

話題・解説 (II)

遅発中性子総和計算の現状

名古屋大学大学院工学研究科

親松 和浩

e-mail: oyak@luna.nucl.nagoya-u.ac.jp

1. まえおき

核分裂では、約1000種類の不安定核種が生成され、事実上永遠に崩壊を続ける。遅発中性子や崩壊熱などの核分裂生成物の特性は、核分裂生成物の生成と崩壊を追う総和計算法によって計算することができる。

現在、主要な核分裂システムに対する崩壊熱総和計算の不確かさは積分測定値と肩を並べる程度にまでなり、崩壊熱の評価基準値の作成に利用されている。では、遅発中性子についてはどうだろうか？

総和計算では、数千個の入力データを必要とする。それらは、個々の核分裂生成物 (FP: Fission Product) について、核分裂でどれだけ作られるかを表わす核分裂収率と、どのように崩壊するかを表わす崩壊形式、分岐比、崩壊定数、平均崩壊エネルギー、遅発中性子放出確率などの崩壊データである。

残念ながら核分裂収率及び崩壊データの信頼性は全てのFPの生成量を精度良く計算できるほど完全なものではない。特に核分裂収率に関しては、精密測定されているのは質量収率だけで独立核分裂収率はほとんど全部システムティックで推定しているだけとあってよい。また、短寿命核の崩壊データの多くはシステムティックまたは理論による推定を行っているが、これらの推定値は真値と桁で違っていても不思議ではないのが現状である。

崩壊熱の大部分は核分裂後数分以降に比較的寿命の長いFPから放出される。そのため、崩壊熱計算では比較的良く知られた収率や崩壊データを元に計算できる。また寄与するFP核種が多いので、対効果などの個々のFP核種の個性は適当にキャンセルし、それほど大きくは効いてこないと期待される。

一方、遅発中性子は30核種程度の遅発中性子先行核の β 崩壊にともない核分裂後数分以内にほとんど放出される。遅発中性子計算の難しいのは、多くの遅発中性子先行核が短寿命で収率と核構造が実験的にあまり知られていないFP核種であるためである。さらに、寄与する核種数が比較的少ないため個々の先行核の個性が大きく効いてくることも遅発中性子計算を難しくする一因となっている。

以下では、遅発中性子総和計算の現状とその問題点を紹介していく。

2. 遅発中性子放出数 $\bar{\nu}_d$

一回の核分裂の後に放出される遅発中性子放出の総数の期待値（平均値）は

$$\bar{\nu}_d = \sum_i p_{ni} Y_i \quad (2.1)$$

で与えられる。ここで、 p_{ni} 、 Y_i はそれぞれ核種 i の遅発中性子放出確率、累積核分裂収率である。

$\bar{\nu}_d$ の総和計算値は（積分）測定による評価値をおおむね再現する。図1に100回の核分裂で放出される遅発中性子の総数を5つの主要な核分裂システムについて示す。評価法の違いを調べるため、ENDF/B-VIを用いた総和計算値（式(2.1)）、総和計算を元にしたBradyとEnglandの6群近似での評価値 [1]、Tuttleが多くの積分測定を解析して求めた評価値 [2]を示してある。このうち、BradyとEnglandの6群近似は、ENDF/B-VIの核分裂収率及び崩壊データファイル [3,4] を作成途中の評価値を元に総和計算を行い、その結果を6群で近似して求めたものである。したがって、最終的に公開されたENDF/B-VI [3,4] を使った総和計算値とはずれが生じている。なお、ENDF/B-VIの総和計算の誤差は

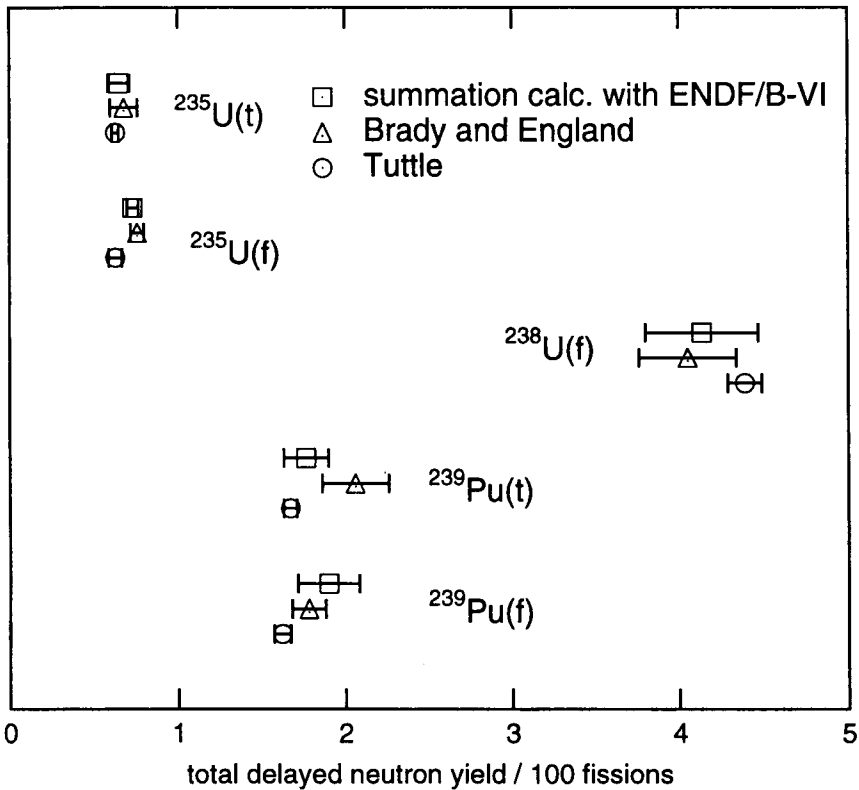


図1. 100回の核分裂で放出される遅発中性子数。ここで、t、fはそれぞれ熱中性子、高速中性子核分裂を意味する。

$$(\delta v_d)^2 = \sum_i \left[p_{ni}^2 (\delta Y_i)^2 + Y_i^2 (\delta p_{ni})^2 \right] \quad (2.2)$$

で評価した。

3つの評価値の含む不確かさ(1σ)は、Tuttleの評価値で2～6%、総和計算とBrady等の評価値で5～11%である。現状では、これらの不確かさを考慮しても総和計算値とTuttleの評価値が一致していない場合もある。現状は、総和計算値を推奨値とするには今一步の段階にあるといえよう。

3. 遅発中性子放出率の総和計算法

遅発中性子は核分裂後の時間の経過とともにどのように放出されていくのだろうか？また、照射履歴によって遅発中性子の放出がどう変わるのであろうか？時刻 t で単位時間あたりに放出される遅発中性子数(遅発中性子放出率)は

$$n_d(t) = \sum_i p_{ni} \lambda_i N_i(t) \quad (3.1)$$

で与えられる。ここで、 λ_i 、 $N_i(t)$ はそれぞれ核種 i の崩壊定数と時刻 t における生成量である。

核分裂によって生成する核種 i の時刻 t における生成量を $N_i(t)$ とする。遅発中性子計算では中性子捕獲反応を無視して考えてよい。このとき、 $N_i(t)$ の時間変化は

$$\frac{d}{dt} N_i(t) = -\lambda_i N_i(t) + \sum_{j \neq i} b_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j(t) + F(t) y_i \quad (3.2)$$

で与えられる。式(3.2)の記号の意味は次のとおり。

$b_{j \rightarrow i}$: 核種 j の1回の崩壊で核種 i が生成される確率(分岐比)

y_i : 一回の核分裂で核種 i が生成される確率(独立核分裂収率)

$F(t)$: 単位時間あたりの核分裂数(核分裂率)

以下では、瞬時照射は時刻 $t=0$ で1回の核分裂が起きた場合と定義する。また、無限照射は図2に示すように時刻 $t < 0$ で一定の核分裂率、 $F(t)=1$ (fission/s)、である場合と定義する。

4. 瞬時照射後の遅発中性子放出率

瞬時照射後の遅発中性子放出率 $n_d(t)$ (式(3.1)) を計算するためには、数百核種についての連立微分方程式

$$\frac{d}{dt} N_i(t) = -\lambda_i N_i(t) + \sum_{j \neq i} b_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j(t) \quad (4.1)$$

を初期条件

$$N_i(0) = y_i \quad (4.2)$$

の元に解いて $N_i(t)$ を求める必要である。この計算は遅発中性子放出や、アイソマー

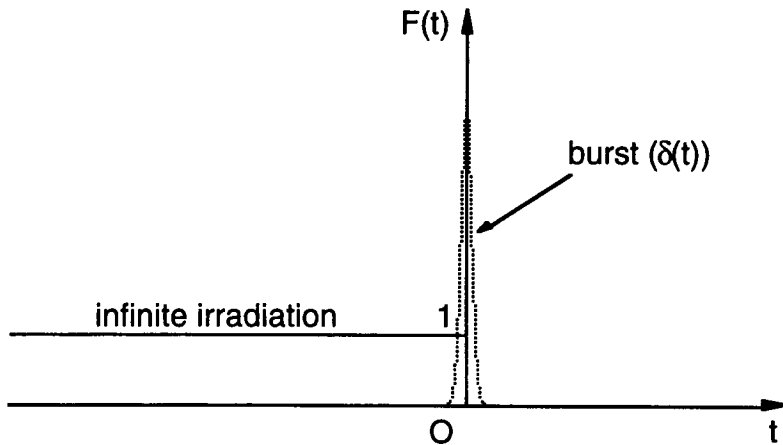


図 2. 瞬時照射と無限照射。

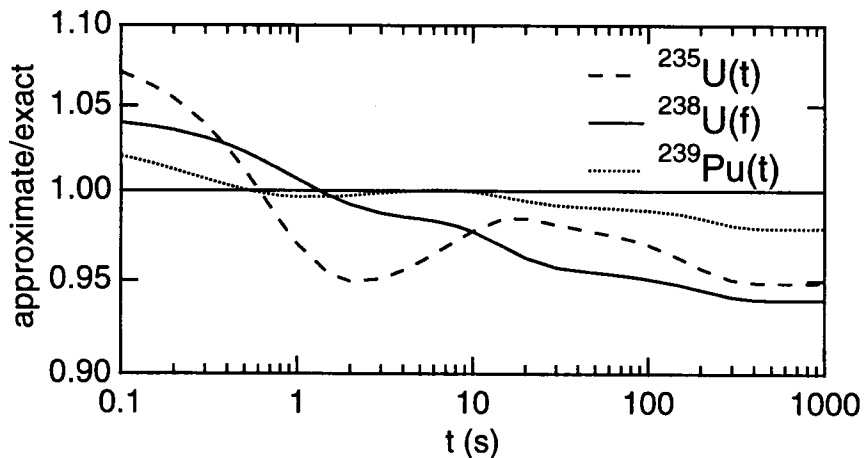


図 3. 近似式(4.3)を使って計算した瞬時照射後の遅発中性子放出率 $n_d(t)$ と式(4.1)を解いた厳密計算値との比較。

(娘核の) 寿命の長い励起状態) への分岐などを含むため複雑である。

そこで、核種生成量を

$$N_i(t) = Y_i \exp(-\lambda_i t) \quad (4.3)$$

で近似して式(3.1)に代入する簡略化した計算も行われてきた。遅発中性子先行核は核分裂による直接生成だけでなく親核の β 崩壊によっても生成される。式(4.3)では、

遅発中性子放出先行核の β 崩壊の親核は短寿命核であること、

寄与の大きい先行核が1つの崩壊チェーンに複数あることはまれであること、

を前提とし、遅発中性子先行核の生成は全て $t=0$ に行われたと仮定する。この近似は、複雑な連立微分方程式(4.1)を解かずにすむという点で魅力的である。しかし、図3に示すように、この近似(4.3)を使うと遅発中性子放出率 $n_d(t)$ に5%程度の誤差が生じる。現在ではパソコンでも式(4.1)を解いた総和計算が可能になっている。定量的議論をするためには、式(4.3)の近似計算ではなく厳密な計算をすべきである。

図4に瞬時照射後の遅発中性子放出率 $n_d(t)$ を3つの核分裂システムについて ENDF/B-VIを用いて総和計算した結果を示す。比較のため、Tuttleの6群近似式 [2,5] による結果もあわせて示した。また $^{235}\text{U}(t)$ と $^{238}\text{U}(t)$ については ENDF/B-VI の6群近似式による評価値も示したが、これらについては6節で議論する。図4では横軸を対数目盛にとった。このため、置換積分の関係式

$$\int dt n_d(t) = \int d(\log t) t n_d(t) \quad (4.4)$$

から、ある時間範囲での遅発中性子放出数はこの図で曲線の下側の面積に比例する。瞬時照射では約半数の遅発中性子が2~4秒で放出される。総和計算値と積分測定値は同様の振る舞いを示す。しかし、一致度はまだ不十分である。

総和計算値と積分測定値(Tuttle)による遅発中性子放出率 $n_d(t)$ のずれは図1の

$$\bar{v}_d = \int_0^{\infty} dt n_d(t) \quad (4.5)$$

の違いと同程度である。では、 \bar{v}_d が積分測定値とあうように総和計算値を適当に normalizeすれば話がすむのだろうか？図4を見ると \bar{v}_d だけに責任を押し付けるのは無理がある。時間依存性の違いは本質的な問題である。

図1で示したように総和計算では $n_d(t)$ の積分値 \bar{v}_d (式(4.5)) は5~10%の不確かさを含む。放出の時間発展 $n_d(t)$ の計算値にはさらに大きな不確かさがあると予想される。我々のグループでは、核分裂収率、崩壊データの不確かさから生じる $n_d(t)$ の総和計算値の不確かさを解析した。図5に $n_d(t)$ の評価値とその不確かさを示す。この図では見やすくするために Tuttle の積分測定評価値との比を示す。Tuttle の評価値の不確かさ (1σ) は5~10%程度である。一方、総和計算値の方は数%から20%以上とかなり幅をもつ。このうち $^{235}\text{U}(t)$ の場合は ^{86}Ge の独立核分裂収率に問題がある [6] ので除外して考えると、総和計算値の不確かさはおおむね1割程度である。しかし、実際には総和計算値の不確かさはもう少し大きく見たほうがよいかもしれない。なぜなら $^{235}\text{U}(t)$ と $^{238}\text{U}(t)$ の冷却時間30秒付近のように、 $n_d(t)$ の総和計算値と Tuttle の評価値の両方の不確かさを考慮しても一致しない場合があるからである。

なお、我々のグループでは Am, Cm などのマイナーアクチニド核種についても $n_d(t)$ の不確かさ評価を行った。これらの核種については核分裂収率があまり良く解っていない。そのため、 $n_d(t)$ の総和計算値には不確かさは主要な核分裂核種の場合より2~3倍大きく2~3割程度の不確かさがある。

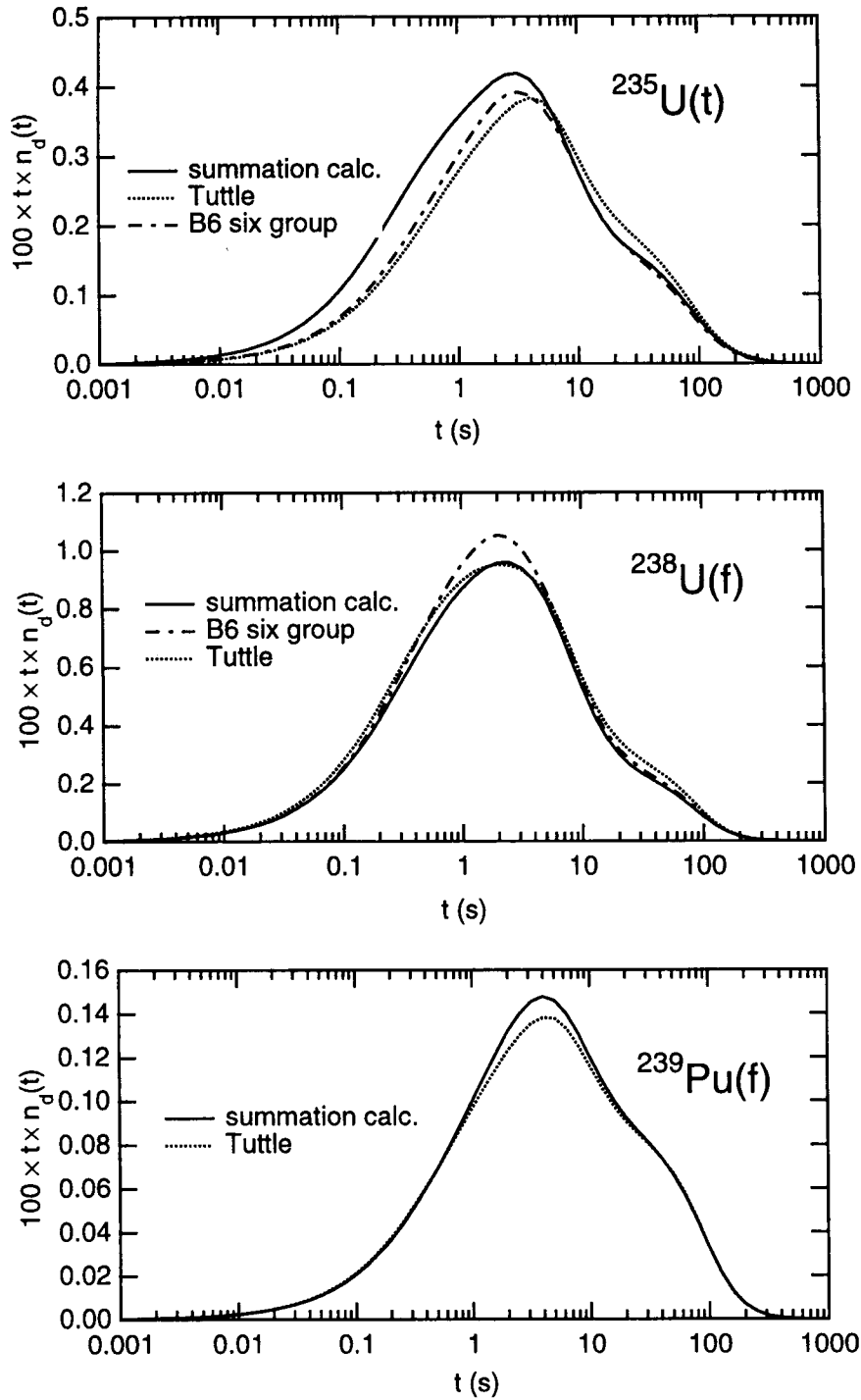


図4. 瞬時照射後の遅発中性子放出率 $n_d(t)$ の総和計算値とTuttleの積分測定評価値。参考のため $^{235}\text{U}(t)$ と $^{238}\text{U}(f)$ に対してはENDF/B-VIの6群近似式も示す。

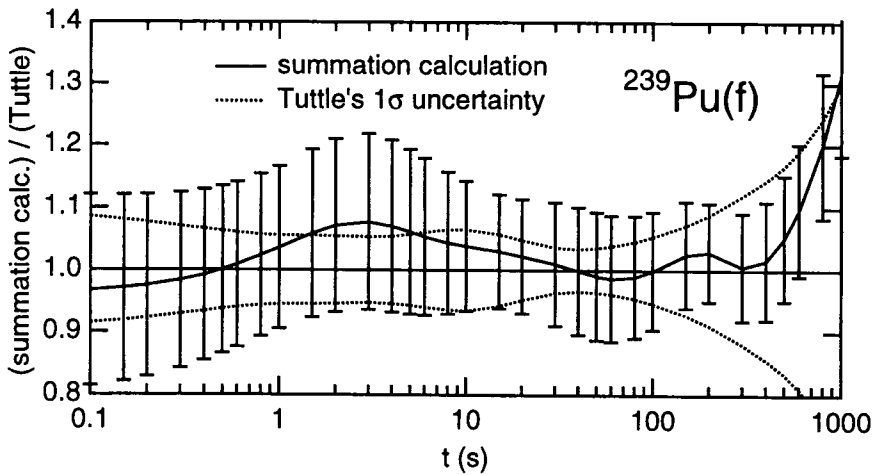
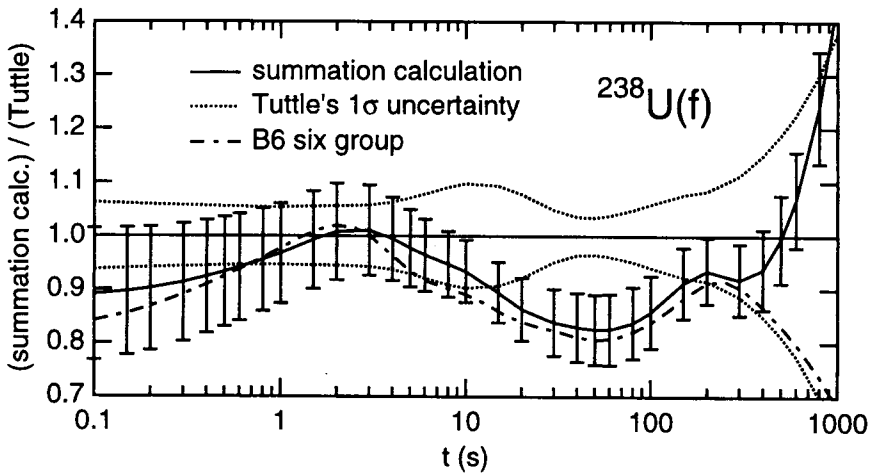
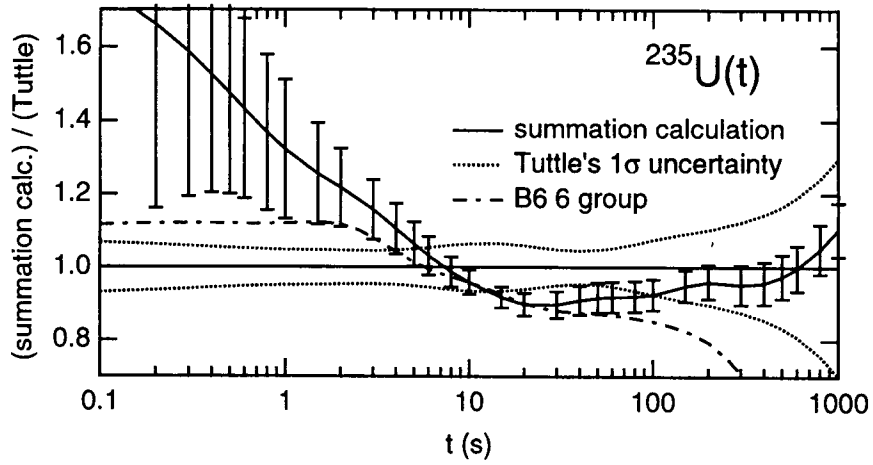


図5. 瞬時照射後の遅発中性子放出率 $n_d(t)$ の総和計算値とTuttleの積分測定評価値との比。

5. 無限照射後の遅発中性子放出率

遅発中性子は核分裂後10分程度でほとんど放出されてしまう。そのため実炉での燃焼（照射）時間を考えると、無限照射の方が現実に近い。そこで以下では図2に示す無限照射の後の遅発中性子放出を考える。ただし、瞬時照射の場合と区別をするため記号を変え、遅発中性子放出率を $N_d(t)$ と書くことにする。

無限照射の場合、 $t < 0$ での核分裂によって安定核に近い長寿命核種がたまっている。導出は略すが、 $t = 0$ での核種 i の生成量は

$$N_i(0) = Y_i / \lambda_i \quad (5.1)$$

で与えられる。したがって、無限照射では累積収率 Y_i が大きく半減期の長い (λ_i が小さい) 先行核が遅発中性子放出の主演となる。

$N_d(t)$ の振る舞いを理解するためには瞬時照射での放出率 $n_d(t)$ の関係を考えておくことと便利である。 $N_d(t)$ は、時刻 $t < 0$ での核分裂による遅発中性子放出の重ね合せとして書くことができる。

$$N_d(t) = \int_{-\infty}^0 du n_d(t-u). \quad (5.2)$$

したがって、 $N_d(t)$ は図4の $n_d(t)$ と独立ではなく、 $n_d(t)$ の長時間部分が強調された関数になる。

図6にENDF/B-VIを用いた $N_d(t)$ の総和計算値、積分測定値の6群近似値 (Tuttle [2.5])、ENDF/B-VIの6群近似値を示す。この図と瞬時照射の場合の図4を比べると、かなり印象が違う。無限照射の場合半数の遅発中性子が放出されるまでには20秒程度かかり、瞬時照射の場合数秒であったのと著しく異なっている。そのため無限照射の場合、数10秒の半減期をもつ比較的長寿命の先行核が重要になる。

図4、6は、総和計算値と積分評価値との一致度という点でも大きく違って見える。特に $^{235}\text{U}(t)$ については、図4 (瞬時照射) の最大値付近で総和計算値が積分測定値を上回るのが目につくが、図6 (無限照射) の最大値付近では総和計算値が積分測定値より小さいというまったく逆の結果になる。また、 $^{238}\text{U}(t)$ の瞬時照射 (図4) の $n_d(t)$ の総和計算値はTuttleの積分測定値にかなり近く見えるが、無限照射 (図6) では $N_d(t)$ の総和計算値はかなり小さい。逆に、 $^{238}\text{Pu}(t)$ については瞬時照射 ($n_d(t)$) よりも無限照射 ($N_d(t)$) の総和計算値のほうが積分測定値との一致がよい。

図6と関係式(5.2)から、無限照射後の遅発中性子放出には30秒程度の時間スケールでの $n_d(t)$ の値が重要であることが解る。図5で見たように、この時間帯では $^{235}\text{U}(t)$ と $^{238}\text{U}(t)$ に対する $n_d(t)$ の総和計算値が誤差を考慮しても積分測定値からずれている。応用面から考えても、冷却時間30秒付近での $n_d(t)$ の総和計算値改善は、現在の最重要課題である。

このように遅発中性子計算では照射条件によって異なる時間スケールでの $n_d(t)$ の値が効いてくる。特に $n_d(t)$ のグラフでは数10秒以降の値は小さく見過ごしがちであるが、実はそこでの値が実用上重要であることに注意したい。

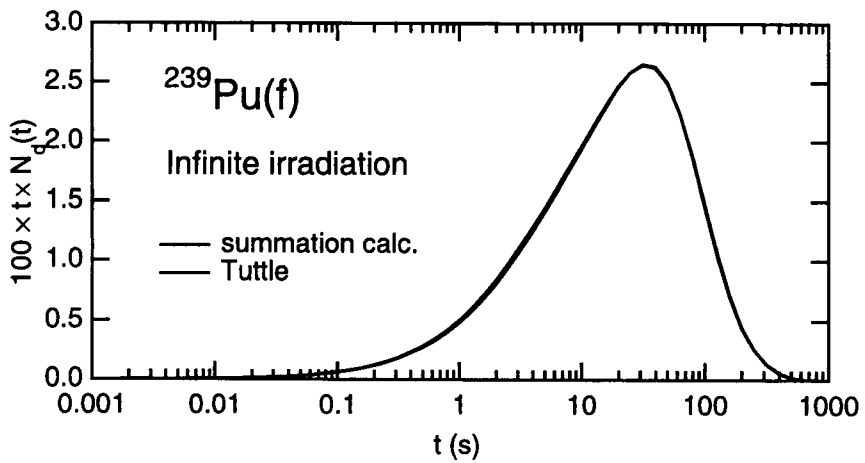
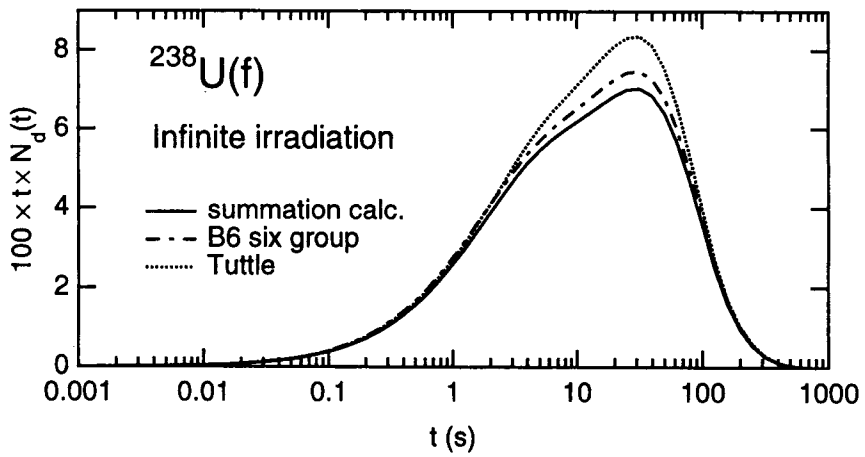
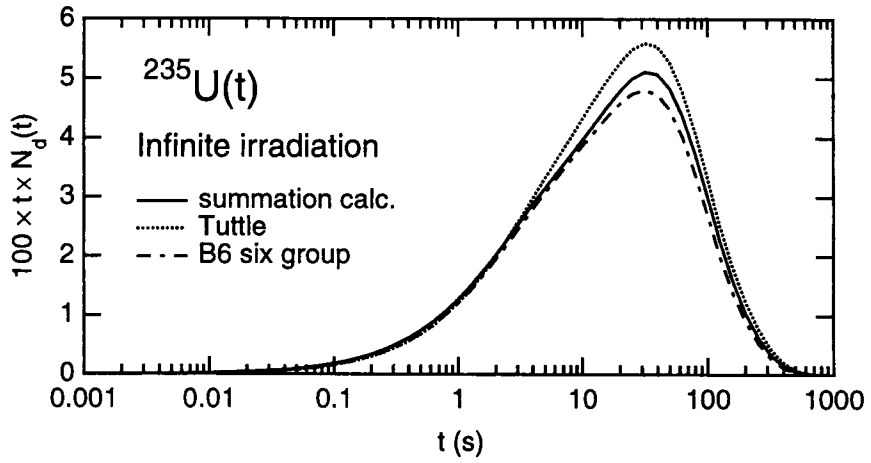


図6. 無限照射後の遅発中性子放出率 $N_d(t)$ 。

6. 6群近似

6群近似では異なる時間スケール λ_j で崩壊する6個の仮想先行核(群)を考え、遅発中性子はこれらの6つの仮想先行核の崩壊によってのみ放出されるとする。この近似では瞬時照射後の遅発中性子放出率は、

$$n_d(t) = \bar{\nu}_d \sum_{j=1}^k \alpha_j \lambda_j \exp(-\lambda_j t) \quad (6.1)$$

で与えられる。ここで、 $\bar{\nu}_d$ は瞬時照射後の遅発中性子放出数である。 $\alpha_j (> 0)$ は

$$\sum_{j=1}^k \alpha_j = 1 \quad (6.2)$$

を満たす規格化定数で、各群が放出する遅発中性子数の比を表わす。つまり $\bar{\nu}_d \alpha_j$ がj群(仮想先行核がj)が放出する遅発中性子数となる。このとき、無限照射後の遅発中性子放出率は式(5.3)から

$$N_d(t) = \bar{\nu}_d \sum_{j=1}^k \alpha_j \exp(-\lambda_j t) \quad (6.3)$$

となる。瞬時照射と無限照射の式((6.1)、(6.3))では和のなかの係数 λ_j の分だけ違っている。無限照射後にj群から放出される遅発中性子数は $\bar{\nu}_d \alpha_j / \lambda_j$ となる。このように、瞬時照射の場合は短い半減期の(λ_j が大きい)群の α_j の値が重要であり、無限照射の場合は長い半減期の(λ_j が小さい)群の α_j の値が効いてくる。

6群近似のパラメータの値は積分測定値や総和計算値にあうように決定する。図4-6のTuttleの6群近似は積分測定値にあうように作ったものである。一方、ENDF/B-VIの6群近似にはBradyとEnglandの総和計算を元に決められ λ_j 、 α_j の値と、 $\bar{\nu}_d$ の積分測定値が使われている。またこれら2組の近似式では、核分裂核種ごとに λ_j と α_j の値を定め、中性子エネルギーごとに $\bar{\nu}_d$ の値を決めている。つまり、いずれの近似でも、熱及び高速中性子核分裂で λ_j と α_j の値は変化しないものと仮定している。

瞬時照射と無限照射でENDF/B-VIの6群近似とTuttleの積分測定評価値の6群近似との一致度がかかなり違う(図4-6)。これには各群の収率の重みとなる α_j と群の時間スケールを表わす λ_j の値の違いが反映する。6群近似では遅発中性子放出の時間変化は α_j と λ_j の値のとり方の問題となるからである。

図4-6のENDF/B-VIの6群近似値は総和計算値とよく似た傾向を示している。特に図4、5で $^{235}\text{U}(t)$ と $^{238}\text{U}(t)$ に対する冷却時間30秒近傍でのTuttleの評価値からのずれはENDF/B-VIの6群近似値でもみられ、これが無限照射後の放出率 $N_d(t)$ (図6)のTuttleの値から大きくずれる原因となっている。したがって、ENDF/B-VIの6群近似式ではこの時間スケールを与える(第1、第2)群の α_j 、 λ_j の値に問題があると考えられる。ところでENDF/B-VIの6群近似値の問題はBradyとEnglandが行った総和計算値に原因がある。図4-6での振る舞いから判断すると、彼等の総和計算とENDF/B-VIの総和計算値のTuttleの値からのずれには共通の原因から生じていると考えてよいだろう。

7. 結び

遅発中性子総和計算の不確かさは主要な核分裂システムに対しても1割程度はありと考えられる。一方、積分測定による評価値の不確かさは5～10%程度であり、現状では積分測定評価値の信頼性のほうが高い。

しかしながら、遅発中性子についても崩壊熱と同様に総和計算を元に推奨値を作成できるようになる可能性は十分にある。遅発中性子放出では大きな寄与を与える先行核は30核種程度しかないため、これらの核種に関する核分裂収率と崩壊データの精度の良い測定によって総和計算値が大幅に改善するからである。実際、図5から判断すると遅発中性子計算と積分測定値の不一致はかなり限られた原因から生じているようにみえる。

遅発中性子総和計算の現在の最重要課題は30秒程度の冷却時間での総和計算値に積分測定値と顕著なずれの解決である。これには、比較的長寿命(数10秒)で良く知られた先行核(あるいはその親核)の核分裂収率と崩壊データの再検討が必要である。

これからの10年間では核分裂収率と崩壊データの測定が大きく進むことが期待できる。例えば理研のRI Beam Factory計画などの不安定核ビームを利用した短寿命核の構造・反応研究は中性子 drip line を目指して進みつつあり、遅発中性子計算に必要な崩壊データの大部分が測定できるようになるだろう。不安定核ビーム施設では核反応による生成物を核種(Z, A)ごとに電磁的にin flightで分離し、1種類の短寿命核のビーム(2次ビーム)作る。短寿命核の生成には核分裂反応が有効である。実際、 $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ により短寿命核(核分裂破片)を生成し、今まで測定が不可能であった核を含め、分離した核の収率が報告されている[7]。これは中性子による核分裂ではないが、 (γ, f) 反応による核分裂収率の直接測定と理論的解析を組み合わせることによって中性子核分裂の収率の評価値を改善することも可能であろう。

我々のグループでは遅発中性子計算に大きな誤差を与える核分裂収率・崩壊データの特定制とリストアップを行う手法の開発を進めている。この稿で紹介した以外にもいくつかの結果を得ている。これらの研究は宮園敏光(現:原電)、匂坂充行、竹内弘樹氏等の修士課程の学生諸君とともに進めている。現在、その成果がかなり蓄積してきており[6, 8-10]近く測定の提案の形にまとめる予定である。

今年から遅発中性子評価WGがシグマ委員会のなかに誕生し、国内でも活発な議論が始まった。本稿の内容も、吉田(武蔵工大)、片倉、岡嶋、山根(原研)、大澤(近大)、瑞慶覧(日立)、橘(早大)の各氏を初めとするメンバーの方々との議論に負う部分が大きいことを申し添えておく。

参考文献

- [1] M.C. Brady and T.R. England, Nucl. Sci. and Eng. **103** (1989) 129-149.
- [2] R.J. Tuttle, INDC(NDS)-107/G+Special (1979).
- [3] T.R. England and B.F. Rider, LA-UR-94-3106 (1994).
- [4] T. R. England et al., LA-UR-92-3785(1992).
- [5] R.J. Tuttle, Nucl. Sci. and Eng. **56**, (1975) 37-71.
- [6] T.Miyazono, M.Sagisaka, H.Ohta, K.Oyamatsu and M.Tamaki : Delayed Neutron Spectra and their Uncertainties in Fission Product Summation Calculations, Proc. 1996 Symposium on Nuclear Data, Nov. 1996, JAERI, Tokai, Japan, JAERI-Conf 97-005, pp. 83-88.
- [7] M. Bernas et al., Phys. Lett. **B331** (1994) 19.
- [8] K. Oyamatsu and M. Sagisaka : A simple method to evaluate differences of fission yields from various fissioning systems, Proc. 1995 Symposium on Nuclear Data, Tokai 1995, eds. T. Iguchi and T. Fukahori, JAERI-Conf 96-008, pp. 344-349.
- [9] K.Oyamatsu, M.Sagisaka and T.Miyazono : Comparison of decay and yield data between JNDC2 and ENDF/B-VI, Proc. Internet Sympo. on Nucl. Data 1996, JAERI, Tokai, Japan, JAERI-Conf 97-004, pp. 234-246.
- [10] K.Oyamatsu, M.Sagisaka and T. Miyazono : Comparison of Yield and Decay Data among JNDC2, ENDF/B-VI and JEF2.2, Proc. 1996 Symposium on Nuclear Data, Nov. 1996, JAERI, Tokai, Japan, JAERI-Conf 97-005, pp. 153-158.