

# 高燃焼度原子炉動特性評価のための遅発中性子収率高精度化に関する 研究開発

(受託者) 国立大学法人東京工業大学

(研究代表者) 千葉 敏 原子炉工学研究所

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成 24 年度～27 年度

## 1. 研究の背景とねらい

### 1. 1 背景

原子力は中性子が重い原子核に入射して生起する核分裂の連鎖に伴う原子核の変化からエネルギーを安定的に取り出す技術であり、核反応と原子核崩壊がその根底を支える物理現象である。本来、 $10^{-18}$  秒程度の時間スケールを有する核反応の連鎖を安定して制御できる根本的理由は遅発中性子の存在であり、ウランを燃料とする原子炉では遅発中性子割合が例外的に大きいという特殊事情によって人類による原子力エネルギー利用が可能になったと言っても過言では無い。そのため、遅発中性子の測定は原子力の黎明期に主要な核分裂性核種に対して行われたが、燃焼に伴って生成する高次 MA(マイナーアクチノイド)に対する直接測定は困難でほとんど実現していない。また、主要核種に対してさえも、核分裂片の性質の積み上げから計算を行う総和計算は現状では測定値を再現できないことが知られている。遅発中性子割合やそのスペクトルの決定には必然的に不安定な原子核である核分裂片、すなわち多数の中性子過剰核を取り扱うことが必要となり、実験的にも理論的にも困難を伴う。また、本来、総和計算は崩壊熱と遅発中性子放出等の関連する現象を統一的に扱うべきであるがそのような配慮はほとんどされて来なかった。

本課題では原子核物理実験、理論、核データ、炉物理の手法を組織化して、使用済み核燃料中のマイナーアクチノイドの燃焼を行う高速炉、加速器駆動核変換システム、高燃焼軽水炉などを想定し、問題となるウラン、プルトニウム、高次マイナーアクチノイドの核分裂現象に伴う物理量の中で原子炉の動特性を決定する要因である遅発中性子割合を系統的に高精度化し、革新的原子力システムと既存軽水炉に共通な安全基盤技術の確立を行うことを目的とする。同時に原子力の基礎となる核分裂現象を理解するための理論模型の開発と人材育成も行う。

### 1. 2 ねらい

マイナーアクチノイドが蓄積する高燃焼軽水炉及び革新炉の動特性に大きな影響を与える遅発中性子収率予測精度の高精度化を以下の方法により行う。

- ① 代理反応による核分裂収率の系統的測定技術の開発と核分裂片質量数分布の測定を  $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{248}\text{Cm}$ 、 $^{237}\text{Np}$  を標的として行い、 $^{240}\text{U}$ 、 $^{241}\text{Np}$ 、 $^{243}\text{Pu}$  等これまで測定されていなかった核種の核分裂収率データを取得する。
- ②  $\beta$  崩壊の大局的理論を高度化し、核分裂生成物核種の  $\beta$  崩壊半減期、崩壊熱及び遅発中性子数を統一的に予測する手法を作成する。
- ③ 既存データ及び上記の代理反応データを検証対象として動力学模型による核分裂片独立収率を決定する理論計算手法を作成する。
- ④ これらを統合してアクチノイド、マイナーアクチノイドの遅発中性子割合の総和計算を可能とする計算体系及びデータベースを構築し、積分体系における遅発中性子及び崩壊熱関連デ

一タの再現性を向上させる

## 2. これまでの研究成果

### 2. 1 代理反応による核分裂片質量数分布の系統的測定

原子力機構タンデム加速器で加速された  $^{18}\text{O}$  ビームを、 $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{248}\text{Cm}$ ,  $^{237}\text{Np}$  の薄膜標的に照射することで多くの核種の複合核状態を形成し、この核分裂で生成される核分裂片の質量数分布の測定を行った<sup>1,2)</sup>。

多核子移行反応で生成される荷電粒子 ( $^{16}\text{O}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{12}\text{C}$ , ...) を同定し、これらの運動エネルギーを決定するためのシリコン  $\Delta E$ - $E$  検出器を開発した。 $\Delta E$  と  $E$  検出器は、それぞれ 75 および 300  $\mu\text{m}$  の厚さとし、粒子の放出角度を同定できるようにした。反応の  $Q$  値と荷電粒子の運動エネルギーから、複合核の励起エネルギーを決定した。なお、この励起エネルギーは、代理させる中性子入射核分裂の入射中性子エネルギーに 1 対 1 で対応する。生成される 2 つの核分裂片を位置検出可能な多芯線比例計数管 (MWPC) で検出し、運動学的に核分裂片の質量数を決定した。 $^{238}\text{U}$  などの薄膜標的は、有機溶媒を用いた電着法によって作成した。このために必要な 1.0  $\mu\text{m}$  厚のニッケルバッキング生成法を蒸発法によって新たに開発した。

例として、 $^{18}\text{O} + ^{238}\text{U}$  反応で得られた複合核の核分裂片質量数分布を図 1 に示す。図に示すとおり、一つの反応で 18 核種にわたるデータが取得できることが分かった。図の縦軸は、複合核の励起エネルギーを示している。低励起状態からの核分裂では、ふた山構造が顕著に出ている一方、高励起状態に向かってこの構造が消え、ひと山になるのがわかる。これは、原子核の内部構造 (殻構造) が、励起によって失われることを表している。

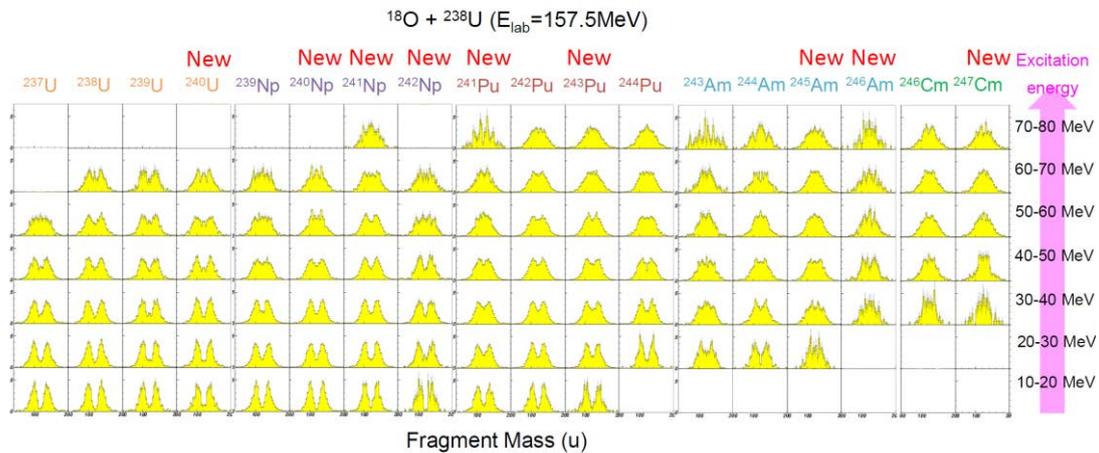


図 1  $^{18}\text{O} + ^{238}\text{U}$  反応で得た複合核の核分裂片質量数分布

図 1 において、 $^{240}\text{U}$ ,  $^{240, 241, 242}\text{Np}$ ,  $^{241, 243}\text{Pu}$ ,  $^{245, 246}\text{Am}$ ,  $^{247}\text{Cm}$  は、初めて核分裂収率が観測されたデータである。 $^{240}\text{U}$  は、 $n + ^{239}\text{U}$  ( $T_{1/2}=23.5\text{m}$ ) で生成される複合核であり、寿命の短い原子核  $^{239}\text{U}$  の中性子入射核データを代理的に取得したこととなる。なお代理反応で核分裂収率を測定したプログラムは本研究が初めてとなった。同様に、 $^{18}\text{O} + ^{232}\text{Th}$  から  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234, 235, 236}\text{Pa}$ ,  $^{18}\text{O} + ^{248}\text{Cm}$  から  $^{247, 249}\text{Cm}$ ,  $^{249, 250, 251}\text{Bk}$ ,  $^{251, 253}\text{Cf}$ ,  $^{254, 256}\text{Es}$ ,  $^{255}\text{Fm}$  の新データを取得した。 $^{18}\text{O} + ^{237}\text{Np}$  から  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  の新データを導いている。標的試料が得られ、直接中性子を用いた測定ができる核種であっても、図 1 に示す広範囲の励起エネルギーデータを取得することは容易ではないが、本研究は重イオン反応の特徴

を活かしてこれを達成した。

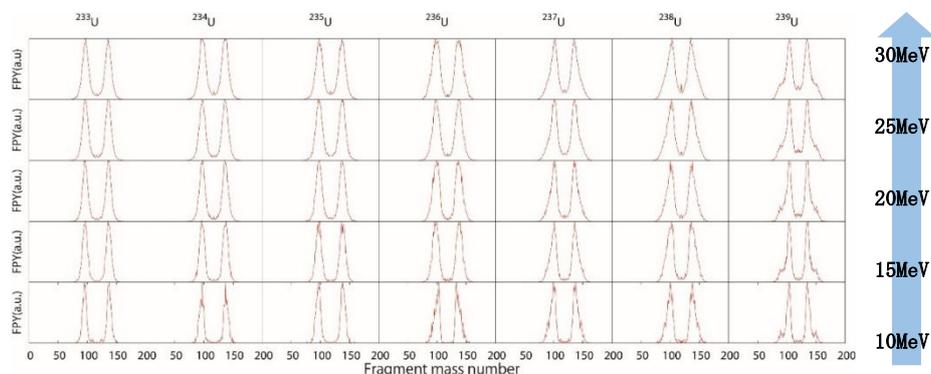
本実験データの系統性から、重い核分裂片の平均質量数は、同位体を通じて一定であることがわかった。この知見は、核分裂の理論モデルを構築するために重要である。多核子移行反応を用いた本実験では、反応面を決定できるため、原子核の回転スピンの軸が決まる。これに対する核分裂片の角度分布を調べたところ、異方性が見られた。この異方性は、複合核のスピンの2乗平均を表すものと近似でき、これにより複合核のスピンの情報が得られると考えている。代理反応の課題は、中性子入射反応で生成される複合核とのスピン分布のミスマッチであるが、本測定を進展させることで、この問題の解決にもつながると考えている。

## 2. 2 核分裂片の崩壊熱と遅発中性子収率の研究

原子炉の挙動及び安全性に関わる遅発中性子放出及び崩壊熱は原子核における $\beta$ 崩壊の随伴現象である。本事業では $\beta$ 崩壊の大局的理論を改良し、遅発中性子放出及び崩壊熱の理論計算の精度向上を行った。大局的理論は $\beta$ 崩壊の遷移に関わる和則を基にした理論であるが、これまで原子核の核構造に起因する殻構造について考慮が払われていなかった。今回、理論模型に含まれている1粒子準密度について、従来の(核構造を考慮しない)フェルミガス模型から、殻構造を考慮した殻補正付ギルバート・キャメロン型状態密度で評価する手法を開発した。これにより個々の核種の遅発中性子放出割合に関してフェルミガス模型より精度を向上し、特に $^{95}\text{Kr}$ や $^{131}\text{Cd}$ などのこれまで過大評価の傾向であった核種の計算値が改善された。また総和計算としての平均遅発中性子放出数に対しても、 $^{233}\text{U}$ から $^{239}\text{Pu}$ に至る典型的核分裂核種の熱中性子から14MeV中性子に対して系統的にこれまでの過大評価の傾向が改善された。

## 2. 3 核分裂独立収率計算手法の開発

原子炉内で起こる低エネルギー核分裂過程を記述するための量子補正や、原子炉動特性の評価に必要なアイソトープ分布を与える荷電非対称度を取り入れた動力学模型(ランジュバン計算)<sup>3)</sup>を用いて、U/Pu/Am等の同位体からの核分裂を様々な複合核励起エネルギーを仮定して計算した。下図では、特にウラン同位体の核分裂独立収率を例に示している。本事業では独立収率だけでなく、ランジュバン計算により主要なライブラリのアイソトープ分布を高い定量性を持って再現することにも成功した。



## 2. 4 核データ及び原子炉動特性の評価

遅発中性子の総和計算を実施するため、核分裂収率について代理反応による測定結果および動

力学模型による計算結果から、独立核分裂収率及び累積核分裂収率の評価値を導出するための手法の検討を進めた。代理反応による測定については、得られた核分裂片の質量数分布をガウス関数によりフィッティングし、パラメータの系統性について調査した。ピークの幅を表すパラメータが励起エネルギーに対し線形に増加する傾向が見られた。また、独立核分裂収率から総和計算により遅発中性子放出の時間依存性の計算を行うため、ベーテマン法により核分裂生成物の崩壊チェーンの計算を行うコードを開発した。得られた遅発中性子放出の時間依存性のデータから、最少二乗法により多群の遅発中性子収率パラメータを導出するコードも合わせて開発し、遅発中性子の核データファイルを作成する準備を進めた。

18に及ぶ臨界実験炉心のデータを収集し、遅発中性子データを検証するための積分実験データベースを構築した。本事業で得られる遅発中性子収率の精度検証に先立ち、世界の三大核反応データライブラリーである JENDL-4.0(日本)、ENDF/B-VII.0(米国)、JEFF-3.1(欧州)を用いた積分実験の解析を平成26年度までに実施し、これら既存の核データライブラリーによる計算が、積分実験データである実効遅発中性子割合  $\beta_{\text{eff}}$  をどの程度再現することができるのか調査した。この解析は、モンテカルロ法による中性子輸送計算コード MVP において最近開発された動特性パラメータ計算機能により行った。その結果、どの核データライブラリーを用いても、多くの炉心で、積分実験誤差(炉心によって異なり最大で $\pm 5\%$ )と計算の統計誤差( $\pm 1\sim 2\%$ )を合わせた範囲内で計算は積分実験値を再現したが、積分実験誤差範囲を逸脱する計算と実験の不一致も一部見受けられた。これら18の臨界炉心のデータの中でも、特に、比較的新しい実験または新たに再評価された  $\beta_{\text{eff}}$  実験データの解析では、JENDL-4.0とENDF/B-VII.0の両核データライブラリーによる計算結果は、いずれも積分実験結果と良好に一致したが、JEFF-3.1を用いた解析の結果は、JENDL-4.0やENDF/B-VII.0に比べてやや劣ることがわかった。

### 3. 今後の展望

遅発中性子収率の微視的予測精度高度化に向けて各項目は順調に成果を挙げている。今年度はこれらを統合して総和計算による遅発中性子の予測精度を向上する。代理反応においては、標的試料として原子力機構では  $^{233}\text{U}$ ,  $^{249}\text{Cf}$  や  $^{243}\text{Am}$  標的を有しており、これらを用いてより広範囲の核種の測定を行いたい。また、 $^{18}\text{O}$  より重い入射核の  $^{22}\text{Ne}$  を用いることでより重い原子核の生成が可能である。異なる標的核と入射核を組み合わせ、異なる多核子移行チャンネルを利用することで、同一の複合核を生成することができる。この結果、異なるスピン分布を与えることができると考えられ、核分裂におけるスピンの効果を調べたいと考えている。スピン分布を変える方法として、入射エネルギーや荷電粒子の散乱角度を変えることも検討できる。

### 4. 参考文献

- (1) Chiba, S., et al., “Surrogate Reaction Research at JAEA/Tokyo Tech.”, Nuclear Data Sheets, 119, pp229-232(2014).
- (2) Nishio, K. et al., “Fission study of actinide nuclei using multi-nucleon transfer reactions”, Physics, Procedia 64, pp140-144 (2015).
- (3) Aritomo, Y. et al., “Independent fission yields studied based on Langevin equation”, Progress in Nuclear Energy, 85, pp568-572 (2015).