

長寿命 FP および MA の中性子断面積データの現状

東京工業大学原子炉工学研究所

井頭 政之

iga@nr.titech.ac.jp

1. はじめに

近年、原子炉で生成される長寿命核分裂生成物 (LLFP) およびマイナー・アクチニド (MA) の核変換処理研究が盛んに行われている。当然のことであるが、研究対象の核変換処理システムの性能は、LLFP および MA の中性子核反応断面積の値に直接依存する。従って、性能評価結果の信頼性も、用いた断面積の精度に直接依存する。即ち、核変換処理研究においては、LLFP および MA の中性子断面積の精度が非常に重要である。特に、核変換を引き起こす(n, γ)、(n,f)および(n,2n)反応断面積の精度が重要である。また、(n,n')反応は核変換を引き起こさないが、中性子の減速を引き起こし、システム内の中性子スペクトルに影響するので重要である。

核変換処理研究等に用いられる代表的な核データ・ライブラリとしては、日本の JENDL-3.2 および米国の ENDF/B-VI がある。従って、JENDL-3.2 あるいは ENDF/B-VI に格納されている LLFP および MA の中性子断面積の精度を評価することは、核変換処理研究にとって非常に重要である。

本研究においては、後述の LLFP および MA の中性子核反応断面積に関して、評価済み核データおよび実験データの調査、評価方法および実験方法の検討を通して、評価済み核データの精度評価を行った。

2. 調査対象核種および反応

核分裂生成物の累積収率を Y (%), 半減期を T (y) とすると、

$$\textcircled{1} T > 1$$

$$\textcircled{2} Y/T > 1.0e-10 \quad (e-10 \text{ は } \times 10^{-10} \text{ を意味する})$$

の 2 条件を満たす FP は、Pu-239 の高速中性子核分裂の場合には 29 核種である。ここで、②の条件は、100 万 KWe 級の原子炉 1 基を 1 年間連続運転した場合に、約 $1.0e8$ Bq (数 mCi) 以上の累積収率があることを意味する。但し、原子炉内での中性子吸収による核変換を考えていない。この 29 核種を半減期によって分類すると、

(1) $T=1\sim 10$ の核種：10 核種

Ru-106, Rh-102, Cd-109, Sb-125, Cs-134, Pm-146, Pm-147, Eu-154, Eu-155,
Tm-171

(2) $T=10\sim 100$ の核種：8 核種

Kr-85, Sr-90, Nb-93m, Cd-113m, Sn-121m, Cs-137, Sm-151, Eu-152

(3) $T=100\sim 10,000$ の核種：3 核種

Ag-108m, Tb-158, Ho-166m

(4) $T > 10,000$ の核種：8 核種

Se-79, Zr-93, Nb-94, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-135

となる。LLFP については、この 29 核種を調査対象核種とした。なお、(3)の 3 核種および(4)の Nb-94 の Y/T 値は $1.0e-10$ に極めて近く、これらを除くと、 $T>100$ の核種は、Se-79, Zr-93, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-135 の 7 核種となる。

MA については代表的な、Np-237, Am-241, Am-243, Cm-243, Cm-244, Cm-245 の 6 核種を調査対象核種とした。

調査対象の反応としては、LLFP と MA に共通な(n, γ)、(n,2n)、(n,n')反応を取り上げ、更に MA に対しては(n,f)反応を加えた。

尚、MA については、OECD/NEA/WPEC-8 (コーディネータ：中川庸雄、高野秀機、モニター：長谷川明)で同様な調査研究が成されており報告書 (Present Status of Minor Actinide Data) が昨年出版されているので、本稿では FP を中心に調査結果を述べる。

3. 結果

JENDL-3.2 および ENDF/B-VI に格納されているデータを調査したところ、LLFP については、

- (1) $T<10,000$ の核種の 10 核種 (Rh-102, Cd-109, Pm-146, Tm-171, Nb-93m, Cd-113m, Sn-121m, Ag-108m, Tb-158, Ho-166m) については全くデータが無い、
 - (2) $T>10,000$ の核種の 2 核種 (Se-79, Sn-126) については、ENDF/B-VI にはデータが格納されていないが JENDL-3.2 にはデータが格納されている、
- ことが分かった。(1)の 10 核種の特徴は、meta-stable 核種および累積収率が非常に小さい ($5.0e-6$ 以下) 核種である。

一般に、これまでの評価済み核データ・ライブラリには、meta-stable 核のデータは格納されていない。また、meta-stable 核については、(Am-242m 等の特別な場合を除いて) 測定用試料を用意することが困難に近いので、実験データも皆無である。

評価済みデータおよび実験データの全く無い(1)の 10 核種については、当然のことながら、データの精度評価を行うことができない。理論計算による断面積評価は可能なので、これらの核種についての断面積評価が早急に行われることが望まれる。

尚、MA については対象核種全てについてデータが JENDL-3.2 および ENDF/B-VI に格納されている。

図 1 に、JENDL-3.2 に格納されている Sn-126 の捕獲断面積を示す。Sn-126 の場合、測定データは皆無である。熱中性子捕獲断面積を付近の核の断面積の系統性から評価し、2keV まで $1/v$ 則で外挿している。2keV～数 MeV では計算コード CASTHY を用いた統

計模型計算を行っている。計算結果は、系統性から評価した値 (5mb @ 300keV) に規格化している。10MeV 以上は、直接・準直接捕獲反応を考慮し、Benzi and Reffo の方法で評価している。実験データが皆無の核に対する正統的な評価方法である。しかし、熱中性子捕獲断面積は、近くの (正および負エネルギーの) 共鳴の影響を強く受ける。即ち、核の個性が強く反映されている。従って、熱中性子捕獲断面積の系統性には (ファクターからオーダーにも及ぶ) 大きな不確かさが存在する。keV 中性子捕獲断面積の系統性の不確かさはファクター 2 以内であろう。直接・準直接捕獲反応断面積には核の個性があまり現れないので、Benzi and Reffo の方法の不確かさは数 10% 程度であろう。

図 2 には Cs-135 の捕獲断面積を示してある。JENDL-3.2 の 0.1keV 以上の評価方法は、上記の Sn-126 の場合と同様である。図中の最近の 30keV における測定データは、JENDL-3.2 の評価を強く支持している。熱中性子捕獲断面積については古い測定データを採用しているが、最近の測定データもこの採用を支持している。Cs-135 の捕獲断面積評価は大きく成功した例である。

図 3 には I-129 の捕獲断面積を示してある。JENDL-3.2 および ENDF/B-VI の評価では、熱中性子捕獲断面積として、過去の測定値の内、大きい方の 27b を採用している。図には示していないが、最近のサイクル機構での測定結果は $30.3 \pm 1.2b$ であり、この選択を支持している。共鳴領域および keV 領域ではオークリッジの Macklin の測定しか無く、JENDL-3.2 では全面的に Macklin の測定値を採用している。しかし、Macklin が用いた I-129 試料には不純物がかなり含まれており、不純物に対する種々の補正を行って結果を導出している。従って、彼の測定結果の良否を確かめるため、新しい測定が早急に望まれる。尚、14MeV における最近の測定結果は 10mb 以上と大きい。これは試料照射場におけるバックグラウンド熱中性子による I-129 試料の放射化量を過小評価したものと考えられる。

LLFP に対する (n,2n) および (n,n') 反応断面積の測定データは、

- (1) Tc-99 と I-129 に対する 14MeV 付近の (n,2n) 断面積、
- (2) Tc-99 に対する 1.5MeV および 14MeV 付近の (n,n') 断面積、

のみしか存在しない。これらの断面積の評価は、計算コード PEGASUS を用いた前平衡・多段階蒸発モデルによる計算で行っている。Tc-99 および I-129 の (n,2n) 反応については 14MeV 付近の測定データに規格化している。この様な状況なので、評価値の不確かさはかなり大きいと考えられる。

以上の様に、LLFP および MA に対する JENDL-3.2 の評価方法は主に理論計算であり、比較的精度の良い実験値がある場合には、計算結果を実験値で規格化している。但し、理論計算に用いたパラメータは安定核領域で得た系統性から求めたものであり、不安定核領域への適用性には疑問がある。しかし、実験データの非常に乏しい現状においては、他に良い評価方法があるとも考えられない。精度の良い評価の基盤は精度良い実験データである。LLFP および MA の評価済み核データの精度を高めるためには、精度良い実

験データの蓄積が必要不可欠である。

最後に、調査した LLFP および MA について、JENDL-3.2 に格納されているデータの精度評価を行った。その結果を表 1 に示す。今後、測定が行われ、評価値の精度が向上することに期待して、少し辛目の精度評価となっている。表中の A は±10%以内、B は±10~30%、C は±30~50%、D は±50~100%、の精度を示す。A は僅かで、酷い状態であるが、これは測定データの非常に乏しい LLFP および MA に対する結果であり、普通の核種に対する評価値の精度で無いことを断っておく。

表 1 評価済み中性子核断面積データの精度

Isotope	Fission		(n,γ)		(n,2n)	Inelastic
	熱領域	keV 領域	熱領域	keV 領域		
Se-79			D	D	D	D
Zr-93			C	C	D	D
Tc-99			A	B	C	D
Pd-107			C	C	D	D
Sn-126			D	D	D	D
I-129			A	C	C	D
Cs-135			A	C	D	D
.....						
Ru-106			C	D	D	D
Sb-125			D	D	D	D
Cs-134			C	D	D	D
Pm-147			C	D	D	D
Eu-154			C	D	D	D
Eu-155			A	B	D	D
Kr-85			C	D	D	D
Sr-90			A	D	D	D
Cs-137			A	D	D	D
Sm-151			B	D	D	D
Eu-152			C	D	D	D
Nb-94			B	D	D	D
.....						
Np-237	B	C	A	A	B	B
Am-241	A	B	C	B	B	B
Am-243	C	B	A	B	C	C
Cm-243	A	B	C	C	D	D
Cm-244	A	C	B	C	C	C
Cm-245	A	B	A	C	C	C

A : ±10%以内, B : ±10~30%, C : ±30~50%, D : ±50~100%

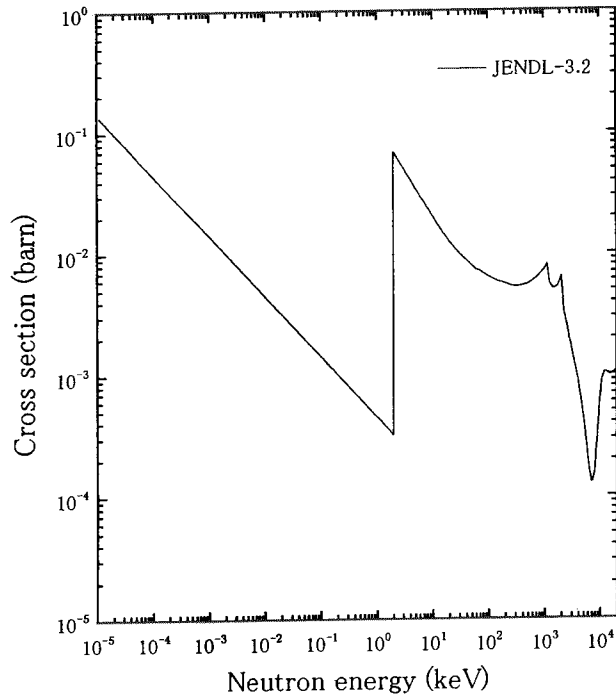


図1 Sn-126 の中性子捕獲反応断面積

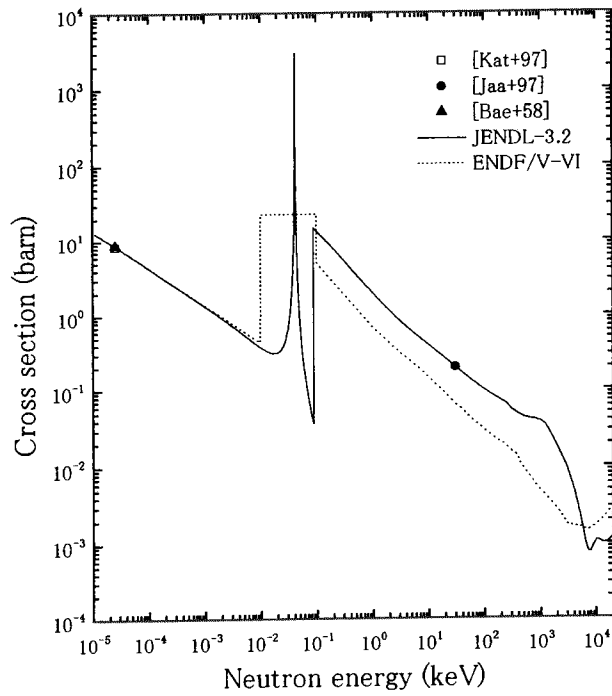


図2 Cs-135 の中性子捕獲反応断面積

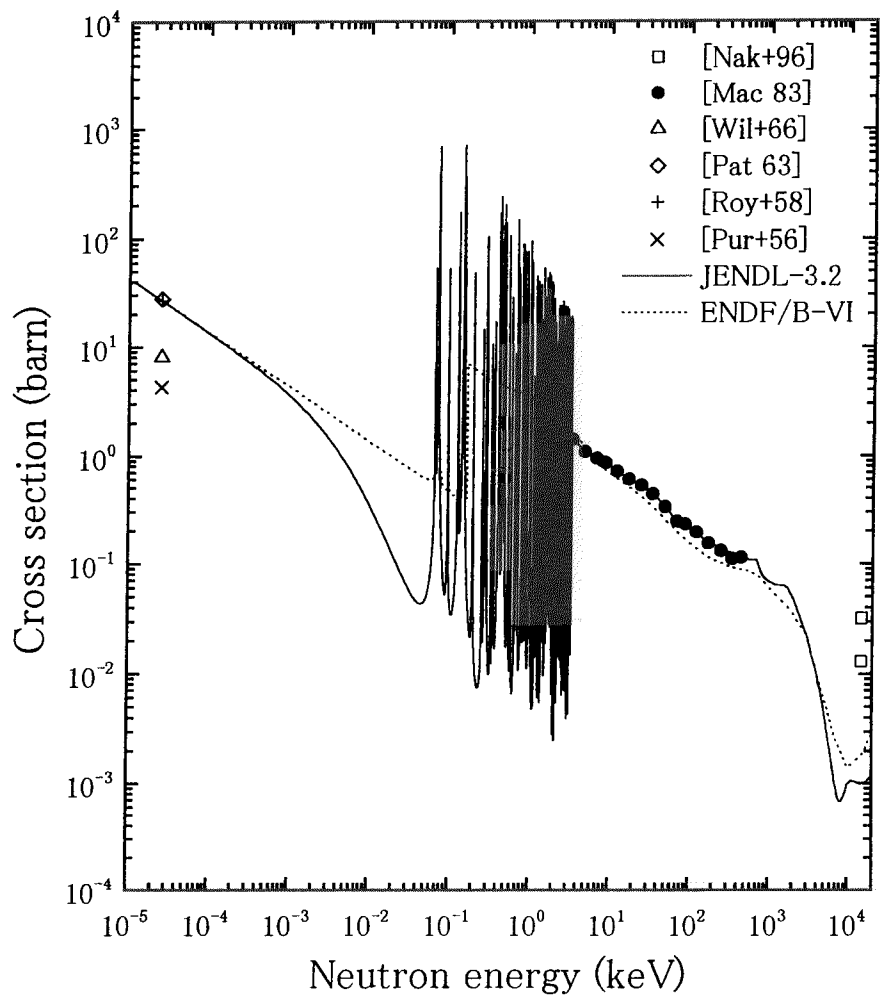


図3 I-129 の中性子捕獲反応断面積