

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
nakagawa@ndc.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

2002年5月に待望の JENDL-3.3 [Sh03] を公開した。

JENDL-3.3 には 337 核種に対して、20 MeV 以下の中性子エネルギー領域の核反応データが与えられている。JENDL-3.3 では、JENDL-3.2 から主要重核や主要なマイナーアクチニド (MA) のデータが改善され、積分テストの結果も良好であった。

JENDL-3.3 にデータが与えられているアクチニド核種 ($Z=89(\text{Ac})$ 以上) は 62 核種ある。その中から、U-235、U-238、Pu-239 等の極めて重要な核種を除いた、いわゆる MA のうち、軽水炉で生成される量が多い核種としては、U-234、U-236、U-237、Np-237、Np-238、Np-239、Pu-238、Pu-242、Am-241、Am-242m、Am-243、Cm-242、Cm-243、Cm-244、Cm-245、Cm-246 を上げることができる [An99]。勿論、これらの核種のデータは全て JENDL-3.3 に与えられている。

しかし、MA に対しては、まだ測定データ自身も十分とは言い難く、現状の評価値で満足できないものも少なくない。MA の核データについては、今後も改良が必要であり、データ改訂の結果をまとめた JENDL Actinide File の開発が期待されている。

このため、JENDL-3.3 公開後、MA 核データ評価作業の一環として、MA 核種のデータの現状を調査した。その結果は、2002年10月に行われた「革新的原子力開発に向けた核データ測定ワークショップ [Ha03]」と JAERI-Data/Code 2002-025 [Na03] に発表した。

本稿は、これらと重複するが、その後の知見も入れて、MA 核データのうち核分裂断面積と捕獲断面積の現状についてまとめたものである。本稿の対象核種は JENDL-3.3 にデータがある Th から Cm までの核種とする。

2. JENDL-3.3 の概要

Ac 以上のアクチニド核種で JENDL-3.3 にデータが格納されている核種は、上記の通り 62 核種あるが、このうち JENDL-3.2 からデータが変更されたものは 29 で、JENDL-3.2 と

同じデータの核種が 27、新たに追加された核種が 6 である。修正は主要核種の他に、主に U から Cm 核種の中でも重要な MA 核種について行われた。

Pu-238 や Am と Cm の一部のアイソトープに対しては、ISTC (International Science and Technology Center) プロジェクトの下で行われた核データ評価の結果を、良く検討した上で一部修正しながら採用した。これらの評価は Maslov のグループによってなされたもので、かなり綿密な理論計算に基づいた評価がなされている。但し、彼らは殆ど全てのデータに理論計算の結果を採用しているが、核分裂断面積については実験データとのズレが見受けられる。そのため、これらのデータを JENDL-3.3 に採用するにあたっては、実験データとの比較を行い、実験データとの差が認められる場合は、それを修正した。

その他の、Np-237 や Cm 核種については我々独自の再評価を行った。かなりマイナーな核種であるが、Np-235、Pu-237、Pu-244、Pu-246、Cm-240、Bk-247 のデータは JENDL-3.2 以降に我々独自の評価を行った結果である。

3. どのエネルギー領域のデータが重要か

熱中性子炉では熱中性子エネルギーから 0.1 eV 付近のデータが特に重要である。それに対して高速炉や ADS では 100 eV 付近から数 MeV 位までが重要となる。一方、原研が革新炉として研究を進めている「低減速スペクトル炉」という新しい概念の原子炉では、中性子スペクトルが熱中性子エネルギーから 10 keV 程度まで高い値を示しているのが特徴である。この領域は、いわゆる「共鳴領域」である。これにより、MA の核データとしては、熱中性子エネルギーから数 MeV までのデータが、万遍なく重要になったと言える。

共鳴領域以下のエネルギー領域では、理論的に断面積を予測することが難しい。それだけに、断面積測定とその結果の解析の重要性が増したわけである。

4. 分離共鳴領域のデータは大丈夫か

主要な MA 核種では分離共鳴パラメータの測定値があり、評価済データもそれを取り入れている。しかし、U-235 等の主要アクチニドでは SAMMY を用いた Reich-Moore 多準位公式のパラメータが主流になりつつあるのに対し、MA ではまだまだ Breit-Wigner 公式のパラメータが多い。JENDL-3.3 では、Th から Cm の範囲では、分離共鳴無し 12 核種、Reich-Moore 公式のパラメータ 6 核種 (U-233-, 235-, -238, Pu239-, -240-, -241)、Breit-Wigner 公式のパラメータ 30 核種となっている。

分離共鳴領域の上限エネルギーについてみると、Pu-236 が 10 eV、Am-242m が 43 eV、Cm-243 と Cm-245 が 100 eV、Cm-247 が 60 eV など、まだ不十分な核種も見受けられる。主要な MA では、数百 eV 程度までは分離共鳴領域であることが望ましい。

今後のデータ改善のためには、低エネルギー領域の断面積測定と共鳴パラメータの解析が不可欠である。JENDL-3.3 以降、共鳴パラメータの新たな解析は、Pa-232、U-233、

U-236、Np-236、Np-238 などで報告されている。また、米国 ORNL では、MA ではないが U-238、Pu-241 について SAMMY を使った新たな解析が進行中である。U-238 については、分離共鳴領域を現在の 10 keV から 20 keV に拡張することを目指している。

さらに、CERN の n_TOF プロジェクトでは 1 eV から 200 MeV までの断面積測定が今後短期間のうちに行われる予定である。U-235 と U-238 については preliminary なデータがつくば市で行われた核データ国際会議 (ND2001) ですでに報告されている [Bo01]。このほかの測定としては、Geel で、1 から 500 eV の範囲の Np-237 の捕獲断面積と transmission の測定が、RPI で U-236 と U-238 の熱中性子領域から epithermal 領域における捕獲断面積と transmission が測定されている。これらの結果を用いた共鳴パラメータ解析が期待される。

5. 熱中性子エネルギーにおける断面積

評価済核データライブラリーでは、熱中性子エネルギー領域の断面積は分離共鳴パラメータから計算するようになっているのが普通である。共鳴パラメータが熱中性子エネルギーでの測定値を再現するように調整されている。

JENDL-3.3 で熱中性子エネルギーでの実験データとの不一致が目立つ核種と反応を挙げる、

Pa-232 cap、Pa-232 fis、U-234 fis、U-236 fis、Am-243 cap、Cm-247 fis

等である。この他に有名な Am-241 捕獲断面積の問題がある。このデータは、重要であるにもかかわらず実験値間に矛盾がある。図 1 と図 2 に Am-241 の捕獲断面積と全断面積を示す。熱中性子エネルギー点での捕獲断面積は図では分かり難いので表 1 を見ていただきたい。

表 1 によると、最近の測定データは、854、696、669 バーン等であり、測定値の間に大きな差がある。一方、評価済データは JENDL-3.3 が 640 バーンとなっていて、いずれの測定値よりも小さい。それならば、評価済データとしてもっと大きな断面積を採用すれば良さそうであるが、それができない。図 2 に示すように全断面積の測定値が数件あり、それから導かれる熱中性子エネルギーでの全断面積がせいぜい 650 バーン程度なのである。従って、表 1 の測定値は殆どが全断面積より大きいことになる。

Am-241 のこの矛盾を解決するためには、熱中性子領域の全断面積と捕獲断面積の再測定が不可欠である。

JENDL-3.3 では、最も新しい全断面積の測定値が若干高めであることに注目し、熱中性子エネルギーでの全断面積を少々高めの値にすることで、捕獲断面積を大きめにした。

次に挙げる核種の反応については、熱中性子エネルギーでの測定値が全く無い。殆どは重要性が低い核種ではあるが、「*」をつけた反応は、JENDL-3.3 は 100 バーン以上の大きな熱中性子捕獲断面積を与えているので、測定によりその真偽を確認する必要がある

う。

Th-227 cap*、Th-228 fis、Th-228 cap*、Th-229 cap、Th-230 fis、Th-233 fis、
Th-234 fis、Th-234 cap、Pa-233 fis、U-237 cap*、Np-236 cap*、Np-238 cap*、
Np-239 fis、Np-238 cap、Pu-236 cap、Pu-237 cap*、Pu-244 fis、Cm-242 cap

また、測定値が有る核種でも、測定の様子が古いものが多い。例えば、Th から Cm で 1983
年以降（過去 20 年間）に熱中性子断面積が測定された反応は、

Pa-232 fis、U-234 fis、U-236 fis、U-236 cap、Np-236 fis、Np-237 fis、
Np-237 cap、Np-238 fis、Pu-236 fis、Pu-238 fis、Am-241 fis、Am-241 cap、
Am-242 cap、Am-242m fis、Am-243 fis、Am-243 cap

だけである。本当に限られた核種だけであることが分かる（主要核種を除いて議論して
いることに注意）。熱中性子断面積や共鳴パラメータの理論的予測は不可能であることや、
熱中性子炉ではこれらのデータが決定的に重要であることを考えると、もっと多くの核
種に対して新たな測定が必要である。

こういう例もある。最近 Wagemans らが U-234[Wa02]や U-236[Wa00]の核分裂断面積を
測定した。それによると（単位はバーン）、

	JENDL-3.3	Wagemans et al.
U-234	0.2985	0.067±0.014
U-236	0.0613	0.0003±0.0010

となり、評価値と測定値は桁違いであることが示された。断面積が小さいので重要なデ
ータではないとはいえ、より正しい核データを提供したい立場としては、このようなマ
イナーなデータの測定も精力的になされることを望む。

6. 鉛減速スペクトロメータによる測定

鉛減速スペクトロメータは、京大炉の KULS が有名である。この装置では、エネルギ
一分解能は良くないが、約 10 keV 以下で、統計精度の良い断面積が得られる。これまで
に測定されたデータは、海外のものも含めると以下の反応である。

Th-229 fis、Pa-231 fis、Np-237 fis、Np-237 cap、Pu-238 fis、Am-241 fis、
Am-242m fis、Am-243 fis、Cm-242 fis、Cm-244 fis、Cm-246 fis、Cm-247 fis、
Cm-248 fis

これらの測定結果からは、分解能が悪いので共鳴パラメータの解析はあまり望めない。
しかし、分離共鳴領域の平均断面積が高い精度で得られ、評価済核データの共鳴パラメ
ータの検証に威力を発揮する。例えば、図 3 に示した Am-243 核分裂断面積では、
JENDL-3.3 が実験データを良く再現していることがわかる。これは、極めて良い例である。
Th-229、Cm-244、Cm-246 等では実験データとの一致が良くないので、共鳴パラメータ改
訂が必要であろう。また sub-threshold fission の核種では、評価値と測定値の差が目立つ傾

向がある。

7. 速中性子エネルギー（1 keV～20 MeV）領域

Th から Cm 核種の 1 keV から 20 MeV 領域における核分裂断面積と捕獲断面積について「測定値無し」「測定値はあるが不十分」「測定値に系統的な差がある」「測定値あり」に分けてリストしてみると以下のようなになる。

測定値無し

Th-227 fis、Th-227 cap、Th-228 cap、Th-229 cap、Th-230 cap、Th-233 fis、
Th-233 cap、Th-234 fis、Th-234 cap、Pa-231 cap、Pa-232 fis、Pa-232 cap、
Pa-233 fis、Pa-233 cap、U-232 cap、U-234 cap、U-237 cap、Np-236 fis、
Np-236 cap、Np-238 fis、Np-238 cap、Pu-236 cap、Pu-237 fis、Pu-237 cap、
Pu-244 cap、Am-242 fis、Am-242 cap、Am-242m cap、Cm-242 cap、
Cm-243 cap、Cm-245 cap、Cm-246 cap、Cm-247 cap、Cm-248 cap

測定値はあるが不十分

Th-229 fis、U-237 fis、Pu-242 cap、Cm-244 cap

測定値に系統的な差がある

Th-228 fis、Am-242m fis

測定値あり

Th-230 fis、Pa-231 fis、U-232 fis、U-234 fis、U-236 fis、U-236 cap、
Np-237 fis、Np-237 cap、Pu-236 fis、Pu-238 fis、Pu-242 fis、Pu-244 fis、
Am-241 fis、Am-241 cap、Am-243 fis、Am-243 cap、Cm-243 fis、Cm-244 fis、
Cm-245 fis、Cm-246 fis、Cm-247 fis

このうち、Cm-244 捕獲断面積と Am-242m 核分裂断面積の例を、図 4 と 5 に示す。前者は、10 keV 以下に 1971 年のデータがあるだけである。もっと高いエネルギーに新しい測定値が欲しい。後者は、測定値がたくさんある。しかし、系統的に異なった 2 つのグループに分かれてしまっている。最近の測定や JENDL-3.3 は下のグループに属する。

上記のリストから、主要な MA でも測定値が無い核種が多いことがわかる。特に捕獲断面積の測定値が少ない。「測定値あり」の核種でも、数百 keV 以上の捕獲断面積については測定値が無い。

測定値がないと、評価済データが正しいのかどうか分からない。このような場合、評価方法が異なると、評価値の間の差も大きくなる。

しかし、測定値が無い核種でも評価値に差が見られない場合がしばしばある。これは、評価値が収斂しているのではなくて、単に一方の評価値が他方の評価値を採用している

だけのことである。

逆に、評価値の差が大きいから評価値が良くないと言う議論も正しくない。評価値には古いデータもあり、それらは当然最近の測定値を再現していない。測定値との比較などを丹念に行って、評価値の善し悪しを判断すべきである。

8. その他のデータ

核分裂断面積と捕獲断面積の他には Am-241 捕獲反応の分岐比、Np-237(n,2n)反応とその分岐比、即発中性子数などが重要である。

Am-241 捕獲反応の分岐比を図 6 に示す。熱中性子エネルギーでの測定が複数あるが、その他は 30 keV に 1 件あるだけである。30 keV の測定値は、統計モデルなどによる予測値よりも小さい値で、これを再現するように評価値を決めることは難しいようだ。このデータについては今後も検討が必要である。

その他のデータの現状については、今回は割愛する。

9. むすび

MA 核データの現状について述べた。核データセンターでは、これらのデータの改訂を行い、JENDL Actinide File を作ろうとしている。そのためには理論計算コードや入力データの整備と測定データの充実が望まれる。

今回は、測定データが不足しているデータを強調しつつ核分裂断面積と捕獲断面積を中心にデータの現状を書いた。これらのデータについては、海外でも測定がなされつつあるが、国内でも、平成 14 年から新たなプロジェクトがスタートしたことが井頭によって報告されている[Ig03]。今後は、新たに得られる測定データを基に、徐々にデータの改訂を進めていく予定である。

参考文献

- [An99] 安藤良平、高野秀機:「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」*JAERI-Research* 99-004 (1999).
- [Bo01] Borcia C., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 2*, 653 (2002).
- [De64] Deal R.A., Schuman R.P.: *WASH-1053*, p.76 (1964).
- [Fi01] Fioni G., et al.: *Nucl. Phys.*, **A693**, 546 (2001).
- [Ga75] Gavrilov V.D., et al.: *Sov. At. Energy*, **41**, 808 (1977).
- [Ha73] Harbour R.M., et al.: *Nucl. Sci. Eng.*, **50**, 364 (1973).
- [Ha03] 原田秀郎、大島真澄:「革新的原子力開発に向けた核データ測定ワークショップ」核データニュース、No.74、p.71 (2003).

- [Ig03] 井頭政之:「高度放射線測定による革新炉用原子核データに関する研究開発」核データニュース、No.74、P.121 (2003).
- [Ka76] Kalebin S.M.: Proc. Advisory Group Meeting on Transactinium Isotope Nuclear Data, Karlsruhe, 3 – 7 Nov. 1975, IAEA-186, Vol.II, p.149 (1976).
- [Ko99] Kobayashi K., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **36**, 20 (1999).
- [Ma01] Maidana N.L., et al.: *Radiochim. Acta*, **89**, 419 (2001).
- [Na03] Nakagawa T, Iwamoto O.: “Comparison of Fission and Capture Cross Sections of Minor Actinides,” *JAERI-Data/Code 2002-025* (2003).
- [Po55] Pomerance H.: *ORNL-1879*, p.50 (1955)
- [Sh97] Shinohara N., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **34**, 613 (1997).
- [Sh02] Shibata K., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39**, 1125 (2002).
- [Wa00] Wagemans C., et al.: *Nucl. Sci. Eng.*, **136**, 415 (2000).
- [Wa02] Wagemans C., et al.: *Nucl. Sci. Eng.*, **141**, 171 (2002).

表 1 Am-241 熱中性子捕獲断面積

単位：バーン

文献	基底状態	準安定状態	全捕獲断面積	
Pomerance (Po55)			625±35	MX
Deal and Schuman(De64)	770		(856)	MX
Harbour et al.(Ha73)	748±20	83.8±2.6	832±20	
Gavrilov et al.(Ga75)	780±50	73±14	853±52	
Kalebin(Ka76)			624±20	
Shinohara et al.(Sh97)	768±58	85.7±6.3	854±58	
Fioni et al.(Fi01)	636±46	60±4	696±48	MX
Maidana et al.(Ma01)	602±9		(669±10)	
JENDL-3.3			640	
ENDF/B-VI			619	
JEFF-3.0			616	

() は、Isomeric ratio=0.9 として ground の値から推定したもの。
MX は、Maxwell スペクトル場での測定値

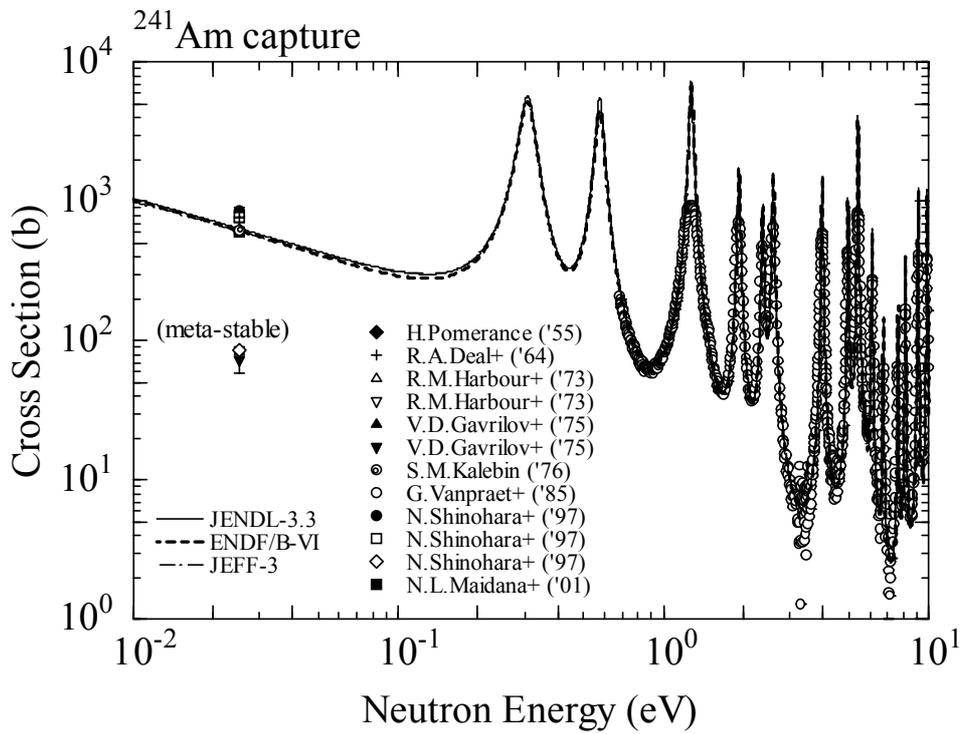


図1 Am-241 捕獲断面積 ([Na03]より)

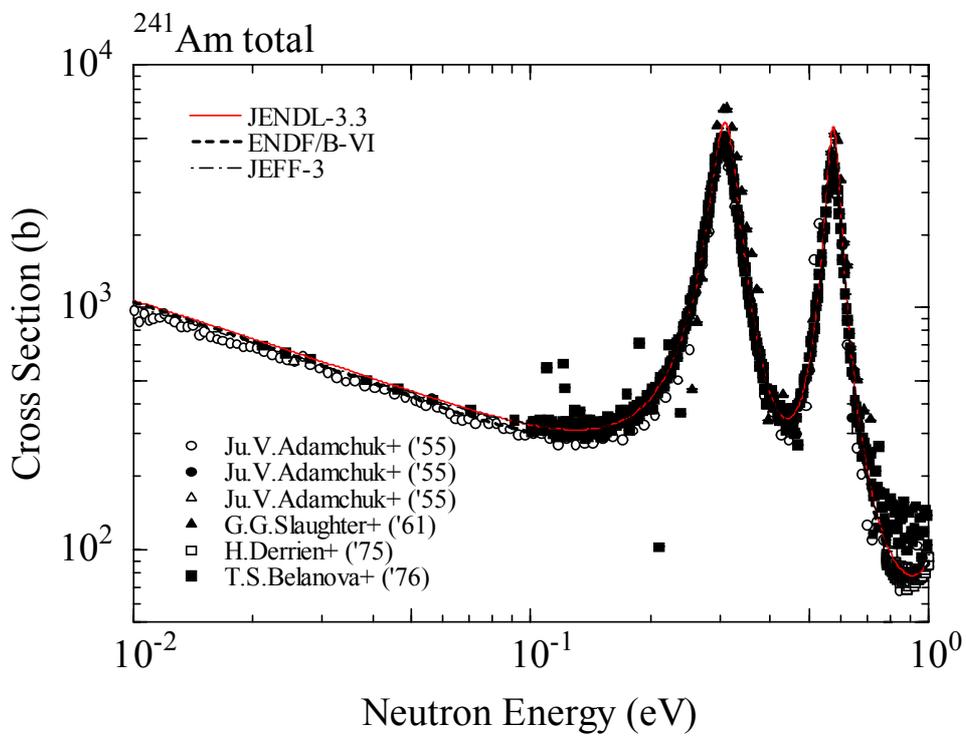


図2 Am-241 全断面積

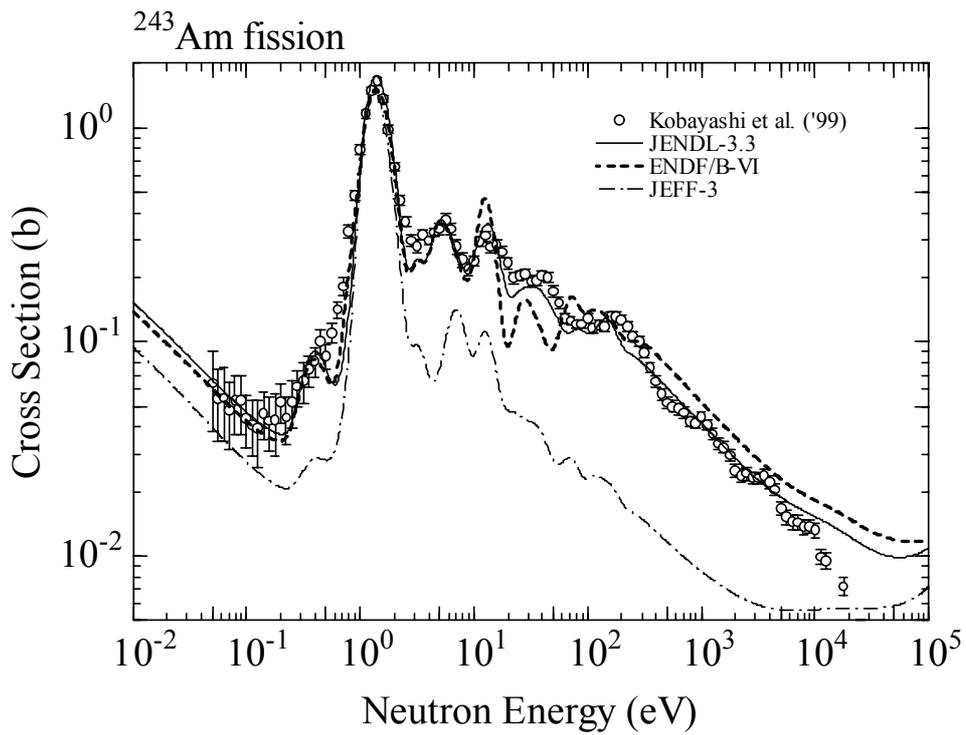


図3 ²⁴³Am核分裂断面積 (KULSの結果[Ko99]との比較、[Na03]より)

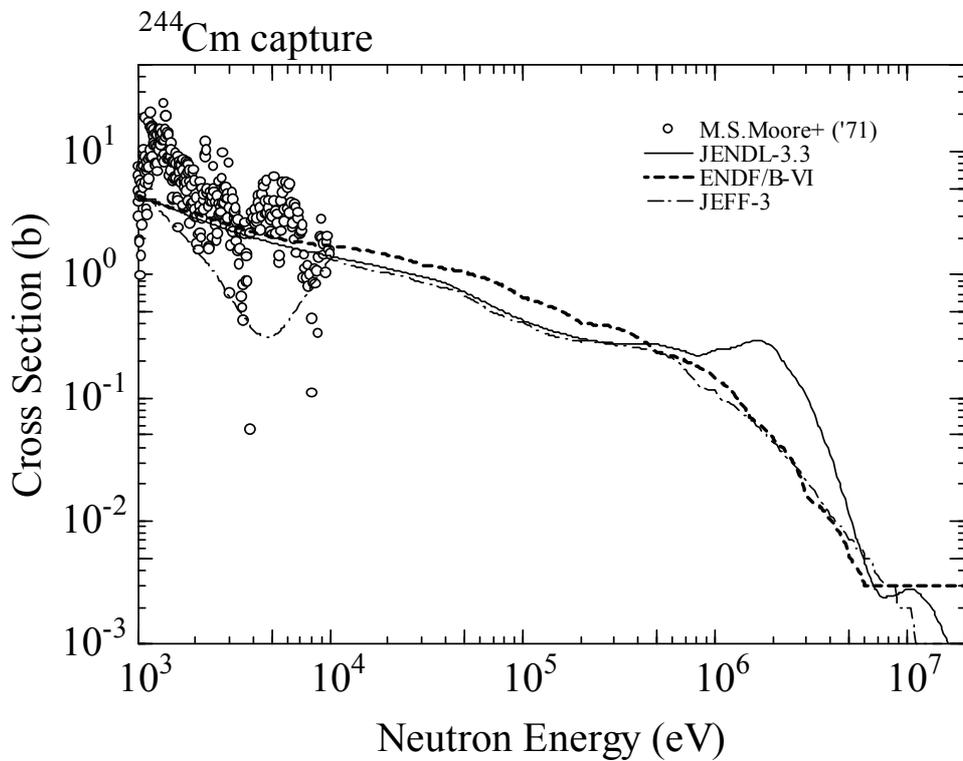


図4 ²⁴⁴Cm捕獲断面積 ([Na03]より)

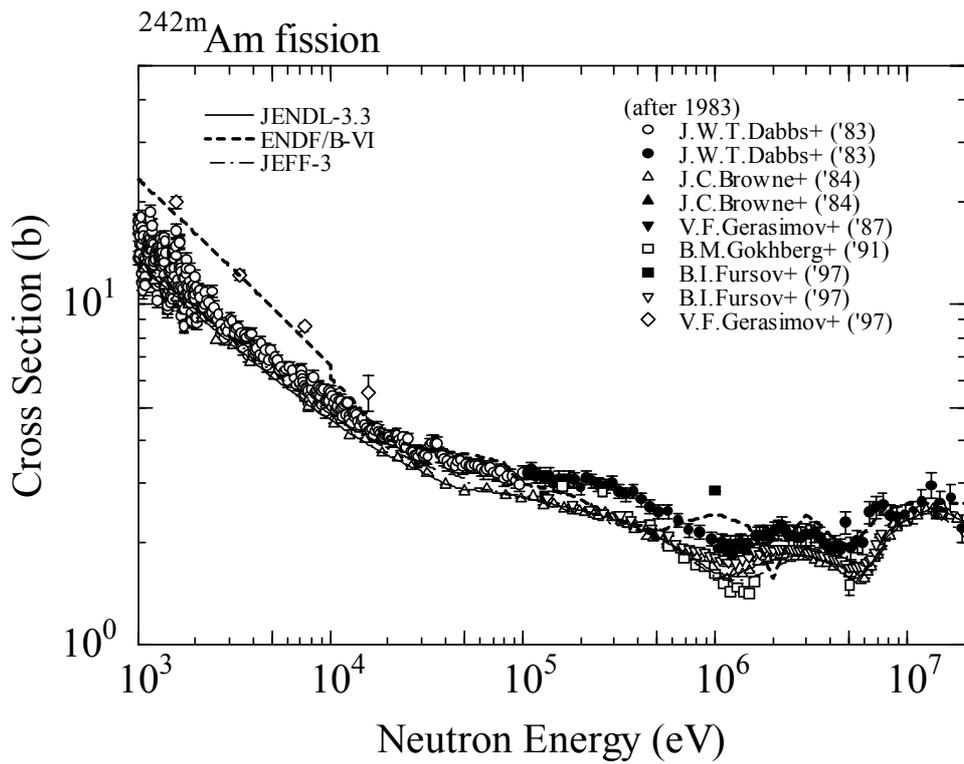


図5 Am-^{242m} 核分裂断面積 ([Na03]より)

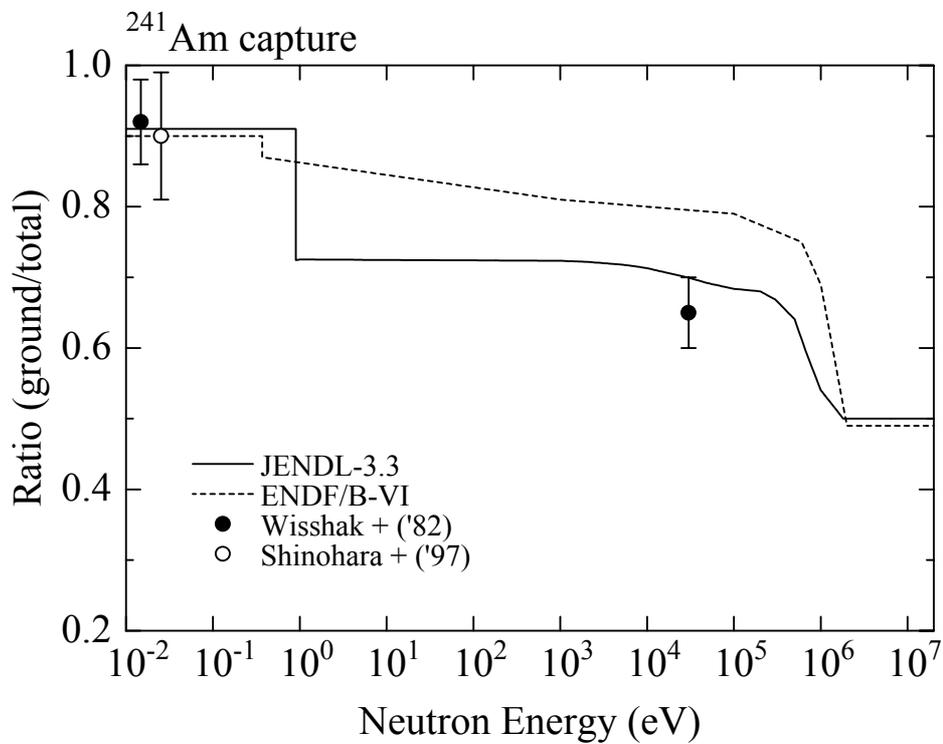


図6 Am-^{241} 捕獲反応の分岐比