

# 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ー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

始めに、代理反応（多核子移行反応）により核分裂片質量数分布を測定するための測定装置を開発し、原子力機構タンDEM加速器施設に設置した<sup>1,2)</sup>。多核子移行反応とは、重イオン反応において、入射核及び標的核が、これらを構成する中性子や陽子を交換する過程を表す。中性子や陽子が移行するパターンは様々であり、このため多くの種類の複合核が生成される。複合核の核分裂を観測して核分裂データを取得するが、多核子移行反応を用いることで、一度に多くの核種のデータを取得することに着目した。ここで重要となる測定技術として、反応の事象ごとに複合核を識別することである。本研究では、反応によって放出される様々な粒子の種類をシリコン  $\Delta E-E$  検出器を用いて識別し、標的核に移行した中性子数と陽子数を決定することで複合核の同定に成功した。核分裂によって生成される核分裂片の質量数を決定するため、核分裂片の飛行時間分析を行って運動学的に質量を決定した。このため、核分裂片を検出する位置検出型の多芯線比例計数管を開発した。

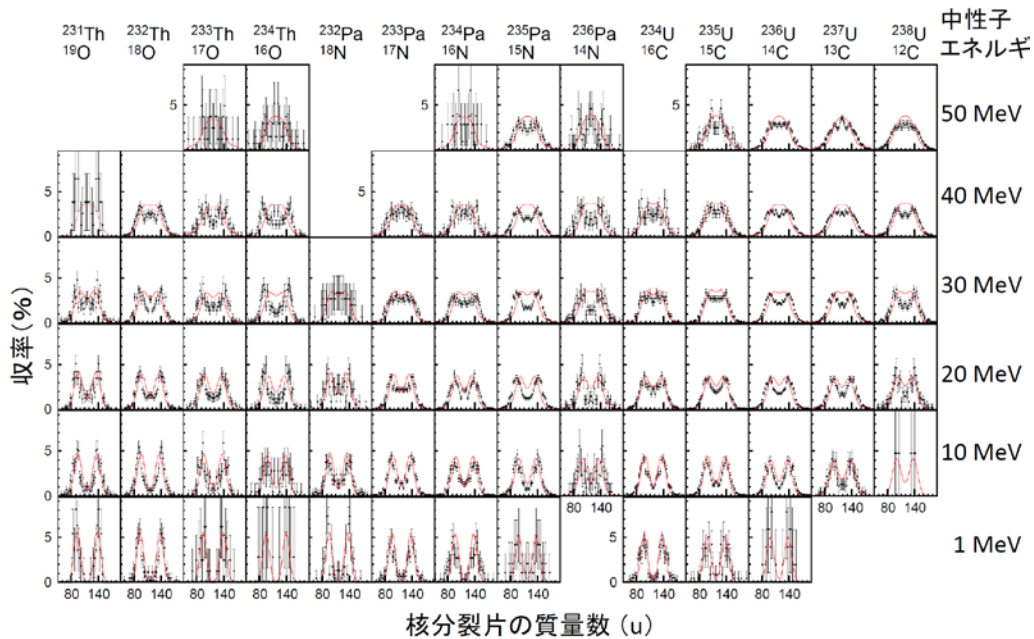


図1  $^{18}\text{O}+^{232}\text{Th}$  反応によって取得した 14 核種の核分裂片質量数収率曲線。複合核の励起エネルギーから、入射中性子エネルギーに換算した値を右に示す。曲線は揺動散逸理論によるモデル計算の結果で、非対称な分布から対称な分布に変化する様子が再現されている。

得られた結果の例を図1に示す。図は  $^{18}\text{O} + ^{232}\text{Th}$  反応で得られたもので、図からわかるように、1回の実験で14核種のデータの取得に成功した<sup>2)</sup>。このうち、 $^{231,234}\text{Th}$ ,  $^{234,235,236}\text{Pa}$ については、本実験により初めて取得したデータとなる。また、実験では、複合核が有する様々な励起状態を事象ごとに識別し、励起エネルギーに依存した核分裂を調べた。これは、代理反応において、入射する中性子エネルギーの依存性を調べることに等価である。低い方では熱中性子 $\sim 1\text{MeV}$ のデー

タ、高い方では中性子エネルギー換算で 50MeV 入射のデータが得られた。この手法を用いて、 $^{180+238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  系の代理反応実験を行った。この結果、これまで核分裂片質量数分布が測定されていない核種を含む多くの核種の核分裂片質量数分布の系統的な測定に成功した。本研究で新たに質量数分布の測定に成功した核種をまとめると、 $^{231,234}\text{Th}$ ,  $^{234,235,236}\text{Pa}$ ,  $^{240}\text{U}$ ,  $^{240,241,242}\text{Np}$ ,  $^{238,241,243}\text{Pu}$ ,  $^{245,246}\text{Am}$ ,  $^{247,249}\text{Cm}$ ,  $^{249,250,251,252}\text{Bk}$ ,  $^{251,253}\text{Cf}$ ,  $^{254,256}\text{Es}$ ,  $^{255}\text{Fm}$  の 25 核種となった。

本研究では、動力学モデルによる計算を行い、実験データとの比較を行った(研究項目(2.3)参照)。モデルによる計算結果を図1に曲線で示した。図に示すように、本計算結果は、特に中性子エネルギー換算で 20MeV 以下のデータをよく再現している。このような、原子核の基本的なふるまいに立脚した理論計算により、質量数収率分布を説明したのは初めてと言える。

## 2. 2 核分裂片の崩壊熱と遅発中性子収率の研究

ベータ崩壊の巨視的模型である大局的理論を独自に計算するコードを開発し、 $\beta$ 崩壊及びその随伴現象である遅発中性子放出や崩壊熱を統一的に計算するシステムを構築した。大局的理論は核図表上の広い核種領域にわたり実験値への再現性が良いとされている模型計算であるが、今回のプロジェクトにおいてこれまで大局的理論において考慮されてなかった原子核の微視的核構造に起因した効果をはじめ取り入れた改良を行った。特に原子核の基底状態のパリティ変化を $\beta$ 崩壊の許容遷移において考慮した処方により、原子核の2重閉殻核近傍で半減期の理論計算が過小評価の傾向を示していたのが系統的に改良された。また、 $^{233,235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  への様々な中性子エネルギー照射で生じる核分裂片からの平均遅発中性子放出数が従来の大局的理論ではかなりの過小評価であったものが、今回の結果では大幅に改良された。また今回開発したコードは大局的理論の過去発表された幾つかのバージョンの結果も再現できるように開発され、例えば模型計算に含まれるベータ崩壊強度関数を指定パラメータを与えるだけで平易に変更できるようにするなど、汎用に利用できる仕組みを構築した。

## 2. 3 核分裂独立収率計算手法の開発

ランジュバン方程式に基づく動力学計算により、核分裂片の質量数分布及びアイソトープ分布を計算する新たなプログラムを開発した<sup>3,4,5</sup>。これまで用いてきた巨視的な輸送係数(慣性質量テンソル、摩擦テンソル)に加え、微視的な輸送係数を用いる計算を可能とした。また集団座標として、これまでの3次元から4次元に拡張しテスト計算を遂行した。本計算は2.1で述べた代理反応データを系統的に再現する精度を有することがわかり、2.4の核データ評価で用いた。また、核分裂片の運動エネルギーも定量的に再現できることが分かったため、核分裂中性子放出の推定にも利用できる有用な模型となっていることなどが分かった。

## 2. 4 核データ及び原子炉動特性の評価

(2.1)の代理反応測定及び(2.3)のランジュバン模型計算によって得られた核分裂片の質量数に対する収率と(2.2)の遅発中性子放出割合等の崩壊データを元に、遅発中性子収率の評価を行い、それらの結果から ENDF 形式の核データライブラリーを作成した。具体的には測定及び計算で得られた核分裂収率について、即発中性子放出を考慮して独立核分裂収率を導出した後、

ベータマン法による崩壊系列の計算を実施し、中性子放出割合のデータを用いて総和計算により時間依存の遅発中性子放出量を求めた。原子炉動特性の評価のため、時間依存のデータから最小二乗法により評価ライブラリーで通常利用されている6群近似のパラメータを決定した。評価済核データファイルとして必要とされる遅発中性子エネルギースペクトルについても総和計算により評価値を得た。これらの遅発中性子に関する評価データと JENDL-4.0 の断面積等のデータと合わせて、U, Np, Am, Cm, Bk, Cf, Es, Fm の同位体に対する評価済核データファイルを新たに作成した。

それらの評価したデータの妥当性を検証するため、実効遅発中性子割合と遅発臨界における即発中性子減衰定数のベンチマークに使用可能な臨界実験データを収集し、それらのデータの解析を、本事業で新たに評価した核データも使用して連続エネルギーモンテカルロコード MVP により実施した。本事業で新たに評価した核データを使用すると、実効遅発中性子割合及び即発中性子減衰定数の実験値を、JENDL-4.0 の結果に比べて過大評価する傾向にあるものの、約 15%の精度で再現できることがわかった。また、マイナーアクチノイド核種に対して新たに評価した核データが与える影響を調べるために、加速器駆動炉ベンチマーク問題に対する解析も実施した。その結果、新評価に基づく核データを用いた結果は、積分実験解析の結果と同様 JENDL-4.0 の結果に比べて約 10%過大評価することが分かった。

### 3. 今後の展望（24年度採択課題の場合）

本研究で開発された重イオン代理反応を用いる核分裂片質量数分布の新規測定手法、ランジュバン動力学計算コード、大局的理論に基づく $\beta$ 崩壊計算コードは、今後もアクチノイド領域核分裂のデータ取得及び解析に役立つことが期待される。また新たに行った核データ評価や原子炉解析も、このような微視的手法の積み重ねにより得られたデータの信頼性が実用的なレベルに達していることの検証となった。核分裂現象は複雑であるため未だに定量的な理解が難しいのが現状であり、また国内では核分裂片分布等の評価の経験がこれまで十分ではなかったが、本研究を通してこれらに対する理解が深まり、経験が蓄積された。また原子核物理現象から原子炉現象までを一貫して行う体制が構築された。本研究では主要アクチノイドデータを用いる手法の検証に留まったが、今後、本研究で構築した手法の精度をさらに高め、マイナーアクチノイドに対する核データの改良を行い、原子炉に対する影響調査へと進展させて行きたいと考えている。

### 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) Leguillon, R., et al., “Fission fragments mass distributions of nuclei populated by the multinucleon transfer channels of the  $^{180+232}\text{Th}$  reaction”, Physics Letters B761, pp125-130(2016).
- (3) Ishizuka, C., et al., “Dynamical approach to isotopic-distribution of fission fragments from actinide nuclei”, EPJ Web of Conferences, Volume 122, 01003(2016).
- (4) Usang, M.D.A., et al., “Effects of microscopic transport coefficients on fission observables calculated by the Langevin equation”, Phys. Rev. C 94, 044602(2016).