

話題・解説 (IV)

ISTC プロジェクト超ウラン元素核データ測定・評価活動 — 故菊池 康之 核データセンター長の偉業を偲んで—

(株) 日立製作所 電力・電機開発本部 原子力第1部
瑞慶寛 篤

zukeran@erl.hitachi.co.jp

日本原子力研究所 原子炉工学部 核データセンター
片倉 純一

katakura@cracker.tokai.jaeri.go.jp

九州大学 工学部 応用原子核工学科
的場 優

matoba@kune2a.nucl.kyushu-u.ac.jp

本資料は、日本原子力学会平成8年秋の大会において、九州大学の的場教授から「ISTCの核データ活動は、大変貴重な成果を得ており、今後も継続してもらいたい」との要望に対し、報告者が急遽、ISTC(International Science and Technology Center)の過去の成果と今後の計画を調査し、シグマ委員会運営委員会において報告したものである¹。本会の勧告により、ここに投稿する事にした。上記委員会後に、的場教授より故菊池 康之核データセンター長が残された講演原稿²を入手しましたので、第II章3節において、可能な限り原文のまま引用して、故人の偉業を偲ぶ事にした。ISTCの過去の実績、特に核データ評価への反映に関しては、この講演記録に詳細に述べられているので、本稿の後半では、後続計画と今後必要とされる超ウラン元素核データに注目した。

I 緒言

近年の原子力全般の不況感は周知の通りであるが、先日の“中性子科学研究計画に関するワークショップ—大強度中性子源が招く21世紀の科学技術”は、活況を呈し、未来に光明を見出した感があった。このワークショップにおいて、今後核データサイドの重要性を改めて痛感した次第である。

一方、軽水炉の燃焼度を従来の2~3倍の100GWD/Tにまで延長しようとする動きがあり、種々の炉物理上の問題点の再検討が始まりつつある。このように、在来の核分裂炉および将来の加速器駆動消滅処理炉心において、益々重要になってきた。

ISTCの設立趣旨

旧ソ連の核兵器関係研究者の平和目的研究への転換・支援を目的とし、1994年に設立。

¹本報告の“ISTCプロジェクト”は、核データセンターがモニターになっている部分で、他の部署がモニターになっている部分は含まれていません。

²平成8年1月、ミニ冬の学校「中性子ポテンシャル研究の進展と関連するトピックス」

- 支援母体：日米欧
- 日本側ニーズ：OMEGA 計画
旧ソ連諸国は、日本で入手し難い良質の MA サンプルを所持し、高度な測定技術と評価手法を堅持しているため、OMEGA 計画に必要な MA 核データの評価と、同時に JENDL への反映を指向する。

そこで、ISTC の超ウラン元素核データの測定・評価の成果が大いに期待されている。

(1) 軽水炉の高燃焼度化

当然のとこながら、超ウラン元素の反応度、燃焼度への寄与が大きくなるだけでなく、燃料材料健全性評価上、これらの核データの重要性が益々大きくなる。

(2) 加速器駆動消滅処理用 MA 未臨界炉心

日本原子力研究所で現在計画中のこの炉心は、初期の段階は、ウラン燃料による基礎実験から始まるものと考えられるが、本格的なマイナー・アクチナイド (MA) 消滅段階 (2007 年頃) では、MA だけの未臨界炉心で構成される。筆者の知る限りでは、今日まで、このような炉心は世界的にも実績がない。ここでは、炉心運用上、MA の核分裂断面積の精度、動特性パラメータの完備と精度が重要にまってくるであろう。その対策の一環として、既に「高エネルギー核データの評価」作業が本格化しているのは、周知の通りである。しかし、実験データが乏しいのも事実であり、この点からも ISTC の測定・評価研究が進行しつつある事は、抜かりない先見の明と言うべきである。そこで、本報告は、これら進行中の ISTC 計画に対する追加要望として以下に述べる。

第 II は ISTC 活動の成果を概観し、第 III では、今後の計画を、第 IV は、今後予想される超ウラン元素の核データとの関連で、測定・評価への期待を述べた。時間的制約により十分な調査・検討を行うことが出来なかったため、おそらく独断と偏見に満ちていると思われる。

II ISTC における核データ活動の実績

II.1 ISTC の過去の実績

詳細な実績報告は、平成 8 年 5 月 27 日～31 日に原研東海研において開催されたワークショップの下記 Proceedings に掲載されている。

JAERI-Conf 97-001, "SELECTED PAPERS OF ISTC WORKSHOP ON NUCLEAR DATA OF MINOR ACTINIDES, May 27 ~31, 1996, JAERI, Tokai, Japan",
March 1997

本委員会の多数の方々に参加されたので、過去の実績の詳細は十分ご承知の事と思います。

一方、過去 3 年間の実績は、片倉が「核データニュース、No. 56 (1972 Feb.) p.20、マイナーアクチニド核データに関する日露ワークショップ」に詳しく報告されているので、ここでは、要約だけを以下に述べる。

- 1) 1. Evaluation of Actinide Nuclear data.
(Radiation Physics and Chemistry Problems Institute)

目的: BRONS 評価用パラメータを用いて、MA の核分裂、捕獲、散乱、 $(n, 2n)$ 、 $(n, 3n)$ 等の断面積を相互矛盾なく、評価。

第 1 年度: ^{243}Cm 、 ^{245}Cm 、 ^{246}Cm

第 2 年度: ^{241}Am 、 ^{242}Am 、 ^{243}Am

第 3 年度: ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 ^{242}Pu

- 2) 1.1 Annual Report of the Project CSI-03-95
“Evaluation of Actinide Nuclear Data”.
V.M. Maslov
- 3) 1.3 Evaluation of Secondary and Prompt Fission Neutron Spectra.
.V. Porodzinskij and E.S. Sukhovitskij
- 4) Average Resonance Parameters Evaluation for Actinide.
Y.V. Porodzinskij and E.S. Sukhovitskij
- 5) 1.4 Soft Rotator Model and ^{246}Cm Low-Lying Level Scheme.
Y.V. Porodzinskij and E.S. Sukhovitskij
- 6) 1.5 Above-threshold Structure in ^{244}Cm Neutron-induced Fission Cross Section.
V.M. Malslov
- 7) 1.6 Evaluation of Neutron Data for Americium-241.
V.M. Malslov, E.S. Sukhovitskij, Y.V. Porodzinskij, A/B. Klepatskij, and G.B. Morogovskij
- 8) 2. Measurements of Fission Neutron Spectra of the Minor Actinide Spontaneous Fission of Curium Isotopes.
V.G. Khopin Radium Institute
目的: ^{244}Cm 、 ^{246}Cm の自発核分裂即発中性子スペクトルの高精度測定 (平均温度精度 = 1 ~ 2 %)
2 年延長後: ^{240}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{243}Cm 、 ^{245}Cm の自発核分裂即発中性子スペクトルの高精度測定。

- 9) 2.1 Status of measurements of Fission Neutron Spectra of Minor Actinides.
L.Drapchinsky and B. Shiryayev
- 10) 2.2 The Statistical Model Calculation of Prompt Neutron Spectra from Spontaneous Fission of ^{244}Cm and ^{246}Cm .
B.Garasimeko
- 11) 2.3 The measurement of Prompt Neutron Spectrum in Spontaneous Fission of ^{244}Cm .
O.I. Batenkov, G.S. Boykov, L.V. Drapchinsky, M.J. Majokov and V.A. Trenkin
- 12) 3. Measurements and Analysis of the Basic Nuclear Data for Minor Actinides.
(Institute of Physics and Power Engineering)

測定項目
(1) : ^{238}Pu 、 ^{242}Am 、 $^{243,244,245,246,247,248}\text{Cm}$ の核分裂断面積測定。
(2) : ^{237}Np の核分裂断面積測定。
(3) : ^{237}Np の非弾性散乱断面積及び即発中性子スペクトルの測定。
(4) : ^{237}Np の高速中性子核分裂の遅発中性子スペクトルの測定及び 6 群定数の決定。
(5) : BRONS-2、JENDL-3、ENDF/B-VI データの比較検討及び推奨値の導出。

13) 3.1 Fission Cross Section measurements for Minor Actinides.
B. Furnov

14) 3.2 Development of Ionization Technique for Measurement of Fast neutron Induced Fission Products Yields of ^{237}Np .
A.A. Goverdovski, V.A. Khryachkov, V.V. Kelterov, V.F. Mitrofanov, Y.B. Ostanpenko, N.N. Semenova, A.N. Fomichev and L.F. Rodina

15) 3.3 Measurements of periods, Relative Abundances and Absolute Yields of Delayed neutrons from Fast neutron Induced Fission of ^{237}Np .
V. Piksaikine

16) 3.4 Measurements of ^{237}Np Secondary Neutron Spectra.
N.V. Kernilov

17) 3.5 Analysis of the Evaluated data Discrepancies for minor Actinides and Development of Improved Evaluation.

18) Appendix Summary of ISTC workshop on Nuclear Data for Minor Actinides.

II.2 成果の概要

- 1) 原子核低エネルギー準位密度の欠落部分の理論値で補足
- 2) 高精度化のため、中性子検出器の大容量化、イオンチェンバーの改良等
- 3) 核分裂収率の測定は現在測定器開発中。
- 4) Maslov 達の評価法:特徴を列挙すると、以下ようになる。
 - (1) 基本的には、前平衡過程を含む統計模型により、核分裂、非弾性散乱、捕獲、 $(n,2n)$ 、 $(n,3n)$ を同時に計算する。
 - (2) 入射に対しては、出口に対しては球形模型を用いる。
 - (3) 主要アクチニドの豊富な実験値はモデルパラメータの値や系統性の予測に活用する。
 - (4) 基底状態、サドルポイントとも、Ignatyuk のレベル密度準位公式を用いる。
 - (5) 核分裂パラメータは実験値を再現するように決める。
 - (6) 非弾性散乱レベルの missing を補正する。
 - (7) 捕獲反応の計算においては $(n,\gamma n)$ 、 $(n,\gamma f)$ の競争を考慮

II.2.1 “Soft-Rotator Model” によるエネルギー準位の予測

Cm 及び Am 核データ評価：一部終了。評価法の特徴：原子核低エネルギー準位密度の欠落部分を “Soft-Rotator Model” の理論値で補足 - Figs 1、2 参照。

因みに、“Soft-Rotator Model” の Hamiltonian は、

$$H = \frac{\hbar}{2B} \{T_\beta + \frac{1}{\beta^2} [T_\gamma + T_r]\} + \frac{\beta_0^4}{\beta^2} V(\gamma) + V(\beta) \quad (1)$$

$$T_\beta = -\frac{1}{\beta^4} \frac{\partial}{\partial \beta} (\beta^4 \frac{\partial}{\partial \beta}) \quad (2)$$

$$T_\gamma = -\frac{1}{\sin^3 \gamma} \frac{\partial}{\partial \gamma} (\sin^3 \gamma \frac{\partial}{\partial \gamma}) \quad (3)$$

$$T_r = \frac{1}{4} \sum_{\lambda=1}^3 \frac{I_\lambda^2}{\sin^2(\gamma - 2\pi\lambda/3)} \quad (4)$$

であらわれ、解は、“Soft Nucleus” が回転によって、引き伸ばされると考える Davydov-Chaban の方法で求める。従って、各回転励起状態によって平衡状態が変化する。

II.2.2 高精度測定器による ^{244}Cm と ^{246}Cm 自発核分裂スペクトルを測定

高精度化のため、中性子検出器の大容量化、イオンチェンバーの改良等を実施し、 ^{244}Cm と ^{246}Cm の自発核分裂スペクトルを測定。結果を ^{252}Cf との比、

$$R(E, T_{cm}) = \left(\frac{T_{cm}}{T_{cf}}\right)^{-3/2} \cdot \exp\left\{-E \cdot \left(\frac{1}{T_{cm}} - \frac{1}{T_{cf}}\right)\right\} \quad (5)$$

$$T_{cf} = 1.42 \text{ MeV} \quad (6)$$

で表示されている。

II.2.3 新開発測定器による ^{237}Np の遅発中性子収率の予備実験

最終的な結果はまだ出ていない。暫定的、 ^{242m}Am 、 ^{245}Cm 、 ^{247}Cm 核分裂断面積：一例 Fig. 3 参照。核分裂収率の測定は現在測定器開発中。 ^{237}Np の遅発中性子収率の測定は、1.154 MeV 入射中性子に対する Total Yield と遅発中性子割合を、遅発中性子 Family 毎に求め、他の測定値と比較。Table 1、2 参照。

II.3 アクチニド核種の評価法 - Maslov 等の方法

ベラルーシ共和国の Radiation Physics and Chemistry Problems Institute (RPCPD) はソ連時代の Konshin 達を中心にアクチニド核種の評価を行ってきており、BROND の中の殆どのアクチニドファイルは彼らの評価によっている。

Maslov 達の評価法の特徴は上で列挙したので、より詳細な概要を以下に述べる。

II.3.1 光学模型パラメータ

彼らは主要アクチニドの全断面積、弾性散乱角度分布より、以下のパラメータを得ている。

$$V_R = 49.72 - 17 \frac{(N - Z)}{A} - 0.3E (\text{MeV}) \quad (7)$$

$$r_R = 1.255 (fm), \quad a_R = 0.626 (fm) \quad (8)$$

$$W_D = 5.22 - 10 \frac{(N-Z)}{A} + 0.4E, \quad E < 10 (MeV) \quad (9)$$

$$= 9.22 - 10 \frac{(N-Z)}{A}, \quad E > 10, (MeV) \quad (10)$$

$$r_D = 1.260 (fm), \quad a_R = 0.555 (fm) \quad (11)$$

$$V_{s0} = 7.5 (MeV) \quad (12)$$

このパラメータを入射中性子チャンネルにたいしては、基底状態バンドをカップルさせ、出口チャンネルに対してはカップルなしで計算している。変形パラメータ β_2 、 β_4 に関しては、 S_0 、 S_1 を再現するように求める。

一方 JENDL-3 では、主要アクチニドはカップルチャンネル模型が利用されているが、マイナーアクチニドに関しては、殆ど ^{241}Am の全断面積で決められた球形モデルが用いられている。そのパラメータは；

$$V_R = 43.4 - 0.107E (MeV) \quad (13)$$

$$r_R = 1.282 (fm), \quad a_R = 0.60 (fm) \quad (14)$$

$$V_D = 6.95 - 0.539E^2 (MeV) \quad (15)$$

$$r_D = 1.29 (fm), \quad D = 0.5 (fm) \quad (16)$$

$$V_{s0} = 7.0 MeV \quad (17)$$

^{243}Cm の全断面積と反応断面積における両者の値を Fig. 4、5 に示す。全断面積についてもかなり異なるが、実験値がないので決め手がない。問題なのは反応断面積で、JENDL-3 の値は 10 MeV 以上で増加し、20 MeV では 3 b 以上になっている。全断面積は 10 MeV 以上で増加するのであるから、反応断面積も増加した方が合理的と思われるが、Maslov によると ^{238}U の部分断面積の実験値を解析した結果 20 MeV で 2.8 b 以上にはなり得ないとの意見である。

II.3.2 非弾性散乱レベルの補正

JENDL-3 の評価では、非弾性散乱のレベルは ENSDF 等の値をそのまま採っている。しかし、ENSDF は実験値に基づくのが原則であるので、実験にかからないレベルはミスされている場合がある。

Maslov 達は、これらのミスされているレベルを理論的に補っている。Table 3 に ^{243}Cm のレベルを示す。*印の付いたレベルが補われたものである。この核種の場合、基底状態が $\frac{5}{2}^+$ であるので、補って 0.140 MeV の $\frac{5}{2}^+$ 0.158 MeV の $\frac{7}{2}^+$ のレベル ($k = \frac{1}{2}$ band) は非常に強く励起される。Fig. 6 に ^{243}Cm の全非弾性散乱断面積を示す。JENDL-3 に比べて、1 MeV 以下で大きく励起されている。この競争で、核分裂断面積は Fig. 7 に見られるように、1 MeV 以下で大きく窪んでいる。

Maslov 達は、 ^{237}Np のような実験の乏しい odd-odd 核では、第 1 励起準位からすでにミスされており、何らかの推定による補正が必要と主張している。

II.3.3 レベル密度パラメータ

Maslov 達は、Ignatyuk の Superfluid Model を採用し、低エネルギー側で Constant Temperature Model と繋いでいる。この繋ぎのエネルギーを決めるに当たり、上述のレベルミッシングを慎重に検討している。

このモデルは、基底状態変形のみならず、核分裂障壁上でも適用される。この際、変形に依存する量としては、Shell Correction Energy、Pairing Correction Factor、Moment of Inertia のみであり、全て同一の式で計算できる。

また、even-even 核の Quasi-Particle Excitation の近傍でレベル密度が急激に変化をすることにより、断面積に見られる異常なエネルギー依存性を説明できるとしている。以下に 2 例を示す。

1) ^{235}U 核分裂断面積の 800 keV 近傍の構造

Fig. 8 に示す有名な立ち上がりは、このエネルギーが、複合核 ^{236}U の外側障壁上の 2 Quasi-Particle Excitation Energy に対応して、そこでのレベル密度が Fig. 9 の実線で示す構造を持つことで説明出来るとされている。ただし、この実線は断面積にフィットして求められたもので、Quasi-Particle State Density のモデルからの計算値では Fig. 8 の破線のような値になってしまう。

2) $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 反応断面積

Fig. 10 に示すように $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 反応断面積には、しきい値から緩やかに増加し、7.5 MeV から急激に立ち上がる傾向がある。JENDL-3 では実験値をフィットしてこの傾向を出しているが、ENDF/B-VI ではこの傾向を無視している。

Maslov 達は、7.5 MeV が残留核 ^{238}Pu の 2 Quasi-particle Excitation Energy に対応している事に着目し、Fig. 11 に見られるようなレベル密度を仮定し、Fig. 10 に示すように $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 反応断面積の構造を見事に再現している。しかし、この手法を $^{235}\text{U}(n, 2n)$ 反応断面積に適用すると、Fig. 12 に見られるように、7 MeV での勾配の切り替えがオーバーになるように思われる。

II.3.4 障壁での変形の軸対称性

最近の 3 軸非対称性まで考慮した Howard and Moeller の Shell correction method によると、外側障壁は常に軸対称の Mass-asymmetry 変形である。一方内側障壁は $N > 142$ の核種では 3 軸非対称 (γ -asymmetry) に対して、 $N < 142$ の核種では軸対称変形をしている。そして軸対称変形の内側障壁の高さは、3 軸非対称のそれに対して約 1 MeV 低い値になることが予想される。

Fig. 13 に U 同位体の内側及び外側障壁の高さを示す。実線は Howard and Moeller の計算値、黒丸は Maslov 達の実験値を再現するようにフィッティングして得られた値である。両者の傾向は良く一致している。内側障壁の高さが ^{235}U を境界に軽核で急激に減少しているのが分かる。

II.3.5 ^{232}U の低エネルギー核分裂断面積

^{232}U は他のウランの even-even 核と異なり、Fission Threshold を持たない。この特異性は、Fig. 13 から説明できる。内側障壁が軸対称になり高さが 4.2 MeV まで低くなることにより、外側障壁がサドルポイントとなり、かつ中性子結合エネルギーよりも低くなるためである。Fig. 14 に Maslov 達の計算値を JENDL-3、ENDF/B-VI と比較する。同様な傾向は ^{236}Pu にも見られる (Fig. 15)。

II.3.6 障壁上でのパラメータの値

5章で述べたように、レベル密度計算するのに必要なパラメータのうち、変形に依存するものは、Shell Correction Energy δW 、Pairing Energy Δ 、Moment of Inertia である。これらのパラメータは Table 4 に与えられているように仮定されている。

プラトール領域での核分裂断面積に勾配は、サドルポイントでのレベル密度と中性子チャンネルの残留核のレベル密度との関係で決まる。この勾配を再現するように、サドルポイントでのレベル密度を調整するために、Maslov 達は Pairing Correction Coefficient Δ をパラメータとしている。

これらの手法で、 Cm 等でもかなり実験値を再現できる (Fig. 16, 17)。しかし、 ^{247}Cm のように (Fig. 18)、実験値がばらついてうまくいかないケースもある。

II.3.7 (n,nf)、(n,2nf) 断面積

これらの断面積も同じパラメータを用いて計算されている。この際中性子放出の前平衡の寄与は、簡単な Exciton Model で計算されている。さらに (n,2n)、(n,3n) 反応も同時に計算される。

この手法で、大体の実験値を良く再現している (Fi. 19)。一方、実験値のばらついている核種では、実験の選択もできる。

また、 ^{241}Am のケース (Fig. 20) では、(n,2n) の立ち上がりが殆ど見られないが、(n,nf) での核分裂核である ^{243}Am の Fissility が大きいためであるとして実験値の構造を否定している。

II.3.8 捕獲断面積

Maslov 達は、捕獲反応の計算に際して、(n, γ n)、(n, γ f) の寄与を補正している。 ^{238}U におけるその効果を Fig. 21 に示す。この場合には、 ^{238}U のレベル密度について、2 Quasi-particle Excitation Energy 近傍の補正も施している。

II.4 成果のまとめ

Maslov 達は、アクチノイド全核種に対し、同一手法で計算を行っている。また、その手法も、すべての競争過程を同時に計算している。さらに、恐るべき事には、このような計算が実験を極めてよく再現している。この手法は公平に見て、我々の JENDL-3 の手法 (核分裂は実験値または系統性からとめ、CASTHY に入力する) よりも優れていると思われる。

現在不十分とされてきた JENDL の改訂に大いに寄与している。Table 3 に ISTC のこれまでの核種ごと測定・評価実績を一覧表にした。この表は先に示した Workshop の Proceedings から慎重な判断なしに推測したもので、不完全であると思われるが、ほぼ概観は網羅したつもりである。過去の実績をみると、部分的な測定器の改良と平行して、Table 5 に示す約 15 核種の測定・評価の実績は、ISTC のポテンシャルの高さを示すものである。

Table 5 から明らかなように、特に ^{237}Np と ^{241}Am に重点をおいている。MA 中の重要さからこの選択は妥当であるが、他の核種もこれらと同等のレベルまで引き上げるには、相当な実施期間が必要になる事が予想される。

III ISTC プロジェクト核データ活動の今後の計画

核データセンターが ISTC プロジェクトのモニターになっている核データ活動の今後の計画の概要は以下の通りである。

- 1) ニーズ： 加速器駆動消滅処理、加速器・宇宙船の遮蔽、放射線医療、核兵器用 *Pu* の平和利用 等等。
- 2) 対象核種： ^{233}U 、 ^{238}U 、 ^{237}Np 、 ^{232}Th 、 ^{239}Pu 、*Pb*、*Bi*。
- 3) 核反応： 核分裂断面積。
- 4) 加速器： GNEIS facility in Gatchina.
- 5) 測定装置： TOF Spectrometer GNEIS based on 1 GeV Proton Synchrotron of PNPI(1 ~100 MeV)。
- 6) 測定・計算法： ^{235}U との相対値を最新の測定技術と計算法で求める。
- 7) 入射中性子エネルギー： 1~200 MeV。
- 8) 目標精度： 3~10 % in the energy range 1 ~200 MeV。
- 9) 核物理的問題： 高エネルギーになると、Internal(thermal) Excitation と複合核の Compression や Rapid Rotation よる Collective Excitation の弁別が困難であり、今後物理的にも大変興味深い。
- 10) WG の設立： NEANSC Working Party on International Evaluation Cooperation。

詳細な Action Plan を以下に示す。

[Review]

- A-1 Preparation of a review on the measurements of fission cross-sections of heavy nuclei induced by proton and neutrons in the energy range 20-200 MeV.
- A-2 Review of theoretical models used for detailed description of fission process in the energy range 20-200 MeV.

[測定器の改良]

- A-3 Modernization of the existing computer codes aimed on the development of optimized calculation code and preparation of the input parameters used in calculations of fission cross-sections.
- A-4 Manufacture and calculation of fissile layers and targets.
- A-5 Manufacture and adjustment of the fission detectors.
- A-6 Modernization of the experimental set-up and softwares.
- A-7 Modernization of the pulsed neutron source of the GNEIS facility.

[測定]

- A-8 Measurements of the fission cross-sections of $\text{U}238$, $\text{Th}232$, and $\text{Np}237$ relative to $\text{U}235$.
- A-9 Measurements of the fission cross-sections of $\text{U}233$ and $\text{Pu}239$ relative to $\text{U}235$.
- A-10 Measurements of the fission cross-sections of *Bi* and *Pb* relative to $\text{U}235$.

[データ処理]

A-11 Experimental data processing.

A-12 Calculations of the proton and neutron induced fission cross-sections of Th232, U238 and Np237 in the energy range 20-200 MeV.

A-13 Calculations of the proton and neutron induced fission cross-sections of U233, U238 and Pu239 in the energy range 20-200 MeV.

A-14 Calculations of the proton and neutron induced fission cross-sections of Bi and Pb in the energy range 20-200 MeV.

[報告書作成]

A-15 Preparation and publication of the scientific articles, and quarterly, annual, and final reports.

上の資料で今後の ISTC の核データ活動の全貌は明らかであるが、全面的に 20~200 MeV までの核分裂断面積の測定・評価作業に入る。この中間エネルギーの核データ、特に OMEGA 計画の消滅処理上、核分裂断面積が不可欠であるのは十分理解できるが、他の反応断面積等は必要ないか。

IV 今後要求される核データ

前章までの実績と今後のテーマから明らかなように、旧ソ連の豊富な MA サンプルと高度な測定・評価技術が、予想通り貴重な成果をあげている。本来、この種の実験が日本で可能であって欲しいが、“マイナー”核種と呼ばれる通り、実験に使えるだけの良質のサンプルがないので、必然的に、ISTC の成果に期待せざるをえない。

一方、加速器駆動消滅処理炉心構想に見られるように、高エネルギー領域の核データが極度に乏しい現状を考慮すると、ISTC の高エネルギー核データは、不可欠な物理量である事も自明である。

ISTC の過去の実績 (Table 3) と先に示した Action List から予想される成果が今後利用出来る MA 核データの全てである。一方、「1. 緒言」で述べたように、最近の在来炉、加速器駆動消滅炉の動向を考慮すると、おそらく以下に述べるような核データが必要になるであろう。

IV.1 軽水炉の高燃焼度化

高次超ウラン元素の蓄積に伴う中性子バランスのシフトで反応度予測精度が低下する。さらに、Fig. 22 に示すように、一般に高次燃料核種ほど遅発中性子収率が小さくなるために、実効遅発中性子割合が小さくなり、制御棒、ドブラー反応度等の反応度予測精度が低下する事が考えられる。そこで、

- 1) 10 MeV 以下の MA 核分裂断面積、中性子捕獲断面の高精度化。
- 2) Actinide 核種の遅発中性子割合 (β_{eff})、遅発中性子スペクトルの測定・評価。

上記 1) は、現有 JENDL-3.2 核データファイルの検証→再評価の問題であるが、Actinide 核種の Benchmark Test はおそらく不可能であるので、在来炉の燃焼データの慎重な解析に委ねられる。2) は周知の通り、一般に測定データが乏しく、現在世界的に広く用いられている Tuttle

の評価値にもない。この β_{eff} の現在の要求精度は、臨界実験で約 3%、高速炉で約 5%、であるが、Actinide が重要な寄与を持つ事になると、精度は顕著に低下することが予想される。

IV.2 加速器駆動消滅炉

Table 5 は、ISTC の核データ活動として実施した項目で、本表の空欄になっている箇所は、おそらく本来の JENDL-3.2 でカバーしていると考えられる (JENDL-3.2 の Summary によると、カバーされている)。一方、 ^{233}U 、 ^{238}U 、 ^{237}Np 、 ^{232}Th 、 ^{239}Pu 、 Pb 、 Bi の 1~200 MeV 領域の核分裂断面積測定に関しては既に計画済みである。ただし、これらの断面積は、 ^{235}U の核分裂断面積に対する相対値であるので、 ^{235}U 自体の絶対測定値の精度がいずれ問われるであろう。

上記 7 核種の核分裂断面積測定が優先されているのは、おそらく OMEGA 計画を指向したものである。しかし、今後表記の加速器駆動未臨界体系を導入する場合は、これだけでは不十分で、下記の測定・評価データが必要になるであろう。

A) 1~200 MeV 核分裂断面積測定 (計画中) に関する追加項目。

A.0. ^{233}U 、 ^{238}U 、 ^{237}Np 、 ^{232}Th 、 ^{239}Pu 、 Pb 、 Bi .

計画済み

A.1. ^{235}U 核分裂断面積の絶対測定・評価。

上記 7 核種核分裂断面積の絶対値導出のため。

A.2. 上記 7 核種の核分裂断面積以外の断面積。

これらの核種が中性子源用 Target、又は消滅処理だけに限定した場合は、核分裂断面積だけでよいが、炉心を構成し、中性子束計算を必要とする場合は、少なくとも、JENDL-3.2 相当の多種類の断面積が必要—使用目的に依存する。

A.3. 核破碎反応生成物の測定の可能性

これは従来の核分裂生成物の収率測定に相当するが、Intranuclear Cascade によって、核分裂生成物以外に、多数の核種が放出されるであろう。この測定は、特殊な ISOL 装置を用いる必要があり、極めて困難である。しかし、現有の計算コードの検証、崩壊熱計算等々に有益である。

B) MA Subcritical System に必要な項目。

加速器駆動消滅装置は、当初はウラン系の未臨界体系を想定していると考えられるので、MA 自体の未臨界体系はかなり後になるであろう。当面は、JENDL-3.2 の上限エネルギー 20 MeV より上のエネルギー領域での断面積を完備する事が急務となる。MA に関しても、既に ISTC の成果が得られているが、上限エネルギーは最終目標値より低いようである。以下、必要と考えられる項目を列挙する。

B.1. MA を含む重核の 20 MeV 以上の核データの完備

上限エネルギーをどの程度まで拡張すべきかは、既に把握出来ているもの考えるが、Target 系に Na や水素系の物質が含まれると、中性子スペクトルが軟化するの、それ程高いエネルギーまで拡張する必要はないと思われる。この外挿値を得るには、旧ソ連の伝統的強みである、理論的・解析的手法の活用が期待できる。一方、国内では、“高エネルギー核データ評価 WG” の成果が大いに期待される。

B.2. 核分裂収率の測定

JNDC Decay Heat Lib. は、14 MeV までは想定しているが、それ以上に外挿した場合に、どの程度の誤差になるか明確でない。核破碎反応において高励起状態で核分裂が誘発される場合は、在来の低エネルギー核分裂収率とは、大きく異なる事が予想される。現在少数の実験データが得られているが、対象 MA 核種の全般を網羅していない。この質量収率は、以下に述べる遅発中性子収率との関係で不可欠である。

B.3. 即発 (ν_p)・遅発中性子収率 (ν_d) の測定

ISTC の成果として、 ^{237}Np の遅発中性子収率 (ν_d) が遅発中性子 Family ごとに測定されているが、MA のみで構成された未臨界体系の実効遅発中性子割合 β_{eff} を精度よく求めるには、他の MA 核種の値も必要である。当然のことながら同時に即発中性子収率が不可欠である。JENDL-3.2 では、Tuttle の Systematics から推定した値が随所にみられる。この方法は、Total Delayed neutron Yield は与えるが、Family Yield は得られない。

B.4. 遅発中性子スペクトルの測定

B.2. で述べた MA の質量収率が高エネルギー側に移行すると、遅発中性子先行核の収率が Saphier 達が測定・評価した値と異なってくる。この違いが β_{eff} に効いてくる。ISTC はスペクトル測定にはかなり自信があるように見えるので、適当なテーマである。

C) その他：特に ISTC に限定しない項目

C.1. 核破碎反応に伴う崩壊熱

この問題も、核破碎反応における核分裂収率と深く関係しているが、在来炉の場合と大きく違う可能性がある。核分裂生成物以外の生成物からの熱放出とあわせて検討する必要がある。

C.2. 最近、動燃の若林グループの日向野氏が、東大の弥生炉において、 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm 等の崩壊熱 E_β 、 E_γ の測定準備を行っており、世界的に広く用いられている秋山氏の ^{235}U 、 ^{239}Pu 等の測定値との Consistency Check の段階にある。この成果は、在来炉だけでなく、加速器駆動未臨界炉にも大いに活用出来るので、間接的ながら支援したい。

D) 国内高エネルギー核データ測定の支援

上に述べたように、MA サンプルがないため、測定はもっぱら ISTC で実施され、測定・評価全般を ISTC に委ねることになる。この傾向は、国内ポテンシャル保持の点からは理想的ではない。もし、MA サンプルを購入または ISTC から借用できれば、数 10 MeV までなら国内で各種の MA 核データが測定できる。国内の核データ実験者も積極的な MA サンプル入手を渴望しているのではないかと、入手可能性を含めて検討の余地がある。

V 結言

現在 ISTC の枠での協力により、3年以内で以下の核種の完全な評価済みデータ(共鳴パラメータ、放出粒子スペクトル、 ν 、 χ を含む)が入手できる。

$$\begin{array}{cccccc} ^{243}\text{Cm}, & ^{245}\text{Cm}, & ^{246}\text{Cm}, & ^{241}\text{Am}, & ^{242m}\text{Am} \\ ^{243}\text{Am}, & ^{238}\text{Np}, & ^{238}\text{Pu}, & ^{242}\text{Pu}, & ^{243}\text{Cm} \end{array}$$

それらは JENDL Actinide File に採用出来ると思われる。

しかし、その他のマイナーアクチノイド核種の評価や、さらに JENDL-3.2 以降の評価のために、我々も彼らのシステムに匹敵する評価コードシステムを開発する必要がある。

本報告をまとめるにあたり、十分な調査と慎重に検討するだけの時間的余裕がなかった点を再度弁解しておきますが、本来利用者の緊迫した要求が、即要望につながるべき類のものである。このメモが何らかの叩き台になれば幸いである。今後、諸先生方、核データ利用者諸氏及びシグマ委員会諸兄のご助言、ご指導を乞う次第です

本報告は、故菊池 康之氏の訃報に際し、氏が亡くなる直前まで精力を注がれていた ISTC 活動の継続を願って、まとめたものである。氏のご冥福をお祈りするとともに、氏の意志が未来に引き継がれことを願うものである。

Table 1 ^{237}Np group relative abundances and periods

DN Family	Half Life (s)
1	55.72
2	22.72
3	6.22
4	2.30
5	0.61
6	0.23

i	Group number						ref.
	1	2	3	4	5	6	
a_i	0.032±0.003	0.257±0.077	0.205±0.008	0.395±0.009	0.095±0.005	0.0159±0.0008	Present
T_i	55.18±0.49	22.71±0.18	5.65±0.20	2.14±0.07	0.436±0.021	0.196±0.010	values
a_i	0.040±0.005	0.254±0.008	0.206±0.008	0.372±0.011	0.106±0.010	0.0221 ^{a)}	Be[10]
T_i	54.579±0.85	21.797±0.41	5.635±0.092	2.180±0.027	0.673±0.111	—	Be[10]
a_i	0.0400	0.2162	0.1558	0.3633	0.1659	0.0589	Br ^o [11]
T_i	52.116	21.935	5.934	2.306	0.780	0.251	Br ^o [11]
a_i	0.030±0.008	0.230±0.053	0.180±0.058	0.415±0.087	0.069±0.018	0.074±0.037	Ru ^o [12]
T_i	55.452	21.865	5.251	2.113	0.672	0.277	Ru ^o [12]
a_i	0.042±0.009	0.233±0.028	0.190±0.027	0.359±0.050	0.145±0.019	0.0314±0.014	Gu[13]
T_i	55.900	22.216	5.415	2.303	0.619	0.210	Gu[13]
a_i	0.035±0.003	0.230±0.023	0.066±0.031	0.144±0.061	0.400±0.050	0.124±0.029	Wa[14]
T_i	55.011	22.652	10.615	4.987	2.113	0.428	Wa[14]

a) - calculated values.

Table 2 Total delayed neutron yield for ^{237}Np fission

Neutron energy MeV	Total yield neutron/fission	Method	Reference
1.154	0.01180±0.00072	Experimental	Present value
Fast neutrons	0.0122 ± 0.0003	Experimental	Benedetti [10]
Fast neutrons	0.01142 ± 0.00160	Experimental	Gudkov [13]
Fast neutrons	0.01068 ± 0.00098	Experimental	Waldo [14]
Fast neutrons	0.0120 ± 0.0015	Calculation	Rudstam [12]
Fast neutrons	0.0128 ± 0.0013	Calculation	England [15]
Fast neutrons	0.0114±0.0012	Calculation	Brady [11]
Fast neutrons	0.0108	Evaluation	ENDF/B-5

Table 3 Level scheme of ^{243}Cm

$E_{J\pi}$, MeV	J	π	K	band	
0.000	5/2	+	5/2	A	
0.042	7/2	+	5/2	A	
0.0874	1/2	+	1/2	B	
0.0939	9/2	+	5/2	A	
0.094	3/2	+	1/2	B	
0.133	7/2	+	7/2	C	
0.140	5/2	+	1/2	B	*
0.153	11/2	+	5/2	A	
0.158	7/2	+	1/2	B	*
0.164	9/2	+	7/2	C	
0.219	13/2	+	5/2	A	
0.228	11/2	+	7/2	C	
0.260	9/2	+	1/2	B	
0.280	11/2	+	1/2	B	*
0.300	15/2	+	5/2	A	*
0.305	5/2	-	5/2	E	*
0.310	3/2	+	3/2	D	*
0.311	13/2	+	7/2	C	*
0.320	7/2	-	5/2	E	*
0.340	5/2	+	3/2	D	*
0.354	9/2	-	5/2	E	*
0.380	13/2	+	1/2	B	*
0.390	15/2	+	7/2	C	*
0.395	11/2	-	5/2	E	*
0.400	17/2	+	5/2	A	*

*) added

Table 4 Level density parameters of fissioning nuclei and nuclei at equilibrium deformations

	inner saddle	outer saddle	neutron channel
δW , MeV	2.5 or 1.5*	0.6	LDM
Δ , MeV	$\Delta_0 + \delta$	$\Delta_0 + \delta$	Δ_0
ϵ	0.6	0.8	0.24
F_0/\hbar^2 , MeV $^{-1}$	120	200	73

* in the case of axial asymmetry

Table 5 1995年～1998年におけるISTCの核データ測定・評価実績

Nuclei	σ_t	σ_f	σ_c	σ_{in}	σ_{el}	$\sigma_{n,2n}$	$\sigma_{n,3n}$	ν_p	χ_p	ν_d	a_{di}	χ_d	Y_M	Others
^{232}Th														
^{233}U														
^{235}U														
^{238}U				○										
^{237}Np									○	○	○			Γ_{n0} D
^{238}Pu		○							○					
^{239}Pu														
^{240}Pu														
^{241}Pu														RRP URP
^{242}Pu														
^{241}Am	○	○	○	○	○	○	○	○	○					Γ_γ -dist Γ_{n0} D, ρ χ_{2nd}
^{242}Am														ρ
^{242m}Am														
^{243}Cm		○		○										
^{244}Cm		○												ρ, χ_{spf}
^{245}Cm		○	○					○						ρ
^{246}Cm		○	○											$\chi_{n,n'}$ ρ
^{247}Cm														
^{248}Cm									○					χ_{spf}

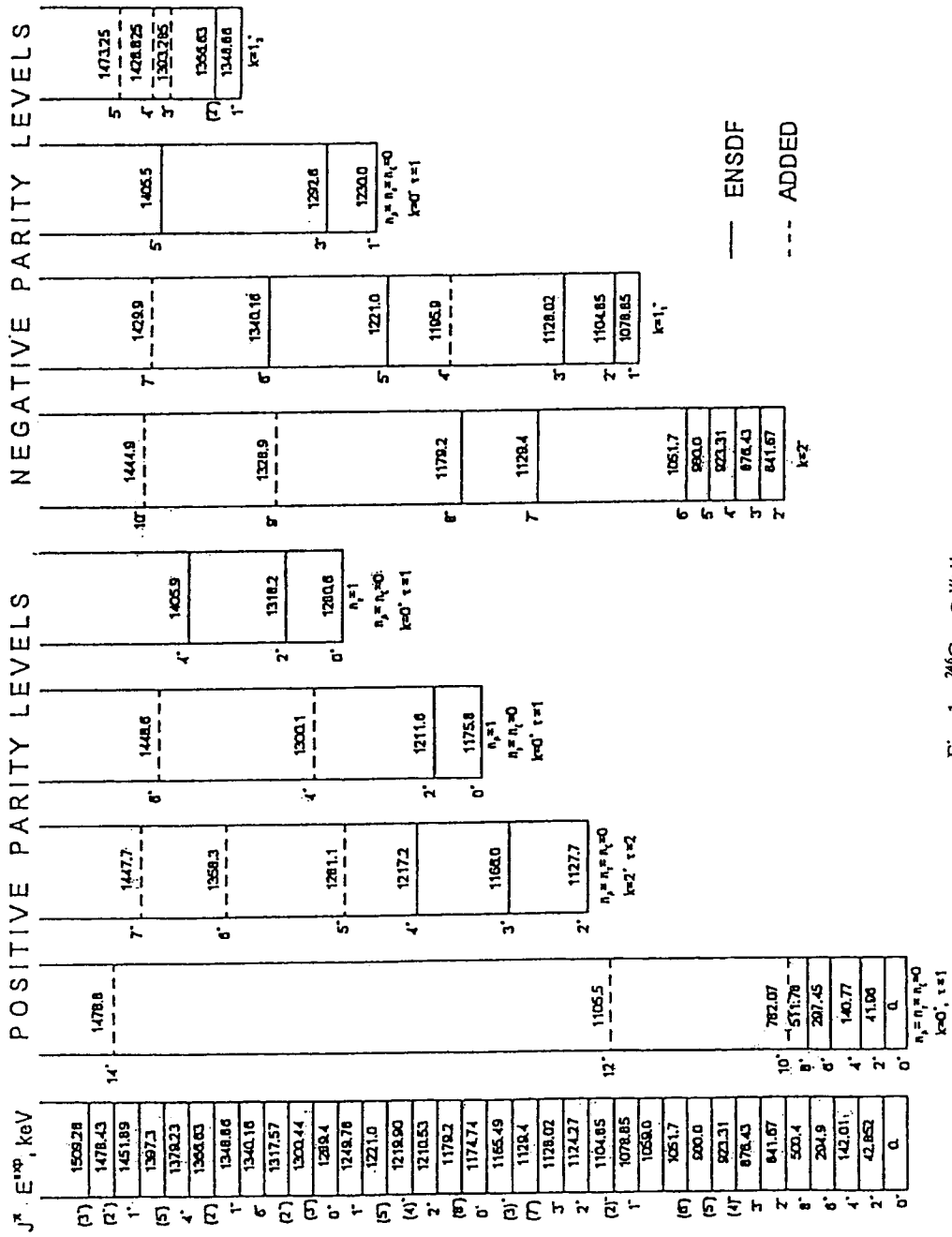


Fig. 1 ^{246}Cm の準位

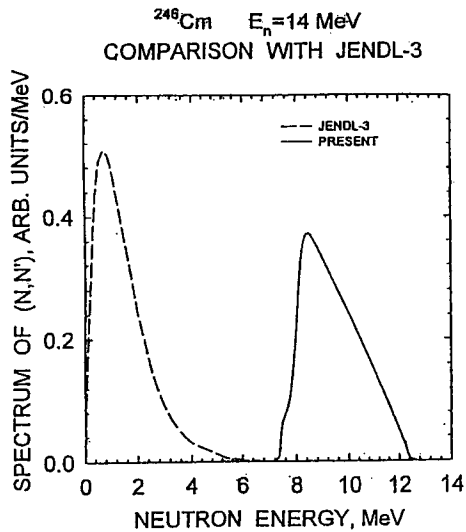


Fig. 2 ^{246}Cm の (n,n') 反応の中性子スペクトル

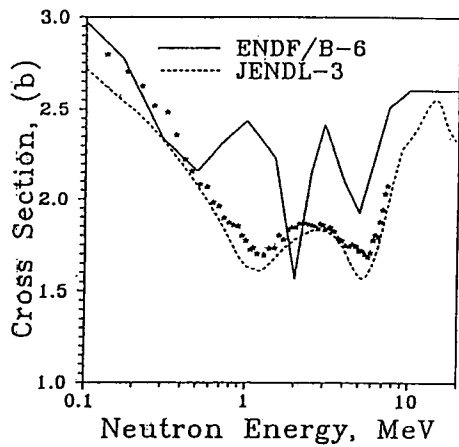


Fig. 3 ^{242m}Am fission cross section

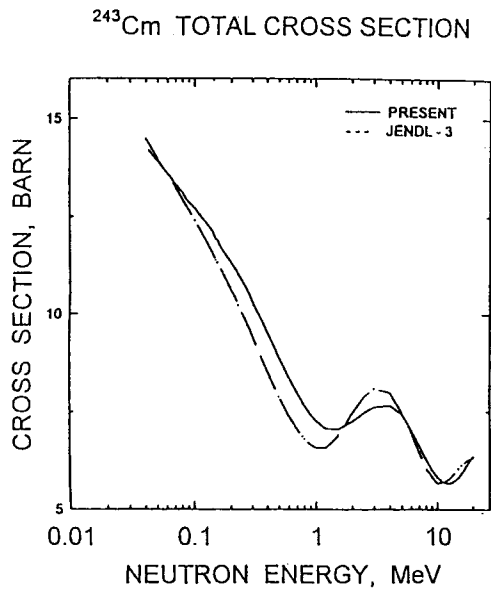


Fig. 4 Total cross section of ^{243}Cm

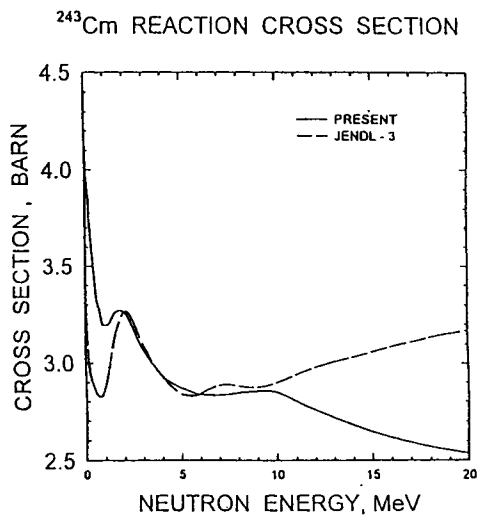


Fig. 5 Reaction cross section of ^{243}Cm

^{243}Cm TOTAL INELASTIC CROSS SECTION

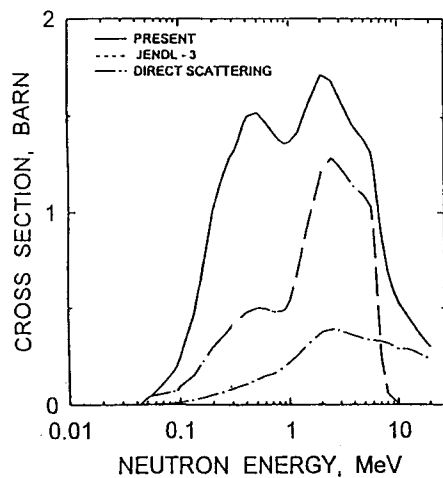


Fig. 6 Total inelastic scattering cross section of ^{243}Cm

^{243}Cm FISSION CROSS SECTION

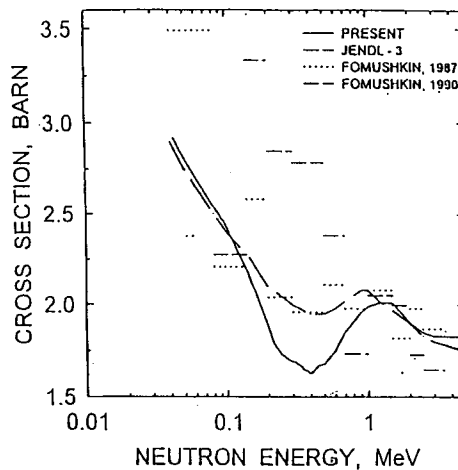


Fig. 7 Fission cross section of ^{243}Cm

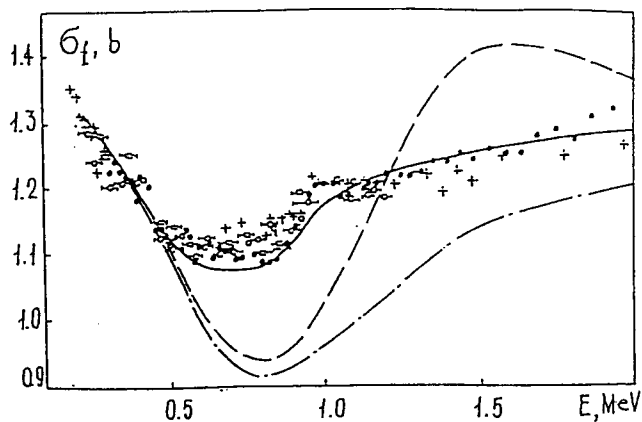


Fig. 8 Neutron-induced fission cross section for ^{235}U

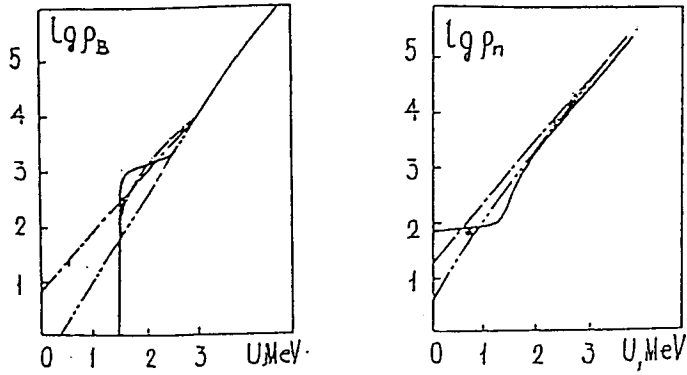


Fig. 9 Level density for outer ^{238}U saddle

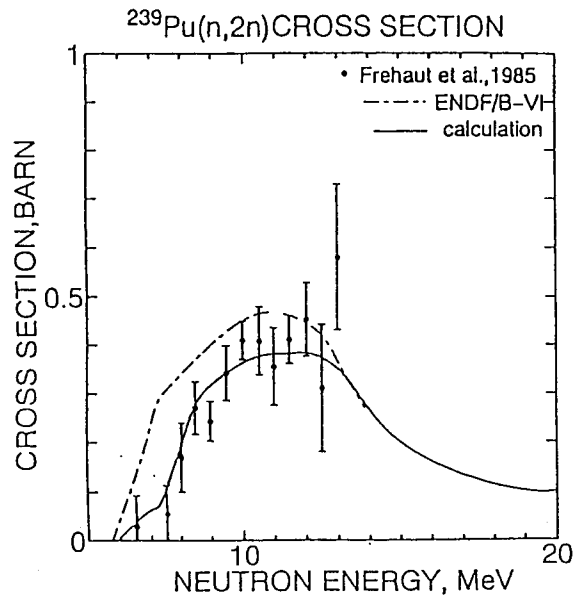


Fig. 10 $(n,2n)$ cross section of ^{239}Pu

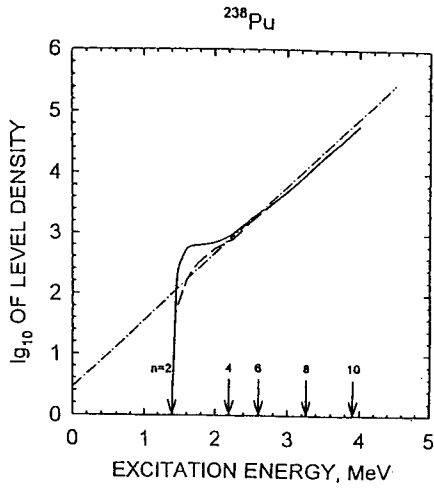


Fig. 11 Level density of ^{238}Pu

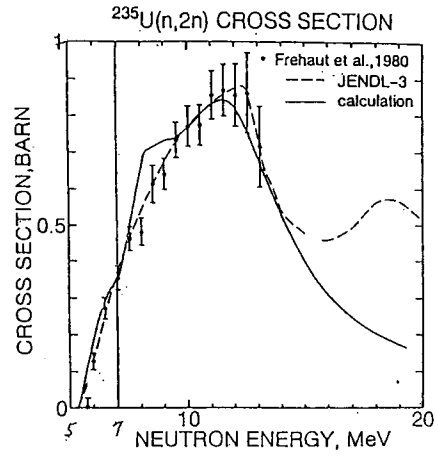


Fig. 12 $(n,2n)$ cross section of ^{235}U

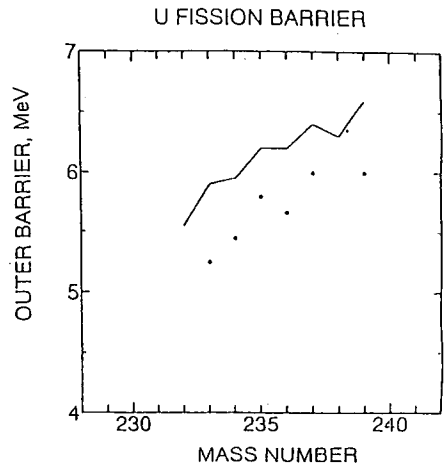
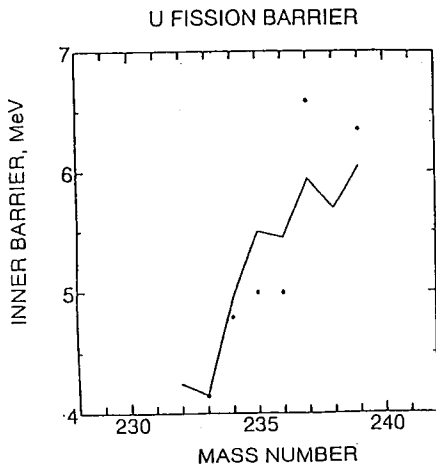


Fig. 13 Inner and outer fission barriers of U isotopes

^{232}U FISSION CROSS SECTION

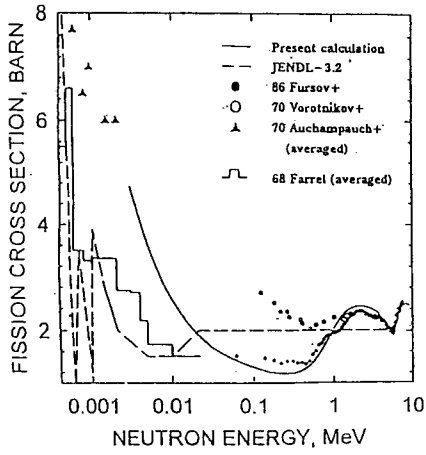


Fig. 14 Fission cross section of ^{232}U

^{236}Pu FISSION CROSS SECTION

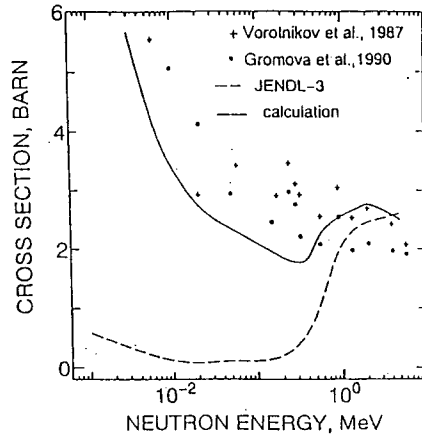


Fig. 15 Fission cross section of ^{236}Pu

^{242}Cm FISSION CROSS SECTION

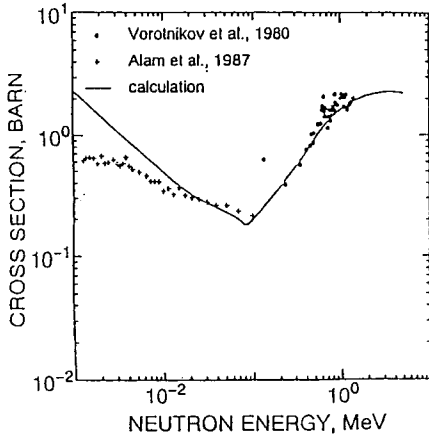


Fig. 16 Fission cross section of ^{242}Cm

^{248}Cm FISSION CROSS SECTION

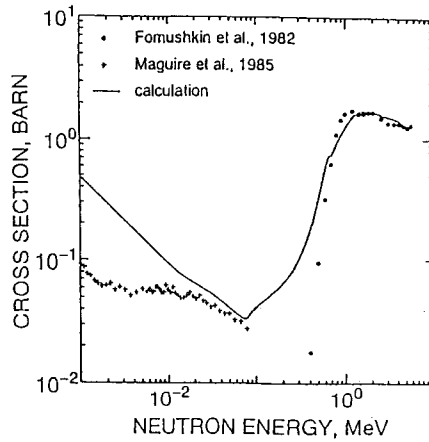


Fig. 17 Fission cross section of ^{248}Cm

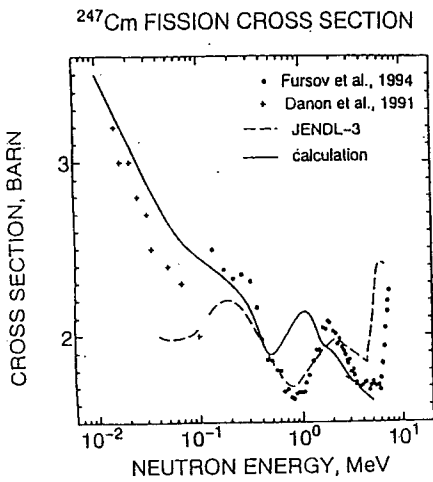


Fig. 18 Fission cross section of ^{247}Cm

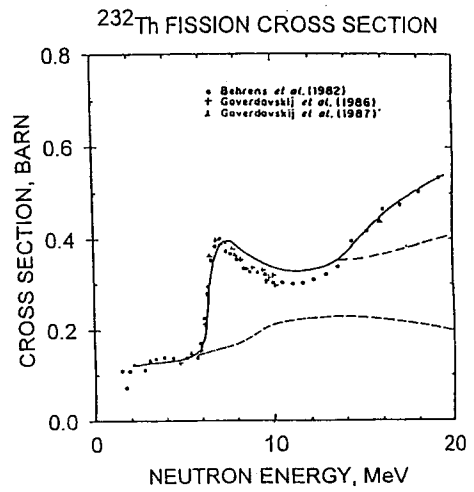


Fig. 19 Fission cross section of ^{232}Th

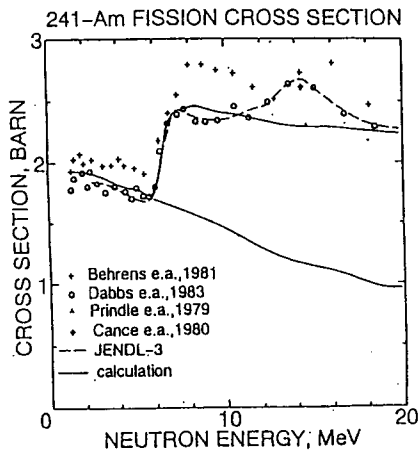


Fig. 20 Fission cross section of ^{241}Am

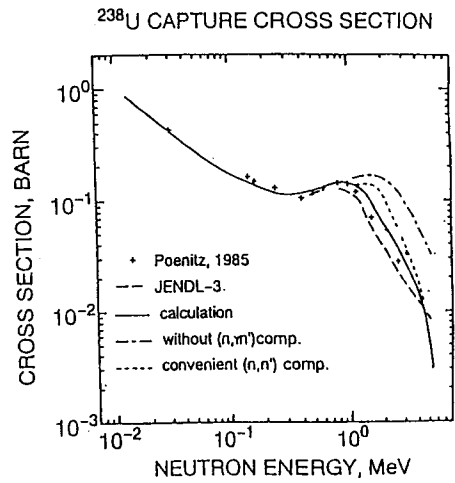


Fig. 21 Capture cross section of ^{238}U

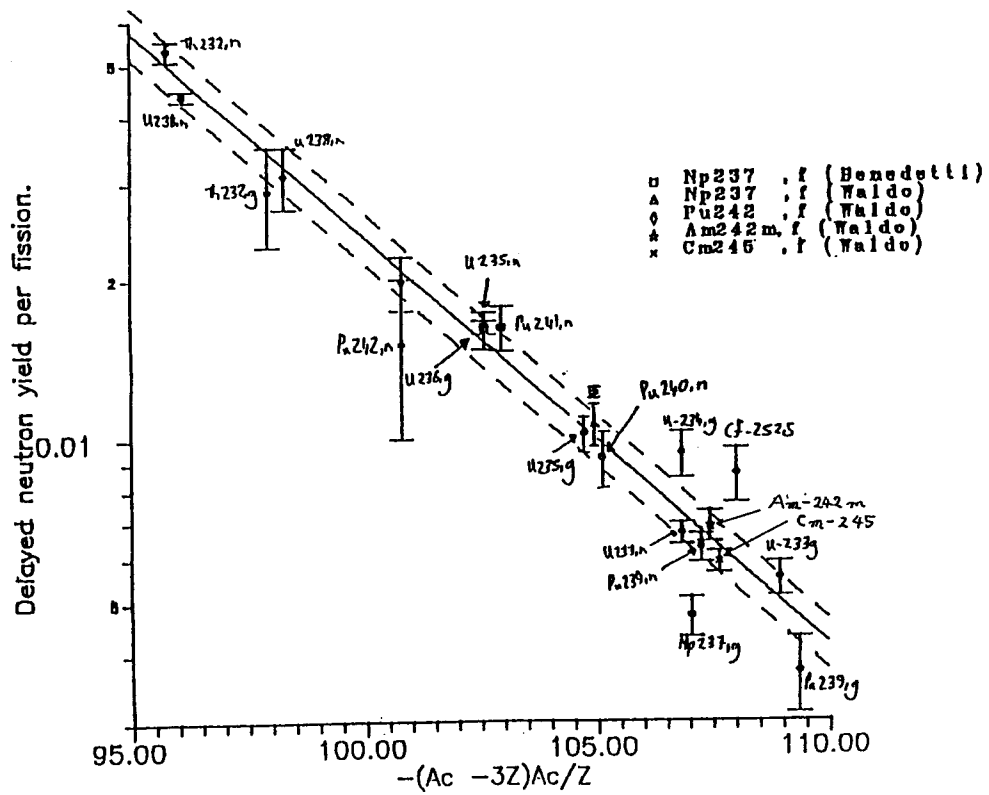


Fig. 22 Results from Tuttle 1979 evaluation and new data