

## マイナーアクチニド核データの現状

日本原子力研究所

中川 庸雄

## 1. はじめに

アクチニド核種の中で、 $^{233}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Pu}$  を除いた、いわゆる「マイナーアクチニド (MA)」核種の核データの現状について述べる。ただし、これでは核種数が多すぎるので、原子炉内での生成量が比較的多い MA 核種と、 $^{232}\text{U}$  及び  $^{236}\text{Pu}$  に限定して、データを調査した。 $^{232}\text{U}$  は、その崩壊系列上に  $^{208}\text{Tl}$  等の強いガンマ線を放出する核種があるので核燃料サイクル上重要である。 $^{236}\text{Pu}$  は  $\alpha$  崩壊して  $^{232}\text{U}$  を生成する。調査した核種は以下の核種である。

$^{232}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{236}\text{U}$ 、 $^{237}\text{U}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{238}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Np}$ 、 $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Am}$ 、 $^{242\text{m}}\text{Am}$ 、 $^{243}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{243}\text{Cm}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 、 $^{245}\text{Cm}$ 、 $^{246}\text{Cm}$

これらの核種のデータのうち、重要な断面積はデータは、核分裂断面積と中性子捕獲断面積である。さらに、炉内の存在量が多い核種では非弾性散乱断面積が、また、MA を多量に装荷し MA の消滅処理を目的とする専焼炉では、中性子スペクトルが硬くなるので (n,2n) 反応断面積も重要になろう。このほかに、核分裂あたりの放出中性子数

表1 マイナーアクチニド核データの要求精度 (%)

	$\sigma_{fis}$	$\sigma_{cap}$	$\sigma_{inel}$	$\sigma_{2n}$	$\nu$
$^{237}\text{Np}$	5	5	10	20	5
$^{238}\text{Pu}$	5	5	20	20	5
$^{242}\text{Pu}$	10	10			20
$^{241}\text{Am}$	5	5	20	20	10
$^{242}\text{Am}$	20	20			30
$^{242\text{m}}\text{Am}$	10	10			15
$^{243}\text{Am}$	5	5	20	20	10
$^{242}\text{Cm}$	10	10			20
$^{243}\text{Cm}$	10	20			30
$^{244}\text{Cm}$	10	10			20
$^{245}\text{Cm}$	10	10			30
$^{246}\text{Cm}$	10	20			30

(v) についても述べる。

MA 核データの要求精度は WRENDA<sup>1)</sup> によると表 1 の様になっている。これは、日本原子力研究所の MA 専焼炉の研究グループから出されたものである。一方、評価済核データライブラリーとしては、JENDL-3.2<sup>2)</sup>、ENDF/B-VI<sup>3)</sup>、JEF-2<sup>4)</sup>、BROND-2<sup>5)</sup> が主なものである。JENDL-3.2 は 1994 年 6 月に完成したファイルで、比較的新しい評価値を格納しているのに対して、ENDF/B-VI と JEF-2 の評価値は 1970 年代の古いデータが主である。BROND-2 の評価は新しいが、核種数が少ない。

以下では、これらの評価済データや実験データを比較し、データの現状を示す。なお、MA データの現状について、日本原子力学会誌に解説記事<sup>6, 7)</sup> が出ている。これも合わせて見ていただきたい。

非常に大まかに且つ大胆に実験データの現状を表 2 に示した。熱中性子エネルギーの断面積と分離共鳴パラメータの上限エネルギーは Mughabghab の本<sup>8)</sup> を参考にした。keV ~ MeV 領域の実験データの有無は NEA Data Bank から入手した EXFOR データを見た。○はデータがあることを、×はデータが無いことを示している。熱中性子断面積

表 2 核分裂断面積と中性子捕獲断面積の実験データの現状

	熱中性子エネルギー			keV ~ MeV	
	$\sigma_{fiss}$	$\sigma_{cap}$	共鳴パラメータ 上限エネルギー(eV)	$\sigma_{fiss}$	$\sigma_{cap}$
<sup>232</sup> U	○	○	200	○	×
<sup>234</sup> U	max	○	1500	○	×
<sup>236</sup> U	○	○	4000	○	○
<sup>237</sup> U	max	○	200	○	×
<sup>237</sup> Np	○	○	600	○	○
<sup>238</sup> Np	○	×	×	×	×
<sup>239</sup> Np	×	○	×	×	×
<sup>236</sup> Pu	○	×	×	○	×
<sup>238</sup> Pu	○	○	500	○	○
<sup>242</sup> Pu	max	○	3800	○	○
<sup>241</sup> Am	○	○	150	○	○
<sup>242</sup> Am	○	×	×	×	×
<sup>242m</sup> Am	○	○	20	○	×
<sup>243</sup> Am	○	○	250	○	○
<sup>242</sup> Cm	max	○	265	○	×
<sup>243</sup> Cm	○	○	66	○	×
<sup>244</sup> Cm	○	○	970	○	○
<sup>245</sup> Cm	○	○	60	○	×
<sup>246</sup> Cm	○	○	300	○	×

○：実験データあり、×：実験データ無し、max：最大値のみあり

の "max" は上限値だけがわかっているものである。この表から、熱中性子エネルギーから共鳴領域にかけては、 $^{238}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Np}$ 、 $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Am}$  以外は実験データがあり、評価済データも比較的信頼性が高いであろうと想像できる。keV から MeV 領域では核分裂断面積の実験データはあるが捕獲断面積は少ない。

## 2. 核分裂断面積

表2に示した様に、着目している MA 核種では核分裂断面積の実験データがある核種が多い。実験データがある場合は、評価値間の差も小さく、データの信頼性は高い。 $^{241}\text{Am}$  の例を図1に示す。分離共鳴領域では図が煩雑になるのを避けるために評価済データは平均断面積を求めて表示した。実験データが無いと、データの信頼性は極端に悪くなる。図2は $^{236}\text{Pu}$  のデータであるが、JENDLのデータを評価した時点では実験データが無かったもので、改めて実験データと比較したところ JENDL-3.2 のデータが極めて悪いものであることがわかった。

一方、実験データはあっても実験データ間に差がある場合がある。例えば、 $^{237}\text{Np}$  の数十 keV 以下が良い例である。この領域には、地下原爆を利用して測定したデータと、LINAC を用いた Plattard の測定<sup>9)</sup> とがあった。前者は後者の3倍も大きい値である。一般に地下原爆を用いた測定は信頼性が低いとされているので、従来の評価済データは、JENDL-3.1 も含めて、Plattard のデータを再現する共鳴パラメータを採用していた。ところが、最近京大炉で鉛減速スペクトロメーターを用いて測定したデータ<sup>10)</sup> は Plattard のデータよりも3~4倍も大きくなった。図3に比較を示す。その後、米国<sup>11)</sup> とロシア<sup>12)</sup> でも同様の測定がなされ、結果は京大炉の測定と一致した。図3に示した JENDL-3.2 は京大炉のデータを再現するように共鳴パラメータを修正した結果である。

図4の $^{242m}\text{Am}$  の場合は、1983年に報告された Dabbs 等<sup>13)</sup> (オークリッジ国立研究所) と1984年の Browne 等<sup>14)</sup> (ローレンスリヴァモア研究所) の値が系統的に20%程度違っている。JENDL-3.2 は Browne 等が解析した共鳴パラメータを採用したので、高いエネルギーでも Browne 等のデータを基に評価値を決めた。しかし、他の核種では Dabbs 等のデータを採用した等の矛盾がある。1987年のデータ<sup>15)</sup> は Dabbs 等のデータよりも大きい。この領域での新たな実験を期待したい。

## 3. 中性子捕獲断面積

MA の中でも特に重要な  $^{237}\text{Np}$  や  $^{241}\text{Am}$  等のデータは問題が無さそうである。その他の核種では、一般に実験データが少ないので、共鳴領域より上で評価値の差が大き

い核種が多い。図5は $^{243}\text{Cm}$ のデータである。評価済データには、熱中性子エネルギーで2倍、1 MeV 付近で10倍以上の差がある。

$^{236}\text{U}$ の捕獲断面積は、それ自体は大きな値を持たないが、原子炉内での $^{236}\text{U}$ の蓄積量が多いので、原子炉の反応率を下げる原因となり、正確なデータが要求される。図6に評価値の比較を示す。数 keV 以下では大きな差が見られない。それ以上で JEF-2 が他と比べて大きな断面積を与えるが、この領域は比較的新しいデータが JEF-2 以外の評価値と一致しており JENDI-3.2 の値が正しい。数 MeV 以上では、JENDL-3.2 は小さすぎる可能性がある。

$^{241}\text{Am}$ の捕獲断面積は、反応後に $^{242}\text{Am}$ の基底状態と準安定状態がどの程度の割合でできるかが重要なデータである。半減期16時間の基底状態は83%が $^{242}\text{Cm}$ になるのに対して半減期141年の準安定状態は、全く $^{242}\text{Cm}$ にならない。現在の所、1982年に Wisshak 等が報告した測定値が唯一のデータのようなものである。図7に基底状態を生成する断面積と全捕獲断面積の比を示す。ENDF/B-VI の評価値は熱中性子エネルギーで0.9程度、MeV 領域で0.5程度である。白の四角と黒丸は Wisshak 等の測定値と理論計算値である。評価値は20~30%程度の誤差があると見るべきであろう。

#### 4. (n,2n) 反応断面積

(n,2n) 反応は、しきいエネルギーが高いため原子炉内では捕獲断面積や核分裂断面積に比べて重要性は低い。しかし、 $^{237}\text{Np}(n,2n)$  反応は、生成核 $^{236}\text{Np}$ が $^{236}\text{Pu}$ の親核となるので重要である。しかも、 $^{236}\text{Np}$ が $^{236}\text{Pu}$ に崩壊する確率は、準安定状態が48%、基底状態は9%なので準安定状態の生成比も重要である。図8は、実験データと評価済データの比較である。測定値がそろっている14 MeV 付近は良く評価値と実験データが一致している。しかし、それ以下では差が大きくなる。原子炉内では、炉内の中性子スペクトルで重みづけした平均値が問題になる訳なので、10 MeV 以下のしきいエネルギー近傍が重要である。もう少しデータの精度を上げる必要がある。

図9の $^{238}\text{Pu}(n,2n)$  反応断面積は、MA 核種の (n,2n) 反応断面積の一般的な傾向を示している。実験データは、 $^{237}\text{Np}$  以外は全く無い。現在の評価値は JENDL-3.2 も含めて非常に簡単な蒸発模型等を用いた計算値を採用しているものが多く、差も極めて大きい。図9には Konshin による STAPRE<sup>17)</sup>を用いた計算値<sup>18)</sup>も示した。この計算は、 $^{238}\text{U}$ の実験データで調整した光学模型の変形ポテンシャルパラメータや、核分裂断面積を再現するようにした各種パラメータを用いた計算であり、従来の計算より数段高い信頼性を持っている。最後に、述べる JENDL Actinoid File ではこのような新たな計算手法を採用し、MA 核データの質を向上させる予定である。

## 5. 非弾性散乱断面積

この断面積も (n,2n) 反応断面積と同じ様な傾向にある。<sup>241</sup>Am の例を図 10 に示す。実験データは無いので、理論計算結果の調整ができず、断面積を求める際の、光学模型パラメータや、競争過程として考慮される核分裂断面積の値、励起準位の採り方等が結果に大きく影響している。JENDL-3.2 では直接過程の断面積を考慮していないので数 MeV 以上で断面積が小さすぎる傾向がある。

## 6. 核分裂あたりの中性子放出数 ( $\nu$ )

実験データが無い核種に対しては、系統式が頻繁に使われる。即発中性子数  $\nu_p$  については Howerton が 1977 年に報告した次の式<sup>19)</sup> が有名である。

$$\begin{aligned} \nu(Z,A,E) &= 2.33+0.06 [2-(-1)^{A+1-Z} - (-1)^Z] + 0.15(Z-92) + 0.02(A-235) \\ &\quad + [0.130+0.006(A-235)] \times [E-E_{th}(Z,A)] \\ E_{th}(Z,A) &= 18.6-0.36Z^2/(A+1) + 0.2[2-(-1)^{A+1-Z} - (-1)^Z] - B_n \end{aligned}$$

ここで、 $E_{th}$  は核分裂反応のしきいエネルギー、 $B_n$  は複合核 ( $A+1$ ) からの中性子分離エネルギーである。この式は 1 次のエネルギー依存性を与えるので全エネルギー領域の評価が可能である。Howerton によるとこの式の予測精度は  $\pm 5\%$  である。

遅発中性子数  $\nu_d$  は、Tuttle<sup>20)</sup>、Waldo 等<sup>21)</sup> 及び Benedetti 等<sup>22)</sup> がある。例えば Tuttle の系統式は以下のような簡単なものである。

$$\nu_d = \exp(13.81+0.1754(A_c-3Z) \times A_c/Z)$$

ここで  $A_c$  は複合核の質量数である。低エネルギーでは、問題にしている複合核そのものを、高エネルギーでは (n,nf) が主になると仮定して複合核の質量数  $-1$  を  $A_c$  として用いる。他の 2 つの系統式も良く似ておりほとんど同じ結果となる。いずれの式も予測精度は 10% 程度である。最近、England 等<sup>23)</sup> は先行核 271 核種の核分裂収率と中性子放出率を基に、いわゆる総和計算で求めた  $\nu_d$  がある。図 11 に England 等の値と Tuttle の系統式による予測値を比較して示す。

## 7. JENDL Actinoid File

上記の検討結果から、JENDL-3.2 のデータは非弾性散乱断面積や (n,2n) 反応断面積、更に測定値が十分でなかった<sup>236</sup>Pu の核分裂断面積など、問題点があることがわかつ

た。また、MA 専焼炉など、MA の存在量が多い原子炉体系を考慮する場合は、JENDL-3.2 の中の核種の数も十分とは言えない。そこで、JENDL 特殊目的ファイルの一つとして、JENDL Actinoid File を作成し、この領域の核データの改善を図ることとした。

JENDL Actinoid File にデータを格納する予定核種を表 3 に示す。全部で 89 核種あり、Th 以上の核種とアクチノイドの崩壊系列上の核種で半減期が 1 日以上のも、及びこの範囲の核種で既に JENDL-3.2 にデータがあるもの全てを含んでいる。このうち、61 核種のデータは JENDL-3.2 にあるので、今後新たに 28 核種のデータを評価する。それと同時に既存のデータの改良を行う予定である。

## 8. 終わりに

マイナーアクチノイド核種 (MA) の核データの現状を示した。原子炉内の存在量が大い比較的重要な MA に限ってデータを見た範囲では以下のことが言える。

核分裂断面積は、実験データはある核種が多く、評価値の精度も良い。しかし、評価の時点で測定値がなかった核種は、後で測定値が出てきた<sup>236</sup>Pu の様に、全く間違っただータを与えているものもある。捕獲断面積は、核分裂断面積ほど実験データに恵まれていない。特に、1 MeV 以上では、評価値の差も大きく問題がある。(n,2n) 反応断面積と非弾性散乱断面積は測定値が無く、評価値の信頼性は非常に悪い。唯一実験データがある<sup>237</sup>Np(n,2n) 反応断面積も要求精度を十分に満たしているとは言いがたい。

核分裂当たりの放出中性子数については表 1 に示した要求精度を満たしているようである。

今後、原研核データセンターは、JENDL の特殊目的ファイルの一つとして、JENDL Actinoid File を作成し、MA の数を増やすと共に問題があるデータの改良を行う予定である。

## 参考文献

- 1) (Comp. and Ed.) N.Kocherov and P.K.McLaughlin: "WRENDA 93/94 World Request List for Nuclear Data", INDC(SEC)-104/U+G (1993).
- 2) JENDL-3.2, Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision 2, Nuclear Data Center, Japan Atomic Energy Research Institute (1994).
- 3) ENDF/B-VI, Evaluated Nuclear Data File /B Version VI, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory (1992).
- 4) JEF-2, Joint Evaluated File Version 2, OECD/NEA Data Bank (1992).

- 5) BROND-2, Russian Evaluated Neutron Reaction Data Library Version-2, Obninsk (1993).  
V.N.Manokhin et al.: "BROND-2.1: Russian Evaluated Neutron Reaction Data Library", IAEA-NDS-90, Rev.7 (1993).
- 6) 中川、他：原子力誌，31, 1083 (1989).
- 7) 菊池、他：原子力誌，36, 211 (1993).
- 8) S.F.Mughabghab: "Neutron Cross Sections, Vol.1, Part B", Academic Press Inc. (1984).
- 9) S.Plattard et al.: Nucl. Sci. Eng., 61, 477 (1976).
- 10) A.Yamanaka et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 30, 863 (1993).
- 11) A.D.Carlson et al.: Proc. 8th Int. Symp. on Reactor Dosimetry, Vail, Sep. 3, 1993.
- 12) A.A.Goverdovsky et al.: "The Fission Cross section of  $^{237}\text{Np}$  by Neutrons with energies below 500 eV", P3-93-440, JINR, Bubna (1993).
- 13) J.W.T.Dabbs et al.: Nucl. Sci. Eng., 84, 1 (1983).
- 14) J.C.Browne et al.: Phys. Rev., C29, 2188 (1984).
- 15) V.F.Gerasimov et al.: Kiev Conf. 3, 84 (1987).
- 16) K.Wisshak et al.: Nucl. Sci. Eng., 81, 396 (1982).
- 17) M.Uhl and B.Strohmaier: IRK-76/10 (1976).
- 18) V.Konshin: to be published as JAERI-Research report (1995).
- 19) R.J.Howerton: Nucl. Sci. Eng., 62, 438 (1977).
- 20) R.J.Tuttle: Proc. Consultant's Meeting on Delayed Neutron Properties, Vienna, 1979, INDC(NDS)-107/G+special, p.29 (1979).
- 21) R.Waldo et al.: Phys. Rev., C23, 113 (1981).
- 22) G.Benedetti et al.: Nucl. Sci. Eng., 80, 379 (1982).
- 23) T.R.England and B.F.Rider: Proc. Specialists' Meeting on Fission Product Nuclear Data, Tokai, Japan, 25-27 May 1992, p.378 (1992).  
M.C.Brady and T.R.England: Nucl. Sci. Eng., 103, 129 (1989).

表3 JENDL Actinoid File に格納予定の核種

<sup>208</sup> Tl	×	<sup>210</sup> Pb	×	<sup>210</sup> Bi	×	<sup>210</sup> Po	
<sup>222</sup> Rn	×	<sup>223</sup> Ra	J3	<sup>224</sup> Ra	J3	<sup>225</sup> Ra	J3
<sup>226</sup> Ra	J3	<sup>228</sup> Ra	×	<sup>225</sup> Ac	J3	<sup>226</sup> Ac	J3
<sup>227</sup> Ac	J3	<sup>227</sup> Th	J3	<sup>228</sup> Th	J3	<sup>229</sup> Th	J3
<sup>230</sup> Th	J3	<sup>231</sup> Th		<sup>232</sup> Th	J3, A	<sup>233</sup> Th	J3
<sup>234</sup> Th	J3	<sup>229</sup> Pa		<sup>230</sup> Pa		<sup>231</sup> Pa	J3
<sup>232</sup> Pa	J3	<sup>233</sup> Pa	J3	<sup>230</sup> U		<sup>231</sup> U	
<sup>232</sup> U	J3	<sup>233</sup> U	J3, A	<sup>234</sup> U	J3	<sup>235</sup> U	J3, A
<sup>236</sup> U	J3	<sup>237</sup> U	J3	<sup>238</sup> U	J3, A	<sup>234</sup> Np	
<sup>235</sup> Np		<sup>236</sup> Np	J3	<sup>237</sup> Np	J3, B	<sup>238</sup> Np	J3, B
<sup>239</sup> Np	J3	<sup>236</sup> Pu	J3	<sup>237</sup> Pu		<sup>238</sup> Pu	J3, B
<sup>239</sup> Pu	J3, A	<sup>240</sup> Pu	J3, A	<sup>241</sup> Pu	J3, A	<sup>242</sup> Pu	J3, B
<sup>244</sup> Pu		<sup>246</sup> Pu		<sup>247</sup> Pu		<sup>241</sup> Am	J3, B
<sup>242</sup> Am	J3, B	<sup>242m</sup> Am	J3, B	<sup>243</sup> Am	J3, B	<sup>244</sup> Am	J3
<sup>244m</sup> Am	J3	<sup>240</sup> Cm		<sup>241</sup> Cm	J3	<sup>242</sup> Cm	J3, B
<sup>243</sup> Cm	J3, B	<sup>244</sup> Cm	J3, B	<sup>245</sup> Cm	J3, B	<sup>246</sup> Cm	J3, B
<sup>247</sup> Cm	J3	<sup>248</sup> Cm	J3	<sup>249</sup> Cm	J3	<sup>250</sup> Cm	J3
<sup>245</sup> Bk		<sup>246</sup> Bk		<sup>247</sup> Bk		<sup>248</sup> Bk	
<sup>249</sup> Bk	J3	<sup>250</sup> Bk	J3	<sup>246</sup> Cf		<sup>248</sup> Cf	
<sup>249</sup> Cf	J3	<sup>250</sup> Cf	J3	<sup>251</sup> Cf	J3	<sup>252</sup> Cf	J3
<sup>253</sup> Cf	J3	<sup>254</sup> Cf	J3	<sup>251</sup> Es		<sup>252</sup> Es	
<sup>253</sup> Es		<sup>254</sup> Es	J3	<sup>254m</sup> Es		<sup>255</sup> Es	J3
<sup>255</sup> Fm	J3						

A: 主要アクチニド、B: 重要なマイナーアクチニド、  
 J3: JENDL-3.2 にデータあり、×: 評価済データなし



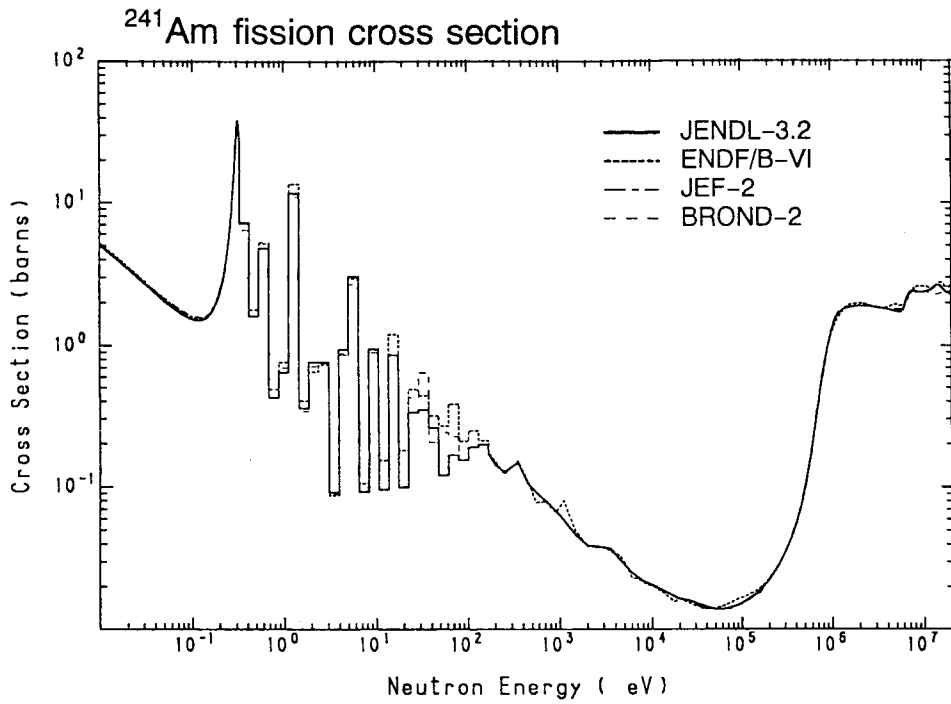


图1  $^{241}\text{Am}$  核分裂断面积

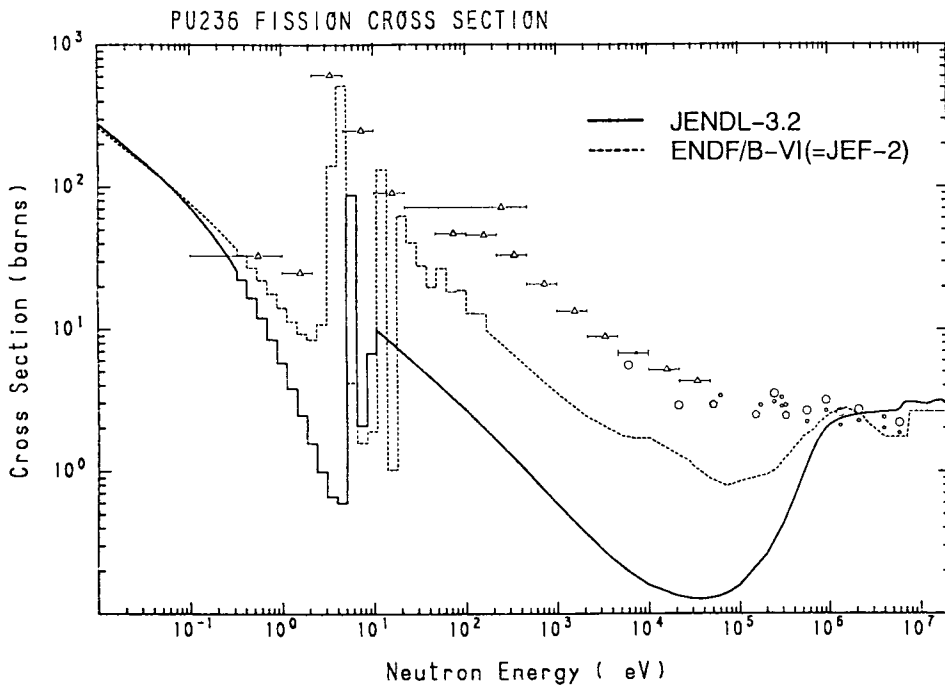


图2  $^{238}\text{Pu}$  核分裂断面积

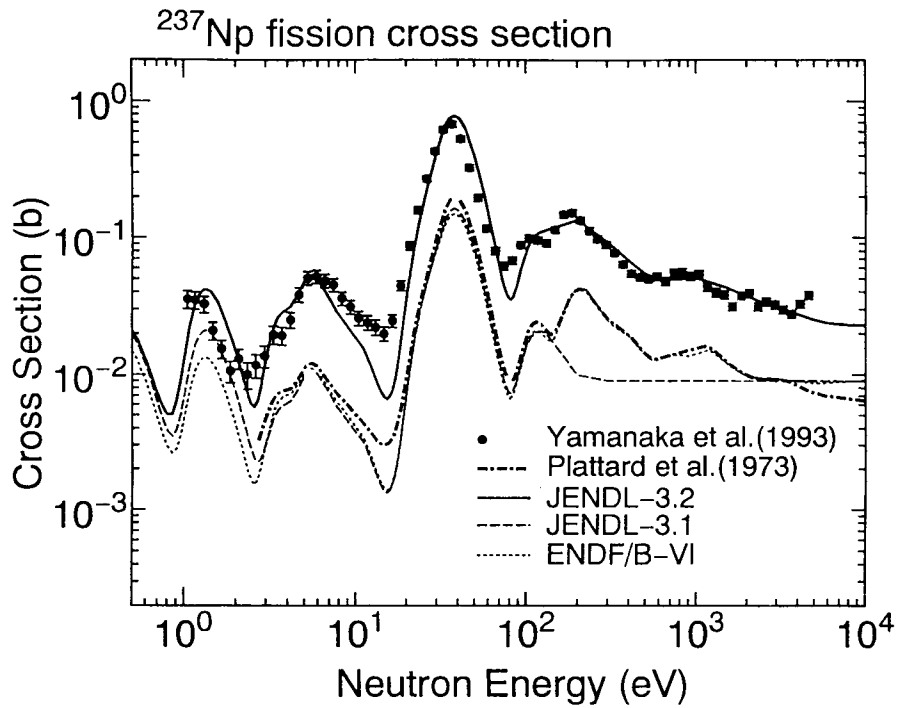


图3  $^{237}\text{Np}$  核分裂断面积

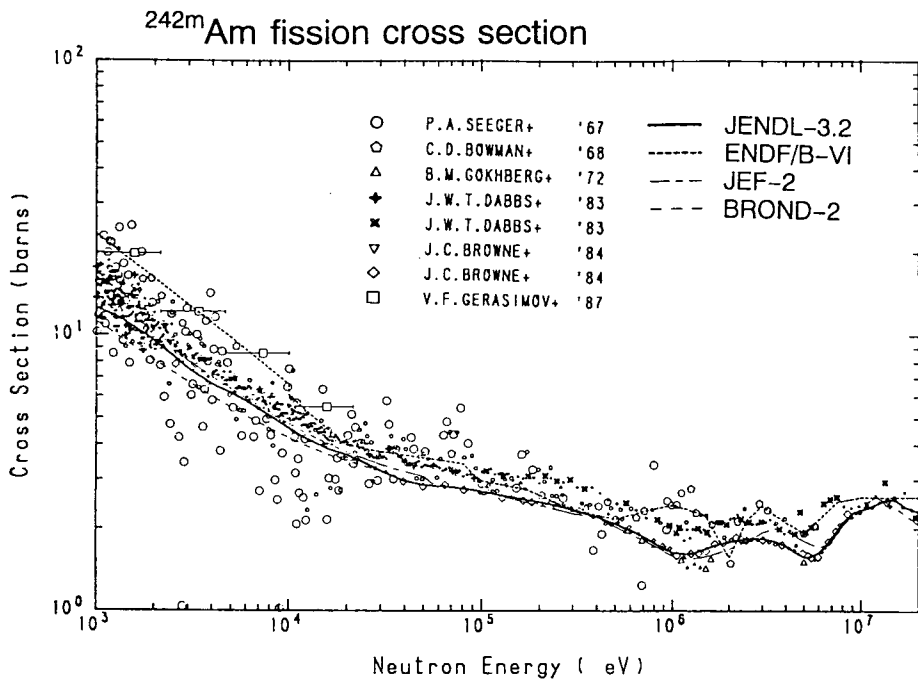


图4  $^{242\text{m}}\text{Am}$  核分裂断面积

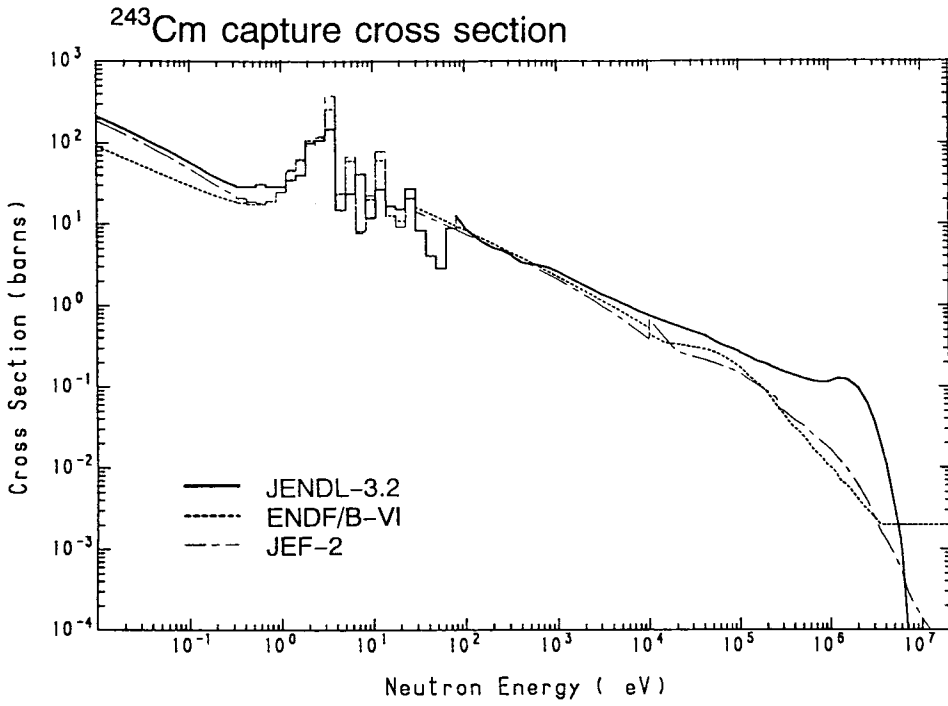


图5  $^{243}\text{Cm}$  中性子捕獲断面積

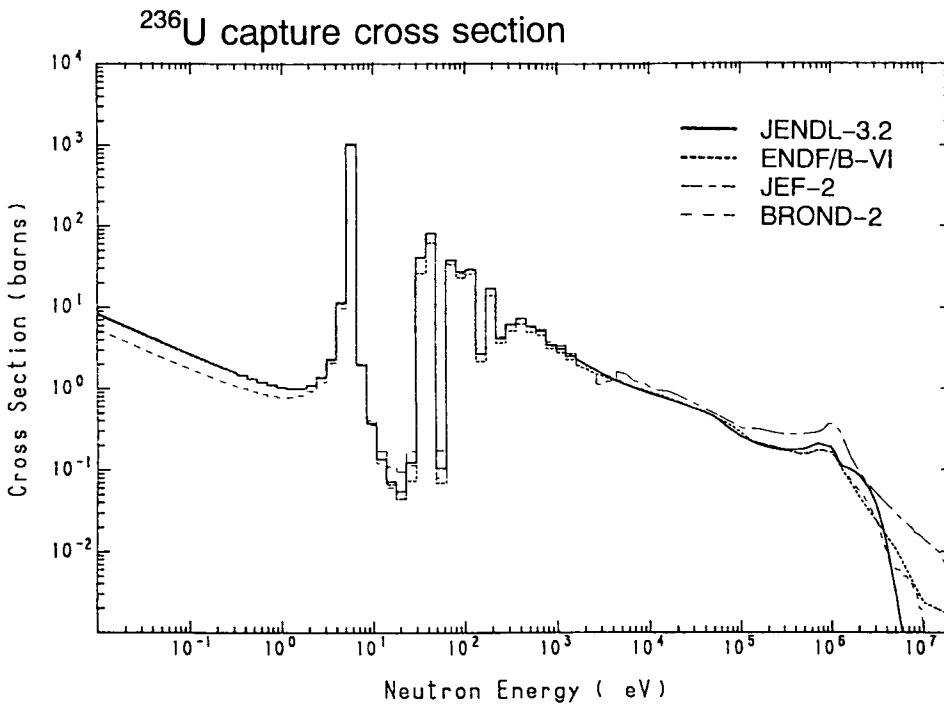


图6  $^{236}\text{U}$  中性子捕獲断面積

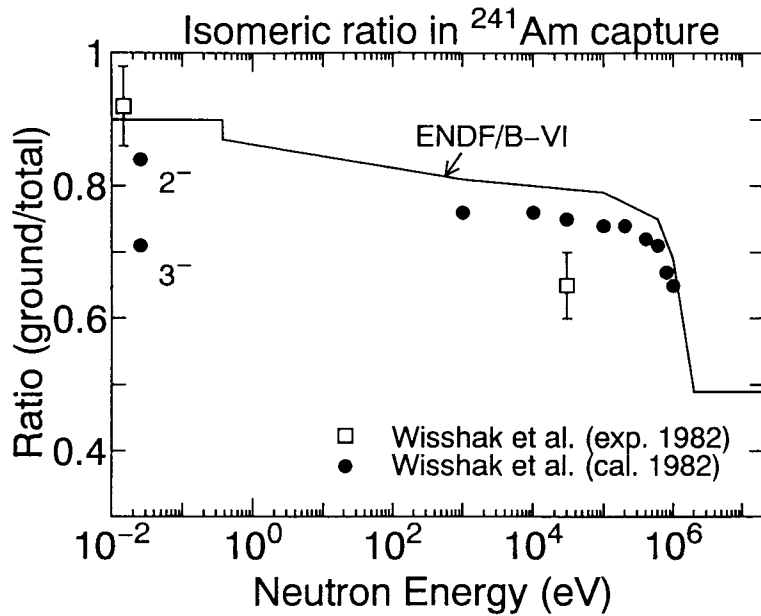


図7  $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242}\text{Am}$  の基底状態生成断面積と全捕獲断面積の比

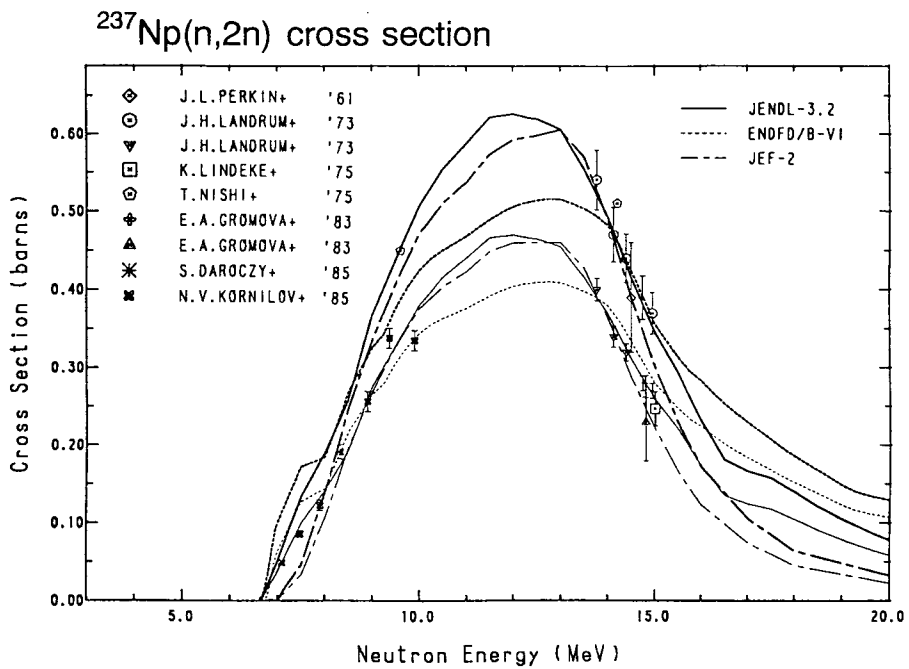


図8  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  断面積

$^{238}\text{Pu}(n,2n)$  cross section

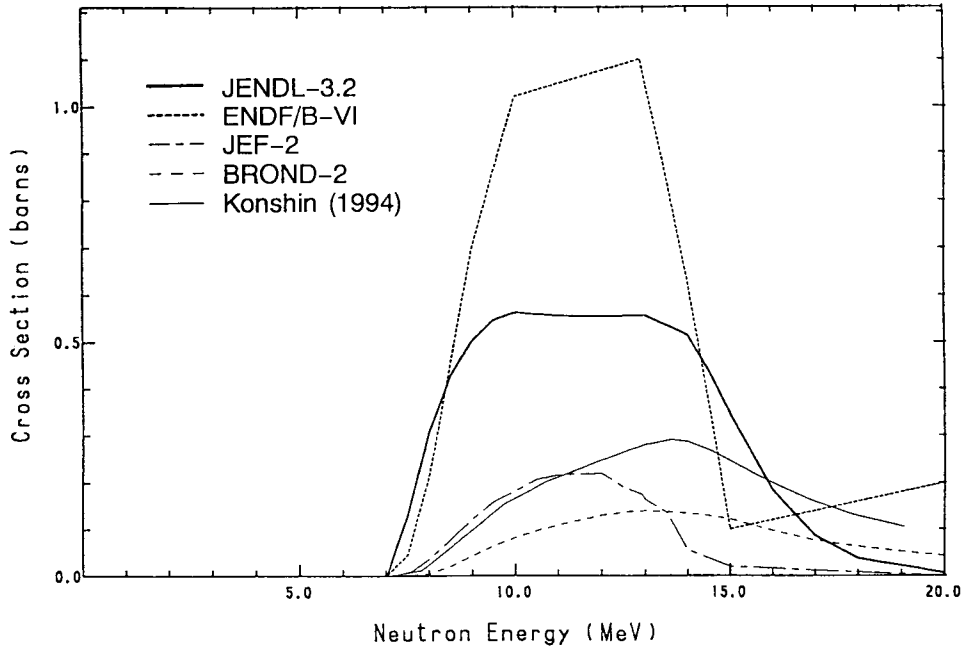


图9  $^{238}\text{Pu}(n,2n)$  断面积

$^{241}\text{Am}$  inelastic scattering

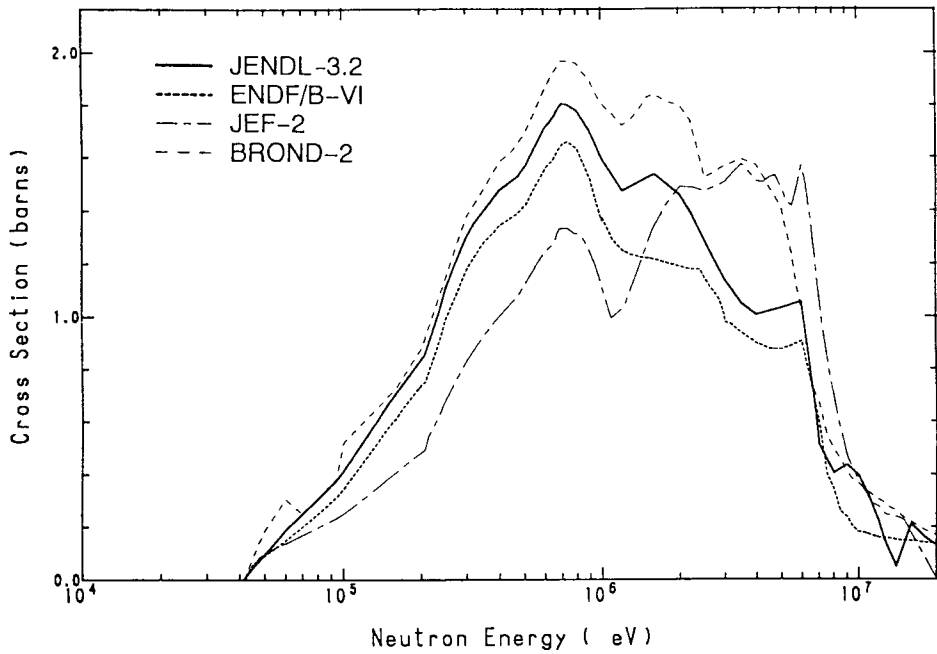


图10  $^{241}\text{Am}$  非弹性散乱断面积

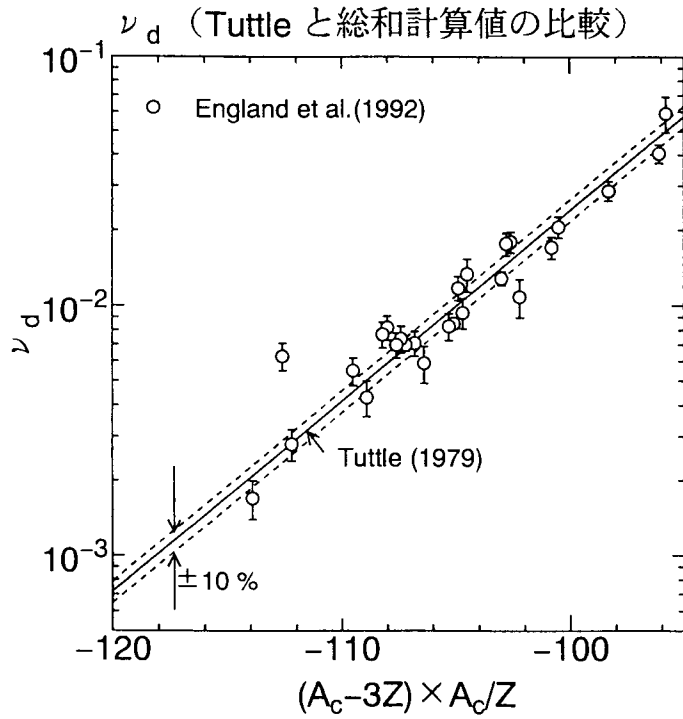


図 11 Tuttle の系統性式<sup>20)</sup>と England 等の総和計算<sup>23)</sup>の比較