

話題・解説(I)

崩壊熱計算の最近の動向と WPEC サブグループ SG25

武蔵工業大学

吉田 正

tyoshida@sc.musashi-tech.ac.jp

1. はじめに

JNDC-FP Decay Data File や ENDF/B-VI、あるいは JENDL-FP Decay Data File 2000 を用いた崩壊熱総和計算の結果が、U-233 からはじまり Pu-241 に至るあらゆる核分裂核種のサンプル照射実験値（以下積分測定と呼ぶ）と良好に一致することから、総和計算用崩壊データライブラリーはほぼ完成の域に近く、為すべきことはもはや無いとの認識が一部に生まれた。実際、これらライブラリーに基づく計算と積分測定との一致は良好で、筆者らも、残された問題は瞬時照射後千秒から数千秒での崩壊熱のガンマ線成分の一貫した過小評価ぐらいであると考えてようになっていた。この問題を筆者らは文献 1) のなかで便宜的に γ -ray discrepancy と呼んだ。そしてこの γ -ray discrepancy が、本稿の主題となるこの分野における新たな WPEC 活動の出発点となった。

2. 総和計算の実情

総和計算用データライブラリーには、800~1100 におよぶ FP 核種各々の核分裂収率、ベータ崩壊定数、さらに、崩壊に伴い放出されるベータ線、ガンマ線の平均エネルギー（以下 E_β 、 E_γ と呼ぶ）が収められている。総和計算では、これらデータを用いて、炉停止（あるいは照射終了）後の各 FP 核種の刻々の存在量を計算し、これに崩壊定数と E_β 、あるいは E_γ を乗じて崩壊熱（正確にはそのベータ線成分とガンマ線成分）を計算する。ライブラリー作成上難しいのは各核種ごとの E_β 、 E_γ 値の算出である。これらはミクロな崩壊データから評価構築された崩壊スキーム（最近では多くの場合 ENSDF²⁾）から計算される。しかし、崩壊スキームは往々にして、娘核の高励起状態に行く β 遷移が、従って娘核の高励起レベルが欠落しやすい。結果、 E_β が過大に、 E_γ が過小に評価される（図 1）。これを パンデモニウム問題 と呼ぶが、この呼び方の来歴については本稿では立ち入らないことにする。

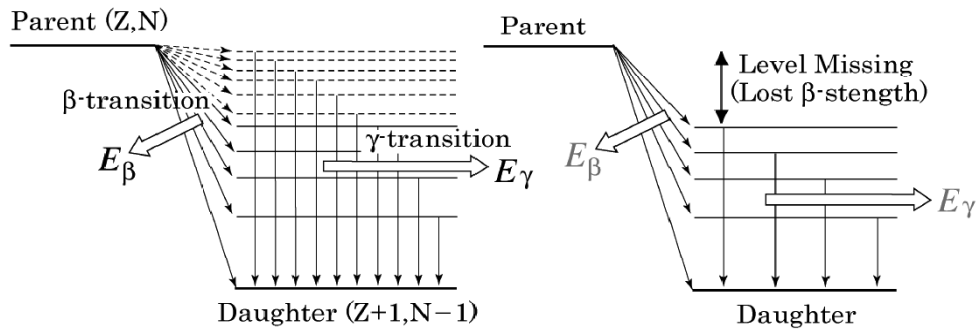


図1 崩壊スキームにおける高励起レベルの欠落と E_β 、 E_γ 値の過大、過小評価

筆者らはこの欠落（パンデモニウム問題）を、山田、高橋らの「ベータ崩壊の大局的理論」による理論計算を導入することによって回避し³⁾、米国の ENDF もこれになった。しかし、欧州では理論計算による崩壊データの補正は行っていない。この結果、図2に見るように、JENDL と ENDF/B-VI は積分測定とよく合っているが、欧州の JEFF-3.1 は崩壊熱ガンマ線成分を著しく過小評価している。ここには示さないが、ベータ線成分は過大評価になっており、JEFF-3.1 では明らかに図1に関連して述べた E_β の過大評価、 E_γ の過小評価（パンデモニウム問題）が起きていることがわかる。実はアメリカでも、大局的理論の導入に積極的だったロスアラモスの T.R.England 氏、オークリッジの J.K.Dickens 氏らが引退して流れが変わり、ENDF/B-VII では理論補正を行わない公算が高い。ENDF/B-VII の暫定版による計算結果がごく最近ブルックヘブンの A.Sonzogni 氏から送られてきたが⁴⁾、それは図2の JEFF-3.1 を殆どなぞるような結果になっている。趨勢は、理論値を導入する日本と、崩壊スキームだけに依拠する欧・米という図式になりそうだ。

理論値にも問題はある。それがあくまでも理論による推定であるという点は措くとしても、大局的理論は核の平均的な挙動を記述する理論である。個々の核一つ一つに着目すれば、平均的な挙動からずれていても全く不思議はない。崩壊熱の場合には多くの核が同時に寄与するのでその挙動は平均化され、大局的理論による推定が非常に有効であった。それが、われわれの主張であった。しかし、崩壊データライブラリーは、個々の核すべてについて、そのさまざまな個性も含め、知りうる範囲内の測定に依拠した情報のみを収納すべきだという立場に立つと、平均理論に依拠する推定値を持ち込むことに躊躇があっても不思議はない。A.Sonzogni 氏の ENDF/B-VII に対する立場がそれだ。

同図2の右上、青で囲った部分は JENDL でも過小評価の傾向があり、これが本稿冒頭でのべた γ -ray discrepancy である。この不一致は、U-233 から Pu-241 までの殆ど全ての核分裂核で系統的に現れ、筆者らはこの不一致の原因を、テクネチウム同位体、特に Tc-102、-104、-105 のパンデモニウム問題に帰した¹⁾。ここで TAGS の登場となる。

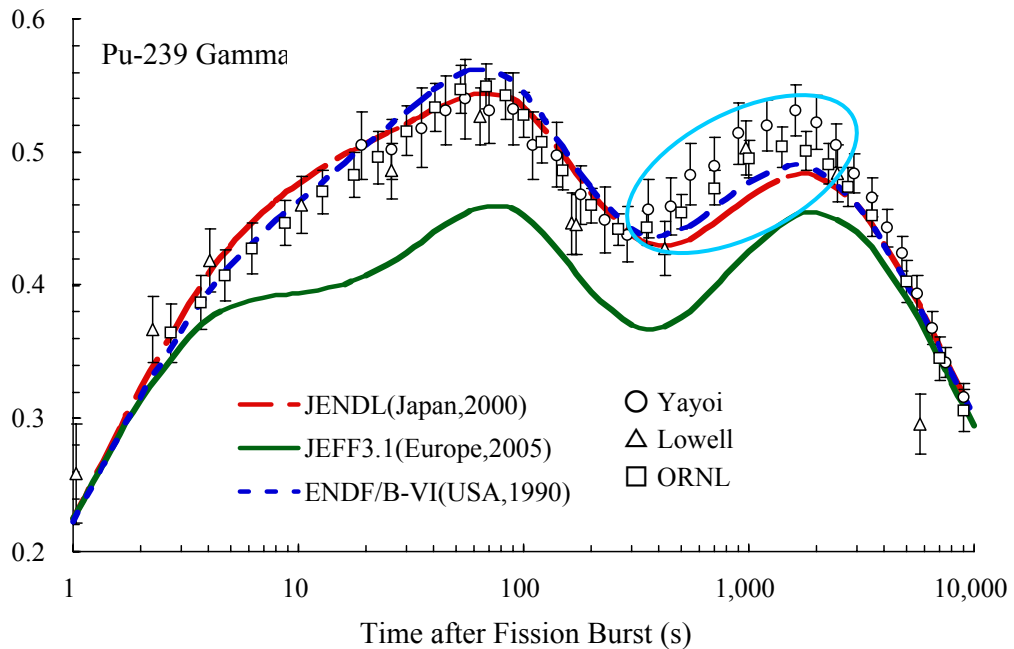


図2 Pu239 瞬時照射後の崩壊熱ガンマ成分の積分測定と各国ライブラリー間の比較
縦軸は崩壊熱×冷却時間 (MeV/fission)

3. パンデモニウム問題と TAGS (Total Absorption Gamma-Ray Spectrometer)

パンデモニウム問題が生じるのは、ベータ崩壊に伴い発生する膨大な数のガンマ線をすべて捕まえられること、またたとえ測定にはかかっても、複雑な崩壊スキームの中に正しく位置づけることが容易ではないこと (unplaced gamma の存在) 等に起因している。ところで、Total Absorption Gamma-Ray Spectrometer (TAGS) を用いた測定はパンデモニウム問題に冒されにくいという利点をもつ。ここで TAGS の詳細に立ち入る余裕はないが、この方法は崩壊スキームを組み立てるのに重要な娘核のレベル間のガンマ遷移に関する情報はもたらさないことは公平に述べておく必要がある。TAGS が与えてくれるのは、娘核の励起エネルギー bin ごとに、その bin へのベータ遷移の確率である。分かるのはベータ強度関数だと言ってもいい。ついでに記すなら、TAGS は他の方法では決めにくい ground-state β に関し、貴重な情報をもたらしてくれる。TAGS は崩壊熱総和計算には格好の情報源なのだ。総和計算ではレベルの詳細情報ではなく E_β 、 E_γ 値さえわかればよいのだから。

話題をもとに戻そう。筆者らのテクネチウムのパンデモニウム問題に関する論文¹⁾ に触発され、バレンシア大学を中心とする TAGS 測定グループはテクネチウム同位体の TAGS 測定に着手した。時間関係が逆転するが、ここでひとつの結果を先に述べておこう。図3はきわめて最近の結果であるが、Tc-104、-105 の TAGS 測定結果⁵⁾ の導入により、2節で述べた狭い意味での γ -ray discrepancy が解決されているのがわかる。

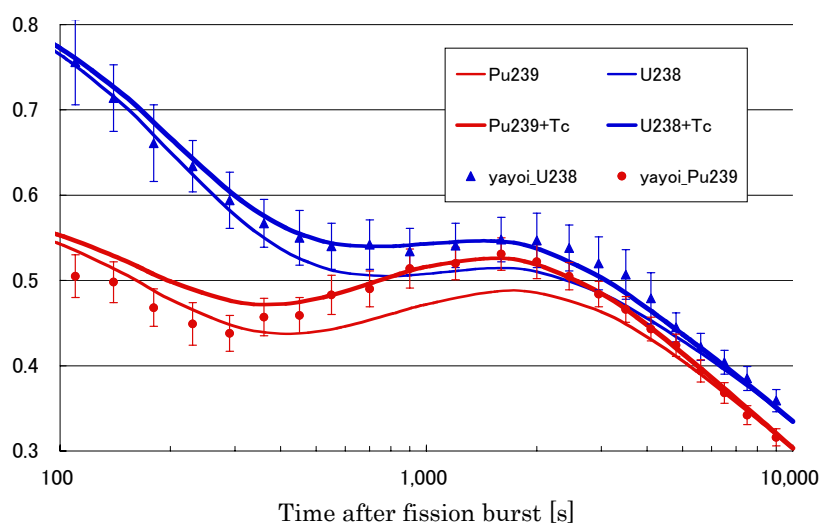


図3 TAGS データの導入による Tc 同位体パンデモニウム問題の解決
Pu-239 と U-238 の例、縦軸は崩壊熱×冷却時間 (MeV/fission)

このグループの中心人物のひとり、J.L.Tain 氏とはつくばの核データ国際会議のロビーで初めて出会い (2001 年 10 月)、上記の Tc-104、-105 の TAGS 測定の暫定的な結果を入手するまで (2006 年 6 月)、実に 5 年弱を要している。計画から、データ取得、解析まで、息の長い仕事である。この測定はフィンランドのヨヴァスキラ大学で行われ、結果の一部は 2005 年暮れにウィーンで開催された IAEA Consultants' Meeting で報告された。まだ論文にはなっていない。

3. WPEC Subgroup 25

話は数年前に戻る。この、ヨヴァスキラ大学での TAGS 測定のプロポーザルに際して、同種の TAGS 測定が 1990 年代にアメリカで行われたが (アイダホの Greenwood らの測定⁶⁾)、まだ更に TAGS 測定を行う意味を明確にしるとコメントされた。そこで早大の橘氏はアイダホの測定データから約 45 の短寿命 FP 核種の E_{β} 値、 E_{γ} 値を計算し、武蔵工大ではその結果を使って崩壊熱計算と解析を行い、更なる TAGS 測定が崩壊熱計算の精度向上に有益であることを示した。詳細については文献 7) を参照されたい。

このようにしてヨヴァスキラ大学での TAGS 測定は始まったわけであり、筆者には、ひとつの感慨があった。総和計算用データライブラリーに大局的理論による推定を導入した 1980 年ころ、いつかはこれも測定データで置き換えられるはずのもの、何十年か後、全ての短寿命 FP 核種の崩壊スキームは十全に整備され、理論推定は不要になるだろうと考えていたのである。それは TAGS によってある意味実現しようとしている。しかし、考え違いもあった。図 2 の JEFF-3.1 の挙動。図示はしなかったが ENDF/B-VII の挙動。

これらは、1980年ころ、理論値導入前の JNDC FP Decay Data File の試作時に体験したものと全く同じであるのだ。今でも、崩壊スキームだけから、積分測定結果を再現することはできない。改善すらも殆ど見られないのである。

筆者は OECD/NEA の Working Party on International Nuclear Data Evaluation Cooperation (WPEC) 会合の日本側メンバーの一人にさせていただいているが、パンデモニウム問題と TAGS は WPEC のテーマにするべきだと考え始めた。TAGS データはいままで述べてきたように、崩壊熱総和計算のデータベースの一環として非常に有効である。一方、TAGS グループと核データコミュニティーの間には殆ど交流がない。しかし両グループは互いに相補的だ。WPEC はこの事態を改善する格好の場であると。そこで、昨年のアントワープでの WPEC 会合で新 subgroup の立ち上げを提案し、SG25 として承認された。微力とは知りつつ筆者が Coordinator に、百戦錬磨の IAEA の A.Nichols 氏が Monitor となった。この Nichols 氏と、当時まだ IAEA にいた Trkov 氏の尽力によって、IAEA Consultants' Meeting のかたちで、2 回の subgroup 会合を持つことができた。昨年暮れのウィーン会合と、WPEC と併催された今年 5 月 3 日のパリ会合である。

4. おわりに

ヨーロッパの TAGS グループはテクネチウムとモリブデンの可能な同位体すべてをヨヴァスキラで測定、解析中である。一方、SG25 は今後の測定核種の候補リストを作成中である。思い出した。本当は筆者も、本稿は後回しにして、崩壊熱への寄与核種の分析と測定候補リストの推敲に邁進しなければならないのだった。今後、TAGS グループは拠点をヨヴァスキラからフランスのオルセーに移し、かなりの長期にわたる測定を計画中である。

参考文献

- 1) T.Yoshida, T.Tachibana, F.Storrer et al.: *J.Nucl.Sci.Technol*, **36**, 135 (1999)
- 2) Evaluated Nuclear Structure Data File, National Nuclear Data Center, BNL
- 3) T.Yoshida, R.Nakasima: *J.Nucl.Sci.Technol*, **18**, 393 (1981)
- 4) A.Sonzogni, Private Communication (2006)
- 5) A.Algora, Private Communication (2006)
- 6) R.C.Greenwood, R.G.Helmer, M.H.Putnam, K.D.Watts:*Nucl.Instr. and Meth.:* **A390**, 95 (1997) and a lot of references therein
- 7) N.Hagura, T.Yoshida, T.Tachibana: *J.Nucl.Sci.Technol*, **43**, 497 (2006)