

## 資料紹介 (その I)

以下は非公式に資料を紹介するものでありますから、内容の確認、引用の可否、引用の仕方など全て原典にもとって御判断下さい。

**General Survey of Application Which Require Actinide  
Nuclear Data., S Raman (ORNL)  
Advisory Group Meeting on Transactinium Nuclear  
Data (Karlsruhe, 3-7 Nov. 1975) Review Paper No. A1**

村田 徹 (NAIG)

昨年秋に行なわれた Advisory Group Meeting on TND (JND Cニュース Ⅱ 36 p. 33 参照) の Review Paper の一番目のもので、アクチノイド核の核データが必要とされる各分野の紹介と核データの問題点、現状につき総括的に述べている。また、ORNLにおけるアクチノイド核種の断面積測定や実験用各種サンプルの紹介もなされている。Appendix として、近く刊行される新版のBNL-325 より、この会合で対象とされたアクチノイド ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  を除く) の断面積の図が収録されている。また、ORNLの評価済み核構造データファイル (ENSDF) の作表の一例も示されている。

### 再処理廃棄物と核データ

使用済燃料の再処理過程で出てくる廃棄物のなかで、核分裂生成物は大部分が比較的半減期の短いものなので一千年程度以内の貯蔵で無害化することが出来るが、アクチノイドの場合は半減期が長く、無害化するには数万年にわたる貯蔵が必要となる。この様な期間にわたる安全な貯蔵は地質上の不安定性の問題からも保障することは出来ない。従って、この様な廃棄物をどの様に処理しうるかが、原子力の将来を大きく左右する問題となる。

どの程度のアクチノイドが蓄積されるかの ORIGEN コードによる計算例が、軽水炉の場合について核種ごとに示されており、現在の再処理技術で処理を行うとすると米国では、2,000年には年間110トンのアクチノイドが再処理後の廃棄物として出てくると試算されている。

このアクチノイドを処理する方法として、適当な原子炉で消滅処理を行うことが考えられている。 $\text{Pu}$ ,  $\text{Am}$ ,  $\text{Cm}$ , などの同位元素のなかで中性子数が奇数のものは核分裂断面積が比較的大きく燃焼によって核分裂生成物に変換しうる。また、その他のものは中性子捕獲により中性子数が奇数の核に変換することが出来る。

アクチノイド消滅処理を実現するための基礎研究として再処理過程での化学分離効率を高める研究、必要核種の断面積を測定すること、原子炉で消滅処理を行う際の反応度の問題や変換効率を計算する手法の研究が必要となる。

断面積に関連して、この会議でなされた Benjamin の熱領域における断面積と共鳴積分についての報告、ORNLで High Flux Isotope Reactor (HFIR) 用に作成された2群断面積セット (表1に示す。); Benjamin et al. による84群断面積セットなどが紹介されてい

る。熱中性子炉でのアクチノイド核の生成、消滅を評価するには、現在の核データではほぼ満足しえようとしている。しかし、消滅処理用の炉の中性子スペクトルはLMFBRよりも「かたい」ものとなることが予想され、核融合炉を使用することも考えられているのでアクチノイド核の断面積としては、中性子エネルギー領域が熱以下から18 MeV程度までのものが必要となる。

Igarasi 及び Benjamin の Review paper に示されているアクチノイド核の断面積データの現状とアクチノイド核生成量の計算結果をもとに重要アクチノイド核の今後測定さるべき断面積を洗い出している。 $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  については現状で十分であるが、 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{243}\text{Am}$  については  $(n, \gamma)$  断面積測定値が乏しく、 $^{242}\text{Am}$  や Cm 同位元素については全体にデータ不足である。Cm や Cf については 15 eV 以下の  $(n, f)$  断面積が測定されていない。

#### 燃料組成と核データ

リサイクル燃料の問題の一つは中性子の放出である。軽水炉用の Pu 燃料は1トン当たり約  $6 \times 10^7$  個の中性子を毎秒放出するが、3年間使用した後にはその放出量は約  $6 \times 10^9$  n/sec となる。熱中性子炉でリサイクルされる燃料の中性子放出に大きな寄与をするアクチノイドは  $^{252}\text{Cf}$  であり、LMFBR の場合には  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{250}\text{Cf}$ ,  $^{252}\text{Cf}$  である。この放出量は使用済燃料の遮蔽や炉停止時の反応度の決定に関連して重要である。

Johnson は最近、各種超ウラン元素の自発核分裂にもなり中性子放出量の評価を行って、表2に示すような値を得ている。この評価では測定値の存在しないものについては Swiatecki や Viola のシステマティクスにより推定している。

核分裂当り放出される中性子数  $\bar{\nu}$  の測定標準として用いられる  $^{252}\text{Cf}$  の自発核分裂にもなり  $\bar{\nu}$  の値は  $\pm 0.25\%$  程度の精度であることが望ましいが、現在の精度は良いもので  $\pm 0.4\%$  であり、それらの測定値間の差は  $0.7\%$  程度である。報告されているすべての測定値の拡がりは  $2.5\%$  であるが、最近研究された液体シンチレータタンクの捕獲ガンマ線検出効率が中性子エネルギーにより異るといふ効果を考慮すると、おそらく、この拡がりをもっと小さなものに出ることが出来よう。ORNL ではこの効果を実験的に確かめ、 $^{252}\text{Cf}$  の  $\bar{\nu}$  を Gd タンクで再測定する計画が進められている。

軽水炉使用済燃料の中性子放出に関連して重要な核種は  $^{241}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{246}\text{Cm}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  であり、リサイクル燃料の場合には  $^{250}\text{Cf}$ ,  $^{252}\text{Cf}$  がこれに加わる。これ等核種の生成量を算出するには  $(n, \gamma)$ ,  $(n, f)$  反応の断面積の他に  $(n, 2n)$ ,  $(n, 3n)$  反応などの断面積や  $^{242m}\text{Am}(n, n')$ ,  $^{242g}\text{Am}$  のような特殊な断面積が必要となる。

この他に  $^{232}\text{U}$ ,  $^{236}\text{Pu}$  などの生成量算出に関連した断面積も必要となる。これ等の核の崩壊系列のなかにはエネルギーの高いガンマ線を放出するものがあり遮蔽上問題となる。また、 $^{232}\text{Th}$  の  $(n, 2n)$ ,  $(n, 3n)$  反応で生成される  $^{231}\text{Pa}$  や  $^{230}\text{Th}$  も崩壊系列中の高エネルギー粒子を放出するものがあり毒性が高く問題となる。

### $^{252}\text{Cf}$ 生成に関連した問題

$^{252}\text{Cf}$  はグラム当たり  $2.34 \times 10^{12}$  個の中性を毎秒放出する。リサイクル燃料では、この量が燃料取扱い、貯蔵、再処理などの施設の遮蔽上大きな問題となる。 $^{252}\text{Cf}$  の生成過程は良く調べられており、熱中性子炉で一原子の  $^{252}\text{Cf}$  を生成するには約 1,800 個の中性と 1,000 原子の  $^{238}\text{U}$  が使用される。今後 2,000 年までに、米国で約  $10^{10}$  MW(D) の熱出力が予想されるが、それにもなって約 5 トンの  $^{252}\text{Cf}$  が生成するという計算例が示されている。しかし、 $^{252}\text{Cf}$  は半減期が 2.6 年と短く、それが救いとならう。

$^{254}\text{Cf}$  も中性子の比放射能が  $^{252}\text{Cf}$  の 500 倍と高く、その生成量を計算すると、ほぼ  $^{252}\text{Cf}$  と同程度の中性子放出率となる。しかし、HFIR の実験結果では放出率は  $^{252}\text{Cf}$  の 30% 程度であり、 $^{253}\text{Cf}$  の (n, f) 断面積がかなり大きな値ではないかと考えられる。高速炉の場合には  $^{254}\text{Cf}$  の寄与がさらに大きくなろうと予想される。

HFIR の実験結果と差があるのは  $^{244}\text{Cm}$  の燃焼曲線と  $^{255}\text{Es}$  の生成量である。前者は多分  $^{244}\text{Cm}$  の共鳴自己吸収効果のためと考えられる。 $^{255}\text{Es}$  は新しい超重金属生成のためのターゲットとして有望なものであるが、その生成過程にある  $^{254}\text{Es}$ ,  $^{254m}\text{Es}$ ,  $^{254}\text{Cf}$  の Capture to fission ratio をもっともらしい値を用いて、その生成量を計算すると実験値の 10~100 倍多く生成することとなり一致が悪い。

### 放射線熱源と核データ

宇宙空間での電源として利用されているが、海洋での、また遠隔地での電源として、心臓のペースメーカ電源、人工心臓電源、その他熱源としての利用がある。用途ごとに年間 10~100 kW(th) の必要になると考えられる。

現在利用されているものほとんどは  $^{238}\text{Pu}$  を用いたものであるが、 $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  を用いたものの開発もさなれている。

$^{238}\text{Pu}$  の生成過程は二つある。一つは  $^{237}\text{Np}$  を照射して  $^{238}\text{Np}$  とし、ベータ崩壊で  $^{238}\text{Pu}$  を得るものであるが、この場合には  $^{237}\text{Np}$  (n, 2n) や ( $\gamma$ , n) 反応で  $^{236}\text{Pu}$  が生成し有害となる。もう一つは  $^{241}\text{Am}$  を照射して  $^{242}\text{Cm}$  を作り、アルファ崩壊により  $^{238}\text{Pu}$  を得る方法で、この場合には  $^{236}\text{Pu}$  の汚染はないが、 $^{243}\text{Am}$  が照射サンプルに混入していると  $^{244}\text{Cm}$  が生成し、その娘核である  $^{240}\text{Pu}$  が入りうる可能性がある。以上の二過程に必要な核データはほぼ確立されているが、やや不明確なのは  $^{241}\text{Am}$  (n,  $\gamma$ ) 反応で  $^{242}\text{Am}$  の基底状態とアイソマーを生成する割合である。しかし、これはあまり大きな問題ではないとしている。

### 保障措置技術と核データ

核燃料計量技術 (Active 法、Passive 法) に使用される核データの基本的なものはほぼ揃っている。精度の高いデータが要求されているのは Pu-Am の同位元素比測定のためのガンマ線強度、半減期、自発核分裂分岐比、核分裂中性子数などである。

核物質の収支管理と保障措置技術に関連して、アクチッド核半減期測定値の差を検討する計画が Half-life Evaluation Committee により進められている。この計画の最終目的は測定によ

りPuや他の収支管理対象核種の半減期の推奨値を定めることである。現在、 $^{239}\text{Pu}$ の一つのサンプルの測定が終了しており、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ の測定計画が進められている。

Am, Cm, Bk, Cfの同位元素についてのENDF/B-IVファイルは不十分であることが知られているが、これ等についての新しい評価作業も目下進められている。

ORNLのNuclear Data Projectでは核構造データファイルを作成しており、現在、質量数領域 $3 \leq A \leq 263$ にわたる1500以上の評価済データセット(ENSDF)が納められている。また、この編集用コードMEDLISTも作成されており、各種の核構造、崩壊データの作表の他に、次項の吸収線量評価に用いられる“equilibrium dose constant”も計算されるようになってきている。

#### 保健物理と核データ

許容濃度や被曝線量を評価するため、アクチノイド核の崩壊データが必要となる。外部被曝については透過性の高いガンマ線の強度が必要であり、その精度も比較高い( $\leq 5\%$ )ものが要求される。内部被曝では崩壊チェンのすべてにわたるデータが必要となるが、その精度は $\pm 15\%$ 程度で良いと考えられる。後者の場合には、平均ベータ線エネルギー、オージェ電子発生量、X線発生量なども必要となるが、核種によっては自発核分裂率が高く、それともなり被曝が大きな効果をもたらす。自発核分裂にともなり各器官の被曝を推定する手法がDillmanにより開発されている。

M殻やN殻、より外殻の電子遷移にともなり、エネルギーは低いが強度の高い放射線放出についてのデータは内部被曝の評価には重要であるが、現状では極めて不十分である。

表 1

Neutron cross sections used to compute transmutations in HFIR target irradiations

Nuclide	Half-Life	Capture			Fission		
		2200-m/s Cross Section (barns)	Resonance Self-Shielding Constant	Resonance Integral (barns)	2200-m/s Cross Section (barns)	Resonance Self-Shielding Constant	Resonance Integral (barns)
<sup>238</sup> Pu	87.404 y	560	0	150	16.5	0	25
<sup>239</sup> Pu	2.4413 x 10 <sup>4</sup> y	265.7	0	195	742.4	0	324
<sup>240</sup> Pu	6580 y	290	0	8453	0.05	0	0
<sup>241</sup> Pu	14.98 y	360	0	166	1011	0	541
<sup>242</sup> Pu	3.869 x 10 <sup>3</sup> y	19.5	6.20	1280	0	0	0
<sup>243</sup> Pu	4.955 h	80	0	0	210	0	0
<sup>244</sup> Pu	8.28 x 10 <sup>7</sup> y	1.6	0	0	0	0	0
<sup>245</sup> Pu	10.6 h	277	0	0	0	0	0
<sup>246</sup> Pu	10.85 d	0	0	0	0	0	0
<sup>243</sup> Am	7370 y	105	0	1500	0	0	0
<sup>244</sup> Am	10.1 h	0	0	0	2300	0	0
<sup>244m</sup> Am	26 m	0	0	0	0	0	0
<sup>244c</sup> Am <sup>a</sup>	49 m	0	0	0	1128	0	0
<sup>245</sup> Am	2.07 h	0	0	0	0	0	0
<sup>246</sup> Am	25.0 m	0	0	0	0	0	0
<sup>244</sup> Cm	18.099 y	10.0	4.0	650	1.2	4.0	12.5
<sup>245</sup> Cm	8265 y	343	2.4	120	1727	2.4	1140
<sup>246</sup> Cm	4655 y	1.25	0	121	0	0	0
<sup>247</sup> Cm	1.56 x 10 <sup>7</sup> y	60	0	500	120	0	1060
<sup>248</sup> Cm	3.397 x 10 <sup>5</sup> y	3.56	2.0	170	0	0	0
<sup>249</sup> Cm	64 m	2.8	0	0	50	0	0
<sup>250</sup> Cm	1.74 x 10 <sup>6</sup> y	2	0	0	0	0	0
<sup>249</sup> Bk	314 d	1451	2.4	1240	0	0	0
<sup>250</sup> Bk	3.222 h	350	0	0	3000	0	0
<sup>251</sup> Bk	57 m	0	0	0	0	0	0
<sup>248</sup> Cf	352 y	450	1.46	750	1690	5.8	2920
<sup>250</sup> Cf	13.08 y	1900	20	11600	0	0	0
<sup>251</sup> Cf	900 y	2850	14	1600	3750	14	5400
<sup>252</sup> Cf	2.646 y	19.8	0	44	32	0	110
<sup>253</sup> Cf	17.812 d	12.6	0	0	1300	0	0
<sup>254</sup> Cf	60.5 d	50	0	1650	0	0	0
<sup>255</sup> Cf	1.5 h	0	0	0	0	0	0
<sup>253</sup> Es	20.467 d	345	0	0	0	0	0
<sup>254</sup> Es	276 d	20	0	0	3060	0	0
<sup>254m</sup> Es	39.3 h	1.26	0	0	1840	0	0
<sup>255</sup> Es	39.8 d	60	0	0	60	0	0
<sup>256</sup> Es	25 m	0	0	0	0	0	0
<sup>254</sup> Fm	3.24 h	76	0	0	0	0	0
<sup>255</sup> Fm	20.07 h	26	0	0	100	0	0
<sup>256</sup> Fm	2.62 h	45	0	0	0	0	0
<sup>257</sup> Fm	94 d	10	0	0	5500	0	0
<sup>258</sup> Fm	380 μs	0	0	0	0	0	0

<sup>a</sup> To simplify calculations we use a fictitious isotope, <sup>244c</sup>Am, which combines the properties of <sup>244m</sup>Am and <sup>244</sup>Am according to their relative rates of production from <sup>243</sup>Am.

表 2

## Neutron yields from spontaneous fission

Isotope	$T_{1/2}$ (S.F.) years measured	$T_{1/2}$ (S.F.) years estimated	$\bar{\nu}$ (S.F.) measured	$\bar{\nu}$ (S.F.) estimated	Neutron Yield measured	(n/gm.sec) estimated
$^{235}\text{U}$	$(3.5 \pm 0.9) \times 10^{17}$			1.695		$2.73 \times 10^{-4}$
$^{236}\text{U}$	$2.0 \times 10^{16}$		$1.65 \pm 0.12$	1.784	$4.64 \times 10^{-3}$	$5.00 \times 10^{-3}$
$^{237}\text{U}$		$6.3 \times 10^{19}$		1.872		$1.66 \times 10^{-6}$
$^{238}\text{U}$	$(1.01 \pm 0.03) \times 10^{16}$		$2.00 \pm 0.08$	1.960	$(1.10 \pm 0.06) \times 10^{-2}$	$1.08 \times 10^{-2}$
$^{239}\text{U}$	$8.9 \times 10^{18}$			2.048		$1.27 \times 10^{-5}$
$^{238}\text{Np}$		$6.3 \times 10^{17}$		1.783		$1.59 \times 10^{-4}$
$^{236\text{m}}\text{Np}$		$6.3 \times 10^{17}$		1.790		$1.59 \times 10^{-4}$
$^{237}\text{Np}$	$> 10^{18}$			1.873		$< 1.05 \times 10^{-4}$
$^{238}\text{Np}$		$2 \times 10^{18}$		1.963		$5.45 \times 10^{-5}$
$^{239}\text{Np}$		$6.3 \times 10^{16}$		2.053		$1.80 \times 10^{-3}$
$^{238}\text{Pu}$	$3.5 \times 10^9$		$2.22 \pm 0.20$	1.793	$3.55 \times 10^4$	$2.87 \times 10^4$
$^{237}\text{Pu}$		$2 \times 10^{15}$		1.886		$5.26 \times 10^{-2}$
$^{238}\text{Pu}$	$(5.0 \pm 0.6) \times 10^{10}$		$2.28 \pm 0.08$	1.977	$(2.54 \pm 0.32) \times 10^3$	$2.20 \times 10^3$
$^{239}\text{Pu}$	$5.5 \times 10^{15}$		$2.24 \pm 0.11$	2.069	$2.26 \times 10^{-2}$	$2.08 \times 10^{-2}$
$^{240}\text{Pu}$	$(1.33 \pm 0.12) \times 10^{11}$		$2.16 \pm 0.02$	2.160	$(9.0 \pm 0.9) \times 10^2$	$8.95 \times 10^2$
$^{241}\text{Pu}$		$2.5 \times 10^{15}$		2.250		$4.94 \times 10^{-2}$
$^{242}\text{Pu}$	$(7.4 \pm 0.2) \times 10^{10}$		$2.15 \pm 0.02$	2.340	$(1.58 \pm 0.04) \times 10^3$	$1.72 \times 10^3$
$^{243}\text{Pu}$		$2 \times 10^{15}$		2.430		$6.61 \times 10^{-2}$
$^{244}\text{Pu}$	$(2.5 \pm 0.8) \times 10^{10}$		$2.30 \pm 0.19$	2.518	$(5.0 \pm 1.7) \times 10^3$	$5.46 \times 10^3$
$^{243}\text{Am}$		$1 \times 10^{15}$		2.290		$1.26 \times 10^{-1}$
$^{241}\text{Am}$	$(2.3 \pm 0.8) \times 10^{14}$			2.383		$5.69 \times 10^{-1}$
$^{242}\text{Am}$		$1 \times 10^{10}$		2.475		$1.35 \times 10^2$
$^{242\text{m}}\text{Am}$	$(9.5 \pm 3.5) \times 10^{11}$		$2.59 \pm 0.10$	2.481	$(1.5 \pm 0.6) \times 10^2$	$1.43 \times 10^2$
$^{243}\text{Am}$	$(3.3 \pm 0.3) \times 10^{13}$		$2.52 \pm 0.11$	2.566	$4.2 \pm 0.5$	4.23
$^{244}\text{Am}$		$7.9 \times 10^{13}$		2.657		1.82
$^{244\text{m}}\text{Am}$		$7.9 \times 10^{13}$		2.665		1.83
$^{240}\text{Cm}$	$1.9 \times 10^6$			2.406		$6.98 \times 10^7$
$^{241}\text{Cm}$		$1.6 \times 10^{12}$		2.500		$8.58 \times 10^1$
$^{242}\text{Cm}$	$7.2 \times 10^6$		$2.59 \pm 0.09$	2.594	$1.97 \times 10^7$	$1.97 \times 10^7$
$^{243}\text{Cm}$		$1.2 \times 10^{11}$		2.687		$1.22 \times 10^3$
$^{244}\text{Cm}$	$(1.30 \pm 0.07) \times 10^7$		$2.76 \pm 0.07$	2.780	$(1.15 \pm 0.07) \times 10^7$	$1.16 \times 10^7$
$^{245}\text{Cm}$		$4.0 \times 10^{12}$		2.872		$3.88 \times 10^1$
$^{246}\text{Cm}$	$(1.80 \pm 0.01) \times 10^7$		$3.0 \pm 0.2$	2.964	$(9.0 \pm 0.7) \times 10^6$	$8.85 \times 10^6$