

遅発中性子データの現状と応用

名古屋大学工学研究科エネルギー理工学専攻

親松和浩

oyak@luna.nucl.nagoya-u.ac.jp

1. まえおき

遅発中性子データは原子炉動特性の鍵を握る核データである。遅発中性子は核分裂によって生成される約 1000 種類の不安定核種の中で、特に不安定な数 100 核種から放出される (図 1)。近年、ENDF/B-VI の 6 群データを用いて安定炉周期-反応度の関係を計算すると、従来の 6 群データを用いた結果と顕著に異なることが問題となっている [1-4]。ENDF/B-VI の 6 群データは、遅発中性子総和計算を元に作成された。そこで、ここでは日頃核データにはなじみのない方を念頭において

総和計算とは何か? (崩壊熱では 3% の誤差を議論)

6 群近似とどう違うか? (崩壊系列を無視 \rightarrow 5% の誤差)

Brady と England の挑戦 (ENDF/B-VI) でどこまできたか? (誤差 1 割)

総和計算のこれから? (RI beam で Pn を系統的に測ろう)

について簡単に紹介する。

以下では、

$\bar{\nu}_d$: 一回の核分裂で放出される遅発中性子放出数の平均値
及びその時間依存性

$n_d(t)$: 一回の核分裂後、時刻 t での遅発中性子放出率
について述べる。これら 2 つの量の間には

$$\bar{\nu}_d = \int_0^{\infty} dt n_d(t)$$

の関係がある。

2. 遅発中性子放出数 $\bar{\nu}_d$ とその時間依存性 $n_d(t)$ の決定法

1) 反応度を特定の炉体系で測定 (間接的な決定法)

短い冷却時間の $n_d(t)$ については比較的 low 感度

2) 核分裂後の中性を直接測定 (renormalization の問題)

$n_d(t)$ は 1 ms から 1000 s にわたって桁違いに変化するため、全冷却時間帯にわたる高精度の測定は難しい。

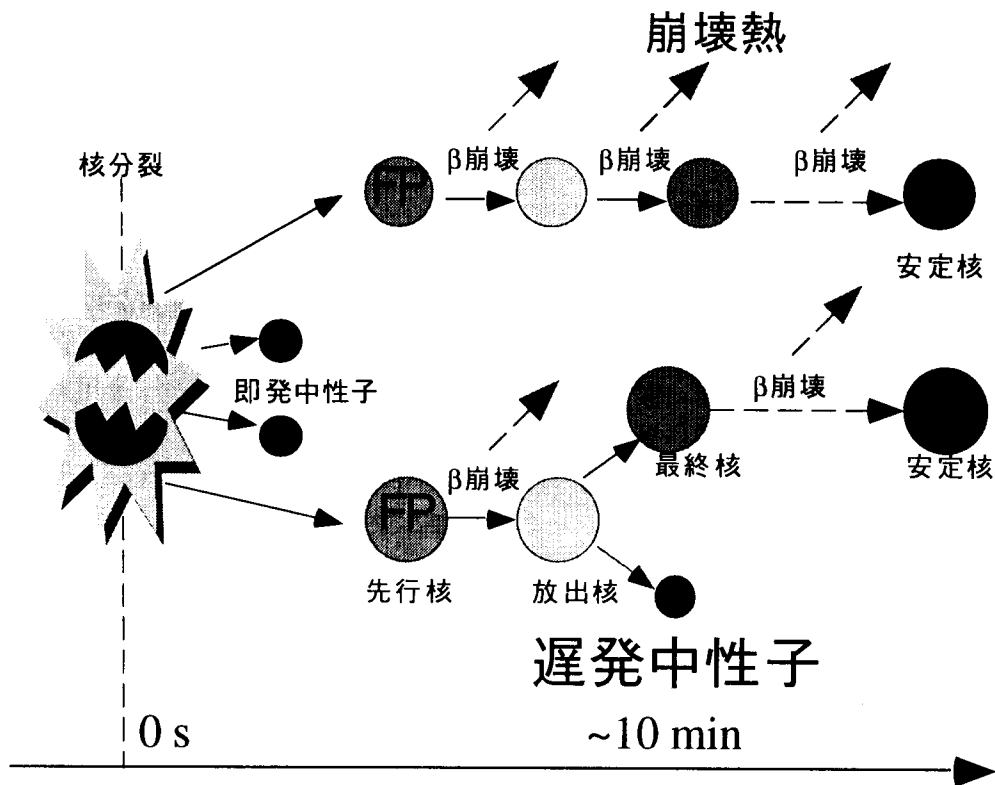


図1. 核分裂生成物(FP)からの遅発中性子放出。

3) 遅発中性子総和計算

特定の測定条件によらず全冷却時間帯で評価できる。

ただし、約1000種の核分裂生成物の、核分裂収率、崩壊データ（崩壊定数 λ 、遅発中性子放出確率 P_n ）が必要。

以下で見るように、現在の遅発中性子総和計算値の精度は、残念ながら他の2つの方法のものに劣る。これは、遅発中性子先行核は短寿命の不安定核であるため、総和計算に必要な核分裂収率、崩壊データを精度良く評価することが困難だったからである。

3. 遅発中性子放出数 $\bar{\nu}_d$ の総和計算

$$\bar{\nu}_d = \sum_i P_{ni} Y_i$$

和は全ての遅発中性子先行核についてとる。また、 P_{ni} 、 Y_i はそれぞれ先行核 i の遅発中性子放出確率、累積核分裂収率である。

ENDF/B-VI には 272 の遅発中性子先行核の核分裂収率と崩壊データが収められている [5,6]。これを用いた計算値を図 2 に示す。総和計算値には 1 割程度の誤差があり、多くの測定値から Tuttle が評価した値 [7] の精度には及ばない。またこの図には、Brady と England の総和計算値 [8] もあわせて示した。彼等の計算値の改良版が ENDF/B-VI を用いた総和計算値である。これら 2 つの総和計算値間のずれからも、総和計算値にはまだかなりの不確かさがあることが分かる。

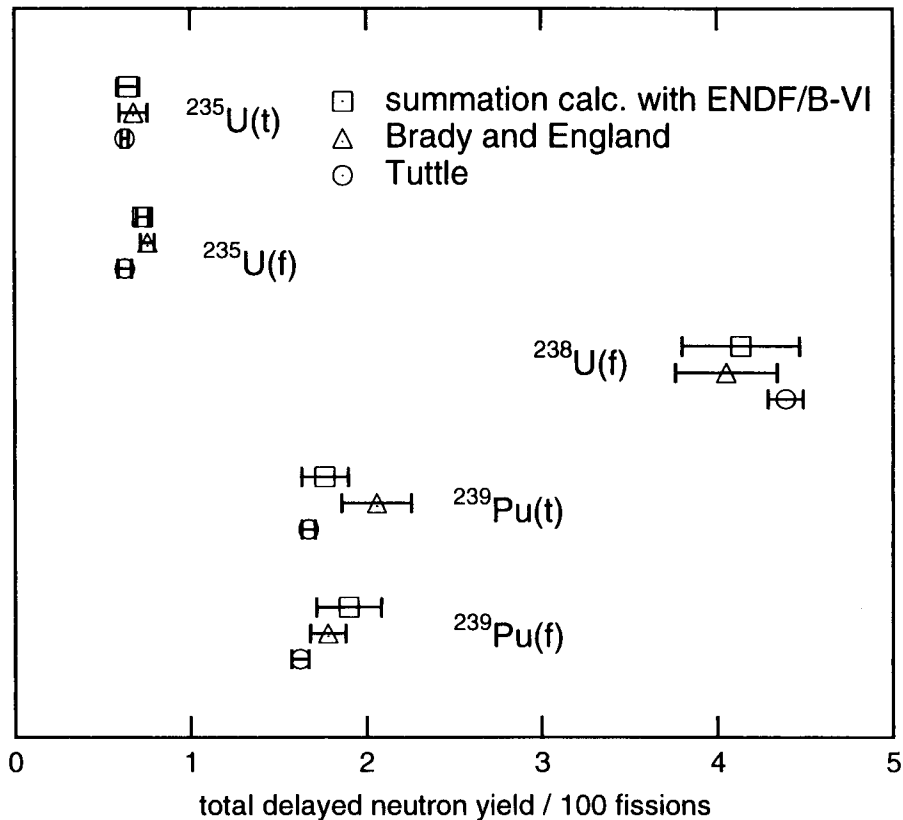


図 2. 100 回の核分裂で放出される遅発中性子数。ここで、t, f はそれぞれ熱中性子、高速中性子核分裂を意味する。

4. $n_d(t)$ の総和計算は 272 群式なのか？ No!

6 群近似式では、 $n_d(t)$ を

$$n_{d6}(t) = \bar{v}_d \sum_{i=1}^6 \alpha_i \lambda_i \exp(-\lambda_i t)$$

で近似する。ここで、 α_i は各群から放出される遅発中性子数の比を表す。

$$\sum_{i=1}^6 \alpha_i = 1$$

では 6 群近似式と同様に、ENDF/B-VI の 272 の遅発中性子先行核のデータから作った

$$n_{d272}(t) = \sum_{i=1}^{272} P_{ni} \lambda_i Y_i \exp(-\lambda_i t)$$

は、 $n_d(t)$ に一致するのだろうか？

答えは No である。 $n_{d272}(t)$ は $n_d(t)$ の近似式である。しかし、図 3 に示すように 5% 程度の、無視できない誤差ある [10]。

したがって、 $n_d(t)$ を議論する際には、 $n_{d272}(t)$ でなく総和計算値を用いるべきである。現在では、総和計算をパソコンでも簡単に行えるようになっており大した手間ではない [11]。

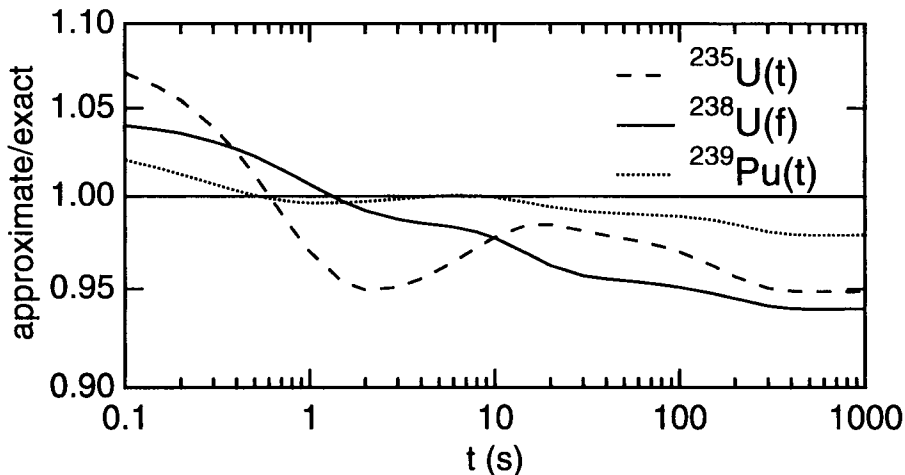


図 3. 272 群近似式 $n_{d272}(t)$ と総和計算値 $n_d(t)$ の比。

5. $n_d(t)$ の総和計算

時間依存性 $n_d(t)$ の決定には、崩壊系列を正しく追うことが必要である。272 群近似 $n_{d272}(t)$ では、核分裂直後の先行核の個数は累積核分裂と仮定している。しかしこの仮定は、3～5%の誤差を議論するには大雑把すぎる。例えば、図4に示すように、遅発中性子先行核 ^{137}I は核分裂で直接生成されるだけでなく、 ^{137}Te の β 崩壊によっても生成する。実際、 $^{238}\text{U}(t)$ では ^{137}I の累積収率の約3割を ^{137}Te の独立核分裂収率が占めており、272 群近似の仮定は大きく破れている。

総和計算では、核分裂の直後に核種 i がどれだけできるか（核分裂収率）、できた核種がどう崩壊していくか（崩壊データ）という2種類のデータが必要になる。

y_i : 1回の核分裂の直後に核種 i が生成される確率（独立核分裂収率）

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

（ P_{ni} は β 崩壊（の直後）に引き続き中性子放出をする場合の分岐比）

λ_i : 核種 i の崩壊定数

図4からも解るように、遅発中性子先行核は崩壊系列の先頭の最も不安定な短寿命核である。そのため、これらのデータの測定は難しく不確かさが大きい。ちなみに最新版の Table of Isotope 8th ed.によると、もっとも良くわかっている ^{87}Br の P_n の値にも6%の不確かさがある。

$n_d(t)$ を求めるためには、まず数100の核分裂生成物の生成量 $N_i(t)$ を

$$N_i(t) = -\lambda_i N_i(t) + \sum_j b_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j(t), \quad N_i(0) = y_i$$

から求め、全ての先行核からの遅発中性子放出数を足しあげる。

$$n_d(t) = \sum_i P_{ni} \lambda_i N_i(t)$$

A=137

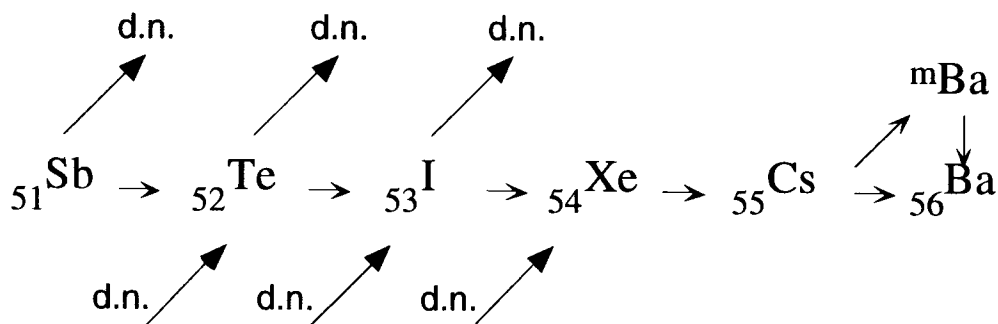


図4. 質量数137の崩壊系列。

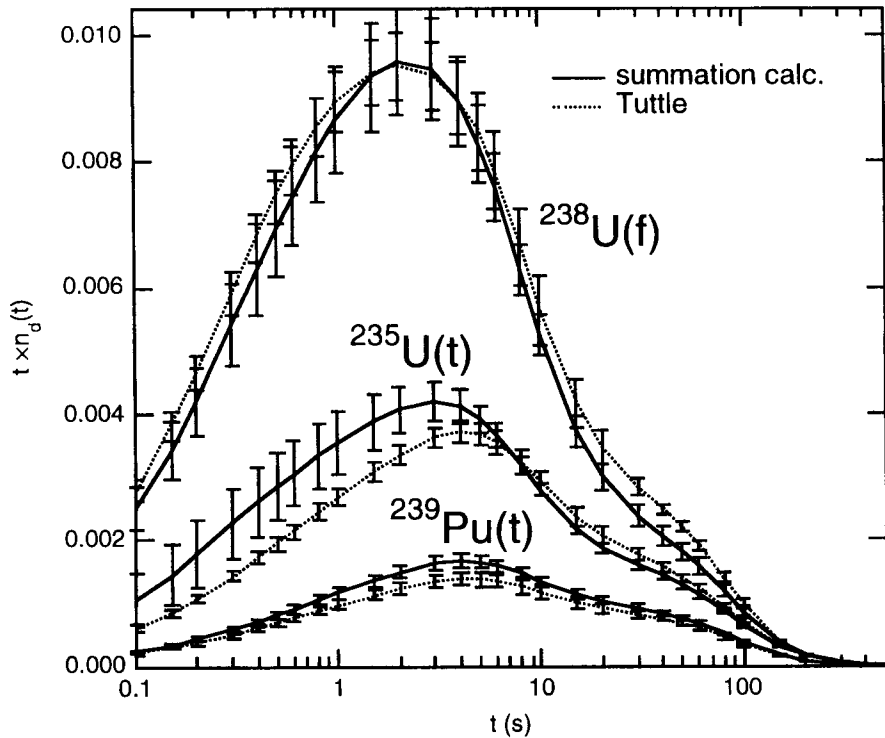


図5. ENDF/B-VIの核分裂収率、崩壊データを用いた $n_d(t)$ の総和計算値。多くの測定から Tuttle が評価した6群近似式での値もあわせて示す。

図5に、ENDF/B-VIの核分裂収率、崩壊データを用いた総和計算値を示す。核分裂収率、崩壊データの誤差の伝搬による総和計算値の不確かさは、1割強である [10]。直接測定の精度には及ばないのが現状である。なお、 $^{235}\text{U}(t)$ の数秒以前での顕著なずれは、 ^{86}Ge の独立核分裂収率の値が ENDF/B-VI で桁違いに大きく評価されているのが原因である [10]。

上述のように、総和計算に必要な核分裂収率と崩壊データの収集は極めて困難な仕事である。遅発中性子先行核は短寿命核であるため測定値がないものが多く、より不確かさの大きい理論またはシステムティクスに頼らざるを得ない。また仮に測定値があっても不確かさが大きい。実際、これらの不安定原子核の構造や反応のデータは原子核物理でもホットなテーマとなっているのである。

ENDF/B-VIは、BradyとEnglandがこのような困難に立ち向かった挑戦の成果である。ENDF/B-VIを用いた総和計算値は、まだ不確かさについては他の方法に一步及ばない。しかし、炉物理での必要をはるかに越える51の核分裂

システムについて、原子核の特性のみを用いた総和計算によって合理的な遅発中性子計算値を得られるようになった。これは、特筆に値する大きな進歩である。

6. ENDF/B-VI の 6 群パラメータの問題点

ここで、実用上の問題に移る。安定炉周期と反応度の関係を ENDF/B-VI の 6 群近似式を用いて計算すると、Tuttle などの従来の 6 群近似式を用いた計算値と、特に長い安定炉周期の場合、計算値が 1 割以上食い違う [1-4]。では、この食い違いの原因は何であろうか？

ENDF/B-VI の 6 群パラメータのうち α_i と λ_i は、Brady と England の総和計算値を 6 群で近似したときの値を採用している。ただし、ENDF/B-VI では、熱中性子核分裂の場合にも高速中性子核分裂の場合と同じ α_i と λ_i の値を採用し、 β_{dj} は Brady と England の総和計算値を使わず測定評価値を採用している。

したがって、上述の食い違いの原因は β_{dj} の値ではなく、 α_i と λ_i で決定される時間依存性にあるはずである。そこで、以下では ENDF/B-VI そのものでなく、Brady と England の 6 群近似式を用いて時間依存性を吟味する。

この 1 割の食い違いの原因を調べるには、実炉の運転条件に近い無限照射後の遅発中性子放出率

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

を見るとよい。図 5 には、Brady と England の 6 群近似式と Tuttle の 6 群近似式で計算した、瞬時照射後の $n_d(t)$ と無限照射後の $N_d(t)$ を示す。これら 2 つの近似式の時間依存性の違いは顕著である。特に、 $^{238}\text{U}(f)$ では、瞬時照射後の $n_d(t)$ は、従来の Tuttle 評価値と非常に良くあっているように見えるが、無限照射後の $N_d(t)$ では冷却時間 30 秒付近で顕著なずれが見える。また、この $N_d(t)$ の 30 秒付近でのずれは $^{239}\text{Pu}(f)$ を除いて他の核分裂システムでも見られる。

30 秒という冷却時間は、応用上重要である。このずれの原因は、総和計算で用いた核分裂収率、崩壊データの値にある。我々は、原因が 5 つの核種 ^{87}Br , ^{88}Br , ^{137}I , ^{136}Te , ^{138}I の核分裂収率又は崩壊データであることを突き止めさらに詳しく検討している。

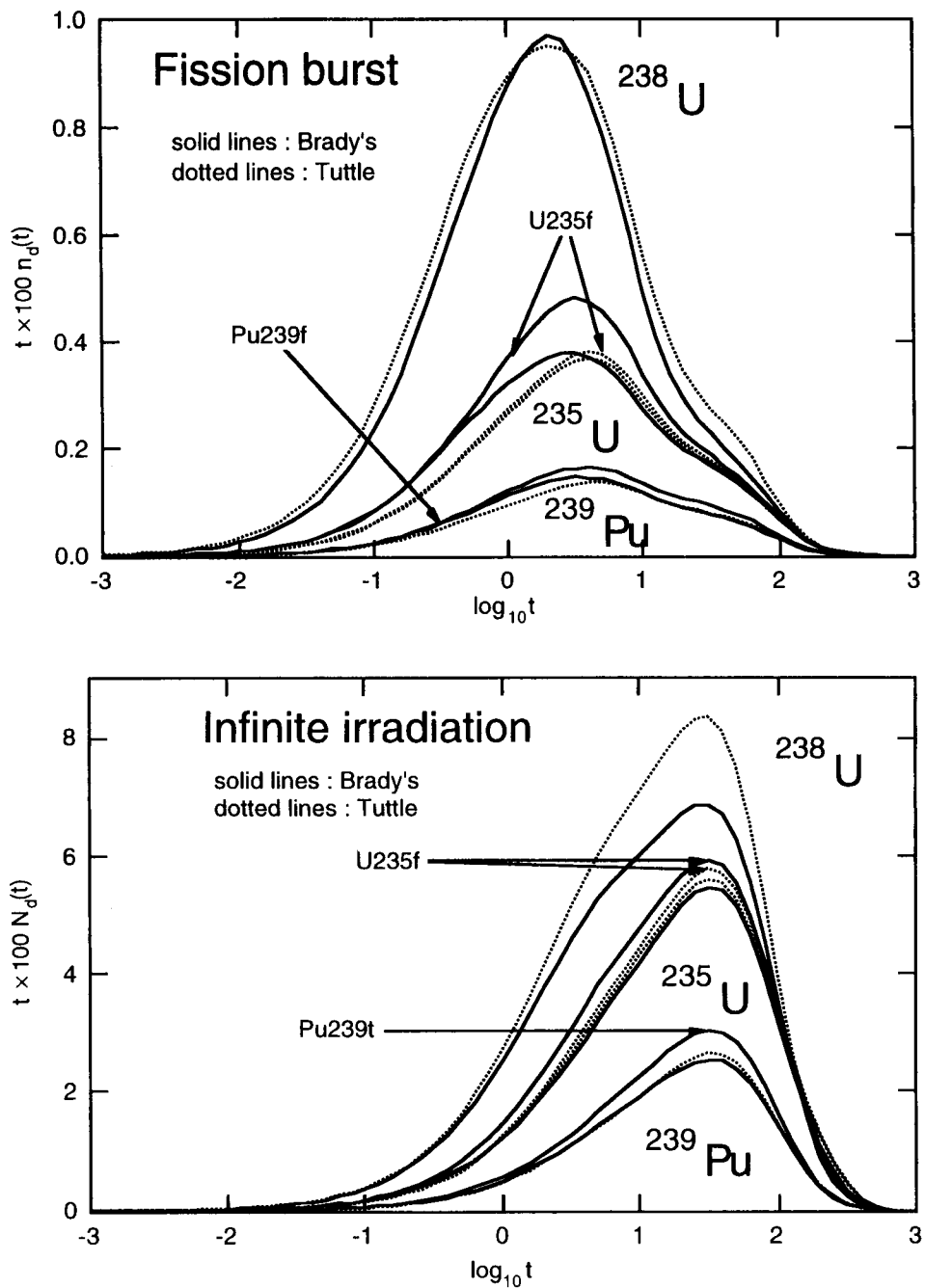


図6. Brady と England の6群近似式と Tuttle の6群近似式の比較。上段は瞬時照射、下段は無限照射の場合を示す。

7. Good News!

これまで見てきたように、遅発中性子総和計算の精度は実用上は今一歩である。では、総和計算は役に立たないのだろうか？

そうではない。総和計算の精度向上への道は開かれている。

理研の RI beam factory 計画など不安定核ビーム技術の進歩によって、短寿命の不安定核の生成と精度の良い同位体分離が可能になってきた。これらの施設では、まず重イオンビームをターゲットの原子核にぶつけて核破碎や核分裂をおこす。次に核破碎や核分裂の生成物を質量数、陽子数で電磁的に分離して不安定核の（2次）ビームを作る。この不安定核 2 次ビームを利用して、不安定原子核の構造、反応等の研究をすることができる。

特筆すべき点の一つとして、**In-flight** での同位体分離技術の進歩により、非常に良く分離された短寿命の遅発中性子先行核を効率よく生成できることがあげられる。また、アクチニド核種の核分裂は、より不安定な原子核を効率よく生成する方法として注目されている。実際、不安定核研究の分野では、独の GSI で ^{238}U の **photo fission** を利用して、不安定核を非常に効率よく生成分離し、多くの新核種の同定に成功している [12]。これは、短寿命の核分裂生成物である遅発中性子先行核の測定を行う上で非常に都合がよい。

このようにして、短寿命の遅発中性子先行核の崩壊定数 λ と遅発中性子放出確率 P_n の高精度測定の道が開かれてきているのである。

そこで、我々は、測定すべき崩壊データの重要度を吟味し、測定の優先順位をつける作業を行っている。

8. まとめ

総和計算は、核分裂収率、崩壊の分岐比(P_n)と崩壊定数をもとに数百核種の生成崩壊を計算で追う方法である。ただし、遅発中性子先行核は短寿命の不安定核であるので、核分裂収率と崩壊データの値は精度良くわかっていない。

$n_d(t)$ の計算では、崩壊系列が重要である。全先行核を使った 272 群近似式 $n_{d272}(t)$ には 5% 程度の誤差がある。6 群を 272 群にすれば総和計算になると考えるのは間違い。

Brady と England の遅発中性子総和計算の挑戦は ENDF/B-VI の 6 群パラメータとしてまとめられた。しかし、現状の総和計算では、 $\bar{\nu}_d$ については 1 割程度、 $n_d(t)$ については 1 割強の不確かさがあり、実用上は今一歩である。

RI beam 施設の利用によって、今まで不可能であった崩壊定数や P_n の値の高精度測定の道が開かれた。我々は、それに向けて測定の **priority list** を作成している。

総和計算値の不確かさの半分は核分裂収率による。次は核分裂収率の高精度

で実験的に決定する方法を研究すべきである。

総和計算は、崩壊熱では3%程度の誤差を議論できるまでになった。我々は遅発中性子総和計算についても、現在の精度の壁を打ち破り崩壊熱と同等の精度を達成しようと研究を進めている。

なお、この講演の内容はシグマ委員会の遅発中性子WGのメンバーの方々からの教えやメンバーの皆さんとの議論に大きくおっけています。特に、この研究を始める端緒を作っていただいた岡嶋さん(原研 FCA)と、WGのリーダーの吉田さん(武蔵工大)に深く感謝します。また、ここで紹介した以下の2つの内容は名古屋大学で学生諸君とともに進めてきたものです。遅発中性子総和計算の不確かさは宮園さん(現:原燃)の修士論文研究として行いました。これに用いた、計算コードは太田さん(現:電総研)が崩壊熱総和計算の不確かさの評価の修士論文研究で作成したものを利用しました。また ENDF/B-VI の 30 秒付近での問題の検討は佐波さんの卒業研究として行い現在も修士論文研究としてより詳細な検討を進めています。

参考文献

- [1] G. Spriggs et al., Nucl. Sci. and Eng. **114** (1993), 324-351.
- [2] P. Mohanakrishnan et al., Nucl. Sci. and Eng. **122** (1995), 359-365.
- [3] T. Williams, Ann. Nucl. Energy **23** (1996), 1261-1265.
- [4] 岡嶋成晃、核データニュース **59** (1998) 16-23.
- [5] T.R. England and B.F. Rider, LA-UR-94-3106 (1994).
- [6] T. R. England et al., LA-UR-92-3785(1992).
- [7] R.J. Tuttle, INDC(NDS)-107/G+Special (1979).
- [8] M.C. Brady and T.R. England, Nucl. Sci. and Eng. **103** (1989) 129-149.
- [9] R.J. Tuttle, Nucl. Sci. and Eng. **56** (1975), 37-71.
- [10] 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.
- [11] K. Oyamatsu : An Easy-to-use application to calculate decay heat and delayed neutron activity for personal computers, Proc. 1997 Symposium on Nuclear Data, Nov. 1997, JAERI, Tokai, Japan, JAERI-Conf 98-003, pp. 328-333, 1998.
- [12] M. Bernas et al., Phys. Lett. **B331** (1994) 19.