

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: 例えば ^{237}Np 、 $^{241,243}\text{Am}$) 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の実験データの取得を目指す。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点に着目する。中性子源を用いた測定では、散乱した中性子が検出器に入ることによるバックグラウンドの混入が問題となる。また、高エネルギー領域のデータを取得する場合、中性子源を単色化することも容易ではなく、さらに高エネルギー領域の中性子飛行時間分析では、十分な統計を取得することも困難と言える。本研究は、重イオン反応による多核子移行反応を用いた代理反応手法(3)によってこの問題を解決してデータを取得する。さらに本研究では、核分裂過程で放出される即発中性子の起源を明らかにする。即発中性子は、十分加速した後の核分裂片から放出されることがわかっている(4)。これまで核分裂片の質量数を核分裂事象ごとに決定できる代理反応測定装置を構築した(3)。これを利用し、2つの核分裂片と、即発中性子の同時計測を行うことで、個々の核分裂片から放出される中性子の数、およびこれらの複合核励起エネルギー依存性 (代理反応における入射中性子依存性と等価) を測定する。

代理反応の例として、 $n + ^{238}\text{Np}$ ($T_{1/2}=2.1$ 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、高純度の同位体を得られず、中性子源を用いた実験では大きな誤差が持ち込まれる核種のデータを取得できる特徴がある。

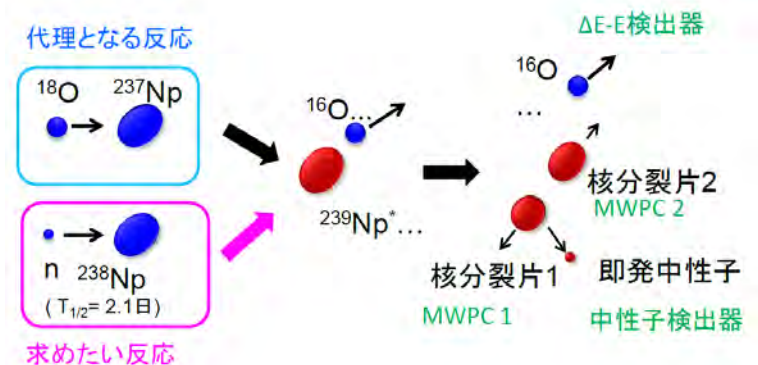


図1 代理反応による即発中性子測定の原理と、測定のために開発した検出器

即発中性子の起源を説明するためには、さらにさかのぼって核分裂過程を理解する必要がある。より基本的な概念から核分裂を理解するため、核分裂理論の構築を行う。具体的には、動力学モデル（ランジェバン方程式）(5)を用いる。これは、複合核をスタートとし、原子核の形状の変化を時間に対して計算し、最終的に原子核がちぎれる様子までをシミュレーションする手法である。ここでは、原子核のポテンシャル構造に影響を与える殻構造、すなわち原子核内部の準位構造やミクロな摩擦・質量係数といった概念を取り入れ、より基本的な物理量に立脚したモデルの構築を目指す。これにより核分裂片の質量数分布を計算するとともに、原子核の切断点における個々の核分裂片の変形度を計算する。変形エネルギーは、核分裂片が加速された後、核分裂片自身の励起エネルギーに変化する。これが即発中性子放出の起源となる。中性子の蒸発過程は、統計モデルによって記述する。そこで、核データとして最終的に得るべき ν と $\chi(E_n)$ は、個々の核分裂片から放出される即発中性子データを、質量数分布に対応した重みを加えて積算して与えられる。

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。

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た。装置は、原子力機構・タンデム加速器施設に設置した。

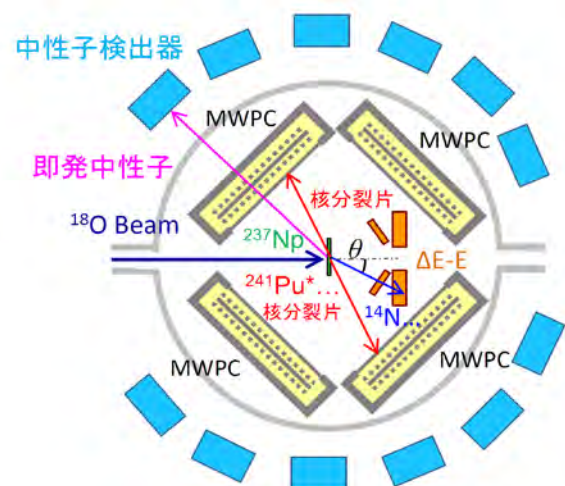


図2 代理反応即発中性子測定装置

シリコン ΔE -E 検出器を構成する ΔE 検出器は、 $75\mu\text{m}$ の厚さとし、一様性の優れたものを開発した（均一性 = $1\mu\text{m}$ 未満）。この後方に $300\mu\text{m}$ の円環型シリコン E 検出器をマウントした。図3(左)に ΔE -E 検出器の構造を、同図(右)に $^{18}\text{O} + ^{232}\text{Th}$ 反応で取得した放出荷電粒子の ΔE と運動エネルギー ($E_{\text{tot}} = \Delta E + E$) 上でのスペクトルを示す。多数の同位体の識別ができており、それぞれの反応チャンネルに応じて複合核が生成されることがわかる。また、横軸の運動エネルギーから、複合核の励起エネルギーを事象ごとに決定できることを確認した。

図4は、 $^{18}\text{O} + ^{237}\text{Np}$ 反応で生成されるいくつかの複合核のうち、Np および Pu 同位体で得られた核分裂片の質量数分布を表す。縦の並びは複合核の励起エネルギーを示す。これは入射する中性子エネルギー (E_n) と 1 対 1 に対応しており、代理反応によって中性子入射エネルギー依存性を得ることを確認した。さらに本研究では、合計 33 台中性子検出器をマウントすることで即発中性子を検出できるようにした (図2を参照)。測定システムのテストを行うため、 ^{248}Cm の自発核分裂を利用した。自発核分裂片を MWPC で同時計測し、これをスタート信号、中性子検出器から

の信号をストップとする飛行時間（TOF）分析を行った結果を図5に示す。ここでは、例として15台の中性子検出器を用いて得られたTOFスペクトルを示す。低いチャンネル側に現れるシャープなピークは核分裂に伴って放出される即発ガンマ線であり、2つピークがあるのは、真空散乱槽の中心部に設置した ^{248}Cm から飛び出た核分裂片がMWPCに到着する時間の分布からくるもので、軽い核分裂片と重い核分裂片の速度が異なることで説明できる。目的とする即発中性子スペクトルは、高いチャンネル側に広く分布している。このように、平成27年度には、代理反応・即発中性子測定装置を完成することができた。

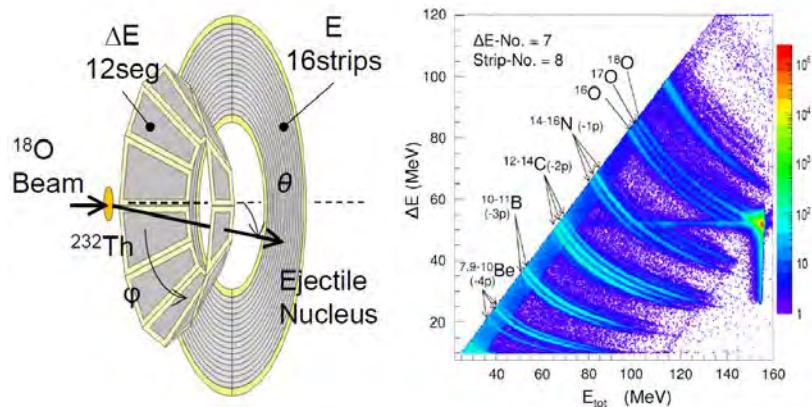


図3（左）シリコンΔE-E検出器と、（右）散乱荷電粒子の識別の様子

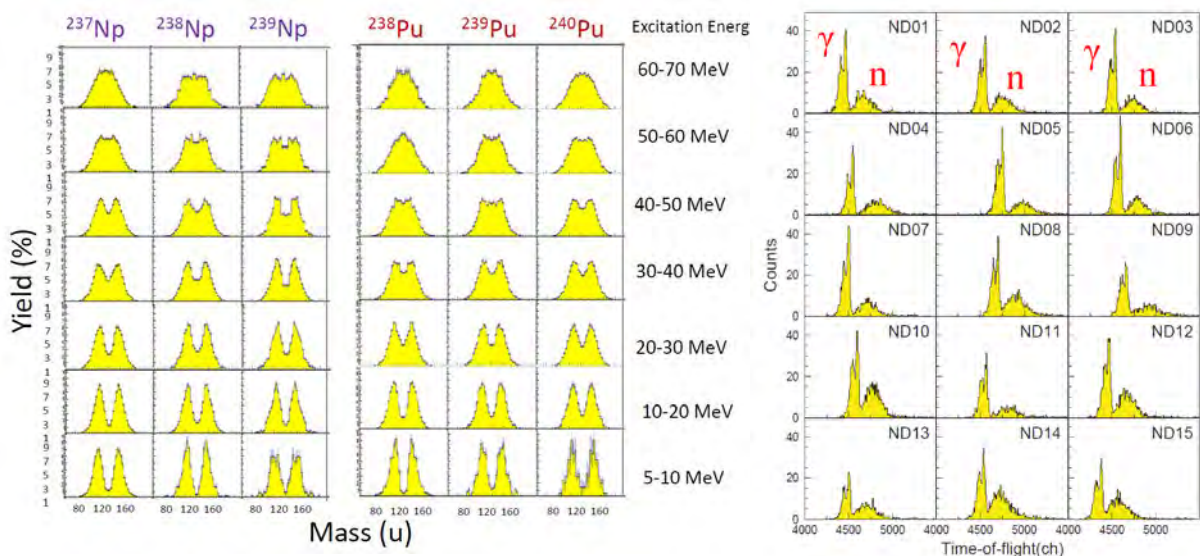


図4 $^{18}\text{O} + ^{237}\text{Np}$ による代理反応手法で取得した $^{237}, ^{238}, ^{239}\text{Np}$ および $^{238}, ^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の核分裂片質量数分布。縦の並びは、複合核の励起エネルギーを表す。

図5 ^{248}Cm の自発核分裂で放出される即発中性子の飛行時間スペクトル。即発ガンマ線が低いチャンネルに見られる。

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

マイナーアクチノイド原子核の中性子入射核分裂に伴って放出される即発中性子数とエネルギースペクトルを評価するため、動力学モデルおよび中性子蒸発モデルの開発を進めた。動力学モデルにおいては、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次元に拡張した。これに対応し、摩擦および輸送係数も4次元を行った。2 中心殻模型を用いた従来の計算 (5) では、原子核の形を表すパラメータとして「原子核間の中心距離： z 」「質量非対称度： α 」および「核分裂片の変形度 δ 」の 3 つとしていた。4 次元化の作業として、2 つの核分裂片の変形度を自由にとれるようにした。すなわち、2 つの核分裂片の変形度を δ_1 および δ_2 としたとき、従来の 3 次元ランジェバン計算手法 (5) では、 $\delta_1 = \delta_2 = \delta$ であったものを、 $\delta_1 \neq \delta_2$ と独立に取り扱えるようにした。実験事実から、大小 2 つの核分裂片から放出される中性子の数は一般に異なることがわかっており、 $\delta_1 \neq \delta_2$ の概念の導入は、即発中性子スペクトル $\chi(E_n)$ の評価において不可欠な開発となった。

2.3 研究推進

本研究は、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 27 年度は 12 月 1, 2 日の日程で東海村の茨城量子ビームセンターで開催し、研究の進展を発表するとともに、国内外の研究者との間で議論を行った。この会議では、外国人 12 名を含む合計 46 名の参加者があった。本研究で開発した代理反応測定手法は、核データ分野はもとより、核分裂過程の解明にもつながることから、国内外の研究者から注目され、高い評価を得た。平成 28 年度も同様に原子力機構（東海村）において、12 月 12, 13 日の日程で開催を計画している。

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実行して核分裂片の独立収率を導出するとともに、核分裂直後の核分裂片の変形エネルギーを計算する。これをもって初期の核分裂片の励起エネルギーとし、統計モデルによって中性子蒸発過程を計算し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. L guillon et al., Phys. Lett. B, **761**, 125 (2016).
- (4) K. Nishio et al., Nucl. Phys. A, **632**, 540 (1998).
- (5) Y. Aritomo et al., Phys. Rev. C, **90**, 054609 (2014).