

代理反応によるマイナーアクチノイド核分裂の即発中性子測定技術開発と 中性子エネルギースペクトル評価

(受託者) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 西尾勝久 原子力科学研究部門・先端基礎研研究センター

(再委託先) 国立大学法人 東京工業大学

(研究期間) 平成27年度～30年度

1. 研究の背景とねらい

原子力発電によって発生する長寿命マイナーアクチノイド (MA : ^{237}Np , $^{241,243}\text{Am}$ など) 原子核を核分裂によって核変換し、将来にわたって管理する廃棄物量と保管期間を縮減することは、原子力エネルギー利用を進める上で重要な課題である。核変換を目的とした高速炉や加速器駆動型炉 (ADS: Accelerator-Driven System) を設計するためには、MAの核データを精度よく測定し、これを核設計に反映させる必要があるものの、現状でのMAの核データの精度は十分なレベルに達していない(1, 2)。原子炉の実効増倍率に影響を与える核データのうち、本研究では、MAやアクチノイド原子核の核分裂で放出される即発中性子数 ν とエネルギースペクトル $\chi(E_n)$ 、およびこれらの入射中性子エネルギー依存性に関するデータの精度向上を目指す。特に、ADSではより高エネルギー領域までのデータが必要になるが、中性子源を用いた測定ではこの領域のデータを取得するのは容易ではない。本研究は、重イオン入射による多核子移行反応を用いた代理反応手法(3)を適用してこの問題を解決する。例として、 $n + ^{238}\text{Np}$ ($T_{1/2}=2.1$ 日)の核分裂に伴う即発中性子データを $^{18}\text{O} + ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{18}\text{O} + ^{239}\text{Np}^*$ 反応によって取得する様子を図1に示す。このように、代理反応は寿命の短い原子核の中性子入射データを取得できるほか、高純度の同位体が得られない核種のデータの取得にも有利である。実験では、即発中性子の起源を明らかにするため、核分裂片の質量数を同定し、核分裂片と即発中性子との相関測定を行う。

基本的な概念から即発中性子の核データを評価するため、核分裂過程を記述する動力学モデル (ランジェバン方程式) を構築する。これにより、即発中性子の起源を考察することも可能にする。これは原子核形状の時間発展を追跡して分裂の様子を記述するもので、原子核のミクロな構造 (殻構造) を取り入れる。原子核が切断

した瞬間の個々の核分裂片の変形度から、核分裂片が加速後に有する励起エネルギーを決定し、即発中性子の蒸発過程を模擬する。

以上の研究開発を推進するため、「代理反応による即発中性子測定」、「動力学モデルによる核分裂の記述と中性子エネルギースペクトルの評価」および「研究推進」の項目を立てる。

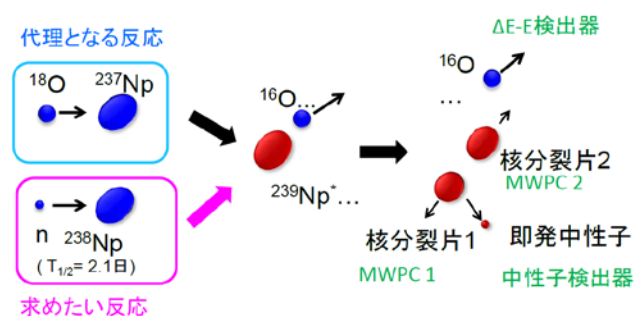


図1 代理反応による即発中性子測定の実験原理

2. これまでの研究成果

2.1 代理反応による即発中性子測定

図1に示した概念に基づき、即発中性子データを代理反応によって測定するため、(i) 多核子

移行反応チャンネルを同定し、複合核の励起エネルギーを決定するためのシリコン ΔE - E 検出器、(ii) 核分裂片を検出するための多芯線比例計数管 (Multi-wire Proportional Counter: MWPC)、(iii) 真空散乱槽の外側に設置した 33 台中性子検出器 (有機液体シンチレーション検出器) で構成される測定装置を開発し、平成 28 年度に完成した。装置は、原子力機構・タンデム加速器施設に設置した。

この装置を用いて、核分裂片と即発中性子を同時計測するテスト実験を行った。このため、酸素 18 (^{18}O) ビームを ^{249}Cf の薄膜標的に照射した。実験で得られた ΔE - E_{res} スペクトルを図 2 に示す。図で、異なる多核子移行チャンネルで生成された様々な同位体のラインが認識できる。それぞれの同位体は、対応した複合核の生成を意味する。ここでは、 $^{249}\text{Cf} (^{18}\text{O}, ^{14}\text{C}) ^{253}\text{Fm}$ に着目し、 ^{253}Fm の核分裂と、これに伴って放出される即発中性子の数とエネルギースペクトルを導出した。

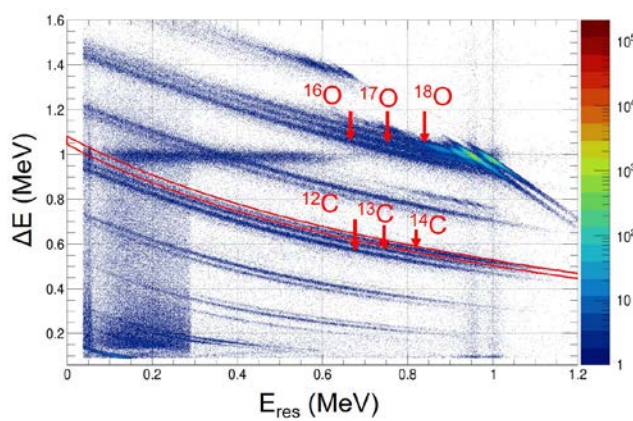


図 2 ΔE - E 検出器で測定した散乱粒子スペクトル

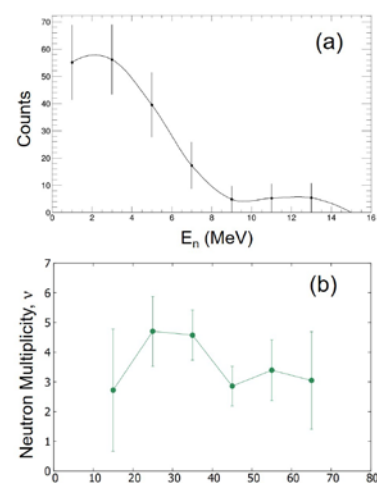


図 3 ^{258}Fm の核分裂における (a) 中性子エネルギースペクトル および (b) 即発中性子数

結果を図 3 に示す。(a)は中性子エネルギースペクトルで、励起エネルギー10–70MeV からの核分裂事象をすべて積算してプロットした。およそ 2MeV の位置に収率のピークがある。一方、図 (b) は、複合核 ^{253}Fm の励起エネルギーに依存した即発中性子数 ν である。 ν は、励起エネルギーとともに増加するべきものであるが、本結果は統計誤差が大きいために明確な相関は得られなかった。しかし、核分裂片と即発中性子の相関データを取得できることが示されたので、今後詳細な即発中性子データを取得していく予定である。

高励起エネルギーの核分裂では、マルチチャンス核分裂がおこる。すなわち、核分裂が起こる前に複合核から中性子が放出される現象である。実際のデータ解析では、この中性子成分を考慮するアルゴリズムが必要となる。どのくらい中性子が放出されるかは、励起エネルギー20MeV 以上の領域では実験的な検証がない。そこで実験で得られた核分裂片の質量数分布を、揺動散逸理論による解析と比べることでこれを評価した。結果を図 4 に示す。これは初期の励起エネルギー40–50MeV を有する $^{240}\text{U}^*$ の核分裂で、実験データは代表者らが測定したものである。全体的に質量非対称の分布となっている。解析の結果、この非対称性は、中性子 3–5 個放出した後に生成される高励起のウラン原子核 ($^{237, 236, 235}\text{U}^*$) の核分裂によってもたらされることがわかった。一方、 $^{240}\text{U}^*$ が直接核分裂すると対称核分裂になることを明らかにした。成果は、Phys. Rev. Lett. 誌

に投稿するとともにプレス発表を行った (4)。

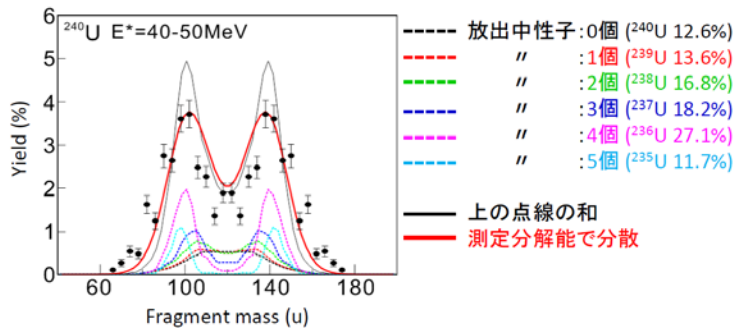


図4 核分裂片の質量数分布における、各チャンス核分裂の寄与。

2.2 動力学モデルによる核分裂の記述と中性子エネルギースペクトルの評価

即発中性子数とエネルギースペクトルを新たな手法で評価するため、動力学モデルおよび中性子蒸発模型の開発を進めた。動力学モデルでは、核分裂片の質量数分布と運動エネルギー、さらには原子核の切断時の変形エネルギーを計算するため、原子核の変形の自由度を3次元から4次元に拡張してランジェバン方程式を解くことにした。変形パラメータとして、原子核間の電荷中心間の距離 (z)、質量非対称度 (α)、大小2つの核分裂片の変形度 (δ_1 と δ_2) を採用した。変形度を独立に扱うことで、左右の核分裂片がとる形状がよりフレキシブルになる。 ^{236}U で得た計算の例を図5に示す。図(a)は、質量数 $A = 132$ と 104 の核分裂片を生成する場合の原子核形状である。 $A = 132$ の核分裂片は球形に近い形で生成されるのに対し、 $A = 104$ の核分裂片は大きく変形している。前者は、2重魔法数核 ^{132}Sn に近い原子核であり、原子核の殻構造によって球形形状をとるように分裂するものと考えられる。同図(b)は、 δ を核分裂片の質量数に対してプロットしたものである。 δ がプラス側に大きいほど、核分裂片は大きく伸びた形で生まれ、変形エネルギーが大きくなる。よって加速後に大きな内部励起エネルギーが与えられ、即発中性子をより多く放出することになる。 $A = 132$ 領域の核分裂片は、マイナスの δ であり、生成される核分裂片の中でもっとも球形に近い形となる。

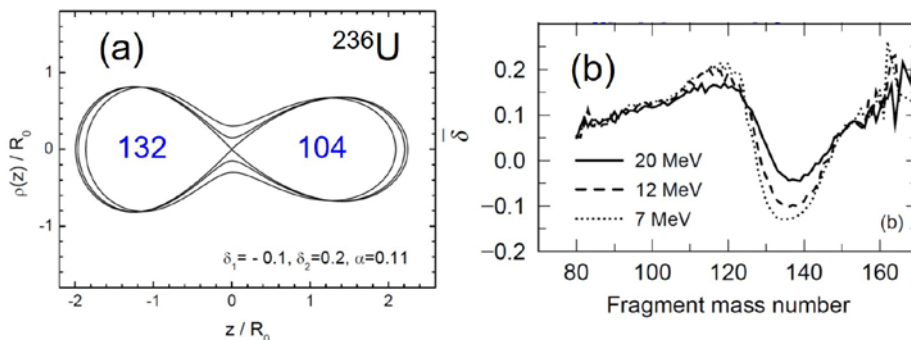


図5 4次元のランジェバン方程式による計算結果。(a) 質量数 104/132 に分裂する時の原子核の形状の例。(b) 変形パラメータ δ の核分裂片質量数依存性。複合核の励起エネルギーに対する変換も示した s 。

図5 (b) の分布は鋸歯状になっており、実験で観測されている中性子数の核分裂片依存性

ν (A) の傾向と類似している。図5(b)に示す3つの曲線は、複合核の励起エネルギーを7, 12, 20 MeV と増大させた結果である。興味深いことに、 $A = 132$ 近傍の原子核だけ励起とともに δ が正方向に上がっている。 $n + {}^{237}\text{Np}$ 反応を調べた文献によれば、入射中性子のエネルギーが0.8 から 5.5MeVに変わった場合、重い核分裂片だけ放出される中性子の数が増えている。本結果は、この長年の問題を、より厳密な核分裂モデルで解決したものと言え、結果はPhys. Rev. C に受理された(5)。

2.3 研究推進

研究推進の一環として、国際ワークショップを開催し、先駆的な核分裂研究を行っている実験および理論研究者を招いて議論を行うことにしている。平成28年度には、12月12日、13日の日程で原子力機構・原子力科学研究所において第40回ASRC (Advanced Science Research Center) 国際会議「核分裂と重原子核の実験および理論研究の進展」というタイトルの国際会議を主催した。外国からの参加者22名を含む計48名の参加者があり、本研究開発に関する議論を含めて情報交換を行うとともに、核分裂研究に関する議論を行った

3. 今後の研究

開発した図2の装置により、 ${}^{18}\text{O} + {}^{237}\text{Np}$ および ${}^{18}\text{O} + {}^{243}\text{Am}$ による多核子移行反応を用いて長寿命・短寿命MAの核分裂における即発中性子数およびエネルギースペクトルを測定する。また、個々の核分裂片から放出される即発中性子の数を導出する。動力学計算では、4次元ランジェバン計算をベースとし、これに統計モデルを適用することによって即発中性子数およびエネルギースペクトルを導く。これにより、核分裂の基礎概念に立脚した新たな即発中性子の核データ評価方法を構築する。

4. 参考文献

- (1) K. Nishihara et al., Proceedings of 11th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission and Products Partitioning and Transmutation; 2010, 1-5. Nov. San Francisco.
- (2) H. Iwamoto et al., J. Nucl. Sci. Technol., **50**, 856 (2013).
- (3) R. Léguillon et al., Phys. Lett. B, **761**, 125 (2016).
- (4) K. Hirose et al., Phys. Rev. Lett. **119**, 222501 (2017).
<https://www.jaea.go.jp/02/press2017/pl7112801/>
- (5) C. Ishizuka et al., Phys. Rev. in Press.