講演

超ウラン元素の臨界性

Criticality of Transuranium Elements

By E.D. CLAYTON*

(1972年5月23日 国立教育会館にて講演)

座長 東大・清瀬量平氏

超ウラン元素は $_{93}\text{Np}$ から始まって原子番号104のものまでが知られているが、取扱い上その臨界性が問題となる点でとくに重要なものは、すでに核燃料としての実用化の開発が進められている ^{239}Pu および ^{241}Pu と、近い将来において種々の利用目的に対して相当量の生産回収が予想される ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 ^{244}Am 、 ^{246}Cm などである。これら超ウラン元素の臨界性には、核内中性子数の奇偶性などの原子核構造によって相当大幅な差異があるが、ここでは核燃料の臨界安全管理上すでに具体的な問題となっているPu同位体についてまず述べ、次に偶数中性子をもつ超ウラン原子核、および奇数中性子をもつ超Pu原子核の臨界性について現在知られているデータを紹介する。

1. ^{239}Pu および ^{241}Pu (1)~(3)

^{239}Pu と水の混合系の中性子増倍率 k_{∞} がHとPuの原子数比の関数としてFig. 1に示されている。Pu金属に対する k_{∞} の値はほぼ2.7であり、水による希釈に伴って減少してゆくが、通常取り扱われる溶液のかなりの濃度範囲にわたってほぼ一定の値1.8に近い

Fig. 1 Computed reproduction factor (k_{∞}) for homogeneous ^{239}Pu -water mixtures (H/Pu is atomic ratio of H to Pu)

ことが、Pu溶液の取扱い上臨界管理が極めて重要な問題となる理由である。Fig. 2は、種々の濃度のPuと水の混合物の球形体系に対する臨界質量と臨界半径を、反射体のない場合と十分に厚い水の反射体がある場合とについて示している。密度 19.6 g/cm^3 の α 相金属から水による希釈を始めると、初めは臨界寸法も臨界質量も共に増加するが、Puの濃度にして約 5 kg/l 、減速度すなわちH/Pu原子数比にしては約4のあたりで臨界質量は最大値に達した後急激に減少し、濃度が約 32 g/l 、H/Puが約900のあたりで最小値 531 g (反射体のある場合)を示している。この点での臨界体積は金属の場合の約75倍であるが、臨界質量は逆に約1/10に減少している。さらに希釈を進めると、Hによる

Fig. 2 Estimated mass and radius of critical Pu-water spheres

* Battelle Pacific Northwest Laboratory, Richland, Wash., USA.

中性子吸収が増加するため再び臨界寸法も臨界質量も増大し、 $k_{\infty}=1$ に対応する限界濃度 $7.8 \pm 0.3 \text{ g/l}$ ($\text{H}/\text{Pu} \approx 3,300$) において無限大となる。Fig. 3 に示すように、 ^{241}Pu もほぼ同様な臨界性を示すが、その最小臨界質量は ^{239}Pu のほぼ半で約 260 g となっている。

Fig. 3 Water reflected spherical critical mass of Pu(metal)-water mixtures

動力炉からの高燃焼度の燃料中の Pu は相当量の ^{240}Pu および ^{241}Pu を含むから、同位体組成による臨界量の差に十分注意する必要がある。また Pu 化合物の種類が異れば、H 以外の原子核の存在および密度の相異によって、特に H/Pu 比の低い範囲で臨界量にかなりの差異があることも指摘しておきたい。

2. 偶数中性子 (even-N) の超ウラン原子核⁽⁴⁾

^{237}Np , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am および ^{244}Cm の球形体系の臨界量が Table 1 に示されている。表の数値に見られるとおり、わずかの水による希釈によって k_{∞} は急速に 1 以下に減少してしまうから、これらの体系は本質的に非減速系でのみ臨界となりうる。したがって、もし熱中性子系でも臨界となりうるものを fissile、高速中性子系でのみ臨界となりうるものを fissionable な物質と区別して呼ぶとすれば、これらの物質は fissionable ではあるが fissile ではないということと

Table 1 Calculated critical radii and masses of transuranium isotopes with even N-spherical geometry

Actinide	Density (g/cm ³)	Hydrogen-to-actinide atom ratio (H/X)	(k_{∞})	Unreflected critical sphere		Water reflected† critical sphere		Steel reflected† critical sphere	
				Radius (cm)	Mass (kg)	Radius (cm)	Mass (kg)	Radius (cm)	Mass (kg)
$^{237}_{93}\text{Np}$	20.45	0	1.638	9.29	68.6	9.12	64.9	7.96	43.1
	16.6	0.3	1.309	14.37	206.2	14.13	196.1	12.50	135.8
	13.95	0.6	1.102	25.36	952.9	25.03	916.5	22.87	699.2
	12.50	0.82	0.987	—	—	—	—	—	—
	8.01	2	0.649	—	—	—	—	—	—
$^{238}_{94}\text{Pu}$	19.6	0	2.805	4.44	7.20	4.08	5.60	3.80	4.50
	11.254	1	1.868	8.18	25.8	7.91	23.3	6.53	13.25
	7.00	2.42	1.283	17.74	163.6	17.26	150.8	14.28	85.4
	6.078	3	1.144	26.78	489.2	—	—	—	—
	5.2	3.73	1.008	—	—	139.21	58,760	—	—
	5.1	3.83	0.992	—	—	—	—	—	—
$^{240}_{94}\text{Pu}$	4.941	4	0.967	—	—	—	—	—	—
	19.6	0	1.634	12.46	158.7	12.18	148.4	10.55	96.4
	19.457	0.01	1.591	12.69	166.4	12.45	157.3	10.74	101.0
	18.905	0.05	1.406	13.67	202.3	13.43	191.8	11.62	124.3
	18.257	0.10	1.203	15.07	261.9	—	—	12.88	163.4
$^{241}_{95}\text{Am}$	17.653	0.15	1.042	16.70	344.6	—	—	14.38	219.6
	17.092	0.20	0.917	—	—	—	—	—	—
	11.7	0	1.944	13.23	113.5	12.90	105.3	11.34	71.4
	9.601	0.5	1.337	21.40	394.4	20.93	368.9	18.85	269.2
	8.141	1.0	1.093	44.4 (est)	2,985 (est)	42.00	2,710.7	—	—
$^{244}_{96}\text{Cm}$	6.24	2.0	0.83	—	—	—	—	—	—
	13.5	0	2.455	7.43	23.2	7.30	22.0	6.31	14.21
	10.872	0.5	1.744	10.67	55.8	10.47	52.2	—	—
	9.055	1.0	1.399	15.73	147.5	15.43	139.4	—	—
	7.758	1.5	1.175	25.81	558.9	—	—	22.82	368.0
	6.787	2.0	1.014	102.82	30,907.4	—	—	—	—

† 20 cm reflector.

なる。Fig. 4 に ^{237}Np の臨界半径と k_{∞} とが濃度の関数として示されているが、濃度が 12.7 kg/l 以下では臨界に到達できないし、また減速した中性子は臨界性に寄与できないため、水反射体の効果は鉄反射体に比してかなり小さいことがわかる。

Fig. 4 Criticality of homogeneous ^{237}Np -water systems

3. 奇数中性子(odd-N)の超 Pu 原子核⁽⁶⁾

この種の原子核は ^{235}U や ^{239}Pu と同様に核分裂性が強く fissile な物質であり、Table 2 に示すように極めて小さい臨界質量が計算により求められている。表中で ^{251}Cf が最も小さい臨界質量(10 g)を示しているが、その場合の濃度は約 6 g/l で体積は 2 l 以下である。また、計算に用いられた ^{251}Cf の核データは、分裂および捕獲断面積 (2,200 cm²/sec 中性子) について $\sigma_f = 4,606$ b, $\sigma_c = 1,839$ b, 共鳴積分の値は $(RI)_f = (RI)_c = 490$ b, また分裂中性子発生数は $\nu = 4.48$ となっている。この表に見られる傾向から推測するなら

Table 2 Minimum critical masses of fissile transplutonium nuclides (Homogeneous aqueous solutions in water reflected spherical geometry)

Nuclide	Critical mass (g)	Concentration† (g/l)
^{242}Am	23	5
^{243}Cm	213	40
^{245}Cm	42	15
^{247}Cm	159	60
^{249}Cf	32	20
^{251}Cf	10	6

† Approximate concentration at which minimum critical mass occurs.

ば、将来さらに重くて、かつ比較的安定な超 Pu 原子核で ν の値が 10 近くもあり、臨界質量が 1 g かそれ以下といったものが発見される可能性もないとはいえないであろう。

(1972年10月31日 東大・工 清瀬量平抄訳)

—参考文献—

- (1) RICHEY, C.R.: Theoretical analyses of homogeneous plutonium critical experiments, *Nucl. Sci. Eng.*, **31**, 32~39 (1968).
- (2) HANSEN, L.E., CLAYTON, E.D.: Critical parameters of plutonium systems, Pt. II, Interpretation, *Nucl. Appl.*, **6**, 381~390 (1969).
- (3) LLOYD, R.C., et al.: Criticality studies with plutonium solutions, *Nucl. Sci. Eng.*, **25**, 165~173 (1966).
- (4) BIERMAN, S.R., CLAYTON, E.D.: Criticality of transuranium actinides-undermoderated systems, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **12**, 887 (1969).
- (5) CLARK, H.K.: Critical masses of fissile transplutonium isotopes, *ibid.*, **12**, 886 (1969).

欠本求む

本「会誌」バックナンバーで次のものが欠本になりました。

「欧文誌」 Vol. 8, Nos. 10, 12, Vol. 9, No. 1

「和文誌」 Vol. 14, No. 1

ご不要の向きがありましたら 1 冊でも結構です、定価(¥250)でお引き取りしますので、12月末までに事務局宛ご送付願います。

「和文誌」・「欧文誌」各専用

合本ファイル

和文、欧文各誌約 12 冊を、簡単な操作で自由に入替えできるファイルです。

布装幀で、金文字の和文、欧文の各誌名が入った美麗・堅牢なもの。

大変便利で好評をいただいております。

1 冊 ¥ 200円 (¥120円)