

# 核分裂における原子核のちぎれ方

## Nuclear split in fission

廣瀬 健太郎

Kentaro Hirose

重元素核科学研究グループ

Research Group for Heavy Element Nuclear Science



### 概要

核分裂は原子核が変形してふたつにちぎれる現象です。このとき得られる大きなエネルギーが原子力の源であり、応用面でも興味深く重要な原子核反応のひとつです。本研究では、原子核が核分裂する前に中性子を放出できるほどの高いエネルギーをもっているとき、どのように変形してちぎれるかを実験と理論を駆使して初めて明らかにしました。

本研究は東京工業大学（千葉敏教授）、近畿大学（田中翔也氏）ら(\*)との共同研究で行われました。本成果は、米国物理学会の学術誌 Physical Review Letters の 11 月 27 日付電子版に掲載されました [1]。

### 1. 研究の背景・経緯

核分裂によって原子核はふたつの核分裂片にちぎれます。これらの核分裂片がどのような質量バランスをもっているか—これを“ちぎれ方”と言うことにします—は、原子核がどのように変形してちぎれるかに強く依存しますので、観測したちぎれ方から核分裂メカニズムを調べることができます。また、ちぎれ方によって、核分裂の際に得られるエネルギーや核分裂片から放出される即発中性子の数など原子炉でも重要な核分裂観測量が大きく変化することが知られており、原子核のちぎれ方は核分裂において基本的な観測量と言えます。

原子炉の中では、ウラン 235 ( $^{235}\text{U}$ ) が熱中性子を吸

### Abstract

Nuclear fission is the splitting of a heavy nucleus into two lighter nuclei. The energy released during this process is the source of atomic power; this makes nuclear fission one of the most interesting and important nuclear reactions. In this study, we report for the first time as to how a nucleus with high excitation energy deforms and splits during the fission process.

This study was performed in collaboration with Tokyo Institute of Technology (Prof. S. Chiba) and Kindai University (Mr. S. Tanaka), and others.(\*) This work was published in Physical Review Letters [1].

### 1. Background

In nuclear fission, two lighter nuclei are produced due to the splitting of a heavier nucleus. Because the mass ratio between these two fission fragments, i.e., fission fragment mass distribution (FFMD), depends strongly on how the nucleus deforms and splits, it is essential to observe the fragment masses for elucidating the fission mechanism. Furthermore, mass splits in fission alter important fission parameters,

収して<sup>236</sup>Uとなり、核分裂しています。核分裂する<sup>236</sup>Uのエネルギーは6.5メガ電子ボルト (MeV) と低く、一般的にこのような場合には、ちぎれ方は詳細に調べられています。また、原子炉の中では核分裂だけではなく、中性子捕獲反応を繰り返して起こすことによってウランより重い原子核がつくられており、これらは核燃料廃棄物として蓄積していきます。このような廃棄物の量を低減する方法として、高いエネルギーの中性子を用いた核分裂を利用する方法があります。しかしながら、後述するように、核分裂する原子核が高いエネルギーをもっている場合には、そのちぎれ方はわかっておらず、これまで核分裂のメカニズムを調べることができませんでした。

高いエネルギーの原子核は核分裂することもあります。中性子を放出して質量数がひとつ小さな別の原子核になることもあります。この原子核は中性子を放出した分、エネルギーが低くなります。それでもなお十分なエネルギーをもっている場合には核分裂するか、中性子を再び放出してまた別の原子核になります。この核分裂と中性子放出の競合は原子核のエネルギーが十分低くなるまで続きます。

しかし、このときに放出される中性子を100%の確率で実験的に測定することはできないため、核分裂する前にいくつの中性子を放出したかを知ることはできません。つまり、一体どの原子核が核分裂したのかを知ることができないのです。このように核分裂において重要な観測量であるちぎれ方さえ捉えることができなかったため、高エネルギーでの核分裂の議論は進められてきませんでした。

such as total-kinetic-energy release and multiplicity of prompt-fission neutrons, which need to be observed. Therefore, FFMD is an important parameter to be observed in fission.

In a nuclear reactor, uranium-235 (<sup>235</sup>U) absorbs a thermal neutron and gets decayed due to fission; the fissioning <sup>236</sup>U has a low excitation energy of approximately 6.5 MeV. FFMDs have been measured for such cases. In a reactor, by contrast, heavier nuclides are also produced by successive neutron-captures starting from U and accumulating as radioactive wastes. The fission induced by high-energy neutrons is considered as one of the most viable options to reduce the amount of toxic radioactive wastes generated by means of transmutation into shorter-lived fission products. However, so far, FFMDs during the fission of highly-excited nuclei have not been investigated because of the experimental difficulties mentioned below.

A highly-excited nucleus can decay either via fission or via single neutron emission, leading to the formation of a different nucleus with a lighter mass and lower excitation energy. The latter nucleus can disintegrate again either by fission or by neutron evaporation. This competition between fission and neutron emission continues until the excitation energy of the descendant nucleus drops below its fission barrier.

It is impossible to find out how many neutrons are emitted from the initial highly-excited nucleus before fission because the emitted neutrons cannot be detected with 100% probability. This means that it is extremely difficult to identify which nucleus came from the mother nucleus decay due to fission. Therefore, the progress in high-energy fission research has been slow so far.

## 2. 研究の内容

上述のように、高いエネルギーの原子核は核分裂の前に中性子を放出するため、さまざまなエネルギーをもった数多くの原子核がちぎれ方の観測に寄与します。理論との詳細な比較をするために、本研究では、これまでに開発してきた多核子移行核分裂測定装置 [2] を使って、広いエネルギー領域にわたって様々な原子核の実験データを取得しました。東海タンデム加速器から供給された $^{18}\text{O}$  ビームを $^{238}\text{U}$  標的に照射し、 $^{18}\text{O}$  原子核から $^{238}\text{U}$  原子核にいくつかの核子（陽子または中性子）が移行したあとの散乱粒子を測定します。散乱粒子の種類を識別することで、合成した原子核を同定することができます。例えば、 $^{16}\text{O}$  を散乱粒子として検出した場合には、中性子2個が $^{238}\text{U}$  標的に移行して、 $^{240}\text{U}$  が合成されたとわかります。また散乱粒子の運動エネルギーと散乱角度から、合成した原子核がもっているエネルギーがわかります。合成した原子核は即座に核分裂してしまうため直接検出することはできませんが、本実験では核分裂片を検出することで、核分裂が起こったかどうかを知ることができます。

図1に得られた結果を示します。本研究ではたった一度の実験で、 $^{237-240}\text{U}$ 、 $^{239-242}\text{Np}$  および $^{241-244}\text{Pu}$  の合計12種類の原子核の核分裂におけるちぎれ方を、10–60MeVの広いエネルギー領域にわたって観測することができました。このうち $^{240}\text{U}$ 、 $^{240, 241, 242}\text{Np}$  に関するデータは本研究によって初めて観測されました。

図1に示した青線は、揺動散逸定理に基づく動力学計算の結果です。この計算モデルでは、まず、核分裂する原子核の形を、分裂して生ずるであろう2つの核分裂片間の距離、質量非対称度、および核分裂片の変形度（た

## 2. Contents of the study

Many nuclides with different energies contribute to the observed fission events owing to neutron emission before fission, as mentioned above. In this study, we measured the FFMDs of a multitude of nuclides over a wide energy range using a novel experimental equipment [2] that we developed for multi-nucleon-transfer-induced fission. In the experiment, a  $^{238}\text{U}$  target was irradiated with  $^{18}\text{O}$  beams. By identifying the ejectiles after nucleon-transfer from  $^{18}\text{O}$  to  $^{238}\text{U}$ , the compound nucleus was identified. For example, when  $^{16}\text{O}$  was detected as the ejectile, two neutrons were transferred to the target, and thus,  $^{240}\text{U}$  was produced. The excitation energy of the compound nucleus was determined from the kinetic energy and scattered angle of the ejectile. Because the compound nucleus decays instantly, we cannot detect it directly. Fission events were thus observed by detecting two fission fragments.

Figure 1 shows the FFMDs measured in this study. We successfully obtained the FFMDs of 12 nuclides of  $^{237-240}\text{U}$ ,  $^{239-242}\text{Np}$ , and  $^{241-244}\text{Pu}$  over a wide energy range of 10–60 MeV in a single experiment. Among them, the data of  $^{240}\text{U}$  and  $^{240, 241, 242}\text{Np}$  have been observed for the first time.

The blue curves in Fig.1 show the result of the calculation performed using the dynamical model based on the fluctuation-dissipation theorem. In this model, the shape of a nucleus is described by three parameters: distance between two nascent fission fragments, mass asymmetry, and their deformations (a common value was used for simplifying the calculation). The potential energy due to the shape of the fissional nucleus was

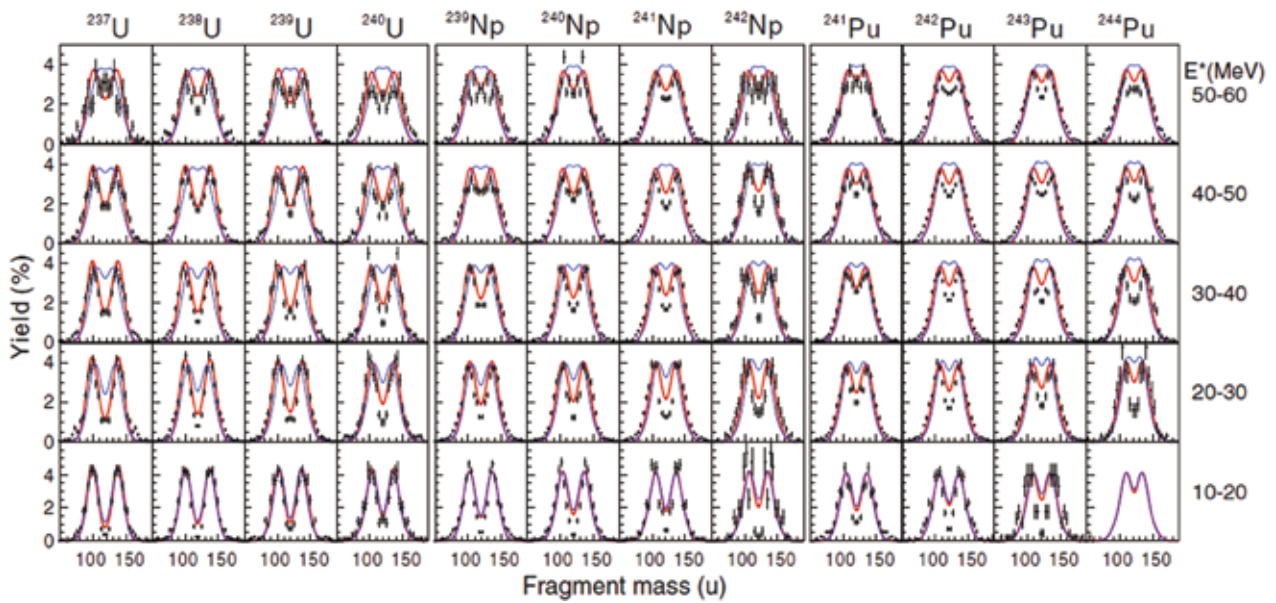


図 1  
本実験で観測した様々な原子核のちぎれ方。青（赤）線は中性子放出を考慮していない（考慮した）動力学計算の結果。

Fig.1  
FFMDs of various nuclides obtained in this experiment. Blue (red) curves are the results of calculations performed using dynamic model without (with) considering neutron emission before fission.

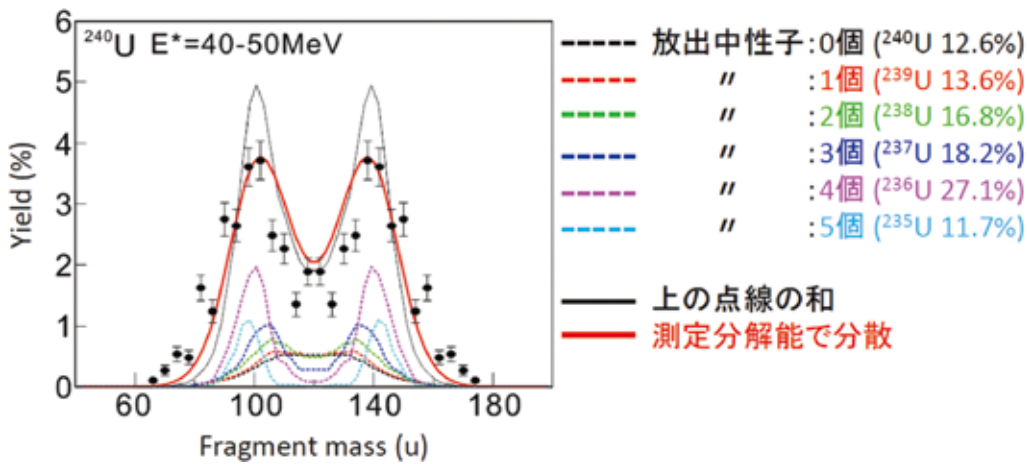


図 2  
実験データ（●）には様々な原子核の寄与が混じっている。理論計算により求めたそれらの寄与（点線）を足し合わせると実験データをよく再現する。

Fig.2  
The measured FFMD (●) contains contributions of various nuclides. The sum of these contributions calculated using dynamic model correlates well with the experimental data.

だし計算の簡素化のため共通の値とした)の3つのパラメータで表し、核分裂する原子核の形に起因するポテンシャルエネルギーを計算しています。次にランジュバン方程式を解くことで、このポテンシャル平面上での系の時間発展 — つまり原子核がどのように変形して行くか — を追跡し、最終的にどのようなちぎれ方で核分裂するかを計算することができます。

図1を見ると、低エネルギー(10–20MeV)では、計算値が実験データをよく再現できています。しかしながら、エネルギーが高くなるにしたがって、実験データとのかい離が大きくなっていくことがわかります。これは、青線で示した計算では核分裂する前の中性子の放出を考慮していないためです。

本研究では高いエネルギーをもった原子核が中性子を放出する確率を、統計モデルコード(GEF [3])を用いて計算しました。この計算によると、たとえばエネルギー40–50MeVをもった $^{240}\text{U}$ は中性子を5個まで放出でき、中性子を0個、1個、2個…と放出する確率はそれぞれ、12.6%、13.6%、16.8%…であることがわかります。つまり、エネルギー40–50MeVをもった $^{240}\text{U}$ 原子核を合成したときに観測されるちぎれ方には、核分裂する前の中性子放出によって $^{235-240}\text{U}$ の6種類の原子核が寄与することになります。しかも、それぞれの原子核がもっているエネルギーは中性子を放出した分だけ低くなっていきます。

これにともない、理論計算も複数の原子核のちぎれ方を足し合わせて実験データと比較する必要があります。図2に、エネルギー40–50MeVの $^{240}\text{U}$ をつくったときに観測されたちぎれ方を黒丸(●)で示しました。これには中性子放出によって、先述のような割合で $^{235-240}\text{U}$ のちぎれ方が混じっているため、それらの計算結果を点線で示しました。これらの和をとると、細い黒線の

calculated using these parameters. By solving Langevin equations, the evolution of the system on this potential energy surface was traced to the scission point, i.e., the manner in which deformation of the fissionable nucleus proceeds; finally, the FFMD was computed.

As shown in Fig. 1, while the calculation correlated well the experimental data at lower energies (10–20 MeV), discrepancies between the experimental data and the calculated results increased with increasing excitation energy. This is because neutron emission before fission is not considered in the calculation shown by the blue curve.

The probabilities of neutron emission from a highly-excited nucleus were estimated using a statistical model code (GEF [3]). The emission probabilities of 0, 1, and 2 neutrons from  $^{240}\text{U}$  with 40–50 MeV excitation energy were calculated to be 12.6%, 13.6%, and 16.8%, respectively. This means that fission events observed for  $^{240}\text{U}$  populated at 40–50 MeV include those from six nuclides, i.e., a mixture of fission events of  $^{235-240}\text{U}$ . Furthermore, the excitation energies of these nuclei are different from each other.

Considering this, the calculated FFMDs of six nuclides should be summed up for comparison with the experimental data. The plots depicted by filled circles (●) in Fig. 2 shows the FFMD of  $^{240}\text{U}$  populated at 40–50 MeV, which includes the contribution of  $^{235-240}\text{U}$ . The dotted curves are the calculated results of the respective nuclides. A sum of the contributions of these nuclides is shown by the thin solid curve, which transitions into a thick, red curve after broadening by the experimental mass-resolution. The calculation correlates well with the experimental FFMD data obtained by considering the neutron emission before

ようになります。測定には有限の分解能があるので、これを理論計算に施すと細い黒線は太い赤線のようになり、実験データをよく再現できました。この計算を全ての実験データに対して行ったものが、図1の赤で示した線です。中性子放出を考慮することによって、広いエネルギー領域にわたる様々な原子核の実験データとよく一致しています。これはわれわれが構築してきた理論モデルの信頼性の高さを示しています。

この実験と理論の比較から、高いエネルギーをもった $^{240}\text{U}$ のちぎれ方(図2の黒の点線)はひと山構造、つまり同じような重さの核分裂片にちぎれ、実験データに見られる特徴的なふた山構造は中性子放出後にできた $^{235-237}\text{U}$ の核分裂の寄与だということがわかります。本研究によって、これまで知ることができなかった、高いエネルギーをもった原子核が核分裂するときのちぎれ方が明らかになりました。

### 3. 成果の意義と波及効果

ちぎれ方に現れるふた山構造は、原子核が持つ殻構造に起因しています。本研究は、原子核がもつエネルギーが高くなると、この殻構造の影響が小さくなり、結果としてふた山構造が消えることを明確に示しています。核分裂前の中性子放出の効果を考慮することで実験データを正しく解釈し、信頼性の高い理論を構築できたことが、本研究成果の意義です。核分裂において重要な観測量であるちぎれ方が得られるようになったことで、高エネルギー核分裂研究の発展、さらには高速中性子による核分裂を利用した核変換技術への貢献が期待されます。

fission. The red curves in Fig. 1 are the result of this calculation that uses all experimental data obtained in this study. There was a good correlation over in a wide range of nuclide and excitation energies, which implies that the calculation procedure developed herein is reliable.

From the comparison in Fig. 2, it is clear that the FFMD of highly-excited  $^{240}\text{U}$  (black-dotted line) has a single-humped shape, i.e., it is split into similar masses, and the observed double-humped shape results from the large contributions of  $^{235-237}\text{U}$  via neutron emission. Thus, in this study, we demonstrated, for the first time, the FFMDs of highly-excited nuclei.

### 3.Importance of the result and its impact

The double-humped shape that appears in FFMDs is caused by nuclear shell effects. This study unambiguously showed that the influence of shell effects on FFMDs decreases with increasing excitation energy of a fissionable nucleus. By considering the neutron emission before fission, we have established a reasonable interpretation of the experimental FFMDs and developed a reliable theoretical model. Using the novel methodologies, it is now possible to obtain FFMDs, an important parameter to be observed in nuclear fission, even at high energies. This opens a door in the high-energy fission research and contributes to the development of nuclear transmutation technology, which involves the use of high-energy fission.

#### 4. 今後の予定

本研究結果は、ちぎれ方のみならず他の核分裂観測量に対しても、核分裂前の中性子放出を考慮すべきことを示しています。その一例として、核分裂した後の核分裂片から放出される即発中性子の多重度が挙げられます。原子核がもつエネルギーが高くなると、その核分裂即発中性子の数が増えますが、なぜか重い核分裂片からの中性子のみが増えます。しかし、この理由はわかっていません。今後、私たちは今回用いた実験装置にさらに中性子検出器群を加え、即発中性子と核分裂片の同時計数実験をおこない、即発中性子の発生機構を明らかにしたいと考えています。

(\*) TRIUMF、京大原子炉、九州大学、東京都市大学、新潟大学、ボルドー大学、ヨーク大学

#### 参考文献 References

- [1] K. Hirose, et al., Phys. Rev. Lett. 119, 222501 (2017).
- [2] R. Leguillon, et al., Phys. Lett. B761, 125 (2016).
- [3] K.-H. Schmidt, et al., Nucl. Data Sheets 131, 107 (2016).

#### 4. Perspectives

The results of this study indicate the importance of the neutron emission before fission from the viewpoint of interpretation of other fission observables. For example, the multiplicity of prompt neutrons emitted from the fission fragments needs to be investigated. As the initial excitation energy increases, the neutron multiplicity is enhanced only for heavy fragments. This is an important phenomenon, but it is not well understood yet. For understanding such interesting questions, in the future, by installing a neutron-detector array in addition to the present setup, we will further perform measurements of prompt neutrons correlated with fission fragments.

(\*) TRIUMF, KURRI, Kyushu University, Tokyo City University, Niigata University, University of Bordeaux, University of York