分裂片が核分裂生成物となるまで —即発中性子・ガンマ線放出—

国際原子力機関(IAEA) 奥村 森

核分裂収率は、放射性廃棄物の組成を決定する最も基本的な物理量である。原子炉の臨界性や動特性を支配する即発・遅発中性子放出、あるいは福島事故の要因となった崩壊熱、宇宙における元素起源の解明、核セキュリティや核不拡散分野でもその重要性が認識されている。本稿では、核分裂現象の描像を出発点として核データの観点からみた核分裂収率、より精度の高い収率データを提供することを目指した手法開発の取り組みを紹介する。

KEYWORDS: Nuclear Fission, Fission Product Yield, Statistical Decay

I. はじめに：核分裂現象

核分裂収率は、放射性廃棄物の組成を決定する最も基本的な観測量で、炉物理の教科書には有名な2山ピークの核分裂生成物の質量数依存の図が掲載されている。しかし、このような2山形状は普遍的なものではなく、核分裂性物質や入射中性子エネルギーにより大きく変化することはあまり知られていない。また、このような2山形状がどの段階で何によって決定づけられているのか、全体を定量的に説明できる理論・モデルはまだない。本稿では、核データの観点からみた核分裂収率と、より精度の高い収率データ予測手法開発の取り組みの一端を紹介する。

1. 核分裂の段階

核分裂の機構は、その発見以来、多くの研究がなされてきたがいまだ未解明の部分が多い。 ^{235}U の中性子入射による核分裂を例にとると、236個もの粒子が集団運動をする大規模な量子多体系であり、どうして1つの原子核が2つの大きな分裂片に分かれるのかという基本的な問題は今も非常に挑戦的な課題である。

図1に核分裂過程の概念図を示した。はじめに、 ^{235}U に熱中性子が入射し、複合核(^{236}U)が形成される。複合核の中では、最初は陽子や中性子が激しく動き回る。そのうち、陽子間のクーロン反発により2つに分かれようとする力と、表面エネルギーや体積エネルギーが最小に

The formation of fission products from fission fragments with prompt neutron and photon emissions : Shin Okumura.

(2019年8月31日 受理)

図1 核分裂過程の概念図

なる形状を維持しようとする力により、複合核は伸びたり縮んだり元に戻ったり変形運動をする。変形がある程度発達してクーロン反発力が勝ってポテンシャルの山を越えると、今度はちぎれる方向に向かう集団運動が生まれる。経過していくポテンシャルエネルギーの山のうち最も低い山の頂点をサドル点と呼ぶ。サドル点を越えると、あっという間にポテンシャルの坂を下り、ある点(断裂点)で2つに分かれる。サドル点を越えてから断裂に要する時間は、約 10^{-20} 秒程度。ポテンシャルの山を越えるまでが長く、越えると一気に反応が進行する。

ところで、熱中性子による ^{235}U の核分裂では、複合核が真っ二つに分裂することはほとんどない。できる核分裂片は、魔法数(20, 28, 50, 82)を持つ原子核ができやすいという制約を受けたりして、例えば二重閉殻核 ^{132}Sn 近傍($Z=50, N=82$)に代表される球形で安定な $A=130\sim140$ 付近の原子核などがよく形成される。その結果、相方の分裂片は $A=90\sim100$ 付近にできやすくなり、結果的に質

量数の重い分裂片と軽い分裂片ができる。これが有名な収率の2山形状を生む。ただしこの2山形状は複合核が ^{235}U のケースであって、 ^{258}Fm では1山であるし、 ^{226}Th では3山である。このような分布は、入射粒子のエネルギーによっても変化する。

生まれた2つの分裂片(図1(I))は、互いに正の電荷を持っているためにクーロン斥力により加速しながら高速で離れていき、非常に高い励起状態に至る。原子炉で熱源として回収可能な核分裂で放出されるエネルギー約200 MeVのうちの大半は、この核分裂片の運動エネルギーである。また、分裂片が大きなスピンを持っていることも知られている。このことは、核分裂の途中のどこかで角運動量が生じていることを意味しているが、詳細はわかっていない。

最大まで加速した核分裂片は、即発中性子やガンマ線を放出することで脱励起する。時々、核分裂のイラストで複合核から即発中性子が出てるように描かれることがあるが、実際には、即発中性子の大部分は軽い分裂片から約2個+重い分裂片から1個程度、その結果、1回の核分裂で平均約2.4個の中性子が分裂片から発生する。この脱励起に要する時間は、 $10^{-18}\sim 10^{-14}$ 秒程度。一瞬で即発中性子・ガンマ線放出により崩壊して別の核種の基底状態もしくはMetastable状態に至ってしまう。この段階から分裂片は、核分裂生成物(図1(II))と呼ばれる。

中性子過剰な核分裂生成物は、その後、安定核に向かってベータ崩壊を始める。この段階に至ってやっとミリ秒程度の時間スケールとなり、人間や装置が認知可能な時間スケールとなる。これまでの段階が観測できないほど一瞬で進行してきたのに比べると、突然のんびりとほとんど永遠とも言える半減期とともにベータ崩壊していく。この時点で、まだ中性子を放出するのに十分な励起エネルギーを持つ核分裂生成物は、非常に小さな確率で中性子を放出することがある。これが遅発中性子である。即発中性子に比べると非常に小さなこの遅発中性子の収率が、原子炉の制御には非常に重要な量となる。こうして、核分裂により生まれた核分裂片は、最終的にベータ崩壊を繰り返して安定核(図1(III))に至り、放射性廃棄物となる。

ここまで、正確さを度外視してざっくりと核分裂過程の描像を述べた。では、核分裂により生成される核分裂生成物は、何核種くらいあるのだろうか。

2. 核分裂生成物のバリエーション

1回の核分裂から生成される可能性のある核種は、1,000を超えると考えられている。核分裂によりどのような核種が生成されるかは確率的に決定されるため、

のような反応が生成核種を変えて何百パターンと起こっ

図2 JENDL/FPY-2011の核分裂収率の熱中性子と14 MeVの比較

ていることになる。

図2に最新のJENDL核データライブラリに収められている1回の核分裂あたりのその生成確率(収率)を、縦軸に核分裂収率、横軸に核分裂生成物の質量数で、2点の入射エネルギーでの比較を示した。枠内に示した質量数分布は、これら個々の核種の収率を同じ質量で足し合わせたものである。左右の山を積分すると2.0(確率200%)となるように規格化されている。14 MeVでは、熱中性子に比べて分布幅が広がり、ちょうど複合核が真っ二つに割れた対称核分裂に近いA=118付近の収率が増加し、入射中性子のエネルギーによっても収率分布が大きく変化することがわかる。

また、質量数がA=10に満たないようなトリチウムなどの非常に軽い核分裂片も生成されていることがわかる。これは、核分裂片が2つに分かれるのではなく同時に3つに分かれる3体核分裂という機構により生成されていると考えられている。「考えられている」と書いたのはこの3体核分裂も十分には理解されていないためである。

10^{20} 回近くの核分裂につき1回しか生成しないような収率の小さい核種もある。このようなごく小さな確率でしか生成しない核種の実際の収率を実験的に測定するのが非常に困難であることは想像に難くない。ここに核分裂収率を正確に予測することの難しさの根っこがある。現象をよく理解するための実験データが足りないのだ。

3. 核分裂収率の定義

上述した核分裂過程には、少なくとも3つの異なる物理過程がある。(I)複合核の形成から断裂、(II)高励起した核分裂片の即発中性子やガンマ線放出による脱励起、および(III)ベータ崩壊である。これらの3つの段階は異なる物理で成立しており、統一的な理論で取り扱うことができない。各段階の終点における核種の収率は、

- (I) 一次収率：核分裂直後で即発中性子放出前
- (II) 独立収率：即発中性子放出後で、ベータ崩壊前
- (III) 累積収率：ベータ崩壊後

として区別されている。他にも、崩壊系列上の最終安定

核の収率を系列収率と呼んだりもする。

JENDL や ENDF に代表される核データには、核分裂性アクチノイドごとに収率(II)と(III)が、3つの入射中性子エネルギー点(熱, 高速, 14 MeV)で与えられている。(I)は核データには含まれていない。人間活動にほぼ関係のないほどに短い寿命で脱励起して崩壊してしまうからである。実際、炉物理計算で使用されている収率は、一部の(II)を除いて大半は(III)である。

最も多く実験データが報告されているのは、原子炉等で照射したターゲットを化学分離により調べたベータ崩壊後の(III)である。エネルギー変化から直接(I)の質量数分布を調べる手法や、化学分離を必要とせず(II)や(III)を直接測定するオンライン測定法や Fission Chamber も進化しているが、いずれにしても核分裂の上流に行くほど実験データは非常に限られているのが現状である。

4. 核分裂収率と随伴する核分裂観測量

収率の他にも核分裂後の観測可能な観測量として、核分裂片の運動エネルギーや角度分布、即発中性子・ガンマ線の多重度(放出数)、それらのエネルギースペクトル、遅発中性子収率、崩壊熱などがある。これらの観測量は、全て核分裂で発生した核種から放出される積分値であることから、当然ながら収率と直接関係する。

例えば、図3(a)に、核分裂直後で即発中性子放出前の収率(I)の質量数分布を示した。この段階では、 $(Z, A) = (53, 140)$ ができれば相方は $(Z, A) = (39, 96)$ というように、必ず相方の核分裂片の (Z, A) が一意に決まる。このため、質量数分布は鏡面对称となる。図3(b)には、即発中性子多重度と呼ばれる平均放出数の質量数分布をいく

つかの実験データを拝借して示した。鋸歯のような構造を有することが知られており、 $A=110-120$ あたりで最大値となり、相方がある $A=120-130$ あたりで最小値となる。ちなみに、この鋸歯のような理由が原子核の変形と関連するという指摘もあるが、まだ完全な説明には至っていない。そして図3(c)には、即発中性子を放出により変化した収率(II)を示した。収率(II)には、特徴的な微細構造が現れている。特に $A=134$ に収率のピークは顕著で、多くのアクチノイド核の熱中性子による核分裂で同様のピークが現れる。これは、 $A=134$ より重い核分裂片が中性子を放出して崩壊してくる途中で、即発中性子を放出しにくい安定な核種が分布する質量数に至るとそこに収率が“溜まる”と考えることで説明できる。

II. 核分裂収率のための理論・モデル

1. 核分裂現象の理論的理解への取り組み

では、このような分裂片の質量数分布が2山になったり3山になったり、即発中性子放出により微細構造を持つ核分裂収率を、様々なアクチノイドや様々な入射エネルギーで正確に予測することはできるのだろうか？

核分裂を物理現象として理解するため、あるいは、観測量を再現することを目的として、実に多くの理論的枠組みや経験的モデルが開発されてきた。

代表的なアイデアとして、液滴模型だけでは観測値の説明が難しい核分裂に対し、Strutinsky は一粒子模型から計算される殻エネルギーの補正を加えて変形度を変数としたポテンシャルエネルギー(核分裂障壁)に2つの山があることを示した¹⁾(図4)。核分裂に向かう原子核は、基底状態から1つ目のポテンシャルの山のサドル点を越え、少し変形した少し安定な状態を経て、2つ目の山を登り次のサドル点に至り分裂していくというものである。

その後、Brosa らが Strutinsky の手法を適用して核分裂障壁を詳しく調べた結果²⁾、このような核分裂に至る変形の過程には複数の経路があり、代表的な長さと変形度によって例えば ^{235}U などには3つのモード(Superlong, Standard1, 2)に区別できることを見出した。各経路の最後でこれ以上伸びることができない限界の形状に至ると、ちぎれる首の位置が流体力学的不安定性によりランダムに決まって断裂する(Random neck rupture モデル)とすることで、収率の分布や即発中性子の放出パターンがよりよく説明されるとした。図5には、収率分布(I)への3

図3 一次収率、即発中性子多重度、独立収率の質量数依存

図4 核分裂過程での変形度による核分裂障壁のイメージ

図5 Brosaによる3つの核分裂チャンネルの一次収率への寄与の例

つのモードからの寄与と伸長形状の例を示した。

図5中のSuperlongモードを見ていただきたい。原子核がにわかには信じがたいような伸び方をしている。しかも伸びきったところでランダムにちぎれるというのだ。実験事実や理論計算によりこのような考えは概ね支持されているものの、まだ実際にここまで伸びた原子核を見た人は居ないだろう。実験的に核分裂障壁を調べたり、実験的観測の難しい核分裂に至る変形過程やちぎれる瞬間の形状を微視的・巨視的な理論により調べる研究が現在も盛んに行われている。

2. 核データ収率に使用されているモデル

これまで見てきたように、核分裂という現象は、複数の物理過程を内包した複雑な物理現象ゆえ、単一の理論やモデルでの説明が難しい。さらに実験データも完璧な経験的モデルを構築するのには、十分とは言えない。

このような状況の中、核データでは、それぞれの観測量に矛盾が無いように与える努力が成されている。しかし、例えば即発中性子スペクトルや多重度がその実験データから収率とは独立に評価されているなど、完全に物理的な整合性が取れているとは言えない現状がある³⁾。

収率以外の観測量についても、多くの理論的・経験的モデルが開発されて核データにも採用されている。詳しくは触れないが、例えば、即発中性子スペクトルではWattの経験的モデルや、ENDFの評価に用いられたLos Alamosモデルなどがある。

前述の通り収率の実験データは乏しく、実験データのみによって1,000を超える核種の収率を与えるのは不可能である。このため、ENDFやJENDLでは、比較的よく測定されている質量数分布や個別核種の収率を制約条件としながら、実験データの無い領域は経験的モデルを用いて補完している。たとえば、収率(II)については、

Wahlが開発した多変量解析による系統式⁴⁾が用いられている。質量数分布をBrosaが提案した3つのモードに対応するようなガウス分布を仮定し、それに電荷分布を加えて収率を与えている。基底状態とMetastable状態に至る比率であるアイソマー生成比は、Madland-Englandによる経験式⁵⁾で与えられている。ベータ崩壊後の収率(III)は、(II)と崩壊データとが整合するように与えられている。

3. 統計崩壊理論によるアプローチ

昨今の収率データへの幅広い需要に応えるため、より多様なアクチノイド核に対し、幅広い中性子入射エネルギーで、収率と随伴する観測量である即発中性子多重度やスペクトルなどを同時に計算・予測するモデルやコードの開発が盛んに行われている。半経験的なモデルを含んだGEF、断面積計算に広く用いられてきたHauser-Feshbach統計崩壊理論⁶⁾とMonte Carlo法を併用して核分裂片の脱励起過程に適用するCGMF⁷⁾やFIFRELIN⁸⁾などが知られている。

Hauser-Feshbach統計崩壊理論を核分裂片が即発中性子・ガンマ線を放出する脱励起過程に適用する手法⁹⁾は、現時点で物理過程をもっともきちん取り扱う手法である。しかし、このHauser-Feshbach統計崩壊計算には、核分裂で生成される分裂直後の全原子核の収率(I)、単位密度や核構造の情報、さらに中性子やガンマ線の放出の透過係数などが必要である。しかし、基底状態の原子核ならともかくとして核分裂直後の非常に変形し高い励起状態にある原子核についての情報は全くと言っていいほどない。

このような理由から、分裂片が有しているであろう初期状態の多重分布(収率、励起エネルギー分布、スピン・パリティ分布)を生成するためにMonte Carlo法が併用されてきた。しかし、Monte Carlo法による非常に小さな生成確率のサンプリングには、長時間の計算が要求される。このため、収率は小さいが強いガンマ線を放出するなど重要な核種が見過ごされる可能性や十分な精度が得られないという課題があった。

このような課題を解決すべく、我々は、Monte Carlo法を必要とせず多重分布をすべて決定論的に与えて解析的に積分する手法を開発している¹⁰⁾。この手法では、核分裂直後に生成した分裂片の多重分布を、実験データを参考に経験式から生成したものと、ある分布に従うと仮定した励起エネルギー、スピン・パリティ分布を組み合わせて生成する。このような分裂片の脱励起をHauser-Feshbach統計崩壊理論で丁寧に計算する。

図6には、統計崩壊の模式の例を示した。例えば、ある励起エネルギー分布とスピン・パリティ分布を持つ分裂片(Z, A)が1個の中性子を放出し、生成した(Z, A-1)からも1個の中性子を放出し、合計2個の中性子を放出

図6 統計崩壊の模式図

した後、 $(Z, A-2)$ になりガンマ線を放出して Metastable 状態が基底状態に至る、といった過程を中性子・ガンマ線放出の競合を勘案のうえ計算する。これを全ての核分裂片に対して行うことで、この核分裂による即発中性子・ガンマ線多重度やエネルギースペクトルが求まる。その結果、はじめに仮定した収率(I)から収率(II)が得られる(即発中性子の放出分、変化しただけだから)。得られた収率(II)は、随伴する他の観測量と整合性を有する。このようにして計算した ^{235}U からの収率は、図3で紹介したような $A=134$ の収率ピークなど微細構造をよく再現する。

我々の手法ではさらに、入射エネルギー 5 MeV までの任意のエネルギーでの収率(II)、即発中性子・ガンマ線多重度やエネルギースペクトルの計算を可能にしている。例えば即発中性子多重度のエネルギー依存の実験データをよく再現することができた。

冒頭にて断裂直後の分裂片が大きなスピンを有していることを述べた。統計崩壊により至る基底状態と Metastable 状態の生成比を調べることで断裂時に付与された角運動量を推測し、間接的に分裂直後の分裂片の變形に関する情報が得られると考えられている。生成比の実験データは非常に数が少ないが、このような計算を用いることで実験的には測定が難しい短寿命の Metastable 状態との生成比も求めることもできる。

さらに、収率(II)とベータ崩壊情報(崩壊データ)を組み合わせることで崩壊系列を追うことで、ベータ崩壊後の収率(III)、遅発中性子収率、崩壊熱といったベータ崩壊に伴う観測量の計算も行いつつある。これにより、これまで得られなかったきめ細かな入射エネルギーにおける核データに求められる様々な観測量を計算する手法の構築

を目指している。このためには、確度の高い実験データ、計算やモデルの高度化、核構造や崩壊データなど多様なデータの高精度化も同時に求められる。

本研究で開発した手法が実際に評価に活用されるにはまだ時間がかかるが、このような経験的手法と物理的モデルを活用することで、これまで個別に評価されてきた収率と収率に相関のある観測量が互いに整合性を持って、かつ細かいエネルギー点で与えられるようになることが期待される。

III. おわりに

核分裂過程の描像を非常に簡略に述べるとともに、収率の区別や、核データにおける収率の取り扱いの現状などを紹介してきた。核分裂という現象には、実験的にも理論的にもまだ十分に理解されていない挑戦的な課題が多数残されている。核燃料サイクルで重要な廃棄物の組成を決定しているのも生まれたばかりの核分裂片そのものであるし、マイナーアクチノイドの核変換もつまり核分裂なので核変換によって生まれてくるのはやはり核分裂生成物なのである。本稿では、細かい議論は端折って、できるだけ幅広い分野の方に理解していただけるよう核分裂の全体像と収率、随伴する観測量の解説に努めた。それゆえ不正確さが残る箇所があると思われる。

本稿を執筆するきっかけとなった、Hauser-Feshbach 統計崩壊理論による核分裂収率と即発中性子多重度の関係に関する研究は、東工大の千葉 敏教授のグループおよび米国ロスアラモス国立研究所の共同研究で行った。

－ 参考資料 －

- 1) V.M. Strutinsky, Nucl. Phys. A, 95, 2, 420-442(1967).
- 2) U. Brosa, Phys. Rev. C, 38, 1944(1988).
- 3) P. Jaffke, J. Nucl. Sci. Eng. 190(3): 258-270, (2018).
- 4) A.C. Wahl, Los Alamos National Laboratory Report, LA-13928(2002).
- 5) D.G. Madland and T.R. England, Los Alamos National Laboratory Report, LA-6595-MS (1994).
- 6) 河野俊彦 “統計理論備忘録 II 光学模型と Hauser-Feshbach 理論” 核データニュース No.117(2017).
- 7) P. Talou, B. Becker, T. Kawano, M. B. Chadwick, and Y. Danon, Phys. Rev. C, 83, 064612, (2011).
- 8) O. Litaize and O. Serot, Phys. Rev. C, 82, 054616(2010).
- 9) T. Kawano, P. Talou, I. Stetcu, and M. B. Chadwick, Nuclear Physics A 913, 51(2013).
- 10) S. Okumura, T. Kawano, P. Jaffke, P. Talou, and S. Chiba, J. Nucl. Sci. Technol. 55(9),1009-1023(2018).

著者紹介

奥村 森 (おくむら・しん)

国際原子力機関(IAEA)
(専門分野/関心分野) 核データ, 廃棄物
処理・処分