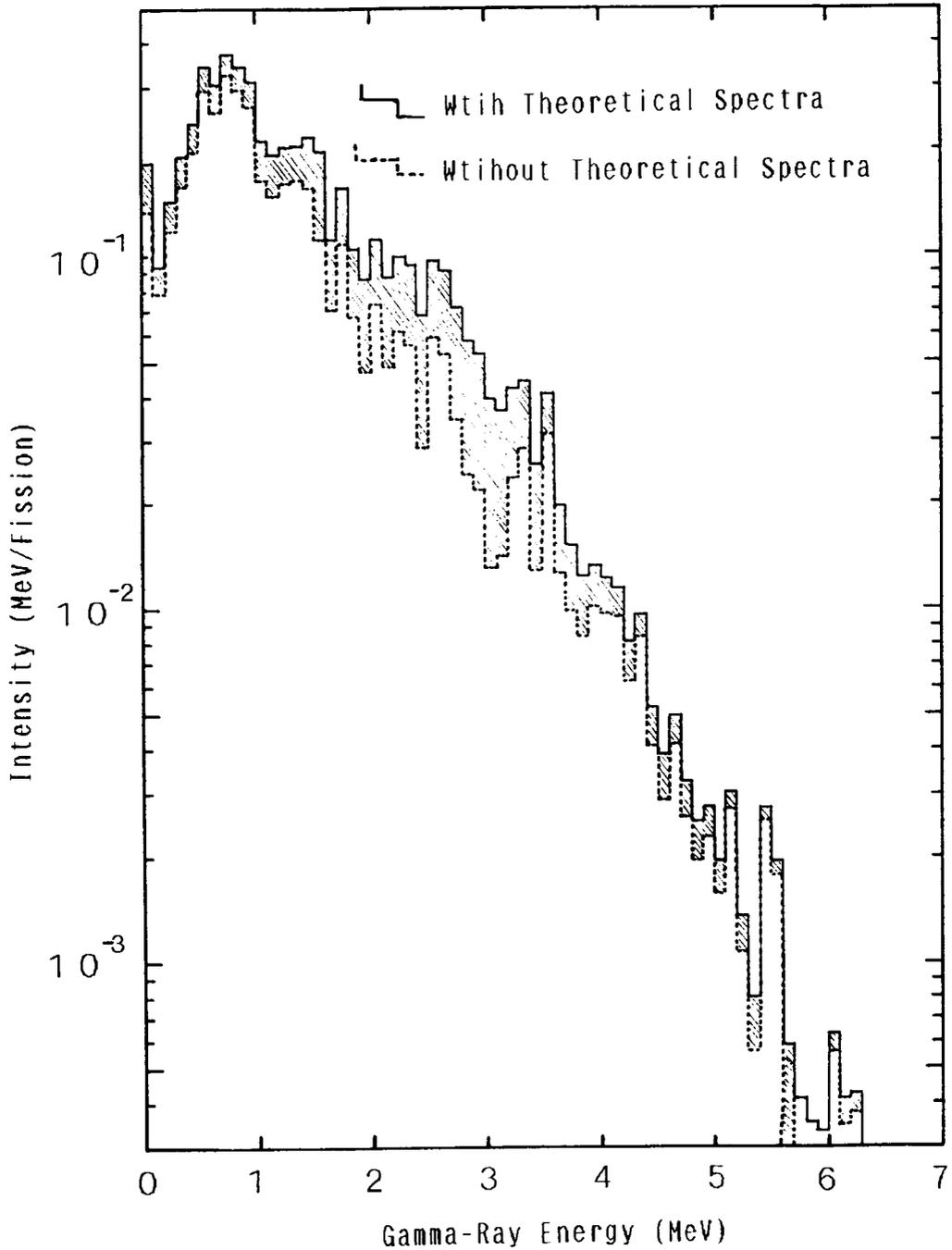


Fig. 2

Calculated Delayed Gamma-Ray Spectra with and without the Theoretical Spectra for Data-Unknown Nuclides (Equilibrium after one-year thermal n irradiation on Pu-239)

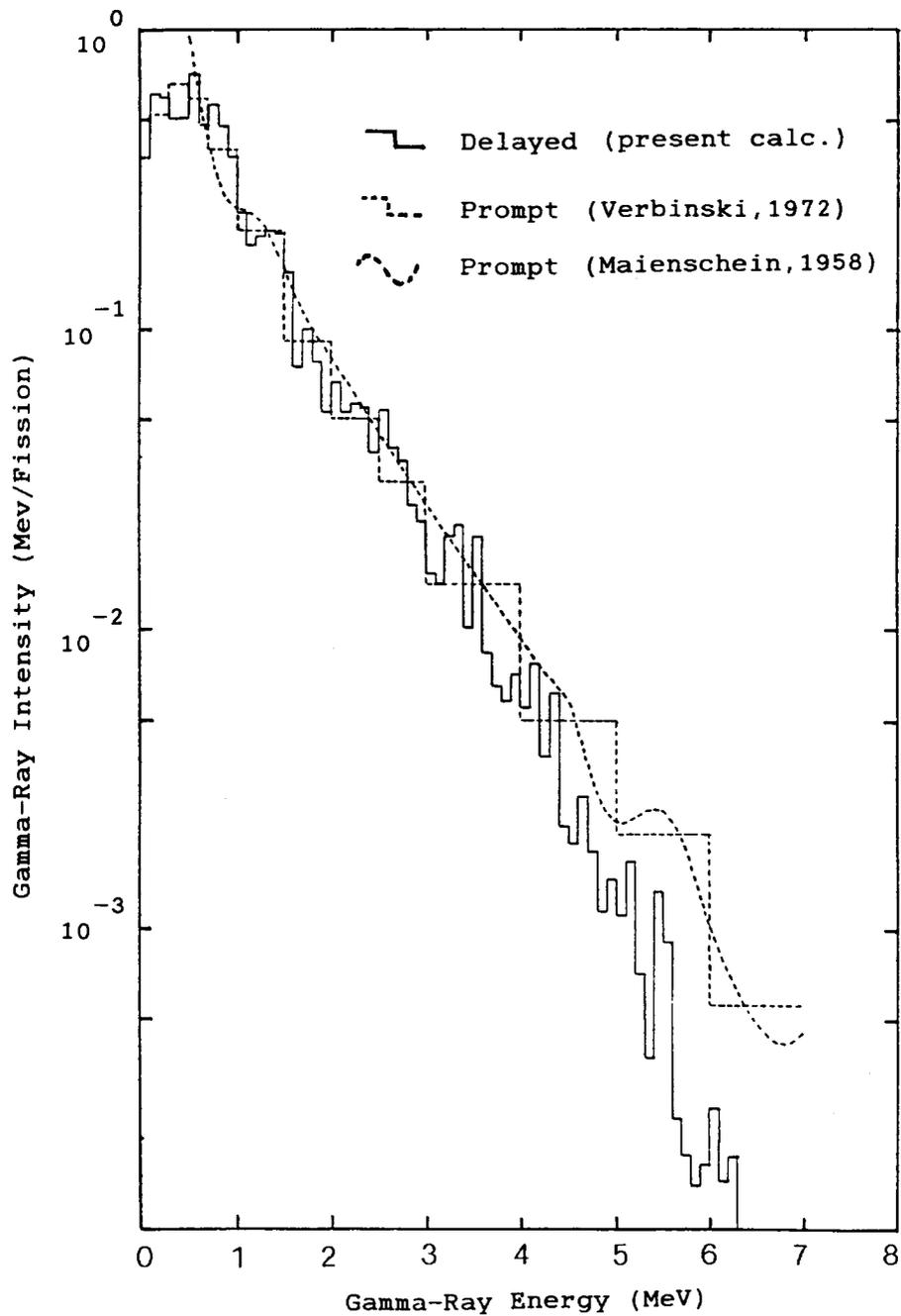


Fig. 3
 Comparison of Delayed and Prompt Gamma-Ray Spectra
 U-235 (Equilibrium spectrum for delayed one)

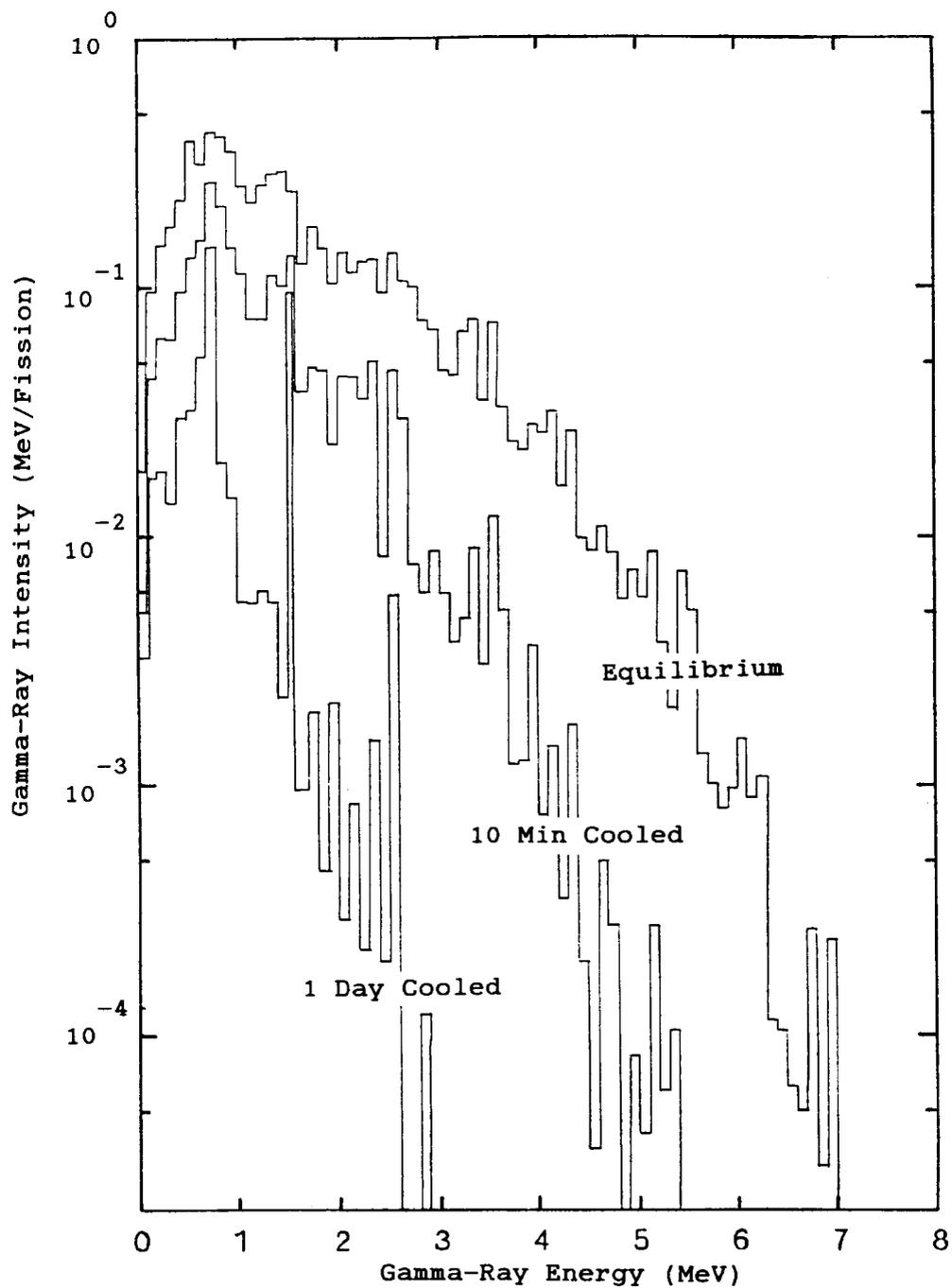


Fig. 4

Cooling-Time Dependence of the Delayed Gamma-Ray Spectrum
(Three-year thermal neutron irradiation on U-235)

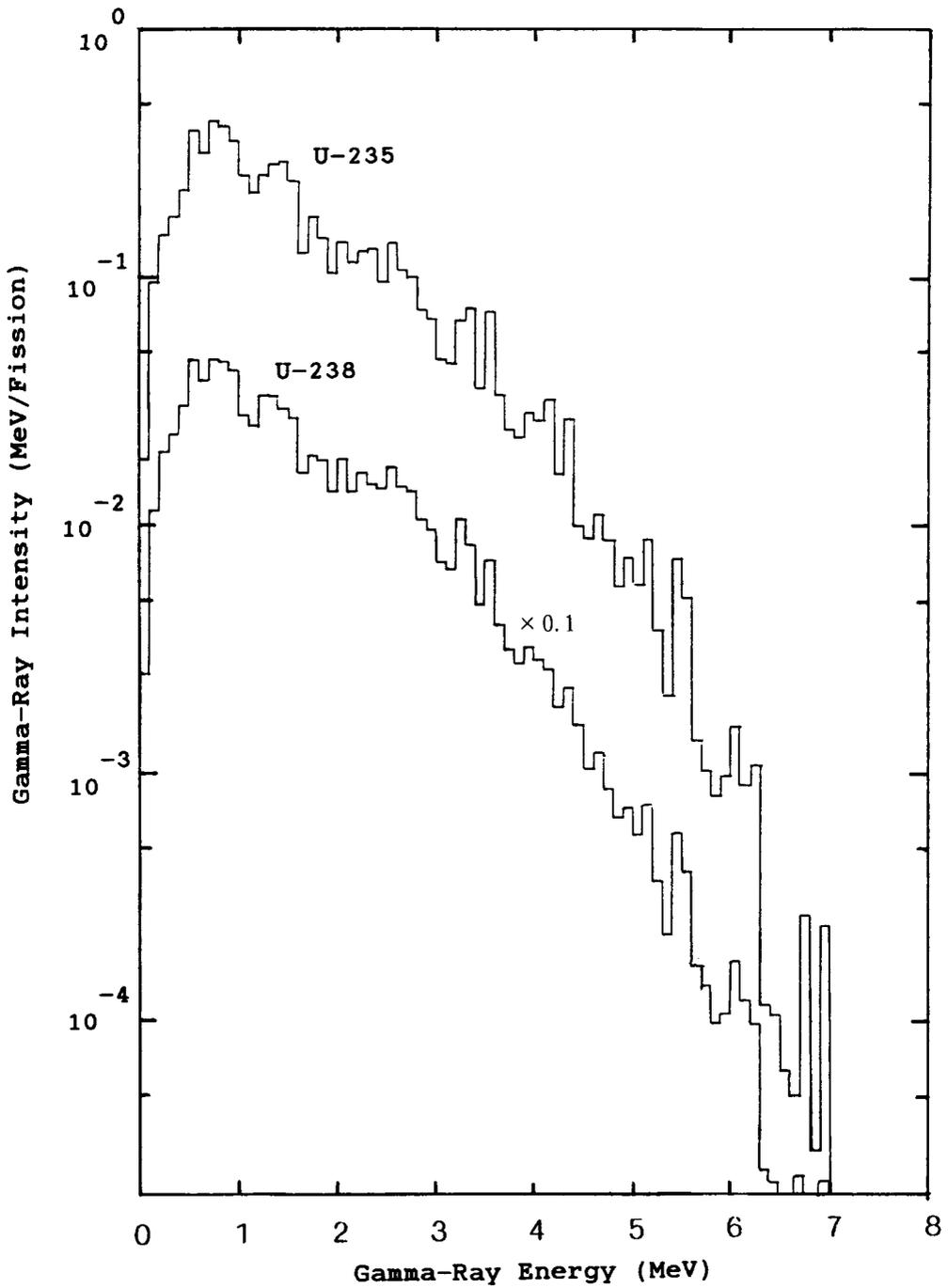


Fig. 5

Equilibrium Delayed Gamma-Ray Spectra of Uranium Isotopes