

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した。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、 $n + ^{238}\text{Np}(T_{1/2}=2.1\text{日})$ 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った。

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統計モデル計算でシミュレーションした。

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」の項目を立てた。

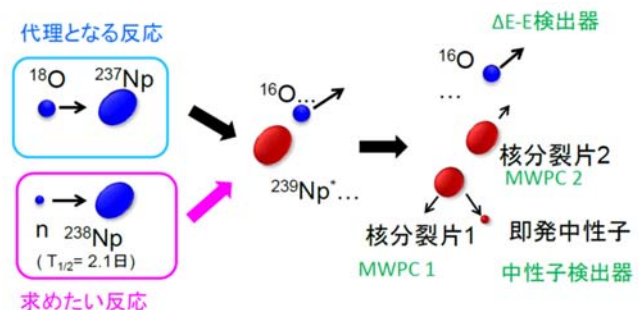


図1 代理反応による即発中性子測定の実理

2. 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 (図 2) を開発した。装置は、原子力機構・タンデム加速器施設に設置した。図 3 は、シリコン ΔE - E 検出器で検出した散乱荷電粒子のスペクトルで、 $^{18}\text{O}+^{243}\text{Am}$ 反応で得た。図に示すように、この反応だけで $^{242-246}\text{Am}$, $^{244-248}\text{Cm}$, $^{246-250}\text{Bk}$ の 15 核種の複合核ができており、これら核分裂データを 1 回の実験で取れることを示した。

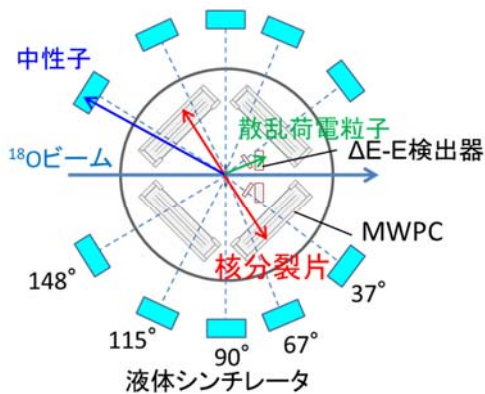


図2 開発した実験装置

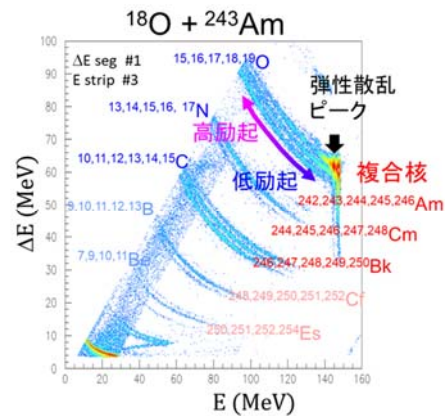


図3 散乱荷電粒子のスペクトル

核分裂における即発中性子の数を複合核の励起エネルギーに対して示したものを図 4 に示す。データは、 $^{18}\text{O}+^{237}\text{Np}$ 反応で得られた 15 核種 ($^{236-240}\text{Np}$, $^{238-242}\text{Pu}$, $^{239-243}\text{Am}$) である。図から、励起エネルギーに対して増加しているのがわかる。一方、励起エネルギーに対する傾きは JENDL よりも小さい。検出される中性子には、核分裂が起こる前に複合核から放出されるものが存在する (マルチチャンス核分裂)。この効果を、実験で得られた核分裂片の質量数分布、およびランジェバン方程式による計算と比較することで実証に成功した (4, 5)。なお、実験で得られた中性子エネルギースペクトルを図 5 に示す。

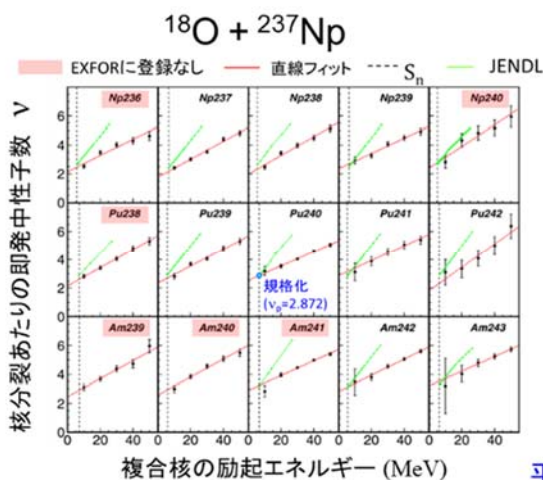


図4 核分裂あたりの即発中性子数

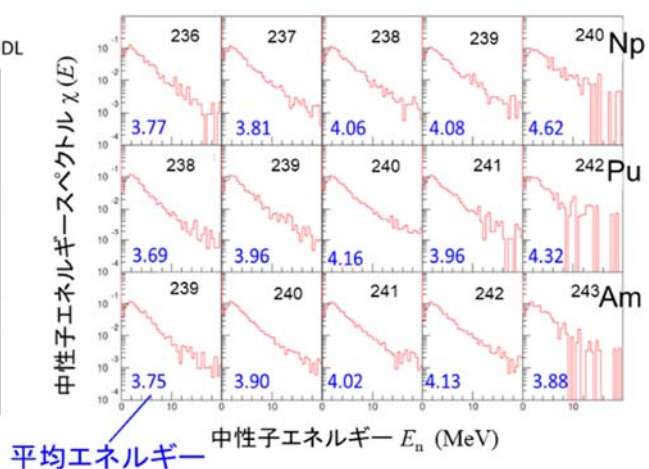


図5 中性子エネルギースペクトル

即発中性子数を核種に対して系統的に調べたのが図6である。本データは、核分裂障壁近傍の低励起エネルギー核分裂に相当する。重い元素同位体ほど多くの中性子が放出されることがわかる。

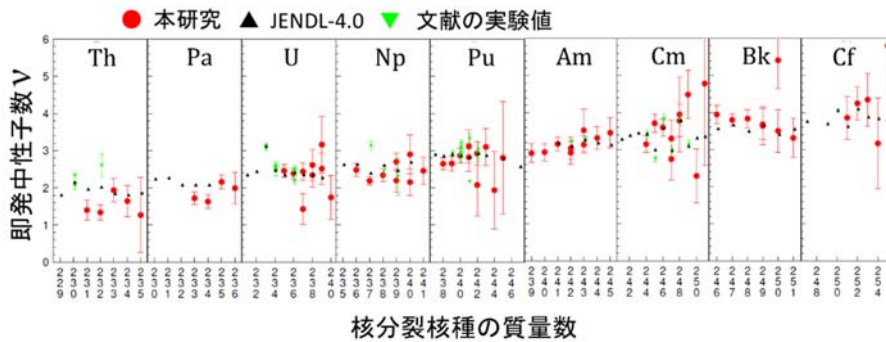


図6 低励起核分裂における即発中性子数の核種依存性

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行った。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いた。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(6)。

図7は、 $n + {}^{235}\text{U}$ ($E_n=7\text{MeV}$) の核分裂において、原子核が切断した瞬間に核分裂片が有している変形エネルギーおよび内部励起エネルギーをもとに、加速された後の核分裂片が最終的に有する励起エネルギーをプロットしたものである。実線は平均値であるが、特徴的な“鋸歯状”の分布を見出すことができた。これをもとに、統計モデル計算 (HF³Dコード) (7)を行って中性子エネルギースペクトルを計算したのが 図8 である。ここで、スペクトルはマクスウェル分布との比で表した。図の ϵ (ネックパラメータ) 0.35 または 0.25 と書かれた結果が本研究の結果である。これは、ENDF/BやJENDLといったライブラリに比べ、実験との再現性において劣る。しかし、本計算は、核分裂の基礎過程に立脚した理論に基づいており、対象とする核種および適用できる励起エネルギー範囲において汎用性が高く、これまでに例のない評価方法を確立したと言える。

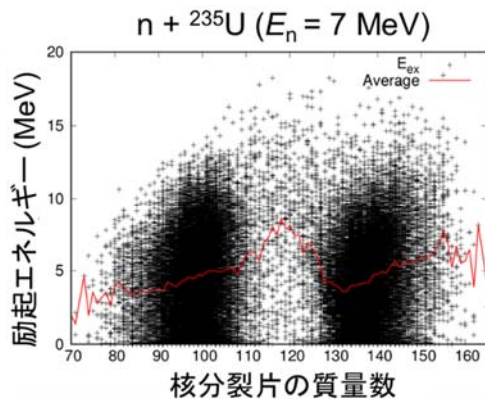


図7 核分裂片が持つ励起エネルギー

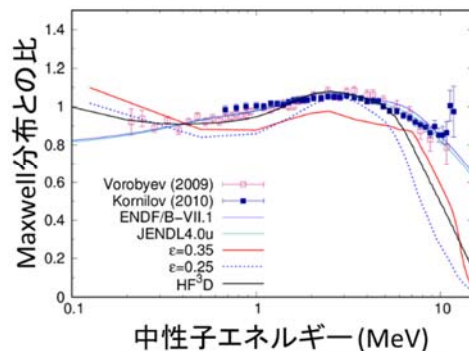


図8 本計算による中性子エネルギースペクトル

また、本計算において、複合核に励起エネルギーを与えると、重い核分裂片から優先して中性子が放出される傾向が示された(6)。この現象は、実験的にも知られているが(8)、長く未解決問題となっていた。励起エネルギーが上昇すると、 $A = 132$ 近傍の原子核だけ励起とともに変形パラメータ δ が上昇し、切断した瞬間の核分裂片が変化しやすいことに原因があった。本理論結果は、この問題を解決した成果と言える。

2.3 研究推進

研究推進の一環として、代表者らは国際ワークショップを東海村で開催し、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った。平成 27~28 年度にかけて、それぞれ「Nuclear Fission and Exotic Nuclei」(計 49 名[海外 18 名])、「Experimental and Theoretical Advances in Fission and Heavy Nuclei」(48[22])、「Decay and Survival Probability of Heavy Nuclei toward Super-heavy Island」(27[5])、「Nuclear Fission and Structure of Exotic Nuclei」(70[37])を開催し、本研究成果を国際的に発表した。これにより、日本における核分裂研究の先駆性を示すことができた。

3. 今後の展望

$^{180}\text{O} + ^{237}\text{Np}$ および $^{180}\text{O} + ^{243}\text{Am}$ 反応データにより、28 核種の詳細データを取得することに成功した。今後、他の標的を用いた測定を行ってデータの核種数を増やす。また、核分裂に伴うガンマ線の測定を行い、核分裂片が持つスピンに関する情報を得る。これにより、理論計算モデルおよび核データ評価方法の精度向上を目指す。

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. L guillon 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/p17112801/>
- (5) A. N. Andreyev, K. Nishio et al., Reports on Progress in Physics **82**, 016301 (2018).
- (6) C. Ishizuka et al., Phys. Rev. C, **96**, 064616 (2017).
- (7) S. Okumura et al., J. Nucl. Sci. Technol. **55**, 1009 (2018).
- (8) A. A. Naqvi et al., Phys. Rev. C, **34**, 218 (1986).