核データニュース，No.74 (2003)

会議のトピックス(IV)

「マイナーアクチニド廃棄物核変換のための核分裂収率データ」第４回研究調整会合報告

日本原子力研究所核データセンター
深堀　智生
fukahori@ndc.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

標記会合が 2002 年 11 月 25～29 日、ウィーン IAEA 本部にて開催された。A. Nichols（Head, Nuclear Data Section（NDS））による挨拶の後、会合のスケジュールが M. Lammer（Meeting Secretariat, NDS）によって説明された。本会合の座長に J.O. Denschlag（Institut für Kernchemie Johannes Gutenberg-Universität Mainz）を選出し、議論を開始した。参加者リストと会合日程を文末に示す。以下、会合日程にしたがって、議論の概要を報告する。なお、敬称は省略し、[　]で示す配付資料のリストは本文末に示す。

2. 各参加者の進捗状況報告

F.-J. Hambsch（EC-JRC-Institute for Reference Materials and Measurements（IRMM））は、「断面積評価にもとづく核分裂生成物質量分布の予測」[1,1a,1b,1c]について報告した。これは、統計模型計算を拡張し、マルチモード核分裂を取り込んで、断面積計算と同時に核分裂反応計算（核分裂収率計算を含む）を行うことが初期の目的であった。このため、外側の核分裂障壁を切り離し、S1, S2, SL モードに対応する障壁パラメータを与えた。計算は ECIS+STATIS コードシステムで行っている。計算結果は実験値を良好に再現しているが、低エネルギーで SL が大きくなっている問題が指摘された。これは外側の障壁が相対的に薄いからではないかと推測された。更に、この計算には各モードに対する分岐比が重要であることが指摘された。核データセンターで開発している系統式を用いた高エネルギー核分裂計算コード FISCAL は SL モードを表しているかもしれない。

V.M. Maslov（Radiation Physics and Chemistry Problems Institute（RPCPI））は、「200 MeV までのアクチニドに対する中性子入射核分裂収率における対称及び非対称分裂」に関する報告を行った[2,2a]。^{232}Th, ^{233,235,238}U, ^{237}Np に対して、TALYS コードを用いて、マルチチャンス核分裂を考慮して計算している。また、^{238}U に関しては、陽子入射核分裂に関しても計算している。マルチチャンスの度合いが大きい方が対称成分割合の計算に大きく寄与するとの報告があった。中性子入射及び陽子入射における対称成分割合の違い（陽

子入射の方が対称成分の割合が大きい）は、反応断面積の違い及びマルチチャンスの度合いの差から生じるのではないかという指摘があった。

A.A. Goverdovski（Institute of Physics and Power Engineering（IPPE））は、^{237}Np に対する 18 MeV 中性子による核分裂収率について言及し、対称成分の寄与は思ったより狭い質量範囲に限られ、100 MeV 程度の入射エネルギーでも 30%以下にしかならないと指摘した[2b]。

S.V. Zhdanov（Institute of Nuclear Physics）は、「5～160 MeV の中性子入射エネルギー領域におけるアクチニドの核分裂収率質量分布の記述に関する 2 つのモデルによるアプローチ」に関して報告した[3,3a]。これには、Gauss 分布でない関数（Charlie distribution?）が、用いられている。導出された peak to valley ratio に関しては、中性子及び陽子入射核分裂間で相違がある（陽子入射の方が 3～5 倍大きい）[3b]。

深堀（原研）は、片倉（原研）による 5 Gaussian アプローチの新しいパラメータセットの提案及び系統式を用いて中高エネルギー核分裂断面積を計算する FISCAL コードについて報告した[4,4a]。

Denschlag は、^{249}Cf(n_{th},f)反応における三重核分裂収率について報告した[5]。

3. ベンチマーク計算

3.1 各参加者が行った方法とその問題点の抽出

Liu Tingjin（CIAE）は、ベンチマークのための参照評価及び誤差推定などについて報告した。「^{238}U、^{239}Pu 及び ^{242}Pu 中性子入射核分裂に対する質量分布評価」[6,6a,6b]では、データ収集、選択、解析及び評価を行った。実験データには、運動学的な測定（二重エネルギー測定、Type-1）及び放射化学的測定（Type-2）があり、2 つの Type 間には明らかな相違がある。これは、質量分解能（Type-1）や遅発中性子（Type-2）の取り扱いの相違に起因すると思われるが、遅発中性子の影響は 1%程度であるので、問題とならない。質量分解能に関しては、Schmitt の方法を用いて補正を行った。しかし、基になった Zoller のデータに問題（中性子放出後の質量分布が対称になっている）があるため、最終結果はおかしいものになっている。誤差に関しては分解能補正を行うと大きくなる。

「^{238}U 核分裂収率に対する系統式及び共分散」[7]に関して、系統式を共分散導出のために使用し、系統式には 3 又は 5 Gaussian（2 MeV < En < 20 MeV（5 Gaussian）、20 MeV < En < 200 MeV（3 Gaussian））を用いた。フィッティング・パラメータは、分裂片ピークの位置、高さ、幅、核分裂中性子数であり、これらのパラメータを 2 次関数でフィッティングして、系統式とした。

「^{252}Cf 自発核分裂の質量分布の評価」[8]では、参照データとして ^{252}Cf 自発核分裂の質量分布を評価した。Schmitt, Thierens, Blachot, Nervik, Flynn, Li, Chen, Fraser の 8 つの実験データを選択し、スプライン関数及び 5 Gaussian フィッティングを行った。スプライン関

数がより小さな誤差を与える。彼らは、重核分裂片と軽核分裂片の分布を同じと仮定する対称分布及びこの制限を課さないものの 2 つの推奨値を与えている。

Yu.V. Kibkalo（Ukrainian Nuclear Data Center, SC Institute for Nuclear Research）は、「2～200 MeV 領域における ^{238}U 中性子核分裂に対する分裂片質量分布」に関する報告を行った[9]。Brosa モデルの parameterization を用いて中性子放出前後における質量分布を Zoller のデータにフィッティングした。一致は良好である。しかし、プレフィッション中性子数のエネルギー依存性が物理的でない振舞いを示すことがわかった。これは、まず実験データをフィットして中性子放出前後の分布を出して、これらの差を取って導出したため、実験データの不備を全て吸収している。これは、Maslov の計算結果と一致する。Zoller のデータは何かの間違いで、このピーク（25 MeV のあたり）のところで中性子放出前後の質量分布が一致してしまっていたためと思われる。これにより、Zoller のデータを本 CRP の結果に取り込むかどうかの議論となったが、とりあえずベンチマーク結果の比較を行ってから、改めて検討することとした。

3.2 計算結果の相互比較[10-13]

まず、「低い質量分解能は対称成分割合の増加を招くので、十分注意する必要がある。特に、peak to valley ratio を比較する場合は大きく影響する。分解能の補正が必要であろう」という指摘があった。しかし、今回のベンチマーク結果の相互比較は、実験データはそのままで行った。

中性子放出後の質量分布[12]に関するベンチマーク計算が Wahl、M.C. Duijvestijn（ECN-Petten、ALICE 及び TALYS による計算）、片倉、Kibkalo、Liu らによって行われ、これらの相互比較を実験データとともに行った。全ての実験データを基にしたものは片倉、Wahl によって行われた。Liu 及び Kibkalo は Zoller のデータのみをもとに行われたため、Zoller の間違いを反映している可能性がある。モデル計算は ALICE 及び TALYS によって行われ、どちらがよいかエネルギー及び対象核種によって異なり、双方とも実験データを完全に再現するには至らない。しかし、全く実験データがないものに関しては、使用可能の範囲でもある。相対的に、片倉のフィッティングがもっとも良いと思われる。ただし、全ての計算結果は重核分裂片と軽核分裂片のピーク高さの非対称性を表してはいないし、シャープな実験データ構造（重核分裂片の A=134 の周辺、中性子放出がこのあたりで止まる）も表してはいない。したがって、中性子放出後の質量分布フィッティングには軽質量片と重質量片が対称でない５つの独立した Gaussian が必要であろう。比較の過程でわかったことであるが、「比較には質量分解能の補正をしないデータの方がいい」ように思われたのは、Zoller は既にこの補正を行っており、Liu は Zoller に関して補正を 2 度行っていたことに起因するようである。また、スムージングの効果も無視でき

ない。このため、ベンチマーク計算の相互比較の対象として Zoller のオリジナルデータを用いることとした。

中性子放出前の質量分布[13]に関するベンチマーク計算は、Wahl、Duijvestijn、Kibkalo、Zhdanov、Liu らによって行われた。中性子放出前の質量分布に関する比較対象の実験データは全て運動学的な測定であるので、補正がされてしまっている。これも上記と同様に問題であるので、オリジナルの実験データと比較しなければならない。報告書ではこの点が修正される予定である。全体の傾向は中性子放出後の質量分布に関するベンチマーク計算結果と同様である。Wahl の計算値は高エネルギー入射で対称成分が大きすぎる。また、概して実験データを用いた系統式がモデル計算よりも実験データをより再現する。

4. CRP 報告書

まず、TECDOC のための報告書の現状確認（終わっていないものはその作成計画）を行った。その後、目次の作成及び最終結果の作成に入ったが、

- 結果をどのように実際の評価へ反映するか
- 他にどのような作業がまだ必要か
- CRP を更に続けるべきか、どのように提案するか

が議論となった。また、発行のための日程の作成を行った。

TECDOC のための問題点検討作業を以下に示す。

- Zoller のデータをどのように取り扱うかの検討に関しては、データの導出に関する Zoller の記述は間違いないようであるが、与えられているデータが何か間違っている。このため、注意事項を TECDOC に記載することとした。
- 二重に質量分解能の補正を行ってしまっていた件に関して、ベンチマーク計算の相互比較の対象として Zoller のオリジナルデータを用いることとした。
- 「Wahl の計算値が高エネルギー入射で対称成分が大きすぎる」問題は、Wahl に知らせて、改訂を頼むこととした。
- 核分裂片質量分布計算の現状は、系統式及びモデル計算を含めて予測精度は 100%（ファクター2）程度である。この状況を改善するには、実験を行うか、モデルを改善する必要がある。

TECDOC に含むものは、

- ベンチマーク計算の結果：表（含χ^2）、比較図、系統式のプログラム、モデル計算の入力データ、実験データ（www サイトまたは CD-ROM にも格納）
- ベンチマーク計算結果に対する CRP の意見
- ユーザがどのように使えるか、または、CRP がどのように推奨するか、物理的な説明や利用範囲について記述する。
- 更に、「誰かを頼んで、全体を実験データと比較し、パラメータの振る舞いを見る」

ことが提案された。

- この他、提案することがあれば、IAEA/NDS へ連絡する

等となった。

5. おわりに

本 CRP の結論として、熱中性子エネルギーから 150 MeV 程度までのエネルギー領域における核分裂収率（核分裂片質量分布）をトリウムからフェルミウムまでのアクチノイド核種に対して全体的に見てファクター2 程度の精度で与えることができたといえるだろう。当面はこれらの成果を高エネルギー核データ評価に役立てていきたいと考えている。しかし、中性子放出後の重核分裂片と軽核分裂片のピーク高さの違いやモデル計算による予測性度の向上のためには更なる実験及び解析が必要であることは論を待たない。研究者各位（特に実験者）のご協力をお願いしたい。

今年のウィーンは例年に比較して暖かく、11 月末にもかかわらず最高気温が 10 度を超えていた。このためかどうかわからないが、CRP 内の議論はすこぶる活発であった。これは、いい意味ではなく、話しがすぐに「物理の非常に細かい議論」という横道にそれてしまうことと、自分の立場を擁護するための議論に終始する傾向（特にロシア語をしゃべる参加者達）があった。これは、他の CRP にも共通しているように思われる。日本からの参加者は、CRP の最終目的を的確に把握し、上記のような横道にとらわれないようにすることが重要であるという印象を受けた。

配付資料リスト

[1] Prediction of fission mass yield distributions based on cross section evaluations (F.-J. Hambsch)

[1a] OHP version of [1] (F.-J. Hambsch)

[1b] G. Vlaauca, et al., Nucl. Phys. A707, 32 (2002) (F.-J. Hambsch)

[1c] F.-J. Hambsch, et al., Nucl. Phys. A709, 85 (2002) (F.-J. Hambsch)

[2] Progress Report (V.M. Maslov)

[2a] Symmetric/asymmetric ^{238}U neutron-induced fission up to 200 MeV (V.M. Maslov)

[2b] Figure for effect of symmetric part fraction to mass distribution (A.A. Goverdovski)

[3] Two-model approach for the description of fragment mass yields in the neutron induced fission of actinides at neutron energy from 5 to 160 MeV (S.V. Zhdanov)

[3a] D.M. Gorodisskiy et al., Phys. Lett. B548, 45 (2002) (S.V. Zhdanov)

[3b] Figure for peak to valley ratio (S.V. Zhdanov)

[4] OHP version of [4a] (J. Katakura)

[4a] A new parameter set of 5 Gaussian fission product mass yield systematics (J. Katakura)

[5] Ternary particle yields in $^{249}Cf(n_{th},f)$ (H.O. Denschlag)

[6] OHP version of [6a] (Liu Tingjin)

[6a] The evaluation of the mass distribution data for ^{238}U, ^{239}Pu and ^{242}Pu fission (Liu Tingjin)

[6b] Data correction to mass resolution (Liu Tinggin)

[7] Fission yield data systematics and covariances study for ^{238}U (Liu Tingjin)

[8] Evaluation of mass distribution data from ^{252}Cf spontaneous fission (Liu Tingjin)

[9] Fragment mass distribution for ^{238}U fission by neutrons in the energy region from 2 to 200 MeV (Yu.V. Kibkalo)

[10] CRP benchmark exercise (M. Lammer)

[11] Benchmark calculations B (M. Lammer)

[12] CRP Benchmark exercise – post-neutron emission data (M. Lammer)

[13] CRP Benchmark exercise – pre-neutron emission data (M. Lammer)

[14] CR-ROM including plots for all benchmark comparisons (M. Lammer)

[20] The evaluated reference fission yield data file (Liu Tingjin) not presented

[21] Progress report on “Evaluation of Fission yield data for reference and minor actinides” (Liu Tingjin) not presented

[22] E-mail from Duijvestijn

参加者リスト

CRP PARTICIPANTS	
Johannes Otto DENSCHLAG	Johannes Gutenberg-Universität Mainz
Tokio FUKAHORI	Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI)
Andrei A. GOVERDOVSKI	Institute of Physics and Power Engineering (IPPE)
Yuriy V. KIBKALO	Ukrainian Nuclear Data Center
LIU Tingjin	China Institute of Atomic Energy (CIAE)
Vladimir M. MASLOV	Radiation Physics and Chemistry Problems Institute (RPCPI)
Sergey V. ZHDANOV	Institute of Nuclear Physics (INP)
OBSERVER OF AN INTERNATIONAL ORGANIZATION	
Franz-Josef HAMBSCH	EC-JRC-Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM)
IAEA, Vienna, AUSTRIA	
Meinhart LAMMER	**(Scientific Secretary of the Meeting)**, IAEA Nuclear Data Section
Alan L. NICHOLS	IAEA Nuclear Data Section
Vladimir G. PRONYAEV	IAEA Nuclear Data Section
Andrej TRKOV	IAEA Nuclear Data Section

Fourth Research Co-ordination Meeting on

Fission Product Yield Data Required for Transmutation of Minor Actinide Nuclear Waste

IAEA Headquarters, Vienna

25 - 29 November 2002

proposed agenda

1. Opening

1.1 Opening speech by A. Nichols (Head, Nuclear Data Section)

1.2 Introductory remarks, announcements by M. Lammer; election of Chairman

1.3 Adoption of Agenda, discussion of time schedule

2. Presentation of progress reports by participants

In this session, work done and progress made since the last RCM should be presented. The reports should **exclude** the actual benchmark calculations and results (session 3), and the contributions to the final CRP publication (session 4). Too few papers have been received to make the agenda of this session more detailed.

3. Benchmark exercise

3.1 Evaluations performed for benchmark exercise

Discussion and presentation of evaluations:

- emissive fission contributions to total fission cross section;
- experimental fission yields and correction for mass resolution.

3.2 Brief description of model and calculation method

By all participants who have performed calculations using models or systematics, including problems encountered, limitations of the model/method, etc.

3.3 Inter-comparison of calculation results

Presentation of calculation results as handouts, and graphical comparison among themselves and with experimental results; analysis and discussion of the observed discrepancies and possible deficiencies of the models or calculation methods.

4. Final publication of the CRP

- presentation of completed papers, or drafts, or outline of planned papers as contribution to the final publication of the CRP (TECDOC).
- contents and arrangement of contributions; formulation of CRP summary;
- schedule for finalization of contributions and assembly of document.

5. Outlook

Discussion and conclusions (could be included in the final publication):

- how can the results of this CRP be used for the development of an actual evaluation;
- which/how much research work would still be necessary;
- is it feasible to continue the research in the frame of 2 or 3 individual contracts, and should that be recommended to the Agency as an alternative to a CRP.