解説

核燃料サイクル用核データ

現状と問題点

中川 庸雄*, 高野 秀機*,
吉田 正**, 増川 史洋*, 飯島 俊吾**

U-Pu 核燃料サイクル評価に関連して、特に主要 U, Pu 以外の minor actinide の核データの現状および役割をレビューし問題点を述べる。最近の測定により、評価値には質・量共に大幅な改良が見られるものの、JENDL-3 と ORIGEN 2/82 ライブラリーの 1 群断面面積を比較し、かなりの違いが見出された。

さらに、使用済み燃料内の核種生成量評価および超ウラン元素の照射消滅計算への適用上の問題についても述べる。

I. はじめに

1989年秋に長年の懸案であった日本の評価済み核データライブラリー第3版 JENDL-3が完成した⁽¹⁾。このファイルには 324 核種について中性子エネルギー 0 ~ 20 MeV での全反応の核データが収められている。アクチニドについても Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf, Es の各アイソトープについての評価済み核データが収納されている。本稿では範囲を主に U-Pu 燃料サイクルに関する核データに限り、また U, Pu の主要アクチニド以外の、いわゆる minor actinide に重点をおいて述べる。

燃料サイクル用の核データは、使用済燃料や材料の輸送と貯蔵、再処理、再濃縮、廃棄物処分、保障措置などに関する核データであり、アクチニド、FP、トリチウムなどの生成量と構造材放射化、および発生する熱、放射線の定量的評価に用いられる。この評価のためには、従来 ORIGEN 2⁽²⁾が多く用いられている。しかし minor actinide の核データの測定はこの10年来著しく進歩しており⁽³⁾、JENDL-3 ではこれらの新しい測定データをできるだけ取り入れている。

アクチニド生成変換のパスを第1図に示す。太枠で囲んだ核種は核燃料サイクル上、特に関心のある核種である。第1表は、1例として3%濃縮UのBWRで40 GWd/t燃焼時のこれらの minor actinide の生成量および燃料サイクル上の関連事項を示したものである。特に ^{236}Pu , ^{232}U は 1 ppb 程度しか生成しないが、 ^{208}Tl に崩壊して 2.6 MeV の強い γ 線を放出するので、U再濃縮、加工、環境放射能などの点で生成量の定量的評価が

必要とされる。

^{242}Cm , ^{244}Cm は炉停止後数年間の主な α 線放出源および自発核分裂中性子源である。 ^{236}U , ^{241}Am は炉心反応度損失の点で問題とされている。 ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{245}Cm は半減期が長いので、再処理後の高レベル廃液の長期処分の主な対象である。アクチニドの積極的利用も考えられており、 ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{242}Pu は宇宙技術上応用があるとのことである⁽⁴⁾。 ^{245}Cm は数 g で臨界になりえるので利用が考えられるかも知れない。

以下第II章では断面面積データの状況をレビューし、また自発核分裂および(α , n)反応についても述べる。第III章では、積分的なデータとしてアクチニド核種生成計算の1群断面面積を ORIGEN 2 データと比較し、また最近、日本原子力研究所で行われた PWR 使用済燃料の核種分析結果と計算との比較結果⁽⁵⁾の概要を述べる。第IV章では、応用として超ウラン元素 (TRU) の照射消滅研究の背景および消滅評価上のアクチニド核データの問題点を述べる。

II. 核データの現状

1. 核分裂断面面積

評価済み核データの精度は、信頼できる測定データがあるかどうか大きく依存する。Cm以下($Z \leq 96$)の

Nuclear Data for Nuclear Fuel Cycle: Current status and problems: Tsuneo NAKAGAWA, Hideki TAKANO, Tadashi YOSHIDA, Fumihiko MASUKAWA, Shungo IJIMA.

(1989年 7月6日 受理)

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

** 日本原子力事業(株) (Nippon At. Ind. Group Co.)

第 1 表 1,000 MWe BWRの40 GWd/t 燃焼時における minor actinide
の生成量および核燃料サイクル評価における役割

核 種	生成量 (g/Mt U)	崩壊熱	α 放出	γ 放出	(α, n) 中性子源	自発核分裂 中性子源	反応度 損出	地中処分	他分野へ の利用
²³² U	1.0×10^{-3}			X†					
²³⁶ U	4,200						X		
²³⁷ Np	590							X	X
²³⁸ Pu	1.4×10^{-3}			X†					
²³⁹ Pu	240	X	X	X	X				X
²⁴² Pu	740								X
²⁴¹ Am	54	X	X	X	X		X	X	
²⁴³ Am	180		X					X	
²⁴² Cm	21	X	X		X	X			
²⁴⁴ Cm	70	X	X		X	X			
²⁴⁵ Cm	3							X	X

† (²³⁸Pu) $\rightarrow$ ²³²U $\rightarrow$ ²²⁸Th $\rightarrow$... $\rightarrow$ ²⁰⁸Tl (2.6 MeV γ)

主な核の場合は核分裂断面積の測定値はほぼそろっている。特に最近、ソ連や米国で精力的に測定がなされ、測定値間にバラツキはあるものの、数 MeV 以下の断面積はどの核種も10~20%の精度で評価値が求まるようになった。米国の ORNL, LLNL などの最近の測定は⁽⁶⁾、熱中性子エネルギーから20 MeVまでを一気に測定するもので、非常に有効である。ソ連では数100 keVから数 MeV領域の測定を系統的に行なっている⁽⁷⁾。最近の測定により大幅に改良されたデータの例として、²⁴²Cmの核分裂断面積を第2図に示す。実線が最近の測定データを基に評価し JENDL-3 に収録した評価値であり、古い評価値に比べて極めて良くなっている。

Bk以上($Z \geq 97$)では、熱中性子エネルギー以外での測定データは非常に少なくなる。測定がない場合は、周辺の核の断面積から類推して評価を決める。3 MeV付近の断面積の系統性⁽⁸⁾等がしばしば利用される。核分裂断面積の理論的計算も試みられているが、まだ満足できる予測精度に達してはいない。

2. 捕獲断面積

捕獲断面積は、低エネルギーでは測定データを基に共鳴パラメータを決めることによって評価される。高エネルギーでは、平均レベル間隔 D 、平均捕獲放射幅 Γ_f などと、光学模型および統計模型などで計算する。その際、核分裂断面積、($n, 2n$)反応断面積などを競争過程として考慮する。しかし、アクチニドでは光学模

第2図 ^{242}Cm の核分裂断面積

型のパラメータを決めるための測定値が充分でないのが現状である。 D は低エネルギー領域の分離共鳴データや原子核のレベル密度に関する情報から求めるが、誤差が大きい。 Γ_f はアクチニドでは35~40 meV程度の値であり、これから大きく外れることはない。keV領域に測定データがある場合は、 Γ_f/D の値を測定値に規格化することにより、測定値と良く一致する評価値が得られる。

^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am の捕獲断面積は、第1表や第1図に示したアクチニド生成に関するデータである。このうち、 ^{238}Pu は測定データがなく、評価値間の差が大きい。第3図には ^{238}U のデータの比較を示す。このデータも最近の測定による改良が見られる。 ^{241}Am では、 ^{242}Am の基底状態とアイソマーの分岐比が重要であるが、この分岐比はまだ良く決まってはいない。アイソマー生成率の検討例を第4図に示す。

第3図 ^{238}U の捕獲断面積

3. $(n, 2n)$ 反応断面積

第5図(a), (b)に示す ^{238}U , ^{237}Np や ^{239}Pu の $(n, 2n)$ 反応断面積は ^{238}U 生成に関するデータである。これら

のしきい反応データは10 MeV以下の断面積の立ち上がりの部分が重要であるが、図に見られるようにデータ間の差は大きい。 $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{238}\text{Np}(22.5\text{ h})$ 反応

第4図 ^{241}Am の捕獲反応でのアイソマー生成比

は、 $^{236}\text{Np}(22.5\text{ h})$ が ^{236}Pu を経由して問題の ^{232}U になるので、 ^{232}U の生成量を予測するには、この断面積を正確に知る必要がある。第5図(b)に点線で示した断面積は

(a) $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U}$ 反応断面積第5図(a), (b) $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U}$ および $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}$ の反応断面積 (b) $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}$ 反応断面積

4. その他

Cm以下のアクチニドでは、核分裂当りの即発中性子数(ν_p)の測定が熱中性子核分裂に対して行われている。JENDL-3では、エネルギー依存性や測定のない核の ν_p はHowertonによる系統式⁽⁹⁾を用いて評価を行なった。遅発中性子数(ν_d)はTuttleの系統式⁽¹⁰⁾を用いて決定した。第6図に主な核の $\nu(\nu_p + \nu_d)$ の値を示す。

5. アクチニドの崩壊に関する核データと放射能

アクチニドの多くは α 崩壊や β 崩壊に対して不安定であり、また自発的に核分裂してしまう核種も少ない。これらの核の崩壊モードやエネルギーは参考文献

$^{236}\text{Np}(22.5\text{ h})$ を形成する断面積、実線が全 $(n, 2n)$ 反応断面積であり、JENDL-3ではその比は0.75である。

この他の測定データがない多くの核種では、理論計算や系統性から断面積を求める。この計算には、上記の光学模型の計算と、競争過程の断面積として核分裂断面積が必要であるが、 $(n, 2n)$ 反応が起こる高いエネルギー領域では核分裂断面積の測定値が存在しないことと、光学模型のパラメータが確実でないことなど、断面積の形や大きさにはかなり不確定要素がある。次章で示す1群断面積では、ORIGEN 2/82とJENDL-3で大きな差が見受けられる。

第6図 核分裂当りの放出中性子数 ν

献(11), (12)に網羅的にまとめられている。崩壊に際して解放されるエネルギーの大半は熱エネルギーとなり、崩壊熱という観点でとらえられる。第7図に、3年間燃焼したFBR燃料ペレット1cc(約10g)からのアクチニド崩壊熱を冷却時間の関数として示す。停止後約1週間までは ^{238}Np の β 崩壊からの、その後1年間は ^{242}Cm

第7図 使用済みFBR燃料ペレットからの熱エネルギー放出(3年燃焼, ORIGEN 2/82)

の α 崩壊からの寄与が支配的であることがわかる。

一方、放出 α 線の一部は軽い核(UO_2 燃料中のOが代表的)との (α, n) 反応で中性子を発生させる。この (α, n) 中性子は、使用済み核燃料から発生する中性子量を評価するのに重要である。 UO_2 燃料中での各アイソトープ1g当りの (α, n) 中性子の発生率を自発核分裂中性子発生率とともに第2表に示す。Cmの同位体からの発生量が多いことがわかる。使用済みのFBR, LWR燃料とも停止後半年くらいまで ^{242}Cm (主に自発核分裂中性子だが (α, n) も無視できない)の寄与が大きく、その後 ^{244}Cm の自発核分裂中性子がこれに取って変わる(第8図)。ちなみに、 (α, n) 中性子の平均エネルギーは約2 MeVであり、自発核分裂中性子のそれとはほぼ同じ程度である。

このほかアクチニドに関連するデータとして核分裂収率に触れておこう。我が国で作成され利用可能なデータベースで核分裂収率を網羅的に納めたものにJNDC FP Nuclear Data Library⁽¹³⁾がある。すでに完成し近日中に公開予定の第2版にはThから ^{242}Pu , ^{252}Cf の11の親核種20セットの核分裂収率が納められている。米国では更にThからAm, Cmを経てEsまで34核種50セットについて核分裂収率データが準備されつつあり、結果はENDF/B-VIIに納められることになっている。

第2表 (α, n) 反応と自発核分裂による中性子生成率

核種	α 放出 分岐比	α 生成率 ⁽¹³⁾ ($\alpha/\text{g}\cdot\text{s}$)	UO_2 ペレットでの (α, n) 中性子発生率 ($\text{n/g}\cdot\text{s}$)	自発核分裂中性子 発生率 ⁽¹⁴⁾ ($\text{n/g}\cdot\text{s}$)
^{238}U	1.0	1.24×10^4	8.13×10^{-5}	1.08×10^{-2}
^{237}Np	0.99	2.60×10^7	3.49×10^{-1}	$< 1.05 \times 10^{-4}$
^{238}Pu	1.0	1.97×10^{13}	5.09×10^5	3.55×10^4
^{239}Pu	1.0	6.33×10^{11}	1.38×10^4	2.54×10^3
^{239}Pu	1.0	2.30×10^9	3.97×10^1	2.26×10^{-2}
^{240}Pu	1.0	8.39×10^9	1.46×10^2	9.0×10^2
^{241}Pu	2.4×10^{-5}	9.15×10^7	1.34	4.94×10^{-2}
^{242}Pu	1.0	1.45×10^9	2.12	1.58×10^3
^{241}Am	1.0	1.27×10^{11}	2.75×10^3	5.69×10^{-1}
^{242}Am	1.0	7.38×10^9	1.37×10^2	4.2
^{240}Cm	1.0	7.45×10^{14}	2.74×10^7	6.98×10^7
^{241}Cm	0.01	6.11×10^{12}	1.77×10^5	8.58×10^1
^{242}Cm	1.0	1.23×10^{14}	4.18×10^6	1.97×10^7
^{243}Cm	0.997	1.90×10^{12}	5.09×10^4	1.22×10^3
^{244}Cm	1.0	2.99×10^{12}	7.92×10^4	1.16×10^7
^{245}Cm	1.0	6.35×10^9	1.25×10^3	3.88×10^1

Ⅲ. アクチニド生成量評価と核データ

1. 燃焼計算用1群断面積

アクチニド核種生成量の評価には、原子炉の中性子

スペクトルで平均した1群断面積を用いるが、主要アクチニド断面積だけでなく minor actinideの核分裂と捕獲断面積、 ^{232}Th , ^{233}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{239}Pu の $(n, 2n)$ 反応断面積および崩壊の分岐比が重要である。第3表

第 3 表 核分裂および捕獲 1 群断面積の比較 (ORIGEN 2 スペクトルで
平均した JENDL-3 の断面積と ORIGEN 2/82 データ)

(barns)

核 種		PWR		BWR		FBR	
		核分裂	捕 獲	核分裂	捕 獲	核分裂	捕 獲
²³² Th	JENDL-3	0.0239	3.07	0.0192	3.21	0.0119	0.349
	ORIGEN 2	0.0222	3.05	0.0179	3.20	0.0119	0.383
²³¹ Pa	JENDL-3	0.292	59.9	0.257	61.9	0.197	1.74
	ORIGEN 2	0.368	67.4	0.330	69.8	0.275	2.94
²³³ Pa	JENDL-3	0.107	25.2	0.0916	26.1	0.0643	1.37
	ORIGEN 2	0.146	24.7	0.119	25.6	0.0768	1.06
²³³ U	JENDL-3	65.8	7.91	67.6	8.14	2.67	0.242
	ORIGEN 2	62.3	7.58	64.5	7.84	2.73	0.268
²³⁴ U	JENDL-3	0.461	22.6	0.415	23.6	0.338	0.496
	ORIGEN 2	0.450	19.2	0.397	20.9	0.371	0.611
²³⁵ U	JENDL-3	—	—	—	—	—	—
	ORIGEN 2	46.7	10.5	50.0	11.2	1.92	0.558
²³⁶ U	JENDL-3	0.297	8.53	0.273	8.98	0.110	0.428
	ORIGEN 2	0.198	7.54	0.165	8.25	0.119	0.551
²³⁸ U	JENDL-3	0.0939	—	0.0763	—	0.0477	—
	ORIGEN 2	0.100	0.902	0.0808	0.919	0.0499	0.288
²³⁷ Np	JENDL-3	0.478	37.9	0.426	39.1	0.343	1.58
	ORIGEN 2	0.524	32.1	0.462	34.1	0.377	1.52
²³⁶ Pu	JENDL-3	14.6	21.1	14.8	21.9	0.675	0.914
	ORIGEN 2	20.6	20.4	21.4	21.1	1.53	0.392
²³⁸ Pu	JENDL-3	2.73	40.8	2.73	41.9	1.13	0.649
	ORIGEN 2	2.47	34.7	2.49	37.3	1.19	0.731
²³⁹ Pu	JENDL-3	—	—	—	—	—	—
	ORIGEN 2	106.	58.6	114.	63.1	1.85	0.502
²⁴⁰ Pu	JENDL-3	0.547	—	0.497	—	0.391	—
	ORIGEN 2	0.584	104.	0.527	111.	0.411	0.513
²⁴¹ Pu	JENDL-3	139.	46.3	142.	47.5	2.48	0.465
	ORIGEN 2	118.	38.7	126.	41.5	2.51	0.462
²⁴² Pu	JENDL-3	0.398	30.2	0.353	31.2	0.275	0.467
	ORIGEN 2	0.415	31.7	0.404	33.1	0.296	0.427
²⁴¹ Am	JENDL-3	1.14	120.	1.10	124.	0.290	1.68
	ORIGEN 2	1.12	119.	1.13	122.	0.333	1.73
^{242m} Am	JENDL-3	780.	153.	796.	156.	3.03	0.528
	ORIGEN 2	466.	98.0	476.	100.	4.04	0.393
²⁴³ Am	JENDL-3	0.417	51.4	0.371	53.3	0.213	1.51
	ORIGEN 2	0.396	49.8	0.385	51.6	0.261	1.08
²⁴² Cm	JENDL-3	1.46	4.51	1.42	4.68	0.739	0.490
	ORIGEN 2	0.559	5.80	0.555	6.03	0.191	0.337
²⁴³ Cm	JENDL-3	94.9	15.4	97.6	15.8	2.94	0.361
	ORIGEN 2	71.7	8.39	74.1	8.70	2.68	0.244
²⁴⁴ Cm	JENDL-3	0.800	15.9	0.750	16.9	0.442	0.665
	ORIGEN 2	0.875	13.8	0.871	14.4	0.472	0.834
²⁴⁵ Cm	JENDL-3	150.	24.1	154.	24.7	2.60	0.336
	ORIGEN 2	171.	29.1	175.	29.7	2.65	0.311
²⁴⁶ Cm	JENDL-3	0.527	3.18	0.479	3.30	0.289	0.327
	ORIGEN 2	0.576	2.91	0.568	3.03	0.307	0.235
²⁴⁷ Cm	JENDL-3	22.2	17.5	22.9	18.1	2.26	0.462
	ORIGEN 2	25.5	16.5	26.2	17.0	1.93	0.305
²⁴⁸ Cm	JENDL-3	0.728	6.70	0.698	7.10	0.307	0.250
	ORIGEN 2	0.756	6.32	0.756	6.60	0.343	0.248

第8図 使用済みFBR燃料ペレットからの中性子放出(3年燃焼, ORIGIN 2/82)

に, JENDL-3に基づいてORIGIN 2の典型的なPWR, BWR, FBR スペクトル(PWRU, BWRU, EMOPU/U/U/Cスペクトル)で平均した無限希釈の捕獲, 核分裂断面積を ORIGIN 2/82(主に ENDF/B-V に基づいている)の値と比較して掲げる。 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu については, ORIGIN 2 と比較するためには共鳴自己遮蔽効果を含める必要があるため, JENDL-3の値は示していない。第4表は, ^{232}U 生成に関連する主な($n, 2n$)反応断面積についての同様の比較を示す。

第4表 ($n, 2n$)反応1群断面積の比較
(第3表に同じ) (milli-barns)

核種		PWR	BWR	FBR
^{232}Th	JENDL-3	4.44	3.22	2.05
	ORIGIN 2	5.09	3.74	1.79
^{233}U	JENDL-3	0.562	0.408	0.250
	ORIGIN 2	2.86	2.10	0.641
^{238}U	JENDL-3	3.74	2.71	1.69
	ORIGIN 2	5.53	4.04	1.78
^{237}Np	JENDL-3	0.947	0.688	0.457
	ORIGIN 2	1.06	0.813	0.501
^{239}Pu	JENDL-3	1.09	0.793	0.468
	ORIGIN 2	1.12	0.818	0.382

JENDL-3とORIGIN 2/82の間には多くの重要反応についてかなりの差が見られる。約半数の体系, 反応について10%以上のズレがあり, 特に ^{242}Cm , ^{242m}Am については大幅な違いがある。これは第Ⅱ章で核データ評価の見地から述べたことである。 $(n, 2n)$ 反応断面積については, 特に ^{233}U でJENDL-3とORIGIN 2/82

との間かなりの差が見られる。

^{232}U 生成の主パスである $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236m}\text{Np}$ 断面積値が従来問題になっていたが, 第Ⅱ章で述べたように, 最近ほぼ解決されたとみられる。しかし, この反応のしきい値は約6 MeVであるので, 1群断面積にする場合, 全体のスペクトルに対する6 MeV以上の高エネルギー成分の割合(約0.6~1%)がどの程度良い精度で求められているのかという炉物理的な問題があらう。もう1つの問題は ^{232}U の親核種である $^{236}\text{Pu}(2.85\text{ y})$ の吸収断面積値であり, 測定値がほとんどないので不確かさが大きい。高中性子束の炉で ^{237}Np , ^{239}U のクリーンな照射実験が行われれば大変有用である。 ^{237}Np の照射データは ^{238}Pu 生成評価についても有用なデータであらう。

2. 測定値と計算値との比較

核燃料サイクルにおいて, 炉心燃焼によって生成されるアクチニド核種の生成量を正確に評価することが重要である。しかし, 解析に容易に使える使用済み燃料の公開実測データは少なく, 燃焼解析もORIGIN 2のような簡易計算コードが多く用いられている。最近このORIGIN手法に対する改良がデータと手法の面から行われている。西ドイツのOREST(HAMMER-ORIGIN)⁽¹⁶⁾や原研のSMUBURN(SRAC-FPGS)⁽¹⁷⁾などの燃焼解析シミュレーションコードの開発である。これらのコードは非均質セル計算からスタートして, 炉心の領域に依存した中性子束で燃焼計算が可能である。本節では, SMUBURNとORIGIN 2による燃焼計算結果の比較を示して, アクチニド核種の生成量予測精度の現状を述べる。核データはSMUBURNでは, JENDL-2と-3, ORIGIN 2ではENDF/B-IVと-Vに基づいている。

最近, 7~39 GWd/tまでのPWR-UO₂使用済み燃料での核種分析測定とORIGIN 2による計算が中原らによって行われた⁽⁶⁾。さらにSMUBURNによる計算を実施し, 測定データとの比較を行なった。第9図と第5表にその結果を示す。ただし, ここでの測定値は測定データのバラツキを補正するために, 測定データを燃焼度の関数として最小自乗法で求めた値である。第9図には, 長寿命の高レベル廃棄物核種についての測定値からの差を示す。 ^{237}Np と ^{241}Am に対して, SMUBURNとORIGIN 2では燃焼初期に顕著な差が見られる。 ^{243}Am ではどちらの結果も測定値を大きく過小評価している。第5表には, 測定値からの差の平均値とその標準偏差(1σ)が示されている。ORIGIN 2では ^{239}Pu の量を過小評価(9%)していることが, 高位の

第9図 PWR使用済み燃料中の ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am 生成量の測定値と, ORIGEN2およびSMUBURNによる計算値との差

第5表 PWR使用済み燃料の同位元素濃度の比較(ORIGEN2とSMUBURNによる計算値と測定値の%差)

核種	ORIGEN2	SMUBURN
$^{234}\text{U}/\text{U}$	11.8 ± 2.1	11.5 ± 2.4
$^{235}\text{U}/\text{U}$	-0.2 ± 0.8	0.9 ± 3.3
$^{236}\text{U}/\text{U}$	-0.4 ± 3.0	5.1 ± 2.4
Pu/U	-9.0 ± 2.0	-0.5 ± 2.0
$^{238}\text{Pu}/\text{U}$	-19.9 ± 6.4	-9.9 ± 5.1
$^{239}\text{Pu}/\text{U}$	-8.6 ± 2.7	1.8 ± 4.3
$^{240}\text{Pu}/\text{U}$	-5.7 ± 1.7	-5.8 ± 4.4
$^{241}\text{Pu}/\text{U}$	-13.4 ± 5.1	5.7 ± 8.2
$^{242}\text{Pu}/\text{U}$	-23.5 ± 4.7	-5.3 ± 5.8
$^{237}\text{Np}(\text{g/t U})$	-2.9 ± 5.9	4.1 ± 2.7
$^{241}\text{Am}(\text{g/t U})$	-12.1 ± 4.2	3.5 ± 2.0
$^{243}\text{Am}(\text{g/t U})$	-26.0 ± 6.5	-20.3 ± 6.0
$^{242}\text{Cm}(\text{g/t U})$	-7.3 ± 6.3	-14.3 ± 4.9
$^{243}\text{Cm}(\text{g/t U})$	22.8 ± 3.9	6.4 ± 0.4
$^{244}\text{Cm}(\text{g/t U})$	-39.3 ± 10.8	-0.6 ± 8.8

アクチニド核種の大きな過小評価の一因になっていると考えられる。

HesseのORESTとSCALE(ORIGENS)による測定解析結果⁽¹³⁾でも, AmやCmでは測定値からの差が非常に大きいことが報告されている。

以上述べたように, 燃焼測定データとその解析計算では大きな差が見られ, 今後精度の良いベンチマーク問題を設定し, 核データおよび計算手法の精度の向上を計ることは, 核燃料サイクルのバックエンドを考え

たとき非常に重要であるといえる。

IV. TRUの消滅処理

1. 消滅処理の背景

再処理施設からの高レベル廃液中のFP放射能は200年程度の冷却で極めて小さくなるが, TRUの放射能は数100万年以上にわたって続く。TRUとFPを群分離し, 強力な放射線場で照射変換する研究は1970年代に米国で広範に行われた。日本でも高速炉, 軽水炉, 核融合炉, 加速器などによる理論的研究が開始されている。

照射消滅の計算においても, 前述したようなminor actinide断面積の不確かさが結果に大きく影響する。それについては次節で述べる。放射線毒性評価も従来は最大許容濃度 MPC(maximum permissible concentration)に基づいており, 今年4月から実施になった年間摂取限界ALI(annual limit of intake)に基づく基準(昭和63年7月21日科学技術庁告示 第20号。これはICRP Pub. 30, Part 4 (1987)に準拠)で評価し直す必要がある。ALI基準はMPCに比べて, Pu, Am, Cmについては10~30倍, ^{237}Np については約60倍厳しくなっている。 ^{237}Np の毒性はMPC基準ではほぼ無害とされていたのが, 新基準では燃料製造に必要な天然U量の毒性とはほぼ同じレベルである。したがって, Npも消滅の対象として考慮すべきであろう。

2. TRU専焼炉

軽水炉や高速炉の発電炉を利用して, TRUを消滅させうる可能性の検討も行われているが, 大量のTRUを発電炉で使用するため, 燃料の再処理, 加工, 運搬等取扱全般に, 放射線遮蔽追加, 遠隔操作, 除熱対策等が必要になり, 核燃料サイクル全体が複雑になるという問題が考えられる。このため, 再処理工場に隣接したTRU消滅処理専用原子炉(専焼炉)の導入が提案され, その概念設計が検討されている⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾。本節では, TRUを主体とする金属燃料集合体からなる専焼炉において, TRU核種の持つ核データの不確かさが核特性量に及ぼす影響について述べる。

この専焼炉の主要諸元を第6表⁽¹⁹⁾に示す。この炉は稠密な金属燃料格子からなる小型炉心であるため, 第10図に示すように, MOX燃料の大型高速炉に比べて非常に中性子スペクトルが硬くなっている。

ここでは, 評価済み核データ・ファイルJENDL-2, ENDF/B-IVと-Vに基づいて, アクチニド核種のJFS-3-J2ライブラリー型⁽²⁰⁾の群定数を作成し, 2次元拡散燃焼計算を実施して各データ間の相違が核特性に及ぼす影響について検討した。ENDF/B-IVと-Vで欠如して

第6表 TRU専焼炉の主要目

炉出力	170 MWt
燃料組成	内側炉心 58 Np-22 Pu-20 Zr
	外側炉心 60 AmCm-35 Pu-5 Y
	ペレット径 4.0 mm
	ピン径 5.2 mm
	ピン・ピッチ 6.0 mm
初期装荷量	²³⁷ Np 255 kg
	Am, Cm 199 kg
	Pu 212 kg

第10図 MOX燃料高速炉(LMFBR)と金属燃料アクチニド専焼炉(ABR)の中性子スペクトル

いる核種については JENDL-2 のものを代用した。

TRU 燃料の組成データを第7表に示す。これは、濃縮度 3.3% U 燃料を PWR で 33 GWd/t 燃焼させ、3 年冷却後再処理をして、U と Pu を 99.5% 回収し、さらに 5 年冷却後、U, Pu, TRU (Np, Am, Cm) を群分離したときのものである⁽¹⁹⁾。主要な TRU 核種は ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ²⁴³Am, ²⁴⁴Cm であり、これらはいずれもしきい核分裂反応核種である。したがって、これらを燃料として臨界になる原子炉は、中性子スペクトルが十分に硬いことが必要である。中性子スペクトルが硬くなる

第7表 3.3%濃縮U 1,000 MWe PWR 使用済み燃料再処理後の TRU, Pu 年間蓄積量 (33 GWd/t 燃焼後、3 年で再処理、さらに 3 年冷却時の値)

TRU (25.8kg)		Pu (1.8kg)	
核種	組成(%)	核種	組成(%)
²³⁷ Np	56.18	²³⁸ Pu	1.57
²⁴¹ Am	26.40	²³⁹ Pu	49.51
²⁴³ Am	12.00	²⁴⁰ Pu	35.78
²⁴³ Cm	0.03	²⁴¹ Pu	8.49
²⁴⁴ Cm	5.11	²⁴² Pu	4.65
²⁴⁵ Cm	0.28		

としきい値をもつ核反応(σ_f , σ_{in} , $\sigma_{n,2n}$)が重要になり、核データの不確かさは増大する。

第8表には、専焼炉の炉心スペクトルで縮約した TRU 核種に対する 1 群断面積の比較を示す。これらの表から非常に大きな断面積間の差が見られる。第9表には、初期サイクルにおける増倍係数への差が示されている。無限増倍係数についても AmCm-系領域では JENDL-2 と ENDF/B-IV とでは約 14% の極めて大きな差がある。これは第8表からわかるように、²⁴³Am の捕獲断面積に 40% もの差が見られることが一因であ

第8表(a)~(d) 1 群微視断面積の比較

(a) 捕獲断面積 (barn)

核種	JENDL-2	ENDF/B-IV	ENDF/B-V
²³⁷ Np	0.711	0.682	0.678
²³⁸ Pu	0.466	0.384	0.380
²³⁹ Pu	0.196	0.193	—
²⁴¹ Am	1.04	0.495	0.960
²⁴³ Am	0.786	0.479	0.450
²⁴⁴ Cm	0.289	0.479	0.453
²⁴⁵ Cm	0.108	—	0.172

(b) 核分裂断面積 (barn)

²³⁷ Np	0.575	0.562	0.577
²³⁸ Pu	1.33	1.29	1.29
²³⁹ Pu	1.69	1.65	—
²⁴¹ Am	0.587	0.456	0.531
²⁴³ Am	0.482	0.395	0.427
²⁴⁴ Cm	0.732	0.656	0.697
²⁴⁵ Cm	2.17	—	2.19

(c) 非弾性散乱断面積 (barn)

²³⁷ Np	1.16	1.052	1.17
²³⁸ Pu	1.15	0.567	0.57
²³⁹ Pu	0.792	0.699	—
²⁴¹ Am	0.962	1.26	1.01
²⁴³ Am	1.36	1.51	1.56
²⁴⁴ Cm	0.616	0.788	0.810
²⁴⁵ Cm	0.468	—	1.31

(d) ν 値

²³⁷ Np	2.78	2.95	2.95
²³⁸ Pu	3.08	3.05	3.07
²³⁹ Pu	2.99	2.98	—
²⁴¹ Am	3.54	3.40	3.43
²⁴³ Am	3.57	3.67	3.68
²⁴⁴ Cm	3.55	3.78	3.79
²⁴⁵ Cm	3.95	—	3.96

第9表 サイクル初期における中性子増倍係数の比較

	JENDL-2	ENDF/B-IV	ENDF/B-V
k_{∞} 内側炉心	1.520	1.592	1.604
外側炉心	1.853	2.103	1.895
k_{eff}	1.031	1.065	1.056

る。実効増倍係数に対しては JENDL-2 と ENDF/B-IV、-V では、3.3 および 2.4% の大きな差が生じる。

上述の炉心核特性だけでなく、燃料再処理工程および製造工程での臨界安全の確保という基本的立場から、TRU 燃料の最小臨界量を検討する必要がある。ここでは TRU 金属燃料の球が厚さ 30 cm の SUS 反射体で囲まれたとき、 k_{eff} が 0.9 以下となる臨界未満最小質量量を TRU (60 AmCm-35 Pu-5 Y 燃料組成) および主要な単体核種について検討した。計算は 1 次元輸送コード SRAC-ANISN⁽²¹⁾ で P_0S_0 近似によった。群定数ライブラリーは SRACLIB-JENDL 2 を標準とした。核データ間の差を調べるためには、JENDL-2 を用いて求めた臨界未満最小質量に対する k_{eff} の計算を ENDF/B-IV と -V に対して実施した。

計算の結果を第 10 表に示す。TRU 燃料組成での臨界未満最小質量は 12 kg である。またこの質量に対して計算された ENDF/B-IV と -V による k_{eff} は、それぞれ 0.88 と 0.91 と JENDL-2 に良く一致している。しかし、この表には各 TRU 核種ごとの計算も示しており、それらを JENDL-2、ENDF/B-IV と -V について比較すると、 ^{241}Am 、 ^{243}Am など非常に大きな差が見られる。したがって、TRU 組成での一致は各核種間の k_{eff} への寄与率の相殺による偶然のものである。

第 10 表 JENDL-2 による臨界未満質量およびそれに対する実効増倍係数の比較

燃料・核種	質量 (kg)	半径 (cm)	k_{eff}		
			JENDL-2	ENDF/B-IV	ENDF/B-V
TRU	12.0	5.8	0.90	0.88	0.91
^{237}Np	34.7	7.4	0.90	0.96	0.94
^{238}Pu	3.9	3.6	0.90	0.88	0.89
^{239}Pu	3.7	3.6	0.90	0.88	—
^{240}Pu	16.2	5.8	0.90	0.92	—
^{241}Pu	4.6	3.8	0.90	0.92	—
^{242}Pu	31.1	7.2	0.90	0.97	0.86
^{241}Am	22.3	7.3	0.90	0.67	0.79
$^{242\text{m}}\text{Am}$	3.7	4.0	0.90	—	0.98
^{243}Am	47.6	9.4	0.90	0.63	0.86
^{244}Cm	12.0	6.0	0.90	0.98	1.00
^{245}Cm	2.6	3.6	0.90	—	0.96

以上述べたように、TRU 専焼炉の設計研究を進めるためには、基礎データである TRU 核種の核データの精度の向上が必要である。さらに、ここでは述べなかったが、TRU 核種の動特性パラメータが不足しており、安全性の観点からこのデータの測定および評価が重要な課題となっている。

V. むすび

Minor actinide の断面積や崩壊データ等の現状を示した。最近の測定により、核データの改良がみられるとはいえ、まだまだ不十分である。重要な核反応の幾つかについては未だに測定値が欠如していることがその原因の 1 つである。今後、核データの整備を進めるためには、国内でも微分的あるいは積分的な測定が行われることが望まれる。また、国内、国外の使用済み燃料の精度の良い核種分析データを収集して燃焼計算のベンチマーク問題を作成し、核データの評価に積極的に反映して行くことも重要であろう。

JENDL-3 の核燃料サイクル評価への適用はこれからである。またこのために使い易い形での JENDL 特殊目的データファイルの編集やデータブック出版の計画が進められている。第 3 表に掲げたスペクトル以外に、ORIGEN の他のスペクトルおよび高転換軽水炉スペクトルなどでも 1 群断面積を作成し出版を予定している。諸賢の批判、協力により、ぜひ良いものにしてきたいと願っている。

— 参考文献 —

- (1) 原研核データセンター JENDL 編集グループ：私信。
- (2) CROFF, A.G.: *Nucl. Technol.*, **62**, 335 (1983).
- (3) KUSTERS, H.: *Proc. 3rd Advisory Group Mtg. on Transactinium Isotope Nuclear Data, Uppsala, May, 1984, IAEA-TECDOC-336*, p. 9 (1984).
- (4) SCHENTER, R.E., MYIAK, M.A.: *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Mito, 1988*, p. 1079 (1989).
- (5) NAKAHARA, Y., et al.: To be published in *Radiochim. Acta*.
- (6) 例えば, ALAM, B., et al.: *Nucl. Sci. Eng.*, **99**, 267 (1988).
- (7) 例えば, FOMUSHKIN, E.F., et al.: *Sov. At. Energy*, **62**, 337 (1987).
- (8) BEHRENS, J.W., HOWERTON, R.J.: *Nucl. Sci. Eng.*, **65**, 464 (1978).
- (9) HOWERTON, R.J.: *ibid.*, **62**, 438 (1977).
- (10) TUTTLE, R. J.: *INDC(NDS)-107/G+Special*, 29 (1979).
- (11) LEDERER, C.M., SHIRLEY, V.S.: "*Table of Isotopes*", (7th ed.), (1978), John Wiley.
- (12) BROWNE, E., FIRESTONE, R.B.: "*Table of Radioactive Isotopes*", (1986), John Wiley.
- (13) MATSUNOBU, H.: Private communication, (1989).
- (14) RAMAN, S.: *Proc. IAEA Mtg. on Transactinium Isotope Nuclear Data*, (1976).
- (15) TASAKA, K., et al.: *JAERI* 1287, (1983).
- (16) HESSE, U.: *Nucl. Technol.*, **82**, 173 (1988).
- (17) TAKANO, H., et al.: Private communication.
- (18) MUKAIYAMA, T., et al.: *Proc. Int. Reactor Phys. Conf.*, Vol. 1, 369 (1988).
- (19) 高野秀機, 他: *JAERI-M* 89-072, (1989).
- (20) 高野秀機, 他: *JAERI-M* 82-135, (1982).
- (21) TSUCHIHASHI, K., et al.: *JAERI* 1302, (1986).