

核燃料サイクル用核データ

Current Status of Nuclear Data for Nuclear Fuel Cycle

核燃料サイクル開発機構
原田 秀郎
harada@tokai.jnc.go.jp

1. はじめに

エネルギーの長期的確保および核廃棄物量の低減は21世紀の最重要課題の一つである。それを可能とする U, Pu の本格的な利用に向けて、U, Pu, MA (マイナーアクチニド) の高燃焼挙動評価、革新的原子炉の核特性評価、長寿命核分裂生成核種 (LLFP) の生成・変換評価等が重要である。近年、シミュレーション技術の進歩で原子炉のように複雑な体系の燃焼、臨界計算等が可能となった。このような微視的な評価が可能となれば、U, Pu の本格的な利用に向けた核燃料サイクルシステムの合理的な検討・設計に役立つものと期待される。しかし、計算の入力データとなる現状の核データ精度は誤差 100%に及ぶものがあり極めて不備である。これは、上記の解析・評価において U, Pu, MA の核データがきわめて重要であるにも関わらず、特に中性子捕獲断面積について 1980 年以降測定データがほとんどないためである。放射性核分裂生成核種については、さらに精度が悪い。このため、燃料の燃焼挙動、核分裂生成核種の核変換特性、および原子炉の核的設計を微分核データに基づくシミュレーションによって、精度良く評価できない状況にある。本報告では、これら重要核データの現状を微分実験データに溯りレビューし、今後の微分核データ整備の必要性について議論する。

2. 主要核データの現状

微分核データの現状を概観するには、横軸に測定年代、縦軸に核断面積の測定値をプロットした図が便利である。U, Pu, MA 及び LLFP の代表例について、以下に現状を示したい。重要な核データの種類は多くあるが、1980 年以降の測定データがきわめて少ない中性子捕獲断面積に限ることとする。さらに、熱中性子領域の中性子捕獲断面積である熱中性子捕獲断面積と共鳴積分値に話を限ることとする。高速中性子に対する中性子捕獲断面積やそのエネルギー依存性データも非常に重要であるが、これらの測定は、熱中性子領域の測定よりもさらに難しい。このため熱中性子捕獲断面積が、エネルギー依存性データの規格化に用いられることもしばしばある。よって、エネルギー依存性データの現状は、熱中性子領域のそれに比べてさらに厳しい状況にあると言える。なお、微分核データは、2002 年 9 月の段階で EXFOR ライブラリーに掲載されているものを参照した。

2.1 U の核データについて

Fig.1 に臨界評価で最も重要な核種の 1 つである U-235 の熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分値を測定値の報告年の関数としてそれぞれ示す。

熱中性子捕獲断面積については、2 つの測定値が存在する。Hogg らのデータは、質量分析により測定したものであり、Ceulemans らのデータは、全断面積から散乱断面積の測定値を差し引いて求めたものである。両者は、2%の範囲で一致しているためか、異なる核データライブラリー (JEF-2.2, ENDF/B-VI, JENDL-3.2, BROND-2) 間で、0.5%の差しかない¹⁾。しかしながら、それぞれの測定誤差は、それぞれ 7%及び 5%あることに注意する必要がある。

共鳴積分値については、3 つの測定値が存在するが、それらのバラツキは、熱中性子捕獲断面積のそれに比べて遙かに大きい。また、測定誤差も 5 から 6%あり、熱中性子捕獲断面積とともに今後の精密な測定が求められよう。

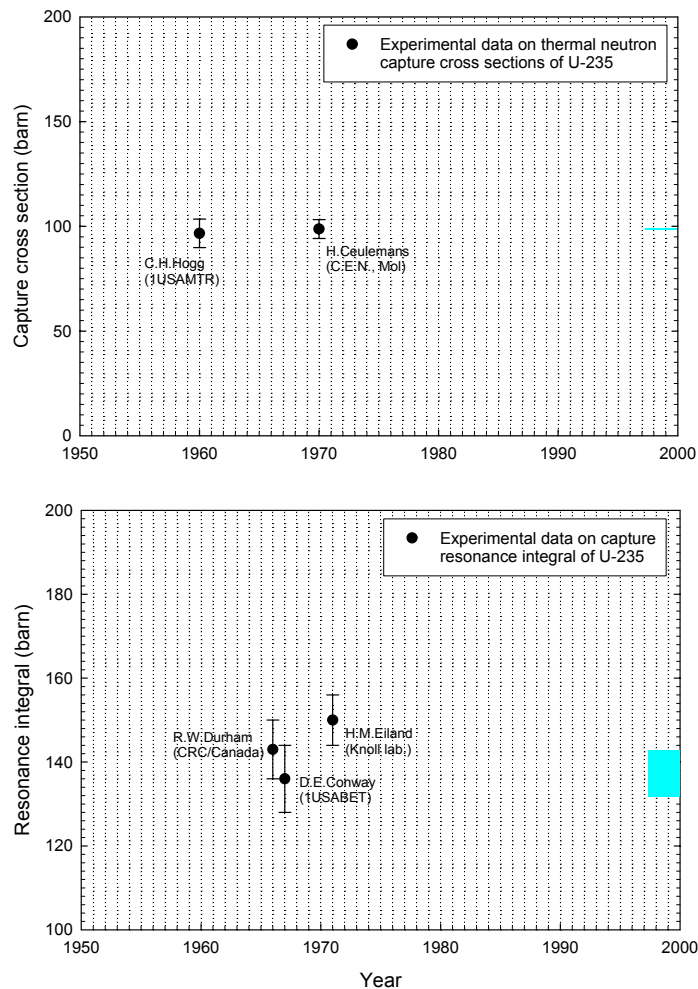


Fig. 1 U-235 の熱中性子捕獲断面積 (上段) と共鳴積分値 (下段)。右端に表示した線の縦幅は異なる核データライブラリーで採用された評価値のバラツキを示す。

Fig. 2 は、U-238 の熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分値を示す。U-235 のデータに比べて多くの測定値が存在するが、これは、中性子捕獲反応で生成する U-239 が 23.5 分の短半減期であるためにその非放射能が大きく、測定が比較的容易なためと思われる。実際、1981 年の Poenitz らは、放射化法で生成した U-239 の娘核である Np-239 から放出される崩壊 γ 線を Ge(Li)検出器を用いて測定している。彼らの測定誤差は、0.7%と小さいが、この誤差には解析に使用した崩壊 γ 線の強度の誤差が入っていない点に注意する必要がある。最新のデータでもその誤差は、1.5%あり、また値自身も当時とは、0.8%異なっている。

共鳴積分値についても比較的多くのデータが、1960 年頃を中心に存在する。1970 年代初め頃の測定データは、1960 年頃の測定データに比べて 5%ほど小さい値であったが、1985 年の京大・小林らの測定値は 1960 年頃の値に近い数値を示している。

U-238 の中性子捕獲断面積は、核燃料の高燃焼度化を検討する上できわめて重要であり、高精度化が望まれる。例えば、高速炉における燃焼欠損反応度の評価に当たっては、U-238 の中性子捕獲断面積の寄与が最も大きいことが定量的に議論されている²⁾。

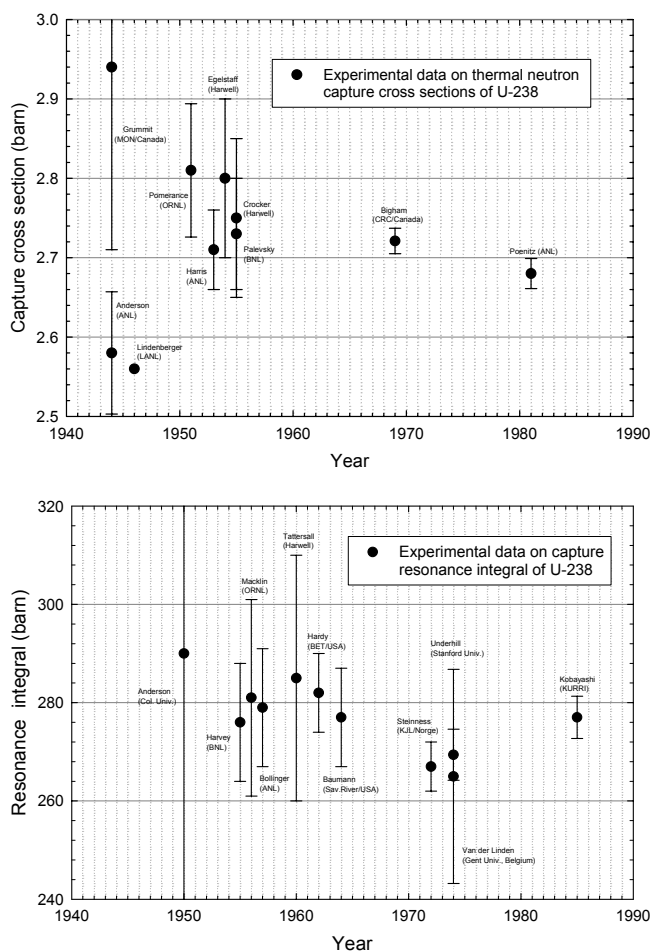


Fig. 2 U-238 の熱中性子捕獲断面積（上段）と共鳴積分値（下段）。

2.2 Pu のデータについて

Pu-239 の中性子捕獲断面積の測定値は、U-238 に比較して遙かに少ない。これは、U-235 の場合と状況が似ており、中性子捕獲で生成する Pu-240 の半減期が 6563 年と長いことが一因として考えられる。Fig.3 に Pu-239 の熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分の測定値を示す。熱中性子捕獲断面積の測定値は、1970 年以前に測定された 2 例だけであり、しかもそのバラツキは、それぞれの測定誤差を遙かに超えて 30%に及ぶ。共鳴積分値も同様に 2 つの測定があるが、そのバラツキは、100%にも及んでいる。Cornish らの測定は、原子炉照射によるものであり、Ryabov らの測定は、TOF 法という異なる手法が採用されている。一方、異なる核データライブラリー (JEF-2.2, ENDF/B-VI, JENDL-3.2, BROND-2) 間で、熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分に対し、それぞれ 1.3%及び 2.0%という小さな差しかないことに注意することが必要であろう¹⁾。

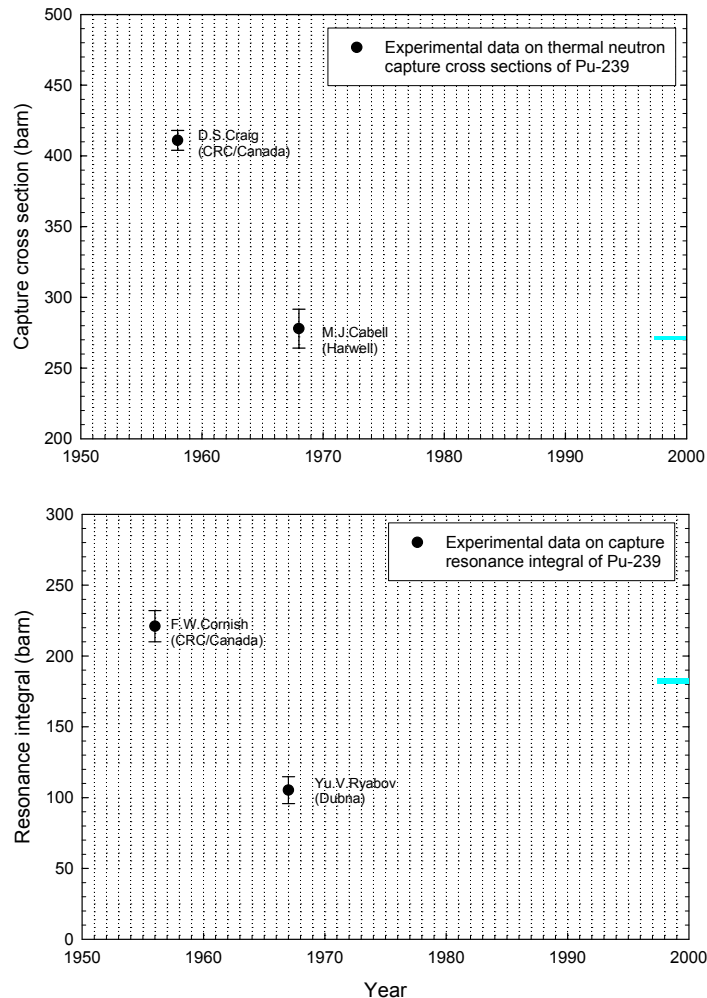


Fig. 3 Pu-239 の熱中性子捕獲断面積（上段）と共鳴積分値（下段）。右端に表示した線の縦幅は異なる核データライブラリーで採用された評価値のバラツキを示す。

Fig.4 は、Pu-240 の熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分値を示す。熱中性子捕獲断面積については、Pu-239 のデータに比べて多くの測定値が存在するが、共鳴積分値については、測定値が 1 つしかない。熱中性子捕獲断面積について 1960 年から 1970 年に報告された 3 つの測定値は、速チョッパーを用いた Block らの手法（全断面積を測定し、仮定した散乱断面積を差し引く手法）と、その後の質量分析の測定との間でよい一致が見られる。異なる核データライブラリー(JEF-2.2, ENDF/B-VI, JENDL-3.2, BROND-2)間の差は、0.8%である¹⁾。1970 年以降の測定データは、見あたらない。

共鳴積分値については、異なる核データライブラリー間の差は 5%ある¹⁾が、測定例が 1 つしかないこともあり、再測定の必要があろう。高速炉における燃焼欠損反応度の評価に当たっては、U-238 の中性子捕獲断面積の寄与に次いで Pu-239, Pu-240 の中性子捕獲断面積の寄与の大きいことが定量的に議論されている²⁾。

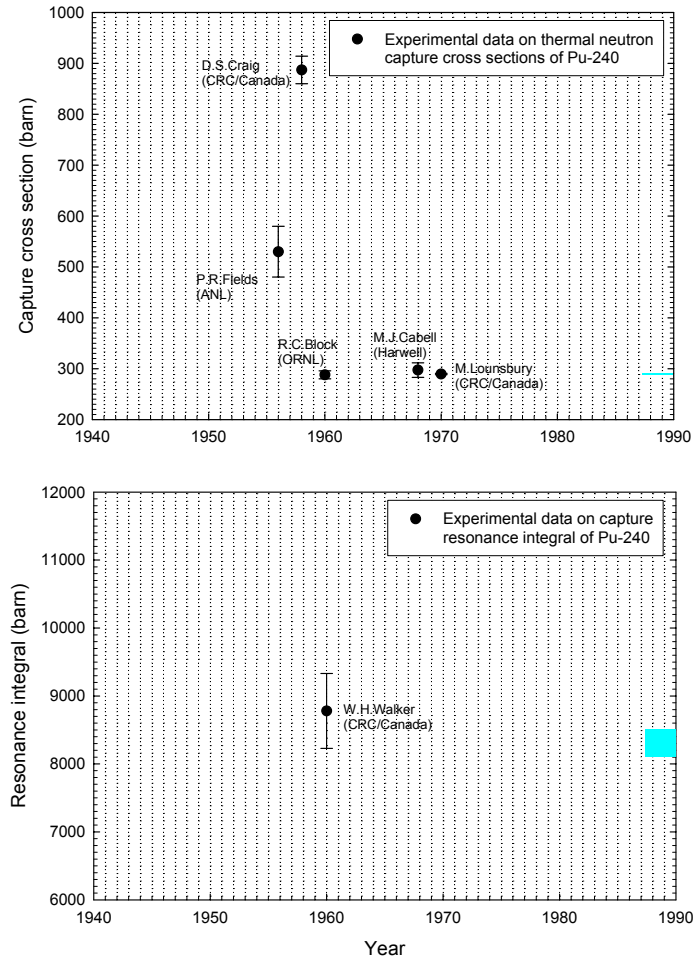


Fig. 4 Pu-240 の熱中性子捕獲断面積（上段）と共鳴積分値（下段）。右端に表示した線の縦幅は異なる核データライブラリーで採用された評価値のバラツキを示す。

2.3 MA のデータについて

MA の核データは、U, Pu に比べてさらに整備が進んでいない状況にある。Fig.5 は、Np-237 の熱中性子捕獲断面積の測定値を示す。中性子捕獲反応で生成する Np-238 の半減期は、約 2 日と短いため U-238 の場合と同様に高い測定精度が期待できる放射化法が適用できるにも係わらず、測定例は 3 つしかなく、しかもそのバラツキは大きい。JENDL-3.2 や ENDF/B-VI の評価値よりも 10%以上小さな実験値が近年報告されている。MA 核種の核データは、核変換研究や高燃焼度化研究等で重要である。その必要性については、最近多くの優れた解説があるので、ここでは詳細を割愛する。

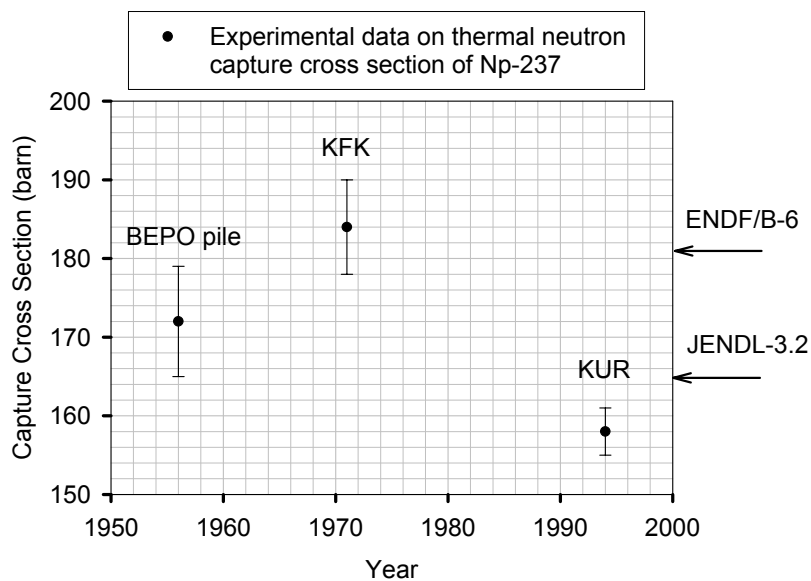


Fig. 5 Np-237 の熱中性子捕獲断面積。右端に表示した矢印は異なる核データライブラリーで採用された評価値を示す。

2.4 LLFP のデータについて

Table 1 は、超長寿命 LLFP 7 核種の中性子捕獲断面積の現状を表にまとめたものである。断面積の誤差としては、最新測定値の誤差に加えて、年代の新しい方から 2 つの測定値間の差を自乗ルートで考慮した。測定値が 1 つしかない場合は、少々強引ではあるが、30%の誤差を付加した。記号 S, A, B, C, N は、それぞれ誤差 3%未満、誤差 10%未満、誤差 50%未満、誤差 50%以上、測定データ無を表す。

Fig. 6 に Tc-99 の共鳴積分値を測定値の報告年の関数として示す。Tc-99 は、超長寿命核分裂生成核種の中で最も研究が進みデータ数の豊富な核種であるにも係わらず、データ間にいまだ大きなばらつきが存在する。Se-79, Zr-93, Pd-107, Sn-126 等に対しては、データが欠如しているが、超長期の放射能リスクを伴うこれら核種の核データ取得は核変換システムの設計・評価に必要である。

Table 1 超長寿命 LLFP 7 核種の中性子捕獲断面積の現状

	σ_0	I_0	$\sigma(E)$
^{129}I	A	B	B
^{107}Pd	N	N	B
^{135}Cs	A	C	N
^{93}Zr	N	B	B
^{79}Se	N	N	N
^{126}Sn	N	N	N
^{99}Tc	B	C	C

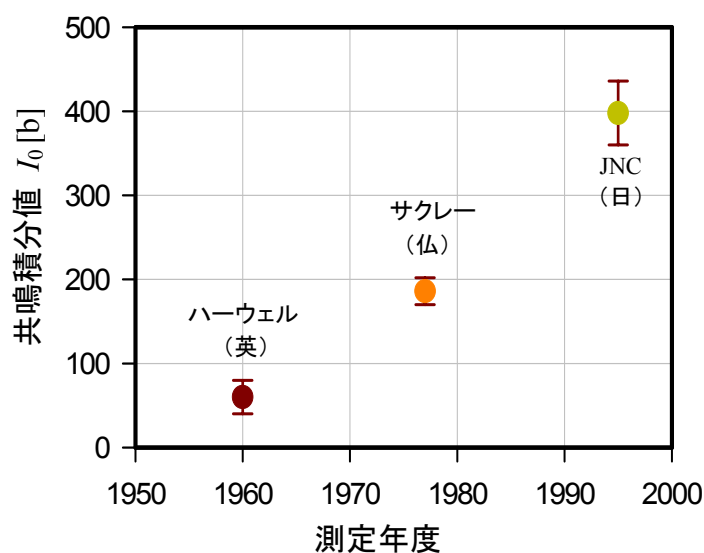


Fig. 6 Tc-99 の共鳴積分値

3. おわりに

U, Pu, MA, LLFP の核データの現状について、微分測定データの側面から駆け足で概観した。核燃料サイクル開発の基礎中の基礎である U や Pu のデータでさえも、微分データには大きなバラツキがある。これは、その重要性にも関わらず 1980 年以降測定データがほとんどないためである。1980 年以降、測定技術が大きく進歩しており、これを核データ測定に適用することで飛躍的な精度向上が可能である。今後の着実な進展が期待される。

参考文献

- 1) JEF Report 14, OECD (1994).
- 2) 石川 真、沼田一幸、佐藤若英、杉野和輝：サイクル機構技報、No.13 (2001) 41.