

核分裂中性子スペクトルの理論計算法

近畿大学・理工

大澤 孝明

ohsawa@ned.kindai.ac.jp

1. 序 言

核分裂中性子スペクトルの研究の歴史は長いが、いまだに「問題」の座を降りていない。本稿では、従来の評価方法を概観するとともに、筆者が開発した方法を U-235 と Pu-239 に適用して得られた JENDL-3.3 用の新しい計算結果について解説する。

表 1. 核分裂中性子スペクトルの評価法の発展

Phase	方 法	特 徴 ／ 問 題 点
第 1 期	簡単な初等関数による fitting Maxwell 型 Watt 型	・ 少数のパラメータによる表現 ・ 多数の測定データ点が必要 ・ 核種、入射中性子エネルギーとの関連が不明 ・ 簡単な関数による表示に無理
第 2 期	初等関数 × 補正係数 Green 型 (2 成分型) NBS 型	・ 初等関数からのズレを補正する ・ 物理的根拠は明確でない
第 3 期	新しい物理モデルの開発 Madland-Nix モデル カスケード蒸発モデル Hauser-Feshbach 型モデル	・ モデルの精密化 (核温度・励起エネルギー分布、殻効果などの考慮) ・ 核データ評価へ応用可能 ・ 予測可能性 (predictive power)

核分裂中性子スペクトルの評価法の発展の経緯を表 1 に示す。当初は Maxwell 型など簡単な解析式を採用してそのパラメータを実験値に合うように調整していた。しかし、精密に見るとずれがあり、そのずれの大きさがエネルギー領域によって異なることが明らか

になるに及んで、補正係数法が採用された。しかし、この方法に留まる限り、未知のデータを予測することはできない。そこで、即発中性子の放出メカニズムにまで立ち戻って物理モデルを組み上げる方向へ研究が進んできた。わが国では U-235 の核分裂スペクトルの評価は JENDL-2 までは Watt 型、JENDL-3.1 で原型 Madland-Nix 型¹⁾、JENDL-3.2 では改良 Madland-Nix 型が採用されてきた。

一方、核分裂過程に関する研究が進み、ここ十年ほどの間に核分裂における質量とエネルギーの分配が、マルチモード・ランダム破断モデル(multimodal random-neck rupture model または BGM model²⁾)で、少なくとも現象論的には良好に説明できることが明らかになった。これは、簡単に言うと、(1)断裂時の核の形状（およびそれに至る変形経路）は少数個存在し、断裂時の形状で核分裂におけるエネルギー分配が決まる、(2)断裂直前の形状のネック部分のどこで断裂が起こるかはガウス型確率分布で与えられる、と考えるものである。主要な変形経路（モード）は Standard-1 (S1), Standard-2 (S2), Standard-3 (S3), Superlong (SL), Superasymmetric (SA) などと名付けられた。単純なモデルではあるが、これは多くの核種の核分裂特性を良好に説明することができた。たとえば、Pu-238, -240, -242(sf)の質量と全運動エネルギー (TKE) の分布の系統的変化を見事に説明することに成功した。従来にも核分裂生成物の質量分布曲線を 5 個のガウス分布の重ね合わせで表示する試みはあったが、質量と TKE の 2 次元分布とその変化を同時に説明できたことは、モデルの単純さにもかかわらず、このモデルが作業仮説として有効性をもつことを意味する。

これは核分裂中性子スペクトルの研究にとっても好機であった。なぜなら、核分裂中性子スペクトルの計算のむずかしさは、核分裂でさまざまな励起エネルギーをもったさまざまの核分裂片が形成され、それから中性子がカスケード放出されるので、この多様性を計算にいかにうまく取り込むか、という点が問題になっていたからである。簡単な計算をしてみると、U-235 の場合、全励起エネルギー TXE は、対称分裂 ($A \sim 118u$) 領域では約 50MeV、 $A \sim 132u$ で約 25MeV、 $A \sim 142u$ で約 35MeV であり、核分裂片の核的特性も質量領域によって大きく異なる。原型 Madland-Nix モデル¹⁾では軽分裂片と重分裂片をそれぞれ 1 核種で代表させていたが、これで核分裂片と TXE の多様性を表現するには無理がある。Madland らはその後、28 個の核分裂片を考慮した計算法を提案した³⁾が、そのためには多量の予測困難な入力データを用意する必要があり、結果として predictive power を減ずることになった。

筆者は、核分裂が少数個の変形経路を経由して起こっているのが事実であれば、おののの核分裂モードにおいて生成する即発中性子スペクトルを別個に計算して、それを合成すればよいと考えた。そうすれば、対象核分裂片の数をむやみに増やすことなく、その核種の核分裂における質量とエネルギーの分配の特徴を押さえることができる。最近、核分裂モード分岐比の系統性に関する研究が進んでいることを考えると、系統性も見失われる

ことはないから、predictive power も保持できる。

この考え方を、入射中性子を変化させた場合 (Np-237 の 0.3 ~ 5MeV 中性子による核分裂⁴⁾)、および同一元素の同位体による変化 (Pu-238, -240, -242(sf), Pu-239(n_{th},f)⁵⁾) に適用したところ良好な結果が得られた。時あたかも JENDL-3.2 の見直しの過程で、NUCEF など漏洩の大きな炉心で核分裂中性子スペクトルに由来すると思われる問題点が出てきたので、あらためて、この「マルチモード解析」の手法を用いて再評価をおこなった。

2. 計 算 法

計算の基本的な方法は Madland-Nix の formalism に基づくが、いくつかの点で変更を加えた。第1に、準位密度パラメータとして $\alpha = A/C$ (A : 質量数, C : 定数) 型の簡単な式のかわりに、殻効果と超伝導・常伝導の相変化を考慮した Ignatyuk⁶⁾ モデルを採用した。これは、特に質量数 132 の 2 重閉殻近傍の重分裂片に対して顕著な相違をもたらす。第2に、軽分裂片と重分裂片から放出される中性子のスペクトルを別個に扱った。これは、一般に軽分裂片から放出される中性子の方が硬いスペクトルを持ち、かつ、軽・重分裂片から放出される中性子数 (v_{iL} , v_{iH}) は Madland-Nix⁷⁾ が暗黙のうちに仮定したのとは異なって同数ではなく、従来「鋸歯状構造」として知られているように、一般的には $v_{iL} \neq v_{iH}$ であることに基づく。 v_{iL} , v_{iH} は実験データから定めることはできないので、断裂直前の核の形状から BGM モデルで計算した値を用いた。すると、モード別スペクトルは次式で与えられる：

$$\chi_i(E_n) = [v_{iL}\chi_{iL}(E_n) + v_{iH}\chi_{iH}(E_n)] / (v_{iL} + v_{iH}) \quad (1)$$

$$\bar{v}_{Li} = \sum_{A < Ac/2} \bar{v}_i(A) Y_i(A), \quad \bar{v}_{Hi} = \sum_{A > Ac/2} \bar{v}_i(A) Y_i(A) \quad (2)$$

ここに、 E_n は入射中性子エネルギー、 i はモードの種類、 $Y_i(A)$ はそのモードにおける核分裂片質量分布を表す。U-235 では 3 つのモードがあるとされているので $i = S1, S2, SL$ である。なお、断裂直前における核の形状パラメータおよびモード分岐比は Fan ら⁷⁾ のデータを使用した。

全スペクトルは、モード別スペクトルを、モード分岐比 w_i とそのモードにおける即発中性子数 v_i の積 $w_i v_i$ を重率として平均化することによって求められる。

$$\chi_{tot}(E_n) = [\sum_i w_i v_i \chi_i(E_n)] / (\sum_i w_i v_i) \quad (3)$$

核分裂当たりの平均即発中性子個数 \bar{v} は

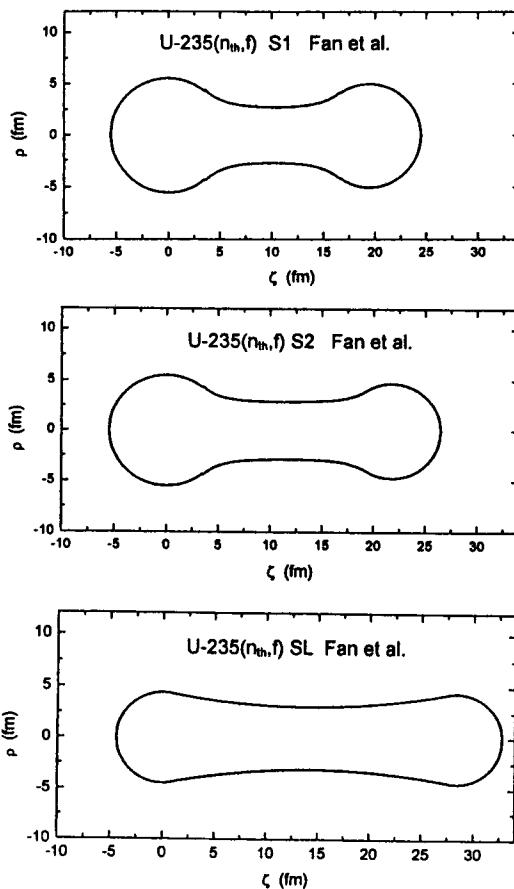


図1. U-235(n_{th}, f)の3つの核分裂モードの断裂直前における形状

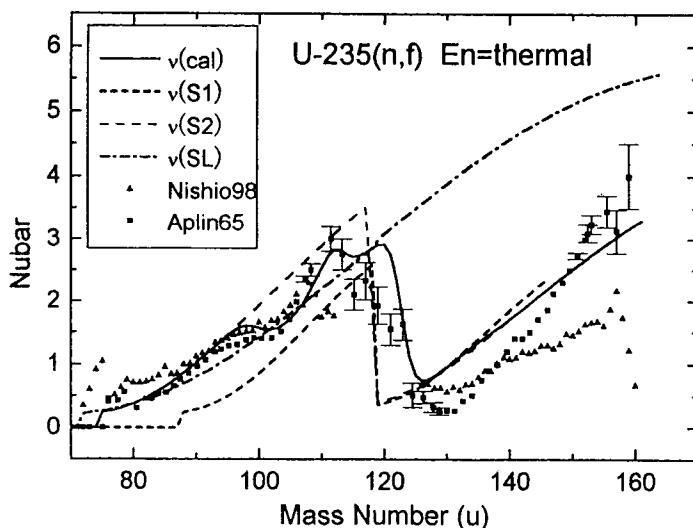


図2. U-235(n_{th}, f)における核分裂片質量に対するモードごとの放出中性子数（鋸歯状曲線）

$$\bar{v}(E_n) = \sum_i w_i [\bar{v}_{Li}(E_n) + \bar{v}_{LHi}(E_n)] \quad (4)$$

で表される。

なお、モードごとの核分裂の Q 値は TUYY 質量公式⁸⁾、核分裂片からの中性子放出の逆過程断面積は Becchetti-Greenlees⁹⁾の光学ポテンシャルにより計算した。

3. 結 果

3.1 U-235

Fan ら⁷⁾のパラメータに基づいて計算した S1、S2、SL モードの断裂点形状を図 1 に、核分裂片質量とそれから放出される即発中性子数の関係（いわゆる鋸歯状曲線）を図 2 に示す。上記(2)式で計算した、軽・重分裂片からの平均即発中性子数を西尾ら^{10,11)}の測定データと比較してみると次のようになる。

$$\begin{aligned} \bar{v}_{Li} &= 1.467 && (\text{本計算、S2 モード}) \\ &= 1.40 && (\text{西尾ら、実験値（全モード）}) \\ \bar{v}_{Hi} &= 1.139 && (\text{本計算、S2 モード}) \\ &= 1.03 && (\text{西尾ら、実験値（全モード）}) \end{aligned}$$

計算値は S2 モードに対するものであり、実験値は全モードに対するものであるから、厳密に対応しないが、U-235(n_{th}, f)では S2 モードへの分岐比が 81.6% を占めることを考えると、上の比較において計算値と実験値がほぼ一致しているということは、この計算方法と採用パラメータが妥当であることを示すものである。

Knitter ら¹²⁾のマルチモード解析データを採用して計算した S1、S2、SL 各モードの即発中性子スペクトル $\chi_i(0.025\text{eV})$ を図 3 に示す。S1 スペクトルが最もソフトになるのは、核分裂 Q 値の大部分が TKE にとられ、TXE が小さくなるためであり、SL スペクトルが最もハードになるのは、その逆の理由による。この 3 つのスペクトルを(3)式で合成して全スペクトル $\chi_{tot}(0.025\text{eV})$ を作った。JENDL-3.2 評価値を基準とした新評価値の比を図 4 に示した。比較のため、同図には ENDF/B-VI / JENDL-3.2 の比も破線でプロットしてある。この図から、新しい評価値は 2MeV 以下のソフト成分が減少し、逆に 2MeV 以上のハード成分が増加していることがわかる。（この図では比率がプロットしてあるので、高エネルギー成分の増加が強調されているが、スペクトルのピークは 0.8MeV 近傍にあるので、絶対値ではピーク近傍成分の減少が大きいことに留意すべきである。）25種類のしきい反応を用いた反応率の C/E で見ても、JENDL-3.2 より改善されていることが確認された。

同様な方法で、入射エネルギー 5MeV までのスペクトルを計算した。

3.2 Pu-239

Pu-239(n,f)については、Schillebeeckx ら¹³⁾のマルチモード解析データを採用して、上とほぼ同様な方法で計算をおこなった。U-235 との相違は、Pu-239 では Standard-3 モードが出現し（分岐比 1.0%）、他方、SL モード成分が分離されていないことである。しかし、S3、SL 成分はいずれもきわめて小さいので、実質的な影響はごく小さい。モードごとのスペクトルと全スペクトルを図5に示した。全スペクトルは Johansson らの測定データと良好な一致を示している。また、JENDL-3.2 を基準とした比率を図6に示した。U-235 の場合と類似した傾向が見られる。ただし、0.9MeV 以下の成分が JENDL-3.2 評価値に比べて約 5% 増加しているので、この領域に限ってみればスペクトルはソフト化したものと見られる。一方、数 MeV 以上のハード成分が増加しているので、漏洩の多い炉心体系では中性子の漏洩が増加すると思われる。

入射エネルギー 5MeV までのスペクトルは、Brosa ら¹⁴⁾の新しいモード分岐比データを用いて計算した。

4.まとめ

核分裂即発中性子スペクトルの評価計算を難しくしていた、核分裂片核種と励起エネルギーの多様性は、核分裂モードの考えを導入することで、系統性と予測力を保持しつつ計算に取り込むことができた。今後、この方法を多少拡張し、核分裂中性子スペクトルデータの乏しいマイナーアクチニド核種についても計算をおこなう予定である。

なお、入射エネルギーが約 10MeV 以上で見られる即発中性子の角度分布の非等方性とスペクトルの局所的 bump の問題は、multiple-chance fission における prefission neutron の前平衡放出によるものであることが、河野氏（九大）らとの共同研究¹⁵⁾で明らかになった。この成果も JENDL-3.3 に反映されることになっている。

参考文献

- [1] D. G. Madland and J. R. Nix, Nucl. Sci. Eng. 81, 213 (1982).
- [2] U. Brosa, S. Grossmann and A. Müller, Phys. Reports 197, No.4, 167 (1990).
- [3] D. G. Madland, R. J. LaBauve and J. R. Nix, Proc. of a Consultants Meeting on Physics of Neutron Emission in Fission, Mito, 24-27. May 1988, INDC(NDS)-220, ed. H. D. Lemmel (IAEA, 1989) p.259.
- [4] T.Ohsawa et al., Nucl. Phys. A653, 17 (1999)
- [5] T.Ohsawa et al., Nucl. Phys. A665, 3 (2000)

- [6] A. V. Ignatyuk, Sov. J. Nucl. Phys. 29 , 450 (1979).
- [7] T.-S. Fan, J.-M. Hu and S.-L. Bao, Nucl. Phys. A591, 161 (1995)
- [8] T. Tachibana, M. Uno, M. Yamada and S. Yamada, Atomic Data and Nuclear Data Tables, 39, 125 (1988).
- [9] F. D. Becchetti, Jr., and G. W. Greenlees, Phys. Rev. 182, 1190 (1969).
- [10] K. Nishio, M. Nakashima I. Kimura and Y. Nakagome, J. Nucl. Sci. Technol. 35, 631(1998).
- [11] K. Nishio, Y. Nakagome, H. Yoshimoto and I. Kimura, Nucl. Phys. A632, 540 (1998).
- [12] H.-H. Knitter, F.-J. Hambach, C. Butz-Jorgensen, Z. Naturforsch. 42a, 786 (1987).
- [13] P. Schillebeeckx, C. Wagemans, A. J. Derutter and R. Barthelemy, Nucl. Phys. A545, 623 (1992).
- [14] U. Brosa, H.-H. Knitter, T.-S. Fan, J.-M. Hu and S.-L. Bao, Phys. Rev. C59, 767 (1999).
- [15] T.Kawano, T.Ohsawa, M.Baba and T.Nakagawa, Phys. Rev. C63, 034601 (2001)

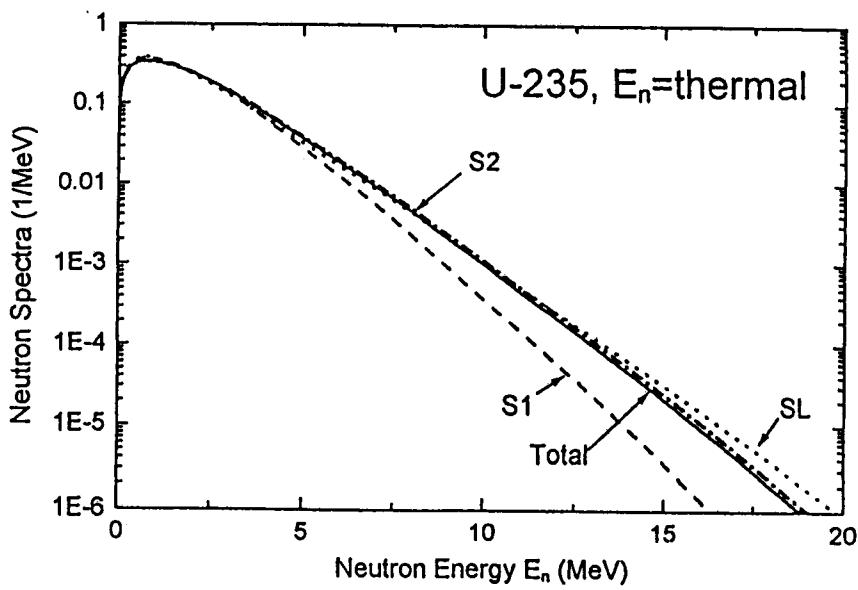


図3 . U-235(n_{th}, f)の各モードごとの放出中性子スペクトルの比較

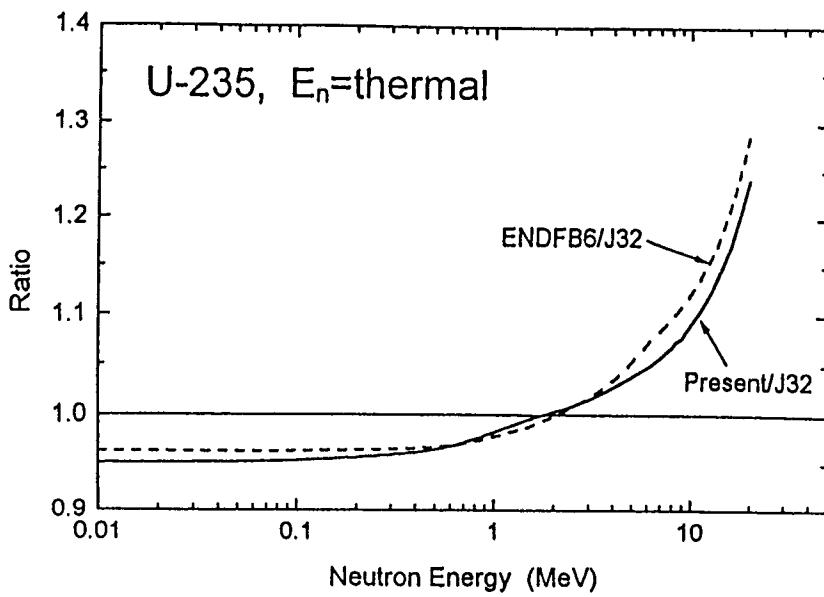


図4 . U-235(n_{th}, f)の JENDL-3.2 を基準とした新評価値と ENDF/B-VI の比率

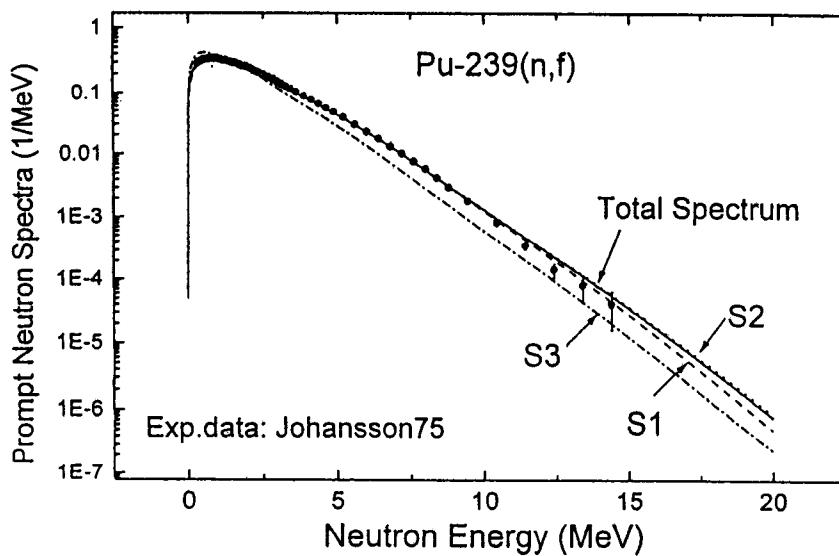


図 5 . Pu-239(n_{th}, f)の各モードごとの放出中性子スペクトルの比較

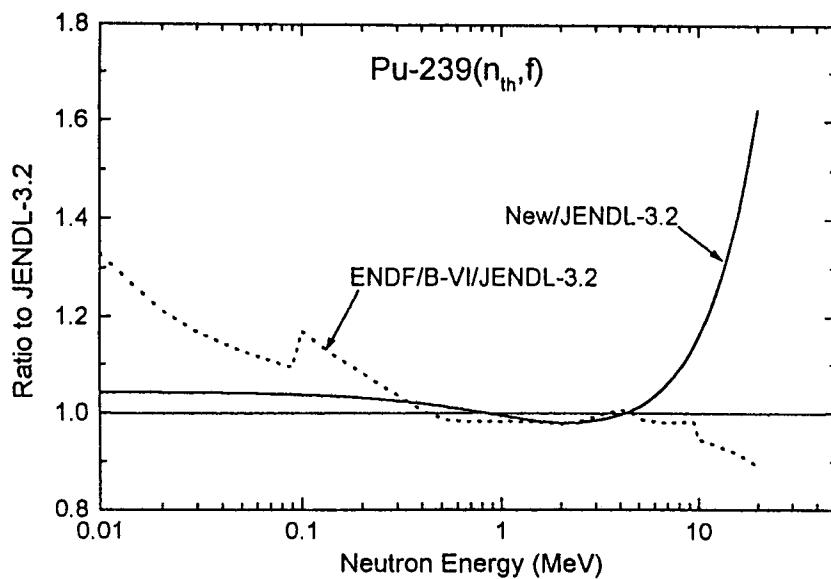


図 6 . Pu-239(n_{th}, f)の JENDL-3.2 を基準とした新評価値と ENDF/B-VI の比率