

JAERI-M
9993

NEANDC(J)79/ U
INDC(JAP)66/ L

核燃料サイクル全般にわたる核データ
要求調査報告

1982年2月

シグマ研究委員会 核構造・崩壊データ専門部会
燃料サイクル核データワーキンググループ
(編) 梅沢 弘一・久武 和夫*

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷機

核燃料サイクル全般にわたる核データ要求調査報告

日本原子力研究所シグマ研究委員会核構造・崩壊データ専門部会
燃料サイクル核データワーキンググループ

(編) 梅沢 弘一・久武 和夫*

(1982年1月28日受理)

核燃料サイクル全般にわたり潜在する核データの要求を明らかにし、核データの整備向上に資するため、シグマ研究委員会、核構造・崩壊データ専門部会に設置された燃料サイクル核データワーキンググループが行った調査結果をまとめた。ウラン・プルトニウム燃料サイクルを対象に、原子炉炉心設計に関係するところ以外の燃料サイクルに含まれる全過程について、核データの使用されかたを調べ、問題点を摘出整備するとともに対処案を提言した。

*) 東京工業大学, 応用物理

A Survey of Nuclear Data Requirements through
the Uranium-Plutonium Fuel Cycle

Working Group on Nuclear Data for Nuclear Fuel Cycle,
Japanese Nuclear Data Committee

Editors: Hirokazu UMEZAWA and Kazuo HISATAKE*

(Received January 28, 1982)

Since 1978, a working group has been set in JNDC and made a survey of the potential needs on nuclear data over the uranium-plutonium fuel cycle which has been developed in Japan. Current status on the uses of nuclear data are reviewed in the various areas: Mining and milling, enrichment, fabrication of uranium and plutonium fuels, spent fuel reprocessing, transportation of nuclear material, radiation shielding, environmental safety, actinides incineration study, reactor dosimetry, and safeguards of nuclear material. A wide variety of data was required, which were classified in terms of decay data, cross sections and fission-product yields. The need of covariance file with the evaluated cross section data was recognized. Furthermore, users in the various areas were in need of reasonable data sets connecting with some computer codes which could predict the amounts of actinides and fission products in the irradiated LWR fuels. The requirements are summarized and desirable actions for those are recommended.

Keywords: Nuclear Fuel, Fuel Cycle, Nuclear Data, Uranium, Plutonium,
LWR Fuel, Fission Reactors, JNDC

* Tokyo Institute of Technology, Dept. of Applied Physics

目 次

1. 緒 言	1
2. 燃料サイクル核データワーキンググループ活動の概要	1
3. 核燃料サイクル諸過程における核データ使用状況と問題点	3
3.1 資源開発における核データの問題	3
3.2 ウラン濃縮における核データの問題	3
3.3 ウラン燃料加工施設における保障措置と核データの必要性について	4
3.4 原子炉ドシメトリーと核データ	8
3.5 使用済核燃料再処理における核データの必要性	18
3.6 プルトニウム-ウラン燃料加工における核データの必要性	21
3.7 核物質輸送の分野での核データの問題点	34
3.8 遮蔽解析における線源評価と核データ	36
3.9 環境安全における核データおよび計算コード	47
3.10 アクチノイド核燃焼に関する核データの問題	51
3.11 保障措置で用いる核データ	67
4. 核データに対する要求の現状	68
5. 結論と提言	79
参考文献	81
燃料サイクル核データワーキンググループ委員および協力メンバー	84

Contents

1. Introduction	1
2. Summary of the activities of the working group on nuclear data for fuel cycle	1
3. The state of use of nuclear data in the uranium-plutonium fuel cycle	3
3.1 Mining and milling of uranium	3
3.2 Uranium enrichment	3
3.3 Uranium-fuel fabrication	4
3.4 Reactor dosimetry	8
3.5 Fuel reprocessing	18
3.6 Plutonium-fuel fabrication	21
3.7 Nuclear material transportation	34
3.8 Radiation-shield analysis	36
3.9 Environmental safety study	47
3.10 Actinoids incineration study	51
3.11 Nuclear material safeguards	67
4. Current requests to nuclear data	68
5. Conclusion and recommendation	79
References	81
List of contributors	84

1. 緒 言

シグマ研究委員会では、53年度から核構造・崩壊データ専門部会内に燃料サイクル核データ・ワーキンググループを発足させた。グループリーダーには梅沢弘一氏が指命された。本ワーキング・グループの発足の主旨は、その前身である燃料計量核データ・ワーキンググループの経験に基づき、核燃料サイクルの各過程に必要な核データを洗い出し、取りまとめて核データ専門家に取りつぐことにあった。したがって、本ワーキング・グループの構成は、燃料サイクルの各過程の専門家と少数の核データ専門家とした。

ワーキング・グループメンバーの3年間の熱心な活動が実り、ほぼ初期の目的を達したので、以下のような報告書に取りまとめた。 [久武 和夫]

2. 燃料サイクル核データワーキンググループ活動の概要

本ワーキンググループの前身であった燃料計量核データワーキンググループでの調査の結果、中性子断面積データ以外にも、多種多様な核データについての要求が原子炉関係以外の多くの部門に潜在していることが認められた。しかし多くの場合、それら核データの利用者の要求と核データを整備・供給する側との間にギャップがあり、要求の把握とそれへの対応が十分でなかった。本ワーキンググループは、図 2.1 に示すようにこの間の調整を行い、核燃料サイクル全般にわたりにかかれた核データの要求を明らかにし、核データ活動の対象を拡げ、また有効たらしめることを目標にした。

この目標に沿って、ワーキンググループは燃料サイクルを構成する種々の過程の技術的内容を実際に熟知している者と核データの測定、評価および使用に多く関係してきた者とを委員に含めた構成としたほか、随時各分野の専門家の協力を得て調査活動を進めた。ワーキンググループの委員および協力されたメンバーは、別添一覧表のとおりである。

ワーキンググループ活動の対象に考えられる範囲はきわめて広く、各種の代替燃料サイクルまで含めて完全な調査をしようとするれば、いつ終了するかわからぬ作業になるので、当面実用になっているウラン・プルトニウム燃料サイクルをとりあげて、これに関連する諸部門毎に核データの使用状況を調査し、核データの要求あるいは問題点の抽出・整理を進めることとした。ワーキンググループの実際の活動は 53年度後半から始められたが、この各分野についてのレビュー作業は、55年度前半までの期間にわたる7回の会合において実施された。

調査の方法としては、分野毎に担当者を定めて出来るだけ現場の利用者としての生の声を集めた。これらの内容は次章に詳細にまとめられている。多くの場合、要求はきわめて複雑多岐にわたり、当初は核データの整備・供給者の側からすればまとまった要求になっていないとみえるところもあったが、実際の利用者と核データの整備・供給に関する者とが共存する本ワーキンググループの場での討論を重ねて、問題の抽出整理を進めた。こうして主要な分野について、ひとと

1. 緒 言

シグマ研究委員会では、53年度から核構造・崩壊データ専門部会内に燃料サイクル核データ・ワーキンググループを発足させた。グループリーダーには梅沢弘一氏が指命された。本ワーキング・グループの発足の主旨は、その前身である燃料計量核データ・ワーキンググループの経験に基づき、核燃料サイクルの各過程に必要な核データを洗い出し、取りまとめて核データ専門家に取次ぐことにあった。したがって、本ワーキング・グループの構成は、燃料サイクルの各過程の専門家と少数の核データ専門家とした。

ワーキング・グループメンバーの3年間の熱心な活動が実り、ほぼ初期の目的を達したので、以下のような報告書に取りまとめた。 [久武 和夫]

2. 燃料サイクル核データワーキンググループ活動の概要

本ワーキンググループの前身であった燃料計量核データワーキンググループでの調査の結果、中性子断面積データ以外にも、多種多様な核データについての要求が原子炉関係以外の多くの部門に潜在していることが認められた。しかし多くの場合、それら核データの利用者の要求と核データを整備・供給する側との間にギャップがあり、要求の把握とそれへの対応が十分でなかった。本ワーキンググループは、図2.1に示すようにこの間の調整を行い、核燃料サイクル全般にわたりにかかれた核データの要求を明らかにし、核データ活動の対象を拡げ、また有効たらしめることを目標にした。

この目標に沿って、ワーキンググループは燃料サイクルを構成する種々の過程の技術的内容を実際に熟知している者と核データの測定、評価および使用に多く関係してきた者とを委員に含めた構成としたほか、随時各分野の専門家の協力を得て調査活動を進めた。ワーキンググループの委員および協力されたメンバーは、別添一覧表のとおりである。

ワーキンググループ活動の対象に考えられる範囲はきわめて広く、各種の代替燃料サイクルまで含めて完全な調査をしようとするれば、いつ終了するかわからぬ作業になるので、当面実用になっているウラン・プルトニウム燃料サイクルをとりあげて、これに関連する諸部門毎に核データの使用状況を調査し、核データの要求あるいは問題点の摘出・整理を進めることとした。ワーキンググループの実際の活動は53年度後半から始められたが、この各分野についてのレビュー作業は、55年度前半までの期間にわたる7回の会合において実施された。

調査の方法としては、分野毎に担当者を定めて出来るだけ現場の利用者としての生の声を集めた。これらの内容は次章に詳細にまとめられている。多くの場合、要求はきわめて複雑多岐にわたり、当初は核データの整備・供給者の側からすればまとまった要求になっていないとみえるところもあったが、実際の利用者と核データの整備・供給に関する者とが共存する本ワーキンググループの場での討論を重ねて、問題の摘出整理を進めた。こうして主要な分野について、ひとと

3. 核燃料サイクル諸過程における核データ使用状況と問題点

3.1 資源開発における核データの問題

資源開発は、従来の金属鉱山と基本的には何も変わっているところはなく、製品がウランであるということが核燃料サイクルの端緒を担っている理由にすぎない。

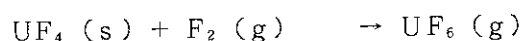
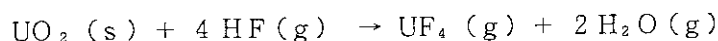
ウラン鉱を粉砕した後、硫酸によってウランを浸出させる事が多いが、鉱石の種類によっては硝酸、塩酸あるいは炭酸ソーダ等を用いる。その後、アルカリ又は酸による析出あるいはイオン交換、溶媒抽出等でウランを抽出し、さらに精製練して原子炉級の製品へと加工する。

これ等の工程において問題となるのは化学形態であり、核データが現状の精度以上に必要とされることはないと思われる。 [桂川 正巳]

3.2 ウラン濃縮における核データの問題

ウランの濃縮法には、ガス拡散法、遠心分離法、ノズル法その他の化学的な方法があるが、現在日本では遠心分離法が最も開発が進んでおり、人形峠にパイロットプラントが建設され、稼動中である。

遠心分離法では、



という反応で作られた UF_6 のガスを遠心機中に入れて振りまわし、質量の差を利用して ^{235}U を ^{238}U から分離する。

このため、特に通常の場合には核データを必要とする工程は存在しない。但し、原料のUが天然ウランの場合と異なり、再処理において抽出されたDU（減損ウラン）の場合には、次のようないくつかの付随的な問題点を生じる。

- 1) ^{236}U がLWRで照射中に発生するが、これは濃縮の際に ^{235}U の側に多く集り、かつ原子炉中では吸収体として働くため、 ^{236}U の混入割合によって ^{235}U の濃縮度を調整する必要がある。
- 2) 同じく ^{232}U の混入による濃縮工程上の作業員への被曝は大きな問題で、米国の拡散工場では、 ^{235}U に対して110 PPB以上 ^{232}U の含まれているウランは原料として受け入れないとの制限を行っている。この問題はウランが何回かリサイクルされる状態になれば重要となる。このような極微量の不純物の検出ならびにその放射能（娘核種を含む）の評価のための核データが今後問題となる。
- 3) その他に、DUに含まれる核分裂生成物の不純物が取扱上問題となり得るが、核データの精度がうんぬんされる状態には到っていない。 [桂川 正巳]

3.3 ウラン燃料加工施設における保障措置と核データの必要性について

3.3.1 検討方針

保障措置の目的は、平和的な原子力活動から核兵器あるいは他の核爆発装置の製造、または不明用途への有意量の核物質の転用を時宜的に検出すること、および早期発見によって転用を防止することである。このような目的から保障措置システムの基本は、「計量管理システム」とその補足手段である「封じ込めと監視システム」で構成されている。

加工施設において核データの整備がどの程度必要かを検討するには、加工施設の計量管理システムのうち物質収支を算定するための核物質の量を定量する各種測定システムの特長、測定の方法、測定精度等現時点での測定システム上の問題点を洗い出し、それらの問題解決の手段として核データが如何に有効に利用できるかについて総合的な評価をすることが必要である。一方、加工施設に保障措置査察を適用する査察当局の問題として査察者が実施する検証のための測定において核データの整備が転用の検出精度、時宜的検出能力、あるいは α （施設側危険率）および β （査察側危険率）の低減にどの程度寄与することが出来るかどうか、についても検討する必要がある。

3.3.2 加工施設の計量管理と核データの必要性

加工施設における計量管理システムは、保障措置に係わる法的要件、品質管理、工程管理、放射線安全管理、財産管理等の目的を主体として設計されている。

このシステムの基本は、物質収支区域（MBA）に設けられた主要測定点（KMP）における核物質の在庫変動量および在庫量を定量し、ある一定期間の物質収支を確定するものである。

加工施設における工程、核物質の流れ、MBA及びKMPの一例を図3.3.1に示す。

各KMPにおける核物質の物質収支のための定量方法は、現在のところ廃棄物中の U_{235} 量の測定及び品質管理に係わる濃縮度測定等に一部 γ 線測定によるNDAが使われているが、そのほとんどを秤量機による化合物重量の測定、化学分析によるウラン含有率（ $U-w/o$ ）の測定、ガンマスペクトロメトリーによる U_{235} 濃縮度（ $U_{235}-w/o$ ）の測定（分析試料を調製するために溶解）等のdestructive analysisに依存している。

各KMPにおける測定対象及び測定方法、測定精度について表3.3.1に示す。

商業施設において核物質測定システムを設計する場合、その経済性、安全性を十分考慮した上でシステムの有効性が評価されるが、ここでは核データの必要性の検討という目的から現在の測定システムの精度及び信頼性の面での核データの必要性を検討する。

現在低濃縮ウラン加工施設に要求されている国際的な計量管理の目標精度であるMUF（Material Unaccounted For）の誤差限界（ σ MUF）0.3%を一応の目安として現行の測定システムの有効性を評価した場合、測定システムのみ精度、信頼性の面からは一応満足していると考えられる。これからも現在の加工施設における測定システムに関する限り核データの必要性はそれほど高くない。

更に、仮りに何等かの目的から現在の測定精度、信頼性を改善する必要があるとしても測定機

器そのものの改善より先に測定対象物と同一な幾何学的特性を備えた機器校正用の標準試料の開発、サンプリング方法の改善の方が核データの整備と比して重要性が高い。

然し現在の計量管理システムの全てが保障措置の要件を完全に満足している訳ではなく、施設側では将来核物質管理をより信頼性の高いものにする為に計量管理、封じ込め・監視ならびに物理的防護の各システムを機能的に連動させ電算機利用による核物質の実時間管理、所謂 DYNAMIC INVENTORY CONTROL システムの開発が予測されるので、必然的により REAL TIME に近い形で核物質を測定する必要から放射線計測を主体とした NDA 機器がより多く導入されるので、 ^{235}U 、 ^{238}U に関する種々の核データが要求されるようになると思われる。その他、加工施設では、将来、再処理ウランの使用が検討されているが、その場合、再処理工場から供給される二酸化ウラン中のプルトニウムに関する定量的な測定が必要になる。現時点においては、加工々場で再処理ウランを取扱う場合の Pu 含有量の許容範囲、測定方法、測定精度等については検討中であるが、加工施設においても Pu に関連した核データの整備が、将来の計量管理システムにおいて役立つであろう。

3.3.3 保障措置査察での核データの必要性

保障措置の所期の目的が達成していることを検証する手段として査察者は施設者の実施する計量管理目的の測定とは別に所謂「独立測定」を実施することが規定されている。この測定の対象は、施設における核物質の流れ及び在庫の KMP（或いは戦略点）での核物質に対して、施設者の棚卸しで確定した MUF に対して客観的な評価を行なうための統計的理論に基づくサンプリング計画に従い、核物質の秤量、化学分析あるいは NDA によるウラン含有率（ U-w/o ）及び濃縮度（ $\text{U}^{235}\text{ w/o}$ ）の測定を行なうものである。現在実施されているこれらの測定について表 3.3.2 に示す。

尚、現在行なわれている査察者側の測定に関しては、次に掲げる問題がある。

1. 高精度を要求する測定は化学分析を主として行なっているが結果の判明までに時間を要す。
2. 現場での NDA 機器使用において査察員の個人的な技術水準、経験によって精度、信頼性のバラツキが大きい。
3. NDA において測定対象と物理的、幾何学的特性の同一な標準試料が十分でない。

等の早急に解決すべき問題点が残されている。

これ等の問題を解決する上においても核データの整備が直接の鍵になるとは考えられないが、将来核拡散防止の観点から査察者側は転用検出能力の改善、査察業務の合理化等の目的で核燃料サイクルの全てに適用出来る査察機器の開発を必要とするので、これ等の測定機器開発の基礎研究には核データの整備は不可欠であろう。

[長部 猛・佐藤 元重]

表 3.3.1 KMP における測定方法及び精度

測定対象物	関連 KMP	化学形態	物理形態	測定項目	測定方法	推定精度 (%)
原料	③, ④, ⑤	UF ₆	塊	重量	秤量機	±0.04
				U-%	(注1)	(注1)
				U ²³⁵ %	(注1)	(注1)
燃料棒及び燃料集合体	④, ⑦, ⑧, ⑩	UO ₂	粉末	重量	秤量機	±0.04
				U-%	酸化重量法	±0.01
				U ²³⁵ %	パッシブガンマ法	±0.12
					質量分析法	±0.02
				重量	秤量機	±0.02 ~ 0.03
ペレット(仕掛品)	⑤, ⑥, ⑪	UO ₂	ペレット	U-%	酸化重量法	±0.01
				U ²³⁵ %	パッシブガンマ法	±0.12
					質量分析法	±0.02
				重量	秤量機	±0.06
				U-%	酸化重量法	±0.01
スクラップ	⑤, ⑥	UO ₂ U ₃ O ₈ UO _x その他	粉末 ペレット スラッジ その他	U ²³⁵ %	パッシブガンマ法 質量分析法	±0.12 ±0.02
				重量	秤量機	±0.02 ~ 0.2
				U-%	酸化重量法, 又は滴定法	±0.5 ~ 5.0
				U ²³⁵ %	パッシブガンマ法	±0.12
					質量分析法	±0.02
排気, 排水損失	⑥	/	気体	U含有量	アルファ線計数	±50
				U含有量	溶媒抽出法(α, β) 又は蒸発乾固法(α)	±50
固体廃棄物	⑥	UO ₂ F _n -m 各種	凝物 ドラム缶及び使用済み 燃料ター	U-%	分光光度法	±2.5
				U ²³⁵ %	質量分析法	±0.02
				U ²³⁵ 量	パッシブガンマ法 (SMA-II)	±50

(注1) UF₆ は米国 DOE が測定しており, 従って測定方法及び測定精度は米国 DOE のものである。

表 3.3.2 査察に使用された査察機器一覧表

KMP	対象核物質	計数抜取	計数抜取
A, B	原料六フッ化ウラン	NIS - 322 容器厚さ測定器	-
	原料二酸化ウラン粉末	NIS - 322 SAM - II HRG 容器厚さ測定器	SAM - II / 化学分析
C	スクラップ	NIS - 322	SAM - II / 化学分析
D	グリーンペレット	SAM - II	化学分析
E	焼結ペレット	SAM - II	化学分析
F	分析試料	-	-
G	燃料棒	-	NIS - 322 / SAM - II
H	燃料集合体	NIS - 322	-

注: SAM-II : Stabilized Assay Meter
 NIS-322 : Single Channel γ Spectrometer
 HRG : High Resolution Gamma

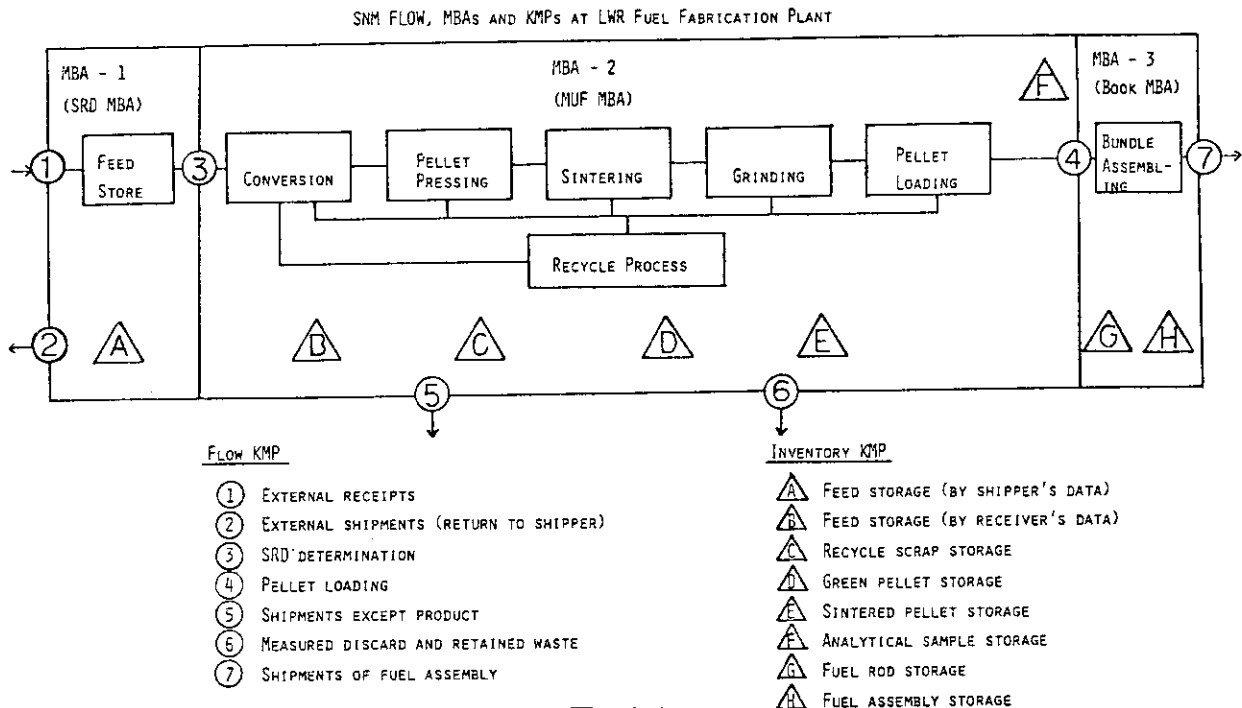


図 3.3.1

3.4 原子炉ドシメトリーと核データ

3.4.1 ドシメトリーの現状

原子炉ドシメトリーとは、炉内中性子場の中性子束値、スペクトル等を評価する手法であり、従来、各原子炉の特性値評価法として、或いは、燃料・材料照射試験における照射量評価法として利用されてきている。歴史的には、原子炉開発期の炉物理実験手法として、或いは計算手法として必要に応じて開発され且つ利用されてきたという背景を有しており、必ずしも工学的に確立された方法となっているわけではない。

最近のドシメトリー研究の中心は、評価した中性子束値或いはスペクトルの精度の検討であり、不確定性解析或いは独立な機関による評価値の相互比較が国内外に於いて極めて精力的に進められている。このような研究の Motive force は、次のような点にある。

(1) 原子炉構造材等の照射効果に関する実測データが蓄積されてきたが、これらをまとめてプロットしてみると、相異なる原子炉間でのデータ、或いは異なる照射場所でのデータに系統的な差異のあることが明確になってきた。この原因は、照射中性子量の評価値の差に帰因するものと考えられ、ドシメトリー手法の再検討とともに共通の照射量として dpa 値などを評価する必要性が生じてきた。

(2) 初期に建設された軽水炉の寿命が近づいており、その寿命決定因子の一つである压力容器の構造健全性を評価するため(1)に示した照射損傷データの高精度化及び、実際の压力容器に照射された中性子量の評価精度をあげることが必須になってきたことなどがあげられる。

(2)で示したことは、現在、米国で「压力容器監視試験用ドシメトリー手法の改良プログラム」がNRCのサポートで進行中であり、ASTM規格としてとりまとめられる計画になっている⁽²⁾。

図3.4.1に検討中のASTM規格とその相互関連図を示した。この図からドシメトリー手法の概要は、およそ理解できると思われるし、これが完成すれば極めて適切なドシメトリーマニュアルとして活用できるものと考えられる。これを、より具体的な形で筆者の私見を混えてドシメトリー作業のフローシートとしてまとめたものが図3.4.2である。この図には、主たる作業項目及びそれに必要なデータ、マニュアルの他にこれらの作業をサポート或いは完備するための研究項目も併せて示した。これらの研究項目のうち、不確定性解析は最も重要であり且つ核データとも極めて密接に関連している。又、この研究がドシメトリーの高精度化及び標準化につながるものであることは言うまでもない。

3.4.2 不確定性解析の研究の現状

放射化反応率の相互比較研究 (ILRRプログラム、⁽³⁾ EBR-II と JOYO の相互比較、弥生炉を用いた比較など) は極めて盛んに行なわれ、現状精度は $\pm 2 \sim \pm 4 \%$ と評価されている。又、多種類の反応率の誤差の成分を分析評価し、これを共分散の形にまとめる作業も実施され始めており、誤差の見落とし等に注意しさえすれば、ほぼ十分な形で不確定性解析は可能と考えられている。

スペクトルの良く分った標準中性子場での実測反応率と計算値との比較を通じて、ドシメトリー断面積の精度を評価する作業 (ドシメトリー断面積のベンチマーク試験) も多くの報告がある。

一例として W. L. Zijp が 1978 年に行なった結果を表 3.4.1 に示す。⁽⁴⁾ この表では、計算によって評価された平均断面積 $\langle \sigma_c \rangle$ の誤差が、次式で計算されて最後の $\langle \rangle$ 内に加えられている点で、他に余り例を見ないものである。

$$\overline{(\Delta \sigma_c)^2} = \sum_{g=1}^G (\Delta \sigma_g)^2 \phi_g^2 \quad (1)$$

但し、 $\Delta \sigma_g$: 断面積 $\sigma(E)$ の g 群における誤差

$$\phi_g : g \text{ 群の中性子束で } \sum_{g=1}^G \phi_g = 1.0 \text{ に規格化済}$$

ここで、 $\Delta \sigma_g$ は McErlog & Kellog による評価値⁽⁵⁾ で SAND-II モンテカルロコードに使用されている値を使用している。なお、Cf-252 の核分裂スペクトルの誤差は NBS 評価値が採用されている。

この表で、殆んどすべての誤差を考慮しても実測値と計算値が consistent でない場合は、測定上の或いは断面積値の誤差評価に誤りがあると見做されるとしている。但し、(1)式の計算では、断面積誤差の対角成分しか用いておらず、共分散を考慮すると、(2)式

$$\overline{(\Delta \sigma_c)^2} = \sum_{g=1}^G \sum_{g'=1}^G \overline{\Delta \sigma_g \cdot \Delta \sigma_{g'}} \phi_g \cdot \phi_{g'} \quad (2)$$

になり、しかも $\overline{\Delta \sigma_g \cdot \Delta \sigma_{g'}} > 0$ ($g \neq g'$) の場合(1)式は誤差を過少評価することになるので注意が必要である。この意味でドシメトリ断面積の共分散成分が適確に評価され且つ使用することは極めて重要なことであるが、この点については後述する。

このようなベンチマーク試験は、今後のドシメトリ研究の中心であり、且つ精度向上のための有力武器と考えられる。現時点では、共分散の評価されている ENDF/B-V のドシメトリファイルについて、完全な評価はなされていないが標準中性子場（但しスペクトルの誤差が十分評価されている必要あり）での反応率データが完備されつつある現在、このような研究の一層の進展が望まれる。

IAEA の "Nuclear Data for Reactor Dosimetry" に関する Advisory Group も、この面で多くの寄与をしており、上述したベンチマーク試験用データファイルの準備の必要性、又、IRDF (International Reactor Dosimetry File) に含まれるべき核種の選定 (表 3.4.2 参照)⁽⁶⁾ 又、放射化反応率より dpa 値を評価するためのデータ処理法の国際相互比較 "REAL-80" プログラムの実施などを進めている。

その他 ASTM には E 10.05.01 Task force on Uncertainty Analysis が設置され、誤差原因及び伝播則についてアンケート調査及びとりまとめなどの活動を行っている。⁽⁷⁾

3.4.3 ドシメトリ断面積誤差の考え方

ドシメトリ断面積の不確定性 (誤差) を定量的に与えることの重要性は、不確定性解析の当初より判っていることなので更に進めて、どのような形で与えられるべきであるかについて考え

てみる。

先に示したように共分散成分を無視すると、平均断面積 $\langle \sigma_c \rangle$ の値の誤差を過少評価するが、この問題以前に偶然誤差と系統的誤差を明確に区別して表示することが必要であることを示そう。例えば、先に示した McEvlog & Kellog の誤差評価例では $^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$ 反応について、1.4 ~ 2.2 MeV の範囲で 10% の誤差があるとしているが、これが偶然誤差（つまり $\Delta\sigma(E_1)$ と $\Delta\sigma(E_2)$ は $E_1 \neq E_2$ のとき無相関）と考えるか、系統的誤差（つまり $\Delta\sigma(E_1) \cdot \Delta\sigma(E_2) = (0.1)^2 \cdot \sigma(E_1)\sigma(E_2)$ と完全に相関がある）と考えるかで、このエネルギー領域 (E_1, E_2) での反応率 R_c の誤差 ΔR_c は全く異なったものになる。つまり、

$$\text{偶然誤差のとき, } \frac{\Delta R_c}{R_c} = \frac{0.1}{\sqrt{E_2 - E_1}} \quad (1')$$

$$\text{系統的誤差のとき, } \frac{\Delta R_c}{R_c} = 0.1 \quad (2')$$

但し、簡単のため $R_c = \int \sigma(E) \phi(E) dE$ において $\sigma(E) = \phi(E) = 1.0$ とした。

この結果より、偶然誤差と考えると dimension 的にもおかしくなり、これは間違いであるとすぐ分かる。ところが前に(1)式で示した計算は、この(1)' 式と全く同じ取扱いをしており、実は誤った計算法であったと言える。

では、この 10% の誤差というのは完全に系統的誤差ばかりで偶然誤差はないのであろうか？ 断面積の測定手順を考えればそれは有得ないことである。では、偶然誤差は、どのような形で表示すべきであろうか？ この解答については、既に説明した（JAERI-M-8769, P66 参照）ので結論を示すと「エネルギー分解能 $\Delta u \doteq \frac{\Delta E}{E}$ のもとで偶然誤差 $\epsilon\%$ 」という表示をすべきであるということになる。又、このとき $\epsilon \sqrt{\Delta u}$ の値が保存量であり、群構造を変えたりする際には、この値を一定に保つように変換すべきであるということになる。

今の例題に戻って 10% のうち 5% が系統的誤差成分であり、残り 5% がエネルギー分解能

$$\Delta u = \frac{2.2 - 1.4}{(2.2 + 1.4)} \times 2 = \frac{4}{9} \text{ での偶然誤差であるとする,}$$

$$\frac{\Delta R_c}{R_c} = 0.05 + 0.05 \sqrt{\Delta u} / \ln(E_2/E_1) \quad (3)$$

ということになる。従って、この 10% の内訳（偶然誤差か系統的誤差か）が明確で且つ適切に表示されていない限り、これ以上計算できなくなるのである。

このような事情は、ENDF/B-V の Covariance-File においても同様である。但し、この場合、完全に系統的誤差であるとして扱えば $\frac{\Delta R_c}{R_c}$ の値については過大評価になるということと言える。（後述するように、これは必ずしも最終評価量の過大誤差評価につながるとは限らないので、これで安心してはいけない。）

次に、このようなドシメトリ-断面積を用いてデータ処理（Unfolding）を行い、dpa 値とか 1 MeV 以上の flux 或いは 0.1 ~ 0.5 MeV 領域の flux などを評価したとする。J1 法

に基づくと、⁽⁸⁾このような評価量 I (但し $I = \int W(u) \phi(u) du$) の誤差は次のように与えられる。

$$(\Delta I) = \int \{W(u) - \sum_{i=1}^N C_i \sigma_i(u)\} \Delta \phi_0(u) du + \sum_i C_i \{ \Delta R_i - \int \Delta \sigma_i(u) \phi_0(u) du \} \quad (4)$$

但し、 $\phi_0(u)$ 、 $\Delta \phi_0(u)$ は推定スペクトル及びその不確定性である。又、係数 C_i は $(\Delta I)^2$ = 最少により求める。

今、推定スペクトルの誤差寄与分を除いて最終誤差を求めると、

$$\overline{(\Delta I)^2} = \sum_i \sum_j C_i C_j \{ \overline{\Delta R_i \cdot \Delta R_j} + \iint \overline{\Delta \sigma_i(u_1) \Delta \sigma_j(u_2)} \phi_0(u_1) \phi_0(u_2) du_1 du_2 \} \quad (5)$$

となる。この結果より分ることは以下の通りである。

- ① 計算により求めた反応率 $R_{ic} = \int \sigma_i(u) \phi_0(u) du$ の誤差 $\Delta R_{ic} = \int \Delta \sigma_i(u) \phi_0(u) du$ は、実測値の誤差 ΔR_i と等価な形で最終誤差 $(\Delta I)^2$ に寄与している。従って、少なくとも反応率測定値と同程度以下の精度で R_{ic} が計算できる必要がある。現状は $\Delta R_i = \pm 2 \sim 4$ % に対し $\Delta R_{ic} = \pm 5 \sim 20$ % であり、より高精度化が望まれる。
- ② 通常、共分散成分 $\overline{\Delta R_i \cdot \Delta R_j}$ 或いは $\overline{\Delta R_{ic} \cdot \Delta R_{jc}}$ は正であることが多いが、 $C_i \cdot C_j > 0$ のとき、これらの共分散は最終誤差 $(\Delta I)^2$ を大きくする方向にきく。ところが、 $C_i \cdot C_j < 0$ のときは、 $(\Delta I)^2$ を小さくする方向にきく。従って、 $C_i \cdot C_j < 0$ のときは $\overline{\Delta R_i \cdot \Delta R_j}$ 或いは $\overline{\Delta R_{ic} \cdot \Delta R_{jc}}$ の共分散成分を過大評価することにより最終誤差 $(\Delta I)^2$ を過少評価してしまうことがある。
- ③ 實際上、係数 C_i の正負については次のように考えられる。つまり $W(E) \doteq \sum_{i=1}^N C_i \sigma_i(E)$ と近似したときの係数であるので、 C_i は $W(E)$ に対応して正にも負にもなり得る。弥生炉のスペクトルを標準的な 13 核種で解析したとき ⁽⁹⁾ $W(E) = 1.0$ とすると係数 C_i の正負はほぼ半々であった。又、 $W(E)$ を変えると係数 C_i の符号はすぐ逆転し、一定符号になる核種は存在しなかった。又、この符号は放射化箔セットの種類或いは対象とするスペクトルによっても変化するものと考えられる。
- ④ 仮に、最終誤差 $(\Delta I)^2$ を過少評価することがないようにしようとするれば、(5)式を

$$\overline{(\Delta I)^2} = \sum_i \sum_j \left| C_i \cdot C_j \{ \overline{\Delta R_i \cdot \Delta R_j} + \overline{\Delta R_{ic} \cdot \Delta R_{jc}} \} \right| \quad (5')$$

の形で絶対値をとる方式に変更することなどが考えられるが、現在、このような形で実用的な精度が得られるのかどうか不明である。

以上のような考察よりドシメトリ-断面積の誤差は、可能な限り正確な表現、つまり $\overline{\Delta \sigma_i(u_1) \cdot \Delta \sigma_j(u_2)}$ の 4 次元共分散形式で、且つ偶然誤差と系統的誤差を区別して求められるべきことが分る。

3.4.4 まとめ

炉原子炉ドシメトリーの研究は評価精度の明確化に中心があり、統計推定学上の言葉で言うと「点推定」（確かそうな値を1つ求める方法）から「区間推定」（解を或る範囲内の値として求める方法）へ移行しつつある時期とも言える。更に将来は「確率分布推定」（解の従う分布関数を求める方法）へ発展するものと考えられるが、この評価値が原子炉の安全性評価に大きな影響を有していることを考えれば、このような方向性は必然の流れであるとも言える。

現在、データ処理法自身はほぼ完備され、これらの入力データとしての反応率、ドシメトリー断面積及び推定スペクトルの不確定性を検討中の段階にあるが、ドシメトリー断面積として要望されることは、前述した通り $d\sigma_i(u_1) d\sigma_j(u_2)$ の4次元共分散でなお且つ、偶然誤差と系統的誤差を区別した表現での値となる。実際には、更に自己遮蔽因子の補正、摂動効果の補正、又はドシメトリー断面積の群定数化に伴う誤差の追加⁽¹⁰⁾があるので、これらをまとめて100群程度のドシメトリー群定数表として不確定性データを含めて標準化することが望ましい。

又、ここでは余り触れなかったが確定スペクトルの不確定性も寄与が大きく⁽⁹⁾、これは使用した輸送計算コード及び群定数の不確定性に帰因している。この方面での不確定性解析も一層の進展が望まれる次第である。

〔中沢 正治, 関口 晃〕

Table 3.4.1 Measured and calculated average activation cross sections in a ^{252}Cf neutron field

reaction	cross section (in mb)		ref.	$\langle \sigma_m \rangle / \langle \sigma_c \rangle$ ***
	measured* $\langle \sigma_m \rangle$	calculated** $\langle \sigma_c \rangle$		
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	76.2 ± 2.4%	76.50	a)	0.996±0.047 (0.069)
$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}^m$	124.1 ± 2.9%	130.3	b)	0.952±0.043 (0.109)
$^{115}\text{In}(n,n')^{115}\text{In}^m$	195 ± 2.6%	189.1	c)	1.032±0.033 (0.077)
$^{113}\text{In}(n,n')^{113}\text{In}^m$	160 ± 2.5%	142.7	c)	1.121±0.033 (0.077)
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	18.9 ± 2.1%	24.06	d)	0.786±0.032 (0.077)
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	118 ± 2.5%	115.0	b)	1.026±0.035 (0.106)
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	84.6 ± 2.4%	85.58	e)	0.989±0.033 (0.077)
$^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$	39.4 ± 2.5%	37.31	e)	1.056±0.034 (0.078)
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	13.8 ± 2.2%	13.46	d)	1.025±0.040 (0.080)
$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	1.450± 2.4%	1.476	b)	0.092±0.057 (0.076)
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	0.42 ± 2.4%	0.4092	d)	1.026±0.071 (0.099)
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	1.006± 2.2%	1.059	b)	0.950±0.076 (0.091)
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{198}\text{Au}$	5.50 ± 2.5%	5.646	a)	0.974±0.103 (0.144)

* Measurements performed by PTB Braunschweig, and reported by
 - Alberts, W.G., Günther, E., Matzko, M., and Rass, G., EUR 5667 e/f, Part II (1977), p.131.
 - Mannhart, W., NEANDC(E)-182U, Vol. V (1977), p.84.

** Calculations are based on the NBS spectrum representation [26] using cross section data from the ENDF/B-IV file, from the ENDF/B-V file under preparation, and from recent experiments.

a) Mughabghab, S.F., Private communication to Mannhart (1977).

b) Magurno, B.A., BNL-NCS-50446 (April 1975).

c) Smith, D.L., and Meadows, J.W., ANL/NDM-14 (July 1975).

d) Philis, L., Bersillon, O., Smith, D., and Smith, A., ANL/NDM-27 (January 1977).

e) Smith, D.L., and Meadows, J.W., ANL/NDM-13 (July 1975).

*** The standard deviation comprises uncertainties of $\langle \sigma_m \rangle$ and of the spectrum, the value given in brackets additionally includes the uncertainty of the $\sigma(E)$ data.

Table 3.4.2

Non-threshold Reactions:

<u>REACTION</u>	<u>LWR</u>	<u>FBR</u>	<u>MFR</u>	<u>REACTION</u>	<u>LWR</u>	<u>FBR</u>	<u>MFR</u>
${}^6\text{Li}(n, \text{total He})$	×	×	×	${}^{98}\text{Mo}(n, \gamma){}^{99}\text{Mo}$	×	×	×
${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}(\ast)$	×	×	×	${}^{100}\text{Mo}(n, \gamma){}^{101}\text{Mo}$	×	×	×
${}^{10}\text{B}(n, \text{total He})$	×	×	×	${}^{103}\text{Rh}(n, \gamma){}^{104}\text{Rh}$	×	×	×
${}^{13}\text{C}(n, \gamma){}^{14}\text{C}$	×	×	×	${}^{108}\text{Pd}(n, \gamma){}^{109}\text{Pd}$	×	×	×
${}^{23}\text{Na}(n, \gamma){}^{24}\text{Na}$	×	×	×	${}^{109}\text{Ag}(n, \gamma){}^{110}\text{Ag}^{\text{m}}$	×	×	×
${}^{30}\text{Si}(n, \gamma){}^{31}\text{Si}$	×	×	×	${}^{114}\text{Cd}(n, \gamma){}^{115}\text{Cd}$	×	×	×
${}^{40}\text{Au}(n, \gamma){}^{41}\text{Au}$	×	×	×	${}^{115}\text{In}(n, \gamma){}^{116}\text{In}^{\text{m}}$	×	×	×
${}^{45}\text{Sc}(n, \gamma){}^{46}\text{Sc}$	×	×	×	${}^{121}\text{Sb}(n, \gamma){}^{122}\text{Sb}$	×	×	×
${}^{50}\text{Cr}(n, \gamma){}^{51}\text{Cr}$	×	×	×	${}^{133}\text{Cs}(n, \gamma){}^{134}\text{Cs}$	×	×	×
${}^{51}\text{V}(n, \gamma){}^{52}\text{V}$	×	×	×	${}^{139}\text{La}(n, \gamma){}^{140}\text{La}$	×	×	×
${}^{54}\text{Fe}(n, \gamma){}^{55}\text{Fe}$	×	×	×	${}^{152}\text{Sm}(n, \gamma){}^{153}\text{Sm}$	×	×	×
${}^{55}\text{Mn}(n, \gamma){}^{56}\text{Mn}$	×	×	×	${}^{151}\text{Eu}(n, \gamma){}^{152}\text{Eu}^{\text{m}}$	×		
${}^{58}\text{Fe}(n, \gamma){}^{59}\text{Fe}$	×	×	×	${}^{164}\text{Dy}(n, \gamma){}^{165}\text{Dy}$	×		
${}^{58}\text{Co}^{\text{m}}(n, \gamma){}^{59}\text{Co}$	×	(Burn-up correction)		${}^{175}\text{Lu}(n, \gamma){}^{176}\text{Lu}$	×		
${}^{58}\text{Co}(n, \gamma){}^{59}\text{Co}$	×	×	×	${}^{176}\text{Lu}(n, \gamma){}^{177}\text{Lu}$	×		
${}^{59}\text{Co}(n, \gamma){}^{60}\text{Co}$	×	×	×	${}^{181}\text{Ta}(n, \gamma){}^{182}\text{Ta}$	×		
${}^{63}\text{Cu}(n, \gamma){}^{64}\text{Cu}$	×	×	×	${}^{186}\text{W}(n, \gamma){}^{187}\text{W}$	×		
${}^{64}\text{Ni}(n, \gamma){}^{65}\text{Ni}$	×	×	×	${}^{197}\text{Au}(n, \gamma){}^{198}\text{Au}$	×	×	×
${}^{71}\text{Ga}(n, \gamma){}^{72}\text{Ga}$	×	×	×	${}^{232}\text{Th}(n, \gamma){}^{233}\text{Th}$	×	×	×
${}^{75}\text{As}(n, \gamma){}^{76}\text{As}$	×	×	×	${}^{233}\text{U}(n, \text{f})\text{F.P.}$	×	×	×
${}^{80}\text{Se}(n, \gamma){}^{81}\text{Se}$	×	×	×	${}^{235}\text{U}(n, \text{f})\text{F.P.}$	×	×	×
${}^{81}\text{Br}(n, \gamma){}^{82}\text{Br}$	×	×	×	${}^{238}\text{U}(n, \gamma){}^{239}\text{U}$	×	×	×
${}^{93}\text{Nb}(n, \gamma){}^{94}\text{Nb}$	×	×	×	${}^{239}\text{Pu}(n, \text{f})\text{F.P.}$	×	×	×

Table 3.4.2 (Continued)

Threshold Reactions:

<u>REACTION</u>	<u>LWR</u>	<u>FBR</u>	<u>MFR</u>	<u>REACTION</u>	<u>LWR</u>	<u>FBR</u>	<u>MFR</u>
(n,p) (*)	x	x	x	$^{58}\text{Ni}(n,\alpha)^{55}\text{Fe}$	x	x	x
$^3\text{He}(n,p)$ (*)	x	x	x	$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$	x	x	x
$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$	x	x	x	$^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$	x	x	x
$^{19}\text{F}(n,2n)^{18}\text{F}$			x	Cu(n, total He)	x	x	x
$^{23}\text{Na}(n,2n)^{22}\text{Na}$			x	$^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$	x	x	x
$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	x	x	x	$^{63}\text{Cu}(n,2n)^{62}\text{Cu}$	x	x	x
Al(n, total He)	x	x	x	$^{65}\text{Cu}(n,p)^{65}\text{Ni}$	x	x	x
$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	x	x	x	$^{65}\text{Cu}(n,2n)^{64}\text{Cu}$	x	x	x
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	x	x	x	$^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$	x	x	x
$^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$	x	x	x	$^{64}\text{Zn}(n,2n)^{63}\text{Zn}$			x
$^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$	x	x	x	$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$			x
S (n, total He)	x	x	x	$^{93}\text{Nb}(n,n')^{93}\text{Nb}^{\text{m}}$	x	x	x
$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	x	x	x	$^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92}\text{Nb}$			x
$^{34}\text{S}(n,\alpha)^{31}\text{Si}$	x	x	x	$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92}\text{Nb}$	x	x	x
$^{35}\text{Cl}(n,\alpha)^{32}\text{P}$	x	x	x	$^{94}\text{Mo}(n,p)^{94}\text{Nb}$	x	x	x
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^{\text{m}}$			x	$^{103}\text{Rh}(n,n')^{103}\text{Rh}^{\text{m}}$	x	x	x
Ti(n, total He)	x	x	x	$^{115}\text{In}(n,n')^{115}\text{In}^{\text{m}}$	x	x	x
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	x	x	x	$^{127}\text{I}(n,2n)^{126}\text{I}$	x	x	x
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	x	x	x	$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$			x
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	x	x	x	$^{197}\text{Au}(n,3n)^{195}\text{Au}$			x
Fe(n, total He)	x	x	x	$^{197}\text{Au}(n,4n)^{194}\text{Au}$			x
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	x	x	x	Au(n, total He)	x	x	x
$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	x	x	x	$^{199}\text{Hg}(n,n')^{199}\text{Hg}^{\text{m}}$	x	x	x
$^{54}\text{Fe}(n,\alpha)^{51}\text{Cu}$	x	x	x	$^{232}\text{Th}(n,f)\text{F.P.}$	x	x	x
$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	x	x	x	$^{238}\text{U}(n,f)\text{F.P.}$	x	x	x
$^{59}\text{Co}(n,p)^{59}\text{Fe}$	x	x	x	$^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U}$			x
$^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$	x	x	x	$^{237}\text{Np}(n,f)\text{F.P.}$	x	x	x
$^{59}\text{Co}(n,2n)^{58}\text{Co}$	x	x	x	$^{234}\text{U}(n,f)\text{F.P.}$	x	x	x
Ni(n, total He)	x	x	x	$^{236}\text{U}(n,f)\text{F.P.}$	x	x	x
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	x	x	x				

ASTM STANDARDS FOR SURVEILLANCE OF NUCLEAR REACTOR PRESSURE VESSELS

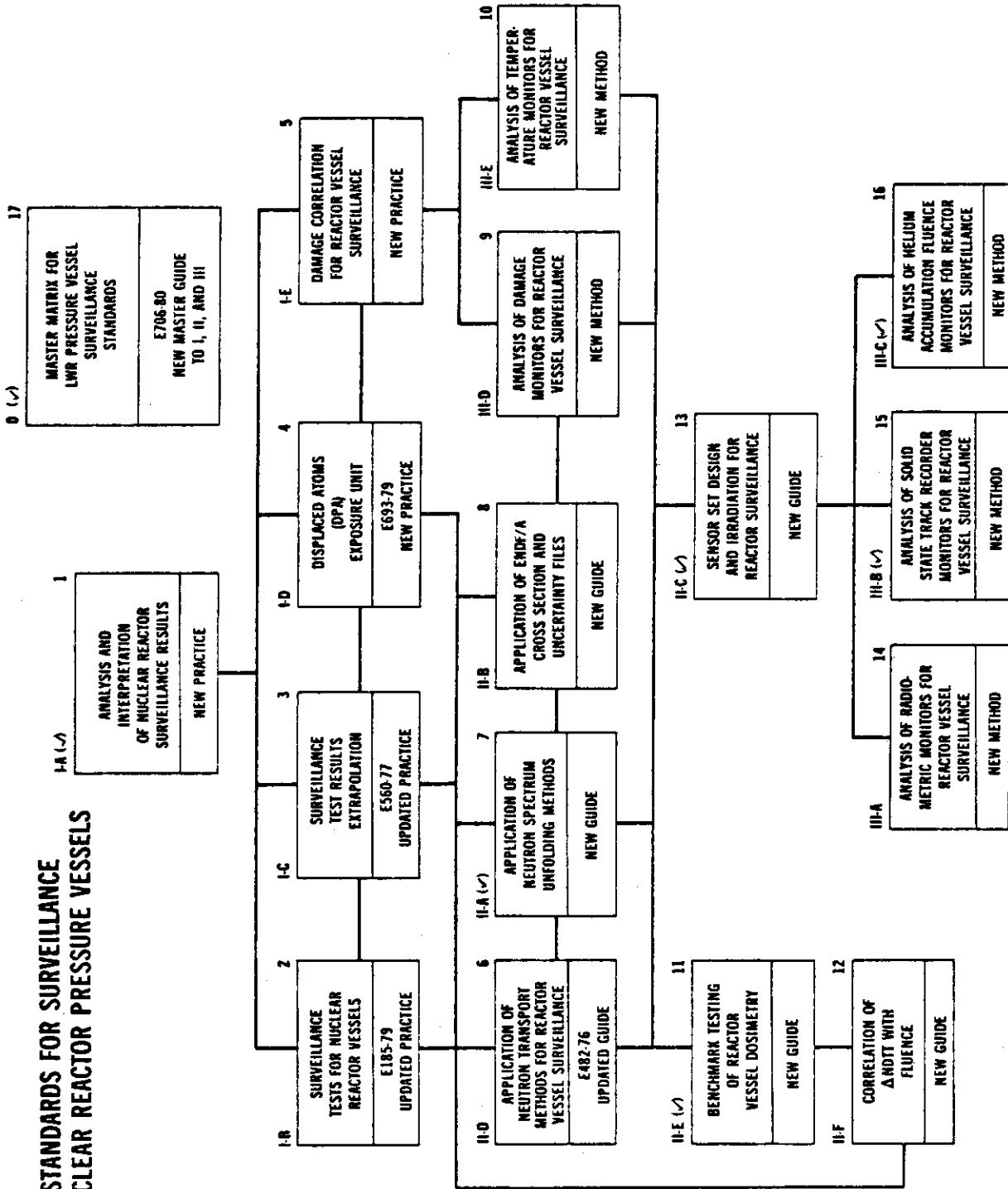
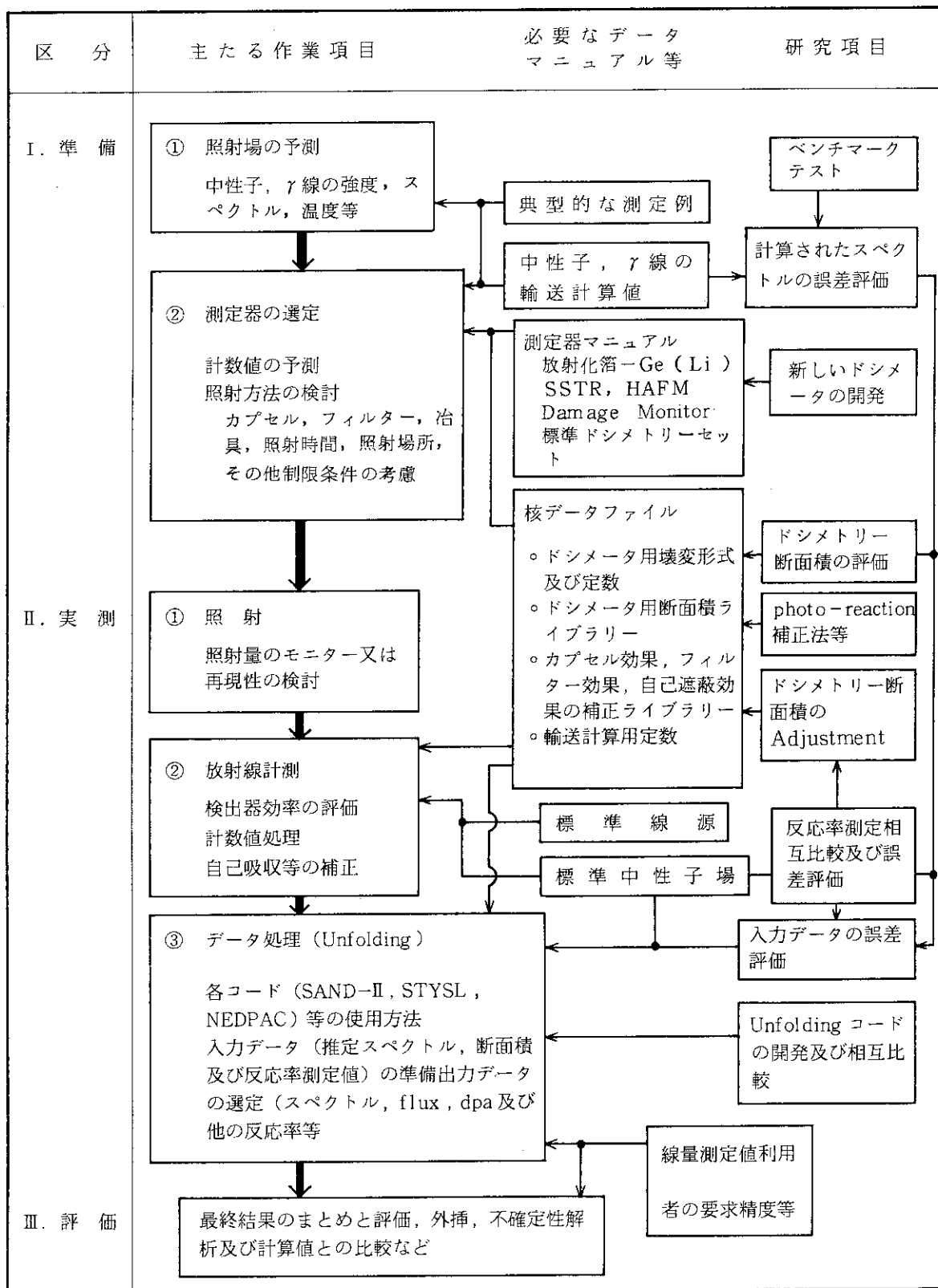


Fig. 3.4.1 Interrelationships for ASTM Standards for Surveillance of Nuclear Reactor Pressure Vessels. Neg 8010295-1

Fig. 3.4.2 原子炉中性子ドシメトリーの作業フローシート



3.5 使用済核燃料再処理における核データの必要性

3.5.1 概要

東海再処理工場では軽水炉から排出された使用済燃料を 0.7 t/day の容量で Purex 法と呼ばれる溶媒抽出法によりウランおよびプルトニウムと核分裂生成物を分離する。使用済燃料の受入基準は平均燃焼度 28000 MWD/T 以下、初期濃縮度 4% 以下、約 35 MW/T の比出力、冷却日数 180 日以上である。この基準燃料には約 1% のプルトニウムと約 3% の核分裂生成物が含有されており、残り約 96% がウランである。こうした使用済燃料を再処理することにより、ウランは三酸化ウラン粉末として、プルトニウムは硝酸プルトニウム溶液として回収される。将来はこの硝酸プルトニウム溶液はウランとともに混合酸化物として転換される予定である。再処理工程の概要を図 3.5.1 に示す。原子炉より排出された使用済燃料は燃料キャスクに封入され受入施設に搬入される。燃料取出しプールに運び水中にて使用済燃料集合体をキャスクからプール内用燃料バスケットに移す。このバスケットは集合体を 4 体収納でき、取出しプールから 97 t の容量の貯蔵プールに移される。貯蔵プールは、崩壊熱の冷却、放出放射線の遮蔽等の能力を有する必要がある。一定期間冷却された燃料は貯蔵プールからせん断・溶解工程へ送り出される。集合体は、機械処理工程において被覆管のついたまま数センチ間隔でせん断され溶解槽へ装荷される。溶解時には硝酸によって酸素を吹き込みながら加熱溶解され、燃料分のみが硝酸溶液中に溶け込み被覆管片は不溶解残渣（ハル）として除去される。このせん断・溶解の段階で揮発性の放射性物質と大部分の希ガス（クリプトン-85 等）が排気系へ移行し、洗浄・沪過された後に排気筒から大気中へ放出される。希ガス以外は洗浄・沪過の工程で大部分除去され、洗浄廃液、フィルター付着物として工場内に残存することとなる。一方、硝酸溶液は清澄工程のパルスフィルターで不溶性残渣を除き、給液調整槽にて酸濃度等を調整後抽出工程に送る。抽出および精製工場は、共除染（第 1 サイクル）、分配（第 2 サイクル）ならびにプルトニウムおよびウランの精製工程から成る。有機相と水相との混合と、両相の分離を行うためのミキサ・セトラが主役となっている。この工程では、有機相（TBP 30% + n-ドデカン）に含まれる TBP に対する核種の親和性の差を利用してウラン、プルトニウム、核分裂生成物を各々分離する。第 1 サイクルではウラン・プルトニウムから核分裂生成物を分離し、次いで第 2 サイクルにおいてウランとプルトニウムを分離する。第 1 サイクルで分離された核分裂生成物はホルマリンで硝酸を分解除去し蒸発濃縮後ステンレス製の高放射性廃液貯槽へ貯蔵される。第 2 サイクルで分離されたウランとプルトニウムは、各々精製・濃縮され、プルトニウムはそのまま臨界上安全な形状となっている円筒状貯槽に保管し、ウランは脱硝工程を経て三酸化ウラン粉末として容器に保管する。

工程の各部分から発生する中レベルや低レベルの廃液は、蒸発処理や化学処理を施された後、放出基準値以下であることを確認した上で海洋に放出される。

3.5.2 核データについて

再処理工場で使用済燃料を処理するに当たって、その中に内蔵される種々の核分裂生成物や超ウラン元素の生成量を知ることが必要となる。それらを大別してみると

- (1) 環境放出で問題となるクリプトン-85、トリチウム、ヨウ素-129 等

(2) 工程内挙動が問題となるルテニウム、ジルコニウム、ニオブ、ストロンチウム、セシウム等

(3) 臨界管理や製品管理で問題となるウランやプルトニウム、超ウラン元素等

である。これらの生成量を決定するには、各々の炉内反応による収率、崩壊系列、中性子の吸収断面積、半減期といった種々の核データが必要となる。またそれらの量を分析する場合の基礎となる γ 線等のエネルギー準位とその放出割合、半減期などのデータの精度も要求される。Purex法の心臓部である抽出工程では放射線による溶媒劣化が問題となるが、主要核種の生成量に加え、その放射線のエネルギーも重要なデータのひとつである。また、有機相と水相の界面に生じる第3相の原因と言われている微粒子状の不溶性残渣の生成量（モリブデンやケイ素等）も把握する必要がある。遮蔽の観点からも各種放射線の放出エネルギーや量も必要である。製品管理の面でもプルトニウム-241の崩壊により生じるアメリシウム-241の問題があり、加えて計量管理の面からもその半減期も正確に知る必要がある。将来の問題として回収ウランを利用する際には、ウラン-232やウラン-236についても濃縮工程での計量技術あるいは被曝線量評価との関連で、また回収ウランを用いた核燃料について炉内反応等の面から核データの要求が生じるであろう。

現段階で問題となっている核種としては、前述の様に環境放出上、工程内挙動上の観点からトリチウム、クリプトン-85、ヨウ素-129、ルテニウム-103、106、セシウム-134、137、ストロンチウム-90、ジルコニウム-95、ニオブ-95などである。現在ORIGENコードにより使用済燃料中に含有される核種を算出し、その値と分析結果を比較してみると必ずしも一致していない。計算値との一致が不十分なものとしてユーロピウム-155や超ウラン元素がある。計算に当っては炉の運転データが十分に反映されている訳でもないし、その上硝酸溶液中での化学挙動により生成したものが全て分析対象となる溶液中に存在するとは限らない。また分析精度の面でも工場規模であることにより自ずと限界がある。工程上の測定値にもこうした誤差原因が挙げられるので計算値の信頼度をできるだけ高くすることが要望される。

再処理工場では色々な原子炉から排出されかつ種々の履歴を有する集合体を大量に処理するので、内蔵量を算出するのに汎用性のある計算コードが必要である。環境への放出管理の面からも、運転管理の面からも、使用済燃料中の内蔵放射能を正確に知る必要性があり、計算コードに対する期待、言い換えれば計算コードで用いている種々の核データの精度に対する期待は大きいものがある。

〔 榎 彰 〕

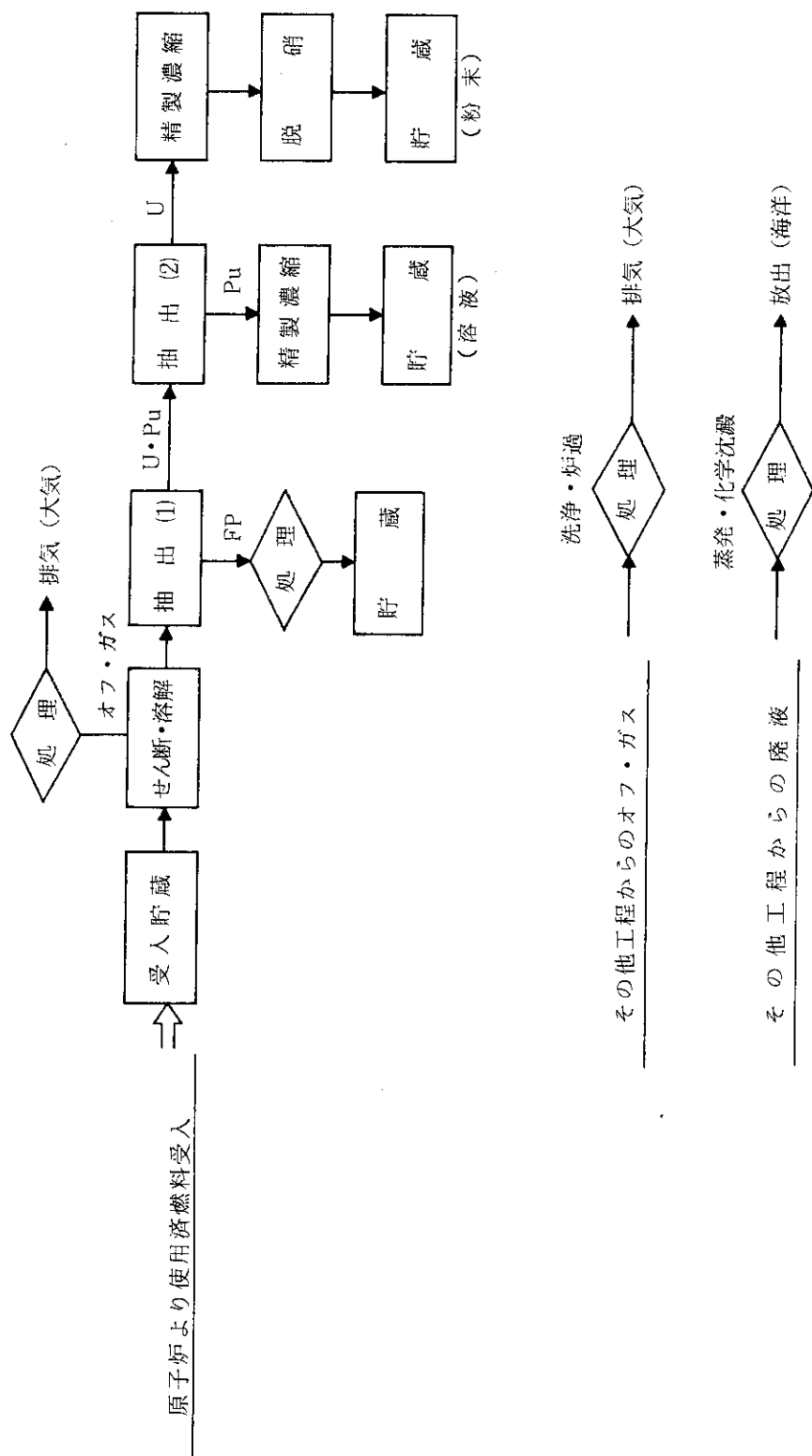


図 3.5.1 再処理工場の概要図

3.6 プルトニウム・ウラン (MOX) 燃料加工における核データの必要性

3.6.1 はじめに

再処理から回収されるプルトニウムを有効に利用することは、資源小国の我が国にとって誠に重要なことであり、MOX 燃料加工は原子炉での利用への橋渡しとして、また、核燃料サイクルの輪を閉じる最終ランナーとして大きな役割りを担っている。

現在では MOX 燃料を利用する原子炉は動燃が開発を進めている「ふげん」, 「常陽」, 「文珠」, その他臨界実験装置などに限られているので、MOX 加工施設も国内では動燃が所有している施設に限定される。動燃では、現在プルトニウム燃料の製造・加工に関する開発施設を2つ所有しており、1つは「ふげん」の MOX 燃料体を製造する ATR ラインおよび「常陽」の炉心燃料体を製造する FBR ラインの2ラインを含む準生産規模の施設であり、他の1つは照射燃料の製造ラインおよび試験開発設備を含む施設である。さらに、建設を間近にひかえた MOX 燃料加工の第3施設(「文珠」燃料製造)が計画されている。

ここでは、これらの現有施設で使われている核データについて言及し、また、将来の施設設計で問題として取り上げられそうな核データ関連について検討を行った。

3.6.2 MOX 燃料加工工程と核燃料物質取扱い

MOX 燃料加工工程は熱中性子炉用と高速増殖炉用とも、ウランへのプルトニウム富化率および寸法形状等の相違を除いて基本的に同一である。原子炉燃料として利用する場合、いずれもウラン・プルトニウム混合酸化物 ($\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$) の形態であり、プルトニウム富化率は熱中性子炉で 0.5 ~ 6 w/o であり、高速増殖炉で 15 ~ 30 w/o 程度となる。

加工施設における核燃料取扱い工程は大別すると以下のように分けられる。加工工程の一例を図 3.6.1 に示す。

- 1) 再処理施設の産物である $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 溶液から PuO_2 粉末 (または $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ 粉末) へ転換する工程 (転換工程)
- 2) PuO_2 (または $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$) 粉と UO_2 粉から $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ ペレットを製造する工程 (ペレット製造工程)
- 3) $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ ペレットを燃料被覆管に充填密封する工程 (燃料要素加工工程)
- 4) 燃料要素を各々の炉に適合する集合体に組上げる工程 (燃料集合体組立工程)
- 5) 燃料集合体の原子炉への輸送

転換工程は施設設計の考え方により、再処理施設側へ含ませる場合もある。この工程の核燃料物質の受入れ形態は $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ の単独溶液または $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 + \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ の混合溶液の場合もあり得る。これらの溶液から沈殿、濾過あるいは直接脱硝、さらに焙焼還元等の工程を経て、 PuO_2 粉末または $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ 混合粉末が産られる。

ペレット製造工程は、 PuO_2 (または $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$) 粉末と UO_2 粉末とを原子炉側が要求する仕様に従いプルトニウム富化率を調整し、均一混合を行い、仕様に応じた寸法に成型、焼結等の工程を経て、理論密度の 90 ~ 97% 程度の混合酸化物 (MOX) ペレットを製造する工程である。

燃料要素加工工程は、MOX ペレットをジルカロイ被覆管またはステンレス鋼被覆管に充填、溶接密封し、燃料要素（または燃料棒）に加工することにある。集合体組立工程は、燃料要素を数10本から百数10本に束ねて、各々の原子炉に適合する形状に加工組立を行うことにある。

燃料集合体の輸送工程は、炉サイトへの輸送が加工施設の責任範囲と一般に言われているので、施設外であるが加工施設として含めて考えたものである。

これらの工程と核燃料物質形態は表3.6.1のようにまとめられる。また、現在取扱いの対象であるウランおよびプルトニウムに含有しているそれぞれの同位体元素は表3.6.2のようなものであり、将来においてはウランとして ^{236}U 、 ^{232}U 、プルトニウムとして ^{236}Pu が有意なレベルで存在してくることも考えられる。

3.6.3 燃料加工施設と核データとの関連

加工施設と核データとの関連は、施設が設計段階かすでに施設が出来上ってしまって、施設の運転管理段階かによって異なる。どちらかという、後者の方が核データとの関連は少ない。ここでは、すでに完成した施設運営との関連について述べ、将来の施設設計で考慮されるであろう核データとの関連については、次節で検討を行うことにする。

施設運営との関連において、核データはMOX燃料製品の品質保証に係るものと、工程運営の安全管理に係るものとに大別できる。品質保証に関するものとしてウラン濃縮度やプルトニウム富化度等の仕様決定があるが、これらは炉設計者が行うものであり、加工側で使われる核データは、ペレット製品中に含まれる不純物管理で、ボロン等価濃度を求める際使われる熱中性子断面積程度のものである。（表3.6.3参照）

安全管理に関するものとしては、放射線による外部被曝線量率評価と臨界安全管理基準の設定に関して使用する核データである。

プルトニウムは放射線として、アルファ線、ベータ線、ガンマ線、および中性子線を放出するが、外部線量率は後二者が対象となる。MOX加工施設では工程機器周辺の線量率は現在、以下に示す経験式に基づいた式(1)から式(3)を用いて、作業員の被ばく線量を算出して作業員の被ばく管理を行っている。

$$D = K A T_1 + B T_2 \quad (1)$$

- ここで、D : 単位作業工程の被ばく線量 (mrem)
 A : 単位作業工程での操作位置における線量率 (mR/hr)
 B : 単位作業工程での監視位置における線量率 (mR/hr)
 K : 単位作業中の空間線量率分布の変動および作業方法に依存する作業係数
 T₁ : ボックス操作時間 (hr)
 T₂ : 監視時間 (hr)

単位作業工程での操作位置 (距離 r cm) における線量率 (A) および (B) は次のRoeschの式⁽¹⁾により与えられる。

ガンマ線量率については、

$$D_r = [1.24 P_{238} + 0.012 P_{239} + 0.011 P_{240} + 0.018 P_{242} + 0.016 P_{241} \\ \cdot t + 2.55 (1 - e^{-0.102t}) P_{241}] S / r^2, \text{ rads/hr} \quad (2)$$

自発性核分裂に伴う中性子と酸素原子との (α, n) 反応に伴う中性子による線量率については、

$$D_n = (0.193 P_{238} + 0.0005 P_{239} + 0.0132 P_{240} + 0.0188 P_{242}) M / r^2, \text{ rems/hr} \quad (3)$$

- ここで、P : プルトニウムの同位体組成比
 t : 再処理後の経過時間, day
 S : プルトニウム線源の表面積, cm²
 r : 同上線源の表面からの距離, cm
 M : プルトニウムの重量, g

以上の式から分るように、ガンマ線および中性子線ともプルトニウムの同位体組成に強く依存するものである。参考までに、現有施設で対象としているプルトニウム同位体組成比例を表 3.6.4 に、また、それをベースとして工程操作位置における推定線量率の計算結果を表 3.6.5 に示す。この表 3.6.5 でガンマ線の値が高いけれど、これは遮へい効果なしの値である。この線量率の大部分は 59.5 KeV の ²⁴¹Am によるものであり、グローブボックスのパネルに鉛入りを考慮すれば、容易に減衰させることができる (鉛 2 mm 厚相当で 1/50)。

施設の臨界安全管理においては、核分裂性物質を ²³⁹Pu, ²⁴¹Pu, ²³⁵U を対象として大部分が質量管理の方式が採用されている。臨界管理基準量は加工ライン毎に設定されていて、例えば「常陽」燃料体の製造・加工を行う FBR ラインでは表 3.6.6 および表 3.6.7 のような安全基準量を定め、厳重な管理のもとにこれらの臨界管理が行われている。

表 3.6.6 の質量管理基準量は安全係数として 0.43 を乗じており、誤ってダブルになっても安全なように設定されている。これらの基準量の設定には ²³⁹Pu および ²³⁵U の臨界ハンドブック等が用いられる。また、表 3.6.7 の K_{eff} を求めるには、取扱いの対象となるウランとプルトニウムならびにそれらの同位体組成元素の核データが計算に用いられることになる。

さらに、施設の事故評価などには表 3.6.8 に示すような臨界事故時に発生する核分裂生成物などの核データが使用されることになる。

3.6.4 今後の施設設計と核データ

今後の MOX 加工施設は産業レベルへの移行に伴い、核燃料物質の大量取扱いおよび経済性の追求などのため、安全裕度の切り詰め、将来供給される核燃料物質の特性の推定などをより正確に行う必要が生じてくる。これらの基本となるものは核データおよびその精度に依存すること大であり、核データの関連において加工施設側で指摘できる事項を上げて以下に検討してみる。

(1) プルトニウム同位体組成の推定

将来、MOX 燃料加工施設等で使用されるであろうプルトニウムの同位体組成は、原子炉の型、炉の運転履歴、使用済燃料の冷却期間、再処理施設の工程および再処理時期、処理後の経過日数

などによって異なり、刻々変化するものである。ガス冷却炉（GCR）、軽水炉（LWR）および軽水炉Puリサイクル燃料それぞれの燃焼後の取出し燃料に含まれているプルトニウム同位体組成を一例として表3.6.9に示す。これらの値の正確さを求めるには上記の要因の事実の確認、さらに、これら生成過程および崩壊過程の核データの精度が要求される。

(2) 放射線外部被ばくの増減の推定

現在のプルトニウム組成（表3.6.4）と将来のプルトニウム組成（表3.6.9）との比較から、ガンマ線および中性子線いずれも増大する傾向にあり、作業環境における外部被ばく線量率が増加することが予測される。

ガンマ線についていえば、 ^{241}Pu の含有率が増えることにより ^{241}Am の蓄積率が増加し、ガンマ線源の増大となる。これは、図3.6.2に見られるように再処理後の経過日数の依存度が大きい。すなわち、再処理したら早期に使用すること、言い換えるならば使うことを決めてから再処理せよということで、被ばくの低減化がはかれる。また、将来のプルトニウム同位体組成に ^{236}Pu の有意な存在が考えられ、これは半減期2.85年でトリウム系列への崩壊に導き、 ^{208}Tl 等の高エネルギーのガンマ線を放出する結果となる。図3.6.3に代表的なLWRのプルトニウム組成（表3.6.9）からのガンマ線スペクトルを示す。これから分るように、プルトニウムのスペクトルは ^{241}Am （59.5 KeV）をピークにもつ比較的ソフトなスペクトルといえる。しかし、 ^{236}Pu を約10 ppm含むものとしたこのケースでは、 ^{236}Pu の線量率寄与は再処理後5年時点で有意なレベルになってくる（遮へい効果が激減するため）。

中性子線については、将来燃料の高燃焼度に伴い、プルトニウム同位体中の質量数が偶数の同位体（特に、 ^{238}Pu ）が増加する。これは、中性子発生数の増加となり遮へい効果が期待できないので、直接に線量率の増大につながる。中性子発生数は表3.6.9から分るようにプルトニウム同位体組成に強く依存し、再処理後の経過時間にはほとんど関係がない。中性子の発生源は自発核分裂中性子と酸素との（ α , n）反応による中性子があり、強度は1対2の割合で前者の主な発生核種は ^{240}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{238}Pu であり、後者の主な核種は ^{238}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{240}Pu 、 ^{239}Pu などがあげられる。これら核種から発生する中性子のスペクトルは必ずしも明らかになっていない。現在、動燃のMOX燃料加工施設で使用している基礎データを表3.6.10に示す。

上記の線量率増大に伴い、遮へい効果をより正確に評価する必要が生じてくるが、プルトニウムのガンマ線は一般にソフトスペクトルであり、この領域における物質の吸収係数（ μ ）は非常にセンシティブにあり、燃料自身等の自己遮へい効果に不確かさが生じ易いので、この辺にも核データの精度が要求される点がある。中性子線の遮へいについても、加工施設で一般に使用されているポリエチレン、アクリル、パラフィン等材料の遮へい定数が不整備であることも指摘できる。

(3) 臨界安全基準設定のための臨界データ

従来の臨界ハンドブックのデータでは、 ^{235}U 、 ^{239}Pu など単独のデータが主なものであったが、上述のようにプルトニウム同位体の多様性を考えた臨界データの整備が今後要求される。特に、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu の効果が入ったデータの蓄積が必要となろう。図3.6.4には ^{240}Pu の効果をみたもので、 ^{240}Pu の含有量に従い臨界質量が増えていることを示している。

以上の検討を考慮に入れて、今後のプルトニウムの取扱い施設に関連して注目すべき核データとして、表 3.6.11 のようにまとめられる。特に以下のものが主なことであろう。

- i) 超ウラン元素の生成および崩壊過程では、それぞれの核種の中性子断面積、特に ^{238}Pu , ^{236}Pu , ^{232}U 等の生成過程の核データ。
- ii) 放射線量率評価においては、各核種の半減期（特に ^{241}Pu と ^{241}Am ）、中性子発生核種の中性子収率およびそのスペクトル等の核データ。
- iii) 臨界安全性の評価においては、対象とする核種の全エネルギー範囲にわたる中性子断面積等の核データ。

〔湯本 鏡三〕

表 3.6.1 MOX 加工と核燃料物質形態

工 程	核 燃 料 物 質 形 態
転 換 工 程	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$, $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$
MOX ペレット製造工程	$\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$, UO_2 , PuO_2
燃料要素加工工程	密封 $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$
燃料集合体組立工程	密封 $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$
燃料集合体輸送	密封 $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$

表 3.6.2 ウランとプルトニウムとに含まれる同位体

元 素	現 在	将 来
ウ ラ ン	^{238}U , ^{235}U , ^{234}U	同左 + ^{236}U , ^{232}U
プルトニウム	^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{238}Pu	同左 + ^{236}Pu

表 3.6.3 燃料不純物のボロン等価濃度を求めるための核定数

不純物元素		原子量 ^{*1} A	熱中性子吸収断面積 ^{*2} σ (バーン)	ボロン等価濃度 (ppm)
原子番号	記号			
4	Be	9.0122	0.0092	0.145445 E - 04
5	B	10.8139	759	0.100000 E + 01
6	C	12.0111	0.0034	0.403308 E - 05
7	N	14.0067	1.85	0.188181 E - 02
8	O	15.9995	0.000178	0.158509 E - 06
9	F	18.9984	0.0095	0.712438 E - 05
11	Na	22.9898	0.53	0.328459 E - 03
12	Mg	24.3095	0.063	0.369237 E - 04
13	Al	26.9815	0.23	0.121451 E - 03
14	Si	28.0856	0.16	0.811665 E - 04
15	P	30.9738	0.18	0.827977 E - 04
17	Cl	35.4575	33.2	0.133404 E - 01
19	K	39.0981	2.1	0.765251 E - 03
20	Ca	40.0783	0.43	0.152862 E - 03
22	Ti	47.8789	6.1	0.181521 E - 02
23	V	50.9416	5.04	0.140961 E - 02
24	Cr	51.9976	3.1	0.849412 E - 03
25	Mn	54.9381	13.3	0.344920 E - 02
26	Fe	55.8473	2.55	0.650547 E - 03
27	Co	58.9332	37.2	0.899339 E - 02
28	Ni	58.7284	4.43	0.107472 E - 02
29	Cu	63.5472	3.79	0.849734 E - 03
30	Zn	65.3869	1.1	0.239686 E - 03
39	Y	88.9059	1.28	0.205126 E - 03
40	Zr	91.2237	0.185	0.288938 E - 04
42	Mo	95.8896	2.65	0.393745 E - 03
47	Ag	107.8779	63.6	0.839972 E - 02
48	Cd	112.4234	2450	0.310491 E + 00
49	In	114.8183	193.5	0.240110 E - 01
50	Sn	118.7338	0.63	0.755973 E - 04
56	Ba	137.3245	1.2	0.124501 E - 03
62	Sm	150.3635	5800	0.549574 E + 00
63	Eu	151.9634	4600	0.431280 E + 00
64	Gd	157.2558	49000	0.443946 E + 01
66	Dy	162.5059	930	0.815369 E - 01
74	W	183.8326	18.5	0.143380 E - 02
82	Pb	207.1989	0.17	0.116897 E - 04
83	Bi	208.9804	0.033	0.224982 E - 05
90	Th	232.0381	7.40	0.454373 E - 03

* 1 : アイソトープ便覧

* 2 : BNL-325 Third Edition, Vol. 1

表 3.6.4 現有施設での対象プルトニウム同位体組成⁽¹⁾

核種	割合 (%)					
	FBRライン (常陽)			ATRライン		
	1次炉心用	照射炉心用	転換試験用	ふげん-A	ふげん-B	ふげん-C
Pu-238	0.8	1.9	1.2	0.1	1.0	1.9
Pu-239	75.1	63.3	48.0	77.3	73.3	63.3
Pu-240	14.2	19.2	28.0	18.9	14.5	19.2
Pu-241	8.5	11.7	14.5	3.2	9.6	11.7
Pu-242	1.4	3.9	8.3	0.5	1.6	3.9

表 3.6.5 工程操作位置における推定線量率 (しゃへい効果なし)⁽¹⁾

ライン	工程	操作位置における線量率 (A)		
		r (Pu) (mrad/hr)	r (F. P.) (mrad/hr)	n (Pu) (mrem/hr)
F B R	湿式-1*)	130.3	1.68	6.65
	-2**)	114.4		7.14
	乾式	230.0		18.0
	加工	12.8		6.9
A T	2% PuO ₂ - UO ₂	湿式	88.3	0.06
		乾式	199.6	2.82
		加工	22.4	2.52
R	6% PuO ₂ - UO ₂	湿式	253.4	0.27
		乾式	305.7	12.32
		加工	58.8	11.63

*) 常陽照射炉心用

**) 転換試験用

表 3.6.6 FBR (常陽) 燃料製造工程内の臨界管理安全基準量⁽¹⁾

$$Pu^* = Pu^{239} + Pu^{241} + U^{235}$$

系	項目	安全係数	13% 濃縮 UO ₂	PuO ₂	PuO ₂ (原料粉)	混合酸化物
0~4	質量	0.43	26.0 kg U ²³⁵	4.6 kg Pu	13.4 kg Pu*	10.1 kg Pu*
	乾容積 (ℓ)	0.75	28.5	0.97	6.9	7.2
	円筒直径 (cm)	0.85	25.5	6.4	13.4	14.8
	平板厚 (cm)	0.75	11.2	1.5	3.5	5.4
	環状混合機粉体厚 (cm)	—			4.7	
半減速系 4~25	質量	0.43	6.4 kg U ²³⁵	2.1 kg Pu	/	3.2 kg Pu*
	容積 (ℓ)	0.75	15.7	2.3		6.9
	円筒直径 (cm)	0.85	19.5	9.3		14.4
	平板厚 (cm)	0.75	8.2	2.8		4.9
減速系 ≧25	質量	0.43	0.4 kg U ²³⁵	0.22 kg Pu	/	0.25 kg Pu*
	容積 (ℓ)	0.75	10.5	3.8		6.6
	円筒直径 (cm)	0.85	16.1	11.2		14.4
	平板厚 (cm)	0.75	6.7	3.3		4.6
≧25	環状タンク液厚 (cm)	—		6.3		

表 3.6.7 FBR (常陽) 工程内の燃料棒および集合体の臨界安全基準量⁽¹⁾

条 件	Keff	安全基準
照射炉心燃料棒最適格子 (2.25 cm) ピッチ水没	0.9	85 本
照射炉心燃料集合体 (127 本燃料棒) が水没	0.43	1 体
炉心燃料集合体 (91 本燃料棒) が水没	0.54	1 体

表 3.6.8 臨界事故における放射性物質の施設内発生量と核データ⁽¹²⁾

nuclide	total fission	10^{18} fissions	total released	崩壊当りの r	崩壊当りの β
	half life	yield (%) [*]	production (Ci)	energy ^{**} (MeV/dis.)	energy ^{**} (MeV/dis.)
volatile					
I-131	8.06 d	3.74	1.01	0.381	0.195
I-132	2.28 h	5.27	1.20×10^2	2.253	0.498
I-133	20.8 h	6.93	1.73×10	0.608	0.416
I-134	52.6 m	7.29	4.33×10^2	2.750	0.599
I-135	6.61 h	6.31	4.97×10	1.645	0.382
rare gases					
kr-85 m	4.48 h	0.55	6.39	0.159	0.253
kr-87	76.3 m	0.95	3.89×10	0.793	1.323
kr-88	2.8 h	1.32	2.45×10	1.950	0.377
Xe-133 m	2.25 d	0.23	2.22×10^{-1}	0.042	0.190
Xe-133	5.29 d	6.97	2.86	0.045	0.135
Xe-135 m	15.65 m	1.56	3.11×10^2	0.432	0.095
Xe-135	9.083 h	7.47	4.28×10	0.250	0.316
Xe-138	14.17 m	4.89	1.08×10^3	1.183	0.611

* : Meek, M.E. and Rider, B.F., Compilation of Fission Products Yields, Vallecitos Nuclear Center, NEDO-12154-1 (1974)

** : 原子炉安全専門審査会, 被ばく計算に用いる放射線エネルギー等について昭和50年11月

表 3.6.9 プルトニウム組成の将来予測と其中性子収率

Source	Pu isotope (wt. %)						
	Pu-236	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu fss.
GCR-Pu	—	0.1	77.3	18.9	3.2	0.5	80.5
LWR-Pu	1.2×10^{-5}	1.2	56.4	23.0	14.3	5.1	70.7
Recycle-Pu	1.8×10^{-5}	2.1	47.7	25.6	17.1	7.5	64.8

	Pu Neutron Yield (n/s.g-PuO ₂)						
	Pu-236	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Total
GCR-Pu	—	30	61	206	0.08	7	304
LWR-Pu	0.1	363	45	251	0.3	72	731
Recycle-Pu	0.02	631	38	279	0.4	105	1053

表 3.6.10 核燃料物質等元素の中性子収率

Nuclide	Atomic-mass	Half-life *	Neutron yield from S.F. **			Neutron yield ***
			half-life	v	n/sec.g	
U - 232 233 234 235 236 237 238 239 240	232.037	71.7 y	8.0 x 10 ¹³ y	*2.0	1.43	3.63 x 10 ⁴
	233.037	1.59 x 10 ⁵ y	3.0 x 10 ¹⁶ y	2.51	4.75 x 10 ⁴	10.9
	234.041	2.44 x 10 ⁵ y	1.6 x 10 ¹⁷ y	1.63	5.76 x 10 ⁴	6.89
	235.044	7.04 x 10 ⁷ y	3.5 x 10 ¹⁶ y	*1.695	2.70 x 10 ³	1.80 x 10 ³
	236.046	2.342 x 10 ⁷ y	2.0 x 10 ¹⁶ y	1.65	4.64 x 10 ³	0.057
	237.049	6.75 d	*6.3 x 10 ¹⁹ y	*1.872	1.66 x 10 ⁶	
	238.051	4.47 x 10 ⁹ y	1.01 x 10 ¹⁶ y	2.00	0.011	2.32 x 10 ⁴
	239.054	23.5 m	8.9 x 10 ¹⁸ y	*2.048	1.27 x 10 ⁵	
	240.057	14.1 h				
	240.057	22.5 h				
Np - 236 237	236.047	22.5 h	*6.3 x 10 ¹⁷ y	*1.783	1.59 x 10 ⁴	
	237.048	2.14 x 10 ⁶ y	1.0 x 10 ¹⁸ y	*1.873	1.05 x 10 ⁴	0.723
Pu - 238 239 236 238 239 240 241 242 243 244	238.051	50.8 h	*2.0 x 10 ¹⁸ y	*1.963	5.45 x 10 ⁵	
	239.053	2.355 d	*6.3 x 10 ¹⁶ y	*2.053	1.80 x 10 ³	
	236.046	2.85 y	3.5 x 10 ⁹ y	2.22	3.55 x 10 ⁴	1.18 x 10 ⁶
	238.050	87.75 y	5.0 x 10 ¹⁰ y	2.28	2.54 x 10 ³	3.18 x 10 ⁴
	239.052	2.439 x 10 ⁴ y	5.5 x 10 ¹⁵ y	2.24	0.0226	89.9
	240.054	6.537 x 10 ³ y	1.33 x 10 ¹¹ y	2.16	900	341
	241.057	14.89 y	*2.5 x 10 ¹⁵ y	*2.25	0.0494	2.69
	242.059	3.87 x 10 ⁵ y	7.4 x 10 ¹⁰ y	2.15	1.58 x 10 ³	4.65
	243.062	4.96 h	*2.0 x 10 ¹⁵ y	*2.43	0.0661	
	244.064	8.26 x 10 ⁷ y	2.5 x 10 ¹⁰ y	2.30	5.00 x 10 ³	0.0181
Am - 241 242m 242 243	241.057	433 y	2.3 x 10 ¹⁴ y	*2.383	0.569	6.27 x 10 ³
	242.060	152 y	9.5 x 10 ¹¹ y	2.59	1.5 x 10 ²	
	242.060	16.0 h	*1.0 x 10 ¹⁰ y	*2.475	1.35 x 10 ⁴	316
	243.061	7.4 x 10 ³ y	3.3 x 10 ¹³ y	2.52	4.2	
Cm - 242 243 244	242.065	10.1 h	*7.9 x 10 ⁶ y	*2.657	1.82	9.19 x 10 ⁶
	242.059	163.0 d	7.2 x 10 ¹¹ y	2.59	1.97 x 10 ⁷	1.12 x 10 ⁵
	243.061	30 y	*1.2 x 10 ⁷ y	*2.687	1.22 x 10 ³	1.86 x 10 ⁵
	244.063	18.099 y	1.3 x 10 ¹⁰ y	2.76	1.15 x 10 ⁷	

* Estimated

* : W. Seelmann-Eggebert et al., 'CHART OF THE NUCLIDES 4-th Edition 1974,' Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe (8.1974).
 ** : S. Raman, 'Review Paper A1: General Survey of Applications Which Require Actinide Nuclear Data,' TRANSACTINIUM ISOTOPE NUCLEAR DATA (TND) Vol. 1, IAEA-186 (1976).
 *** : N = 1.0 x 10⁻¹⁰ · E_α^{3/2}, N : n / α disint., E_α: Energy in MeV of α.

REACTOR PHYSICS CONSTANTS, ANL-5800 Second Edition (7.1963).

表 3.6.11 プルトニウム取扱い施設と必要な核データ⁽¹³⁾

Safety Item	Major Nuclear Data
Transuranium Build-up & Decay	<ul style="list-style-type: none"> ◦ $T_{1/2}$; ^{241}Pu, ^{241}Am, ^{242}Cm, ^{240}Pu ◦ σ_c ; ^{236}U, ^{237}Np, ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu ^{241}Am, $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am, ^{242}Cm, ^{244}Cm ◦ σ_f ; ^{241}Pu, ^{242}Pu, $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{242}Am, ^{242}Cm ◦ $\sigma_{(n,2n)}$; ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu ◦ $\sigma_{(n,3n)}$; ^{238}Pu
Radiation Dose & Decay heat	<ul style="list-style-type: none"> ◦ $T_{1/2}$; Abundance & Energy of α, β, γ emitters ◦ Spontaneous fission & $\bar{\nu}$ of ^{236}Pu, ^{238}Pu, ^{240}Pu ^{242}Pu, $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{242}Cm, ^{244}Cm ◦ $\sigma_{(\alpha,n)}$, neutron spectra, of α emitter ◦ $\sigma_{(n,\gamma)}$ & $\bar{\mu}$ of shielding & structure material
Criticality Safety	<ul style="list-style-type: none"> ◦ σ_f, σ_c, σ_s, Resonance parameters, & $\bar{\nu}$ of transuranium nuclides

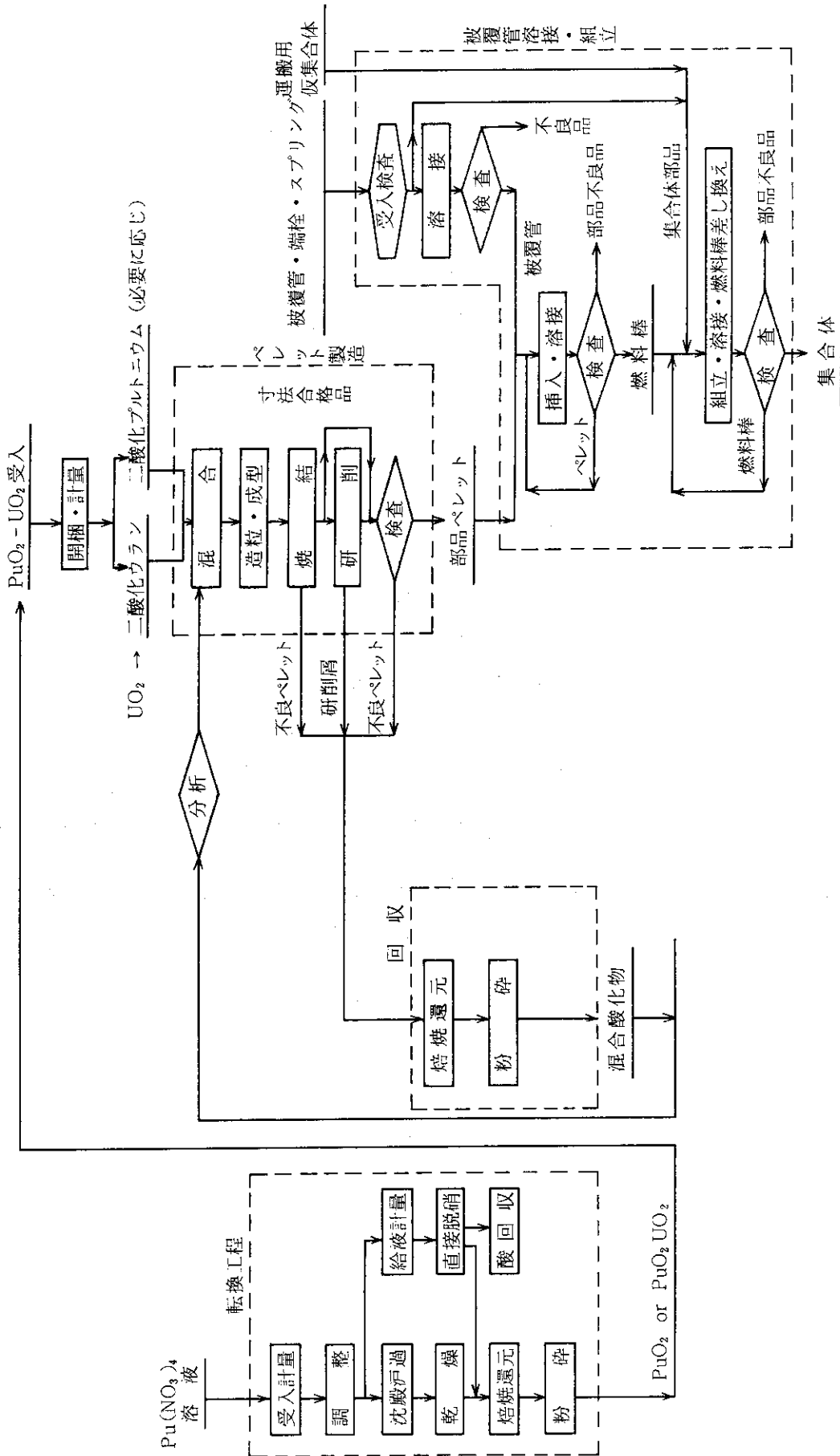


図 3.6.1 $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ 燃料製造工程フローシート略図

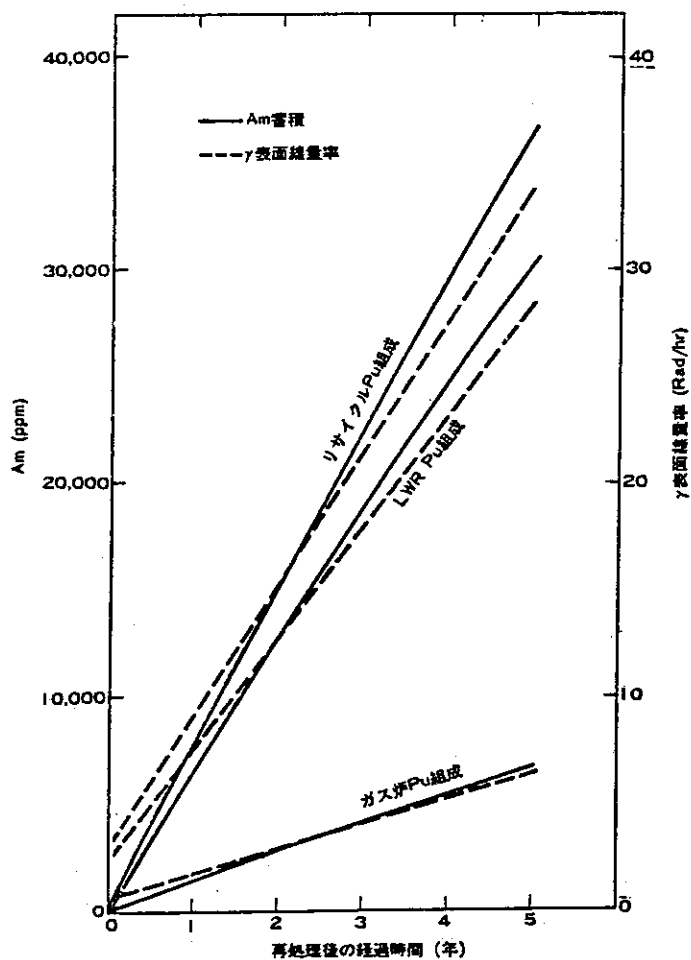


図 3.6.2 Pu 組成による ^{241}Am 蓄積および γ 表面線量率

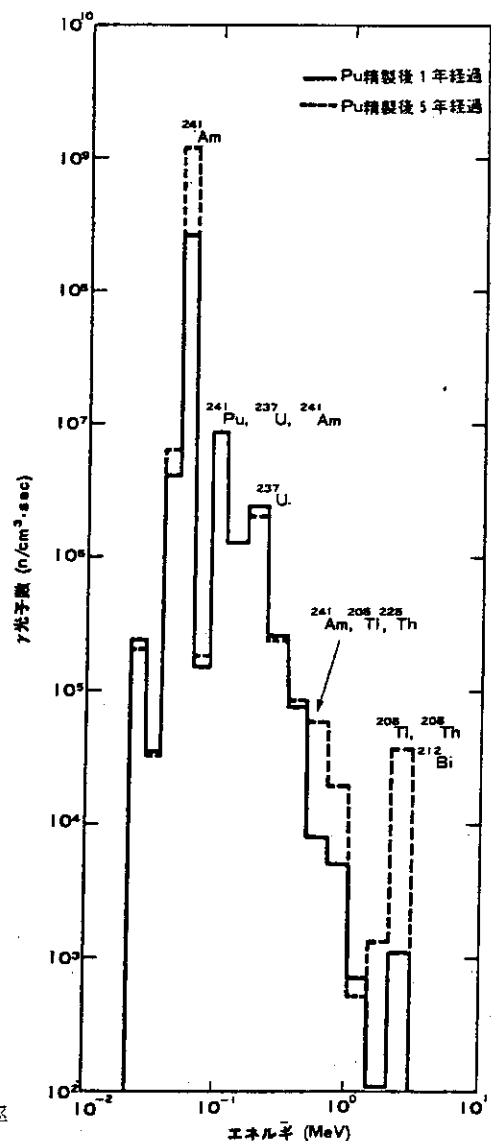


図 3.6.3 LWR 型-Pu の γ 線スペクトル⁽¹³⁾

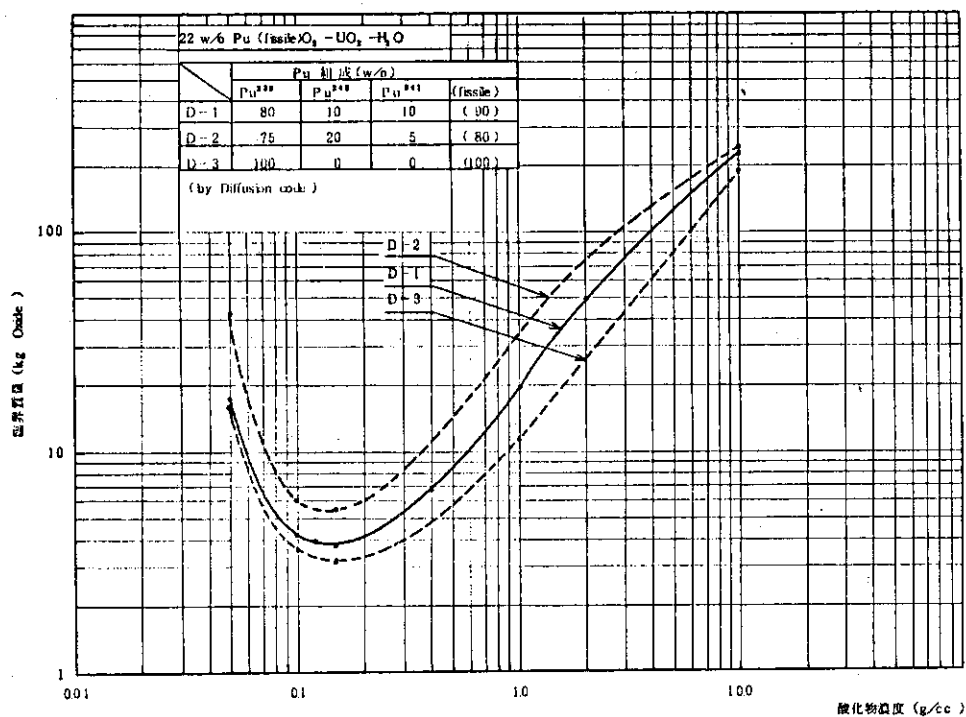


図 3.6.4 $22\text{W}\% \text{PuO}_2 \cdot 78\text{W}\% \text{UO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ 系臨界量のプルトニウム組成効果⁽¹³⁾

3.7 核物質輸送の分野での核データの問題点

使用済燃料のハンドリングを含めた核物質の輸送に関係する分野での問題を把握するため、船舶輸送関係の委員会の委員を対象にアンケート調査を行ったところ、以下のような問題が示された。

(1) 超ウラン元素の断面積

A : 使用済燃料内での中性子線源の生成については実験との対応はあまりよくない。特に、30,000 MWD/MTU 以上のデータは少ない。

超ウラン元素生成に関する断面積、収率と生成された元素からの中性子放出率、 (α, n) 反応による中性子の発生率とそのエネルギースペクトルのデータ精度向上を望む。核種は Pu から Cf まで。

B : 高燃焼度の使用済燃料が容器中にある場合、超ウラン元素の濃度は高くなるが α 崩壊を行ない、酸化物燃料などに含まれる ^{17}O 、 ^{18}O あるいは炭化物中の ^{13}C と α 粒子が反応して高速中性子を発生する。 (α, n) 断面積についての測定データの精度が諸外国でも良くない。

入射 α エネルギー 1 ~ 10 MeV に対する (α, n) 反応微分断面積を系統的に測定する要あり。要求精度は 20 ~ 30 %。

C : キャスク遮蔽計算に関し、核データ精度の最も重要な問題は、以下の如きものでバーンアップ・コードの ORIGEN と FISPIN の核データを比較してもかなり大きな差があると言われている。

^{238}Pu , ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{237}Np , ^{243}Am , ^{244}Cm の σ_f .

^{238}Pu , ^{237}Np , ^{241}Am , ^{242}Am , ^{243}Am , ^{243}Cm の σ_c .

D : 使用済燃料は強い中性子放出体となるが、その正しい評価を望む。例えば燃料の初期装荷状態と平衡炉心ではスペクトル因子が違うであろうし、その他の因子 f (熱中性子利用率) や η (再生率) なども異なろう。現在よく用いられている ORIGEN コードではこれらのパラメータを無視して計算している。

E : 中性子源強度は、コードにより因子 2 程度の差があるようで超ウラン元素の核データの差に基づくと思われる。

F : 再処理施設、核物質使用施設に関連しても超ウラン元素 (特に Pu, Am, Cm など) の中性子、 γ 線源特性 (放出数, スペクトル) を整備する要あり。

ORIGEN で使われている線源関係データの信頼性の確認が必要。

(2) 使用済燃料内の γ 線源について

A : γ 線スペクトルに関するデータ。ORIGEN と PHOBE コードでは特に高エネルギー (約 2 MeV 以上) でスペクトル差が出ると思われる。このエネルギー領域に寄与する核種の生成率、半減期データの精度を要求。

B : γ 線強度とスペクトルについては最近のコードとデータではそれ程差がないと思う。

(3) 発熱量について

ANS Standard に採用されている Shure の式と ORIGEN の結果では 120 日以上冷却の時

点で10～20%差がある。どの核種のデータに基づくものかが不明。

(4) キャスク遮蔽体について

A: キャスクの遮蔽体は通常の遮蔽計算で対象とする遮蔽体と変わらないので特に問題はないと思われる。

B: キャスクに使用されそうな特殊な材料もある。例えば(遮蔽材でないものもあるが)アルミナセメント、レジン、レッドウッド(木材)などの中性子、 γ 線に対する断面積を要求。

(5) キャスク遮蔽SN計算に用いる群定数について

A: DLC 23 cask ライブラリがよく用いられているが、その組分けはkeV領域で非常に大きく大きな誤差を生じうる。組分けを改めた最新の核データによる群定数を望む。

(6) 共鳴領域の断面積

A: 使用済燃料および照射構造材の放射能評価にあたり、代表的な原子炉に対する共鳴領域の断面積を使い易い形にまとめておく必要がある。高速領域に関しても同様。

(7) アルベドデータについて

A: 輸送キャスクでもストリーミングの問題は大きい。モンテカルロ法を用いる場合、微分アルベドデータの整理が必要。またそれを用いる専用コード整備を望む。

(8) その他

A: ジルコニウムの核データの精度を(十分なのかどうか)知りたい。

B: FP核種の中性子断面積整備が臨界設計の余裕度を知る上で必要と思う。

核物質輸送容器周辺の線量率の推定には、容器内の線源評価と容器構造物の遮蔽効果を重畳させた計算が必要になる。30,000 MWD/MTU以下の燃焼度のPWR炉燃料輸送容器周辺の線量率を実測し、計算値とfactor 2程度で一致する結果を得た研究成果は国内で発表(使用済核燃料の安全輸送に関する調査研究報告書, 日本造船研究協会, 昭和55年)されているが、より以上の燃焼度を対象とする場合には線源評価精度がさらに低下することが指摘されている。この問題点は、本書において「遮蔽解析における線源評価」および「アクチノイドの核燃焼」に関する核データの項目で指摘されている問題と共通なものである。また、容器内の線源強度、実効増倍率、線量率輸送計算の各コードを組合せた使用済燃料輸送用放射線環境評価コードシステム(SCALE)が米国では開発されているが、今後我が国でもこの種の専用コードシステムの整備されることが望まれる。

[関口 晃]

3.8 遮蔽解析における線源評価と核データ

使用済燃料を取扱う施設及び機器の遮蔽解析において、その線源評価は空間線量率、照射損傷を精度良く求めるために重要である。遮蔽解析は近年、ますます詳細計算を行なう必要性が高まり、その計算精度も向上しつつある。このような解析では線源評価として中性子、ガンマ線の強度のみならず、詳細な線源エネルギースペクトルの情報が必要となる。これらの線源評価と核データの関係及びその現状と問題点を以下に述べる。

3.8.1 遮蔽解析に用いる線源データ

遮蔽解析に用いる線源データは一般に中性子とガンマ線であり、使用済燃料における線源として考えるべきものの発生機構と現状での評価法は以下に示す通りである。

(1) 中性子源

中性子源としてはアクチニド核種の自発核分裂反応及び (α, n) 反応によるものが考えられる。自発核分裂反応の収率及びエネルギースペクトルは比較的良く測定されており、例えば ENDF/B-IV にも評価済のデータが収録されている。核分裂スペクトルについては現在でも詳細な議論がなされているが、遮蔽解析の立場では、現在得られるデータで十分満足出来るものと言える。 (α, n) 反応による中性子はアクチニド核種の α 崩壊によって放出される高エネルギー α 粒子が燃料中の酸素同位体 ^{17}O 、 ^{18}O と反応して発生するものである。 (α, n) 反応については以下で詳述するが、現状ではその収率のみならずエネルギースペクトルの情報が不足しており、その評価法についても確立しているとは言い難い。

(2) ガンマ線源

使用済燃料の主なガンマ線源としてはFP核種からの寄与が多い。その他にアクチニド核種より放出されるものとSUSなどの構造材の放射化による寄与がある。これらは燃焼計算を行なって、放射化核種の生成量を求め、その半減期及び放出ガンマ線エネルギーを核データより求めて算出する。核データとして Nuclear Data Sheets あるいは最近編集された Table of Isotopes 7th edition を利用するのが一般的であろう。これらのデータを収録して収率、エネルギースペクトルを計算するORIGENコード⁽¹⁴⁾、DCHAINコード⁽¹⁵⁾の利用も多い。二次的なガンマ線源として遮蔽体中で発生する捕獲ガンマ線も遮蔽解析では重要となる。使用済燃料の輸送キャスクでは冷却材及び中性子遮蔽材としての水層中で高エネルギーガンマ線が発生し、キャスク表面線量率の十数%以上の寄与に達する例もある。しかし、二次ガンマ線のデータは現状では不足している。一般に入手可能な二次ガンマ線データは評価済核データライブラリENDF/B-IV及び測定データを集めたPOPOP4⁽¹⁶⁾ライブラリーがあるが、両者とも信頼性があるものとは言い難い。ENDF/B-Vにおいてもトリウムなどは再評価する必要があると指摘されている。⁽¹⁷⁾この分野のデータはシグマ委員会で行っている二次ガンマ線生成データの評価に期待するところが大きい。

3.8.2 (α, n) 反応の重要性

上述した線源評価法の現状のうち、 (α, n) 反応による中性子源に着目して詳しく議論する。

使用済燃料が低燃焼度である時には、 α 崩壊するアクチニド核種が比較的少量しか生産されないため、 (α, n) 反応による中性子放出は自発核分裂中性子源と比較して少なく、特に問題とはならない。しかし使用済燃料が高燃焼度となったり、プルトニウムの熱中性子炉への導入を行った場合、 ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm などの α 崩壊核が大量に生成される。このような場合、 (α, n) 中性子源の強度が自発核分裂源と同等、またはそれ以上になることが考えられる。 (α, n) 反応による中性子源スペクトルは自発核分裂のそれよりも硬いのが特長である。遮蔽解析では線源のエネルギースペクトルは透過特性に大きく影響し、エネルギースペクトルが硬くなるとより危険側になる。現状では (α, n) 中性子源スペクトルを測定し、評価した例がほとんどないため、自発核分裂スペクトルで代用している場合が多い。そのため、 (α, n) 反応による中性子源への寄与が多くなる場合には、充分注意して線源評価を行う必要がある。また (α, n) 反応は反応のQ値が低い軽元素で生じ、 $^6,7\text{Li}$, ^9Be , ^{10}B , ^{11}B , ^{13}C , ^{17}O , ^{18}O , ^{19}F などが対象となり、酸化物のみとは限らない。 (α, n) 中性子源強度の評価法として、最も簡単なものとしてORIGENコードによる計算結果が良く用いられているが、ORIGENコードでは $^{238}\text{PuO}_2$ の測定結果に基づいた経験式をすべてのアクチニド核種に適用する近似で (α, n) 反応による中性子源強度を求めている。この方法では、 ^{17}O , ^{18}O 以外の軽核種との反応を無視しているため、例えば炭化物、フッ化物の寄与などは計算できない。また、アクチニドと酸素との化学結合の違いなどで、中性子源強度に対する放出 α 粒子のエネルギー依存性が異なるため、あまり良い近似とは言えない。最近になって、上述した軽核種との (α, n) 反応による中性子源強度がJ. K. Bair 他によって測定され、評価されつつある。しかしエネルギースペクトルについては今後の課題である。

3.8.3 (α, n) 反応による中性子スペクトル計算法の現状

原研における遮蔽安全性解析コード開発の一環として (α, n) 反応による中性子スペクトル計算コード及び断面積データライブラリーを作成して、 (α, n) 反応による中性子スペクトル評価法について検討しているため、ここでその一部を示して (α, n) 反応による中性子源評価法の問題点について述べる。ここで開発した (α, n) 中性子源スペクトル計算コードALPHANは線源評価コードORIGEN-JR⁽¹⁸⁾に組み込まれている。計算式は (α, n) 反応の微分断面積を用いた表式⁽¹⁹⁾を使用している。

$$\phi_{n, i} = 2\pi \sum_{\{T, Q\}} n_T \sum_j \Delta E_{\alpha j} \int_{\mu_i}^{\mu_{i+1}} \phi_{\alpha}(E_{\alpha j}) \frac{d\sigma^{T, Q}(E_{\alpha j}, \theta)}{d\Omega} d\mu \quad (1)$$

(1)式で用いた変数の意味は次に示す通りである。

$$\frac{d\sigma^{T, Q}(E_{\alpha j}, \theta)}{d\Omega} : \text{標的核Tのある反跳核レベルQに対する}\alpha\text{粒子エネルギー } E_{\alpha j}, \text{ 散乱角 } \theta \text{ の微分反応断面積}$$

$$\phi_{\alpha}(E_{\alpha j}) : \alpha\text{粒子エネルギー } E_{\alpha j} \text{ における}\alpha\text{粒子線束}$$

$$\mu : \text{散乱角の余弦}$$

$$\Delta E_{\alpha j} : \text{計算する}\alpha\text{粒子エネルギーメッシュ幅}$$

- n_T : 標的核 T の原子数密度
 $\phi_{n,i}$: 中性子エネルギー群 i に放出される中性子束

ここで α 粒子のスペクトルは連続減速モデルを用いて以下の表式で求める。

$$\phi_\alpha(E_\alpha) = \sum_{k>E_\alpha} n_{\alpha k} / \left(\frac{dE}{ds} \right)_{E_\alpha} \quad (2)$$

ここで $n_{\alpha k}$ はアクチニド核種により放出される α 粒子の個数であり、 $(dE/ds)_{E_\alpha}$ は α 粒子エネルギー E_α における媒質の阻止能である。 (α, n) 反応微分断面積は統計模型を用いた断面積計算プログラム ELIESE-3⁽²⁾ によって反跳核のレベルを基底状態を含めて 5 レベル考慮し、角度依存性をルジャンドル展開係数の第 10 次項まで求めた。 α 粒子線束は 10 MeV より 1 MeV まで等エネルギー間隔で 100 点について計算し、放出中性子スペクトルは 14.9 MeV より 0.1 MeV まで 0.25 レサージ等間隔で 200 群で計算される。阻止能データについては、J. F. Ziegler のまとめた α 粒子の計算データ⁽²⁾ より 58 核種についてライブラリーを作成した。これらの計算フローを Fig. 3.8.1 に示す。

計算した (α, n) 反応による中性子源スペクトルを Fig. 3.8.2 に示した。図中には自発核分裂スペクトルも合わせて示した。Fig. 3.8.3 には ^{17}O 及び ^{18}O の核種別による中性子源への寄与を示してある。これらの図より ^{18}O が中性子源への寄与が大きく、自発核分裂スペクトルに比して硬くなっていることが理解できる。Fig. 3.8.4 に $^{242}\text{Cm}_2\text{O}_3$ のスペクトルを示し、Fig. 3.8.5 には ^{238}PuC の中性子源スペクトルを示した。炭化物では酸化物と異なり、非常に高いエネルギー（約 5 MeV）の中性子が放出される事が理解出来る。Table 3.8.1 に今回計算した (α, n) 反応による中性子収率及び ORIGEN による結果を評価値と比較した。例えば $^{242}\text{Cm}_2\text{O}_3$ では ORIGEN の計算値は評価値と比較して約 3.5 倍の過大評価となることが理解出来る。それに比して ORIGEN-JR に組み込んだ手法では約 50 % の過大評価と改善されている。 $^{238}\text{PuO}_2$ については最も良く収率が測定されており、その測定及び理論的な評価値を Table 3.8.2 に示す。この表中では J. K. Bair 他の測定及び評価が最も新しく、信頼出来るものであるが、本手法による計算値と 10 % 以内で良い一致を示している。これは Fig. 3.8.6 に示すように $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$ の全断面積が測定値と良い一致を示しており、Fig. 3.8.7 に示すように微分断面積もほぼ測定値に沿っている事による。しかしながら ^{238}PuC についてはあまり一致は良くない。Fig. 3.8.8 に $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ の全断面積を示したが、測定値には鋭いピークが表われており、統計模型での評価は困難である事が示されている。そのことが、収率の誤差の増大する要因となっている。

また、ここでは中性子源スペクトルを示さなかったが $^{11}\text{B}(\alpha, n)^{14}\text{N}$ の微分断面積を Fig. 3.8.9 に示す。このように標的核の構成原子数が少ない場合には直接反応が主な反応機構となり前方散乱成分が増加する。統計模型ではこの現象は説明出来ない。前方散乱成分が増加する事は放出中性子エネルギーがより高くなる事を意味し、この角度依存性を重心系等方で近似すると、遮蔽解析では線量率を過少評価する事が考えられる。このように (α, n) 反応断面積の測定、評価は、ある特定のエネルギー範囲を除いて、ほとんどなされていないのが現状である。

3.8.4 まとめ

前節で (α, n) 反応による中性子源スペクトル評価の現状を述べたが、評価に必要な核データの不足によって、精度良い評価はなされていない。WRENDA 79/80⁽²⁾においても、これらの軽核種の (α, n) 反応に対するリクエストが各国より提出されているが、そのほとんどがpriority 2であるため新たな測定があまりなされていない。 (α, n) 反応による中性子源スペクトルを精度良く評価するためには、 α 粒子のエネルギー範囲を0.1~8 MeVの広範囲にわたり0.1 MeV程度の分解能で測定する必要がある。また直接反応モデルによる断面積計算コードの開発も必要であり、このモデルの検証のためにも角度依存性の測定データが、特に高エネルギー領域で必要となってくる。

(α, n) 反応断面積の測定、評価の現状を1956年以降について検索した結果の一部をTable 3.8.3に示すが、一核種に2~3の論文しか見あらず、測定されているエネルギー範囲も限られている。今後、使用済燃料が高燃焼化するに従い、 (α, n) 中性子源の寄与も増加するため、線源評価がより一層重要になる事が考えられる。そのためにも、角度依存性を含めた核データの測定、評価及び直接反応モデルによる断面積計算コードの開発が望まれる。

〔山野 直樹〕

Table 3.8.1 Comparisons of (α, n) reaction neutron yields

Material	ORIGEN	Present Study	Experimental or Evaluated Value
$^{238}\text{PuO}_2$	3.2×10^5	1.859×10^5	1.722×10^5
^{238}PuC	4.1×10^5	4.144×10^5	2.026×10^5
$^{242}\text{Cm}_2\text{O}_3$	1.96×10^6	8.773×10^5	5.68×10^5

Units in $[\text{n}/\text{cm}^3 \cdot \text{sec}]$

Table 3.8.2 Comparison of $^{238}\text{PuO}_2$ yield data

Evaluated Value (n/cm ³ ·PuO ₂ /sec)	Reference	Comment
1.22×10^5	BNWL-B-109 (1971)	theoretical evaluation
$(2.22 \pm 0.1) \times 10^5$	Anderson and Neff Nucl. Appl. Technol. <u>7</u> , 62, (1969)	no correction of neutron induced fission reaction
$(1.15 \pm 0.02) \times 10^5$	Matlack and Metz LA-3696 (1967)	
$(1.63 \pm 0.37) \times 10^5$	Taherzadeh and Gingo Nucl. Technol. <u>15</u> , 406, (1972)	theoretical evaluation
2.18×10^5	Stoddard and Albensius DP-984 (1965)	
1.67×10^5	Herold Nucl. Appl. <u>4</u> , 19, (1968)	
$(1.722 \pm 0.02) \times 10^5$	Bair and Butler Nucl. Technol. <u>19</u> , 202, (1973)	experimental and correction of neutron induced fission reaction

Table 3.8.3 References of (α , n) reaction measurements and yield evaluations

((α ,n) cross section)		
^7Li	J. Kjellman et al., M.K. Mehta et al., L. Van der Zwan and K.W. Geiger,	Arkiv Fysik <u>21</u> 169(1961) Nucl. Phys., <u>48</u> 90(1963) Nucl. Phys., <u>A180</u> 615(1972)
^9Be	J. Kjellman and A. Nilsson, V.V. Verbinski et al., L. Van der Zwan and K.W. Geiger, A.W. Obst et al.,	Arkiv Fysik <u>22</u> 277(1962) Phys. Rev., <u>170</u> 916(1968) Nucl. Phys., <u>A152</u> 481(1970) Phys. Rev., <u>C5</u> 738(1972)
^{10}B	L. Van der Zwan and K.W. Geiger, S.J. Wilson,	Nucl. Phys., <u>A216</u> 188(1973) Phys. Rev., <u>C11</u> 1071(1975)
^{11}B	J.M. Calvert et al., J. Kjellman, G.S. Mani and G.C. Dutt, L. Van der Zwan and K.W. Geiger,	Nucl. Phys., <u>31</u> 471(1962) Arkiv Fysik <u>21</u> 543(1962) Nucl. Phys., <u>78</u> 613(1966) Nucl. Phys., <u>A246</u> 93(1975)
^{13}C	A. Nilsson and J. Kjellman, J.K. Bair and F.X. Haas,	Arkiv Fysik <u>21</u> 551(1962) Phys. Rev., <u>C7</u> 1356(1973)
^{14}N	W. Gruhle et al.,	Nucl. Phys., <u>A186</u> 257(1972)
$^{17}\text{O}, ^{18}\text{O}$	L.F. Hansen et al.,	Nucl. Phys., <u>A98</u> 25(1967)
((α ,n) yield)		
	O.J.C. Runnalls and R.R. Boucher, S.J. Rimshaw and E.E. Ketchen, M.E. Anderson and M.R. Hertz, K.W. Geiger and L. Van der Zwan, M. Taherzadeh and P.J. Gingo, J.K. Bair and H.M. Butler, J.K. Bair, H. Liskien and A. Paulsen, J.K. Bair and J. Gomez del Campo,	Canadian J. Phys., <u>34</u> 949(1956) ORNL-4357 (1969) Nucl. Sci. Eng., <u>44</u> 437(1971) Health Phys., <u>21</u> 120(1971) Nucl. Technol., <u>15</u> 396(1972) Nucl. Technol., <u>19</u> 202(1973) Nucl. Sci. Eng., <u>51</u> 83(1973) Atomkernenergie <u>30</u> 1 (1977) Nucl. Sci. Eng., <u>71</u> 18 (1979)

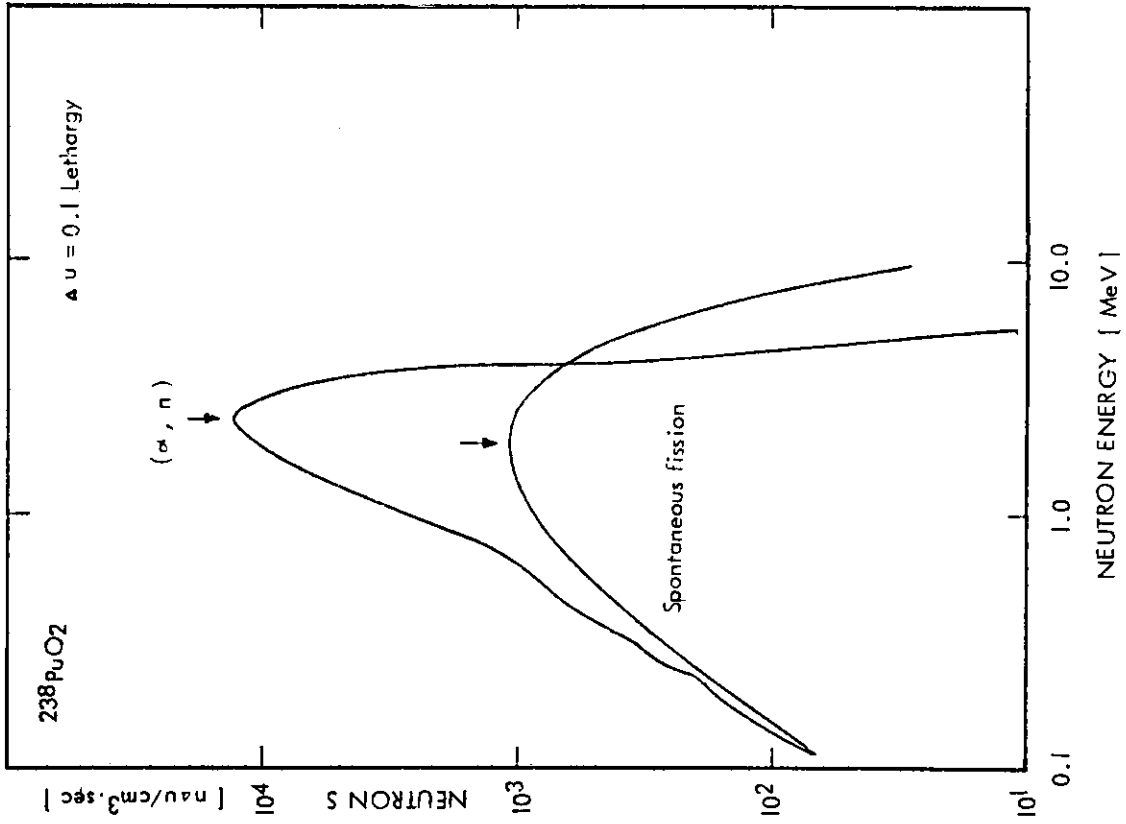


Fig.3.8.2 Calculated Neutron Spectrum in $^{238}\text{PuO}_2$ (density=1.46 g/cm³)

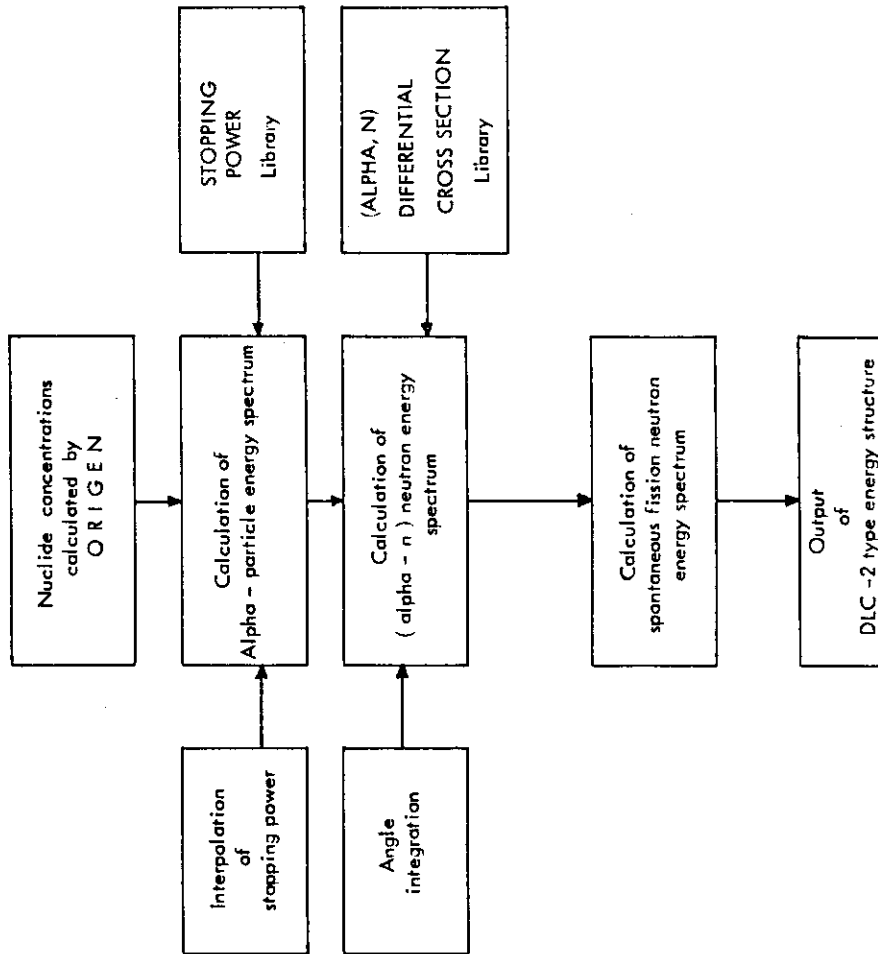


Fig.3.8.1 Schematic diagram of ALPHA N program

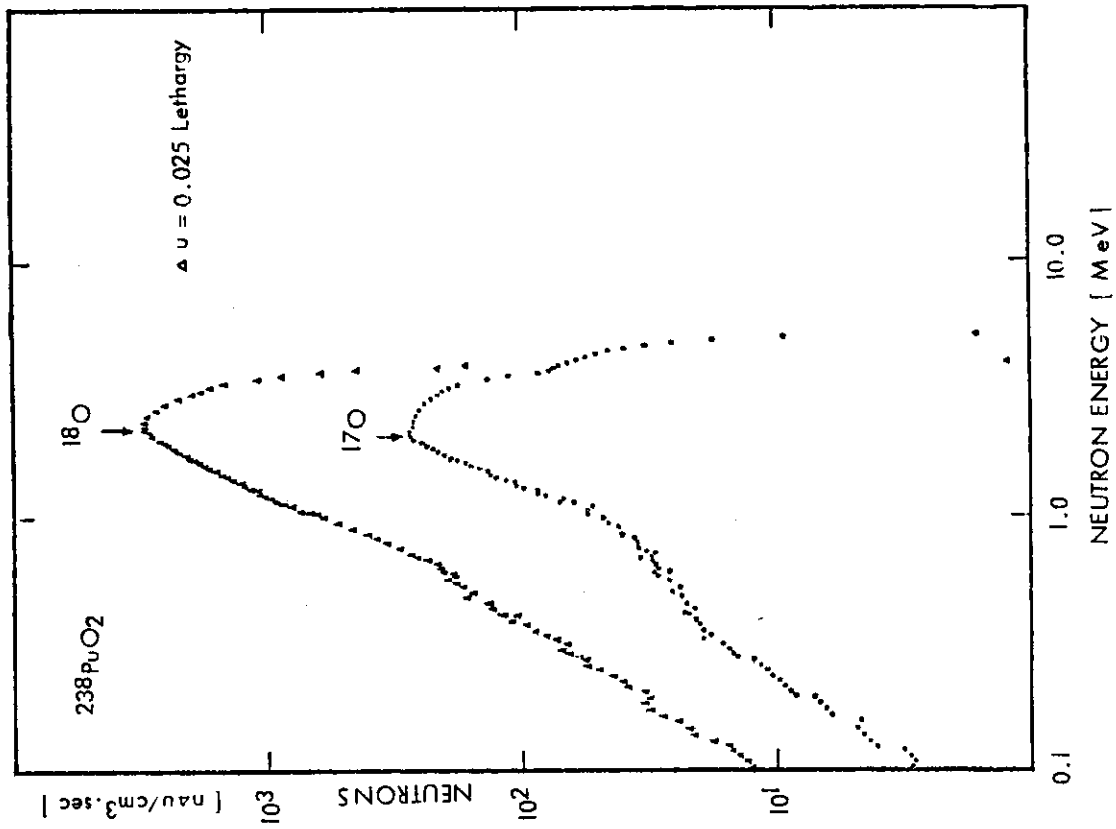


Fig. 3.8.3 (alpha - n) neutrons from ^{17}O and ^{18}O in $^{238}\text{PuO}_2$

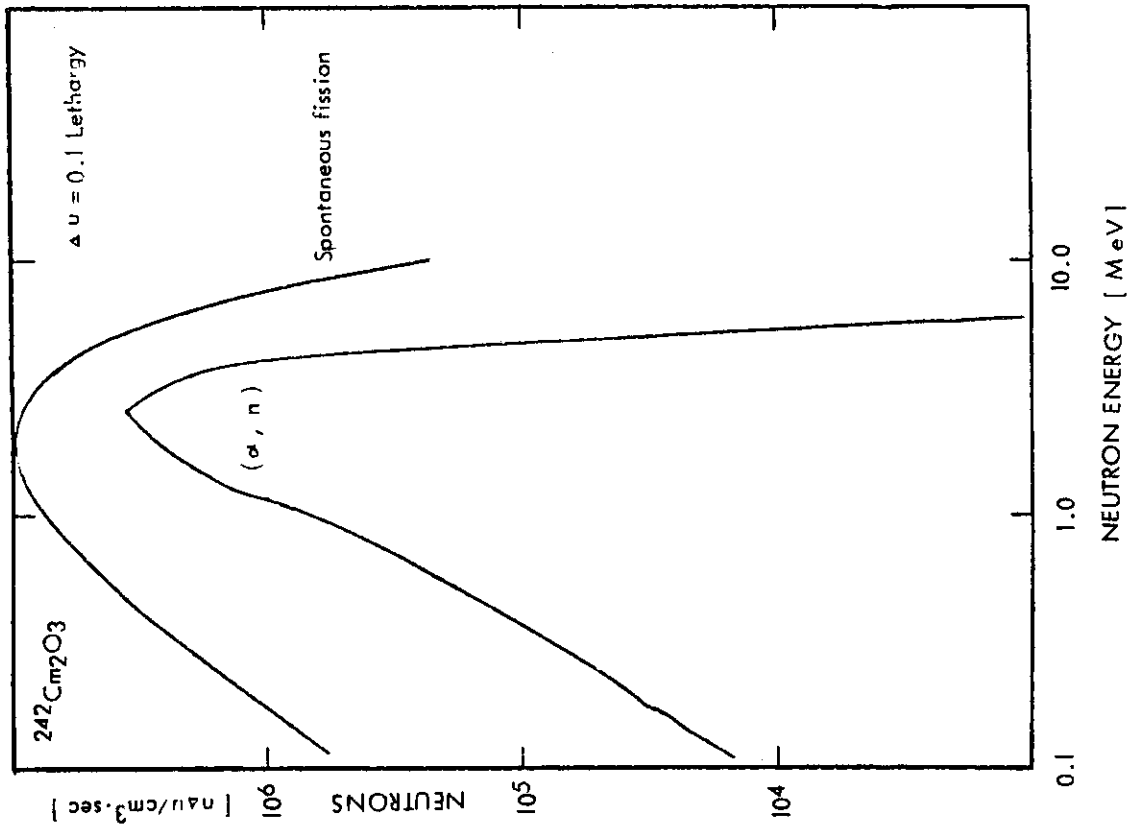


Fig. 3.8.4 Calculated Neutron Spectrum in $^{242}\text{Cm}_2\text{O}_3$ (density = 11.7 g/cm^3)

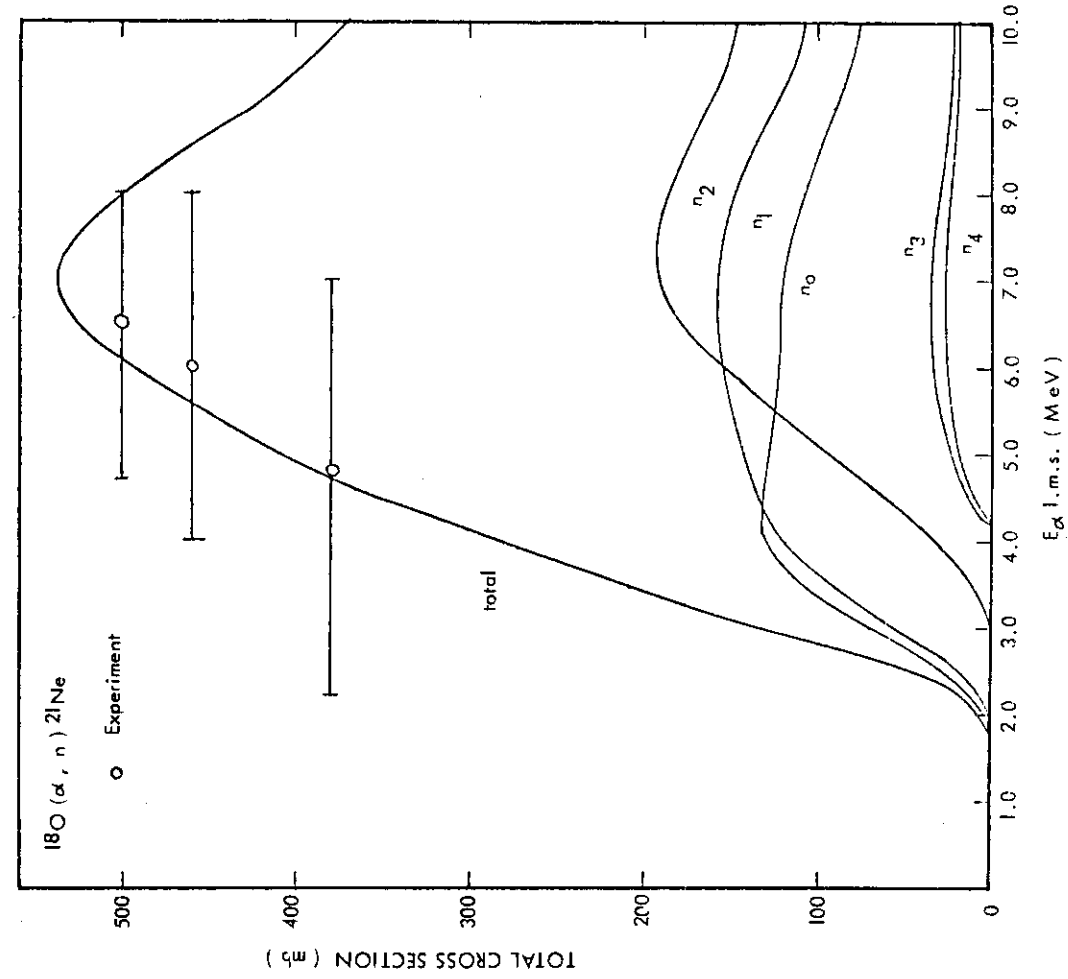


Fig.3.8.6 (alpha - n) Total Cross Section of ^{18}O (α - n) ^{21}Ne

Experimental data shown in the figure are given in reference (389)

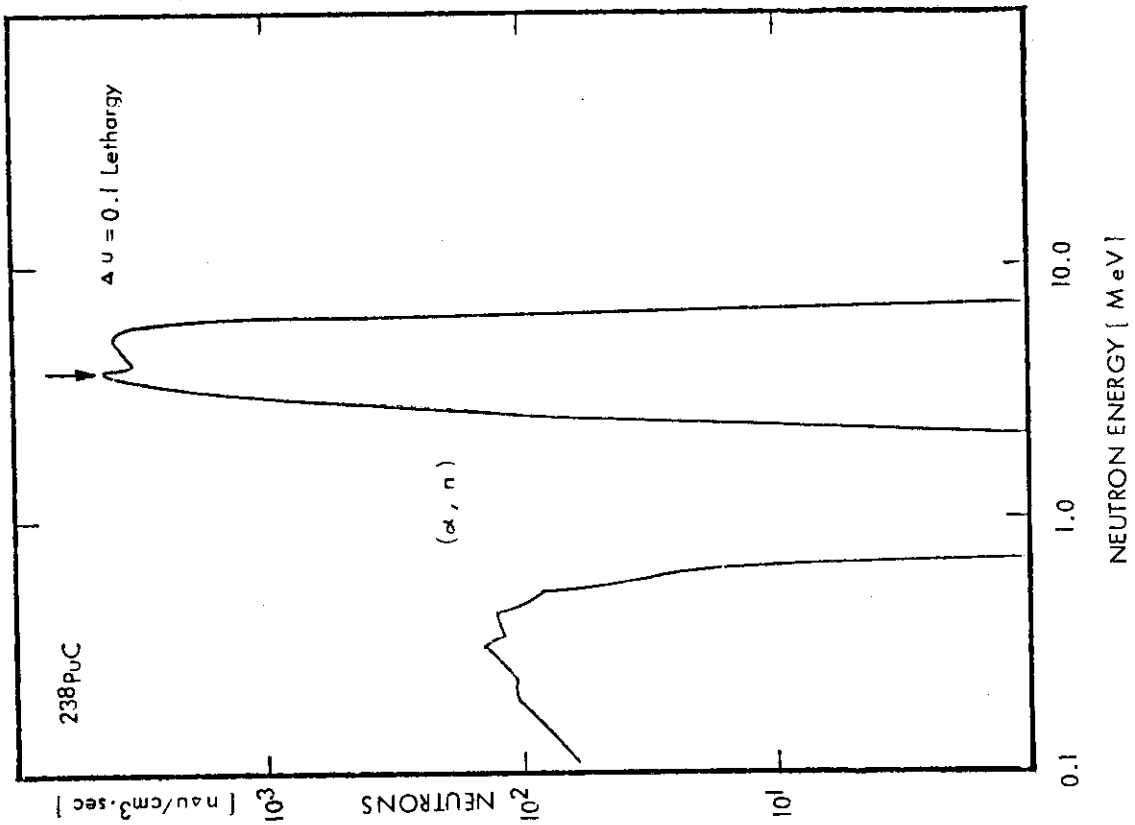


Fig.3.8.5 Calculated Neutron Spectrum in ^{238}PuC (density = 13.6 g/cm^3)

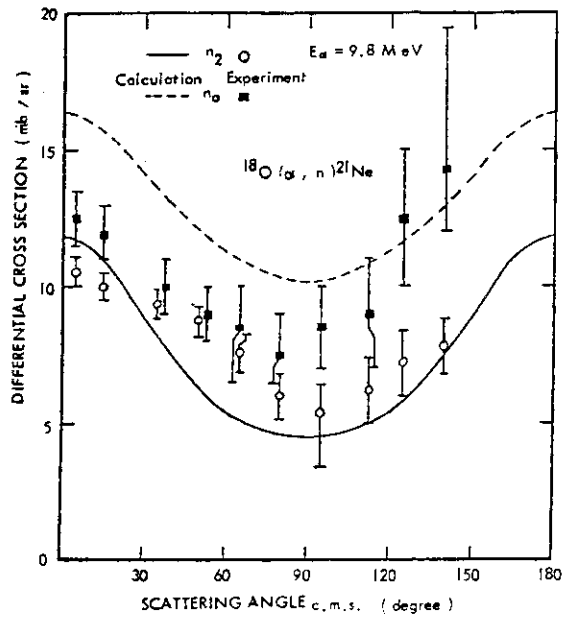


Fig.3.8.7 (alpha - n) Differential Cross Section of $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$

Experimental data shown in the figure are given in reference (23)

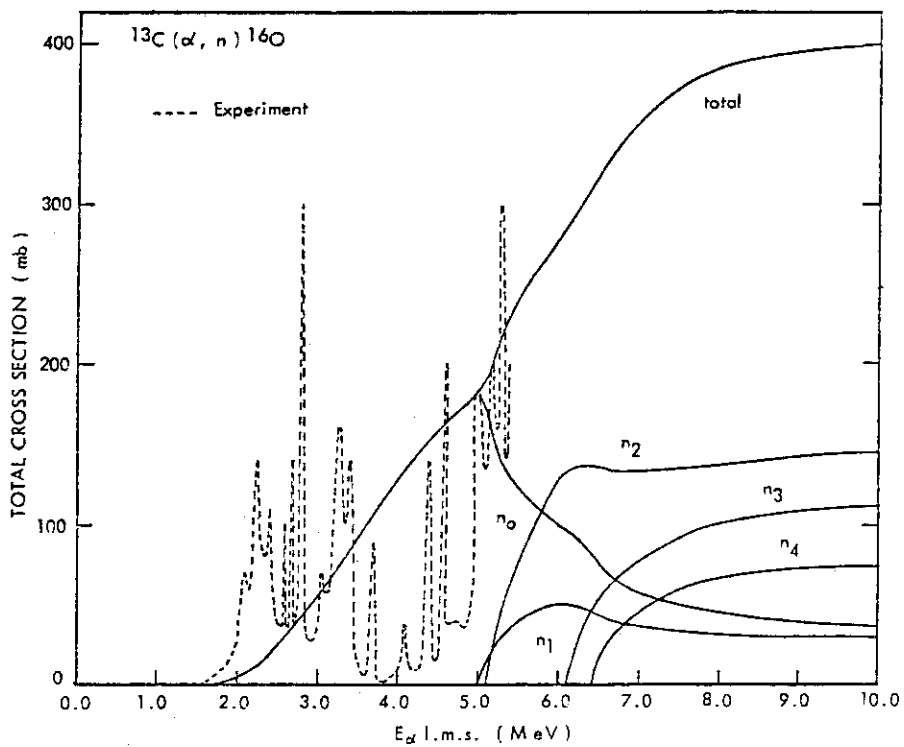


Fig.3.8.8 (alpha - n) Total Cross Section of $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$

Experimental data shown in the figure are given in reference (24)

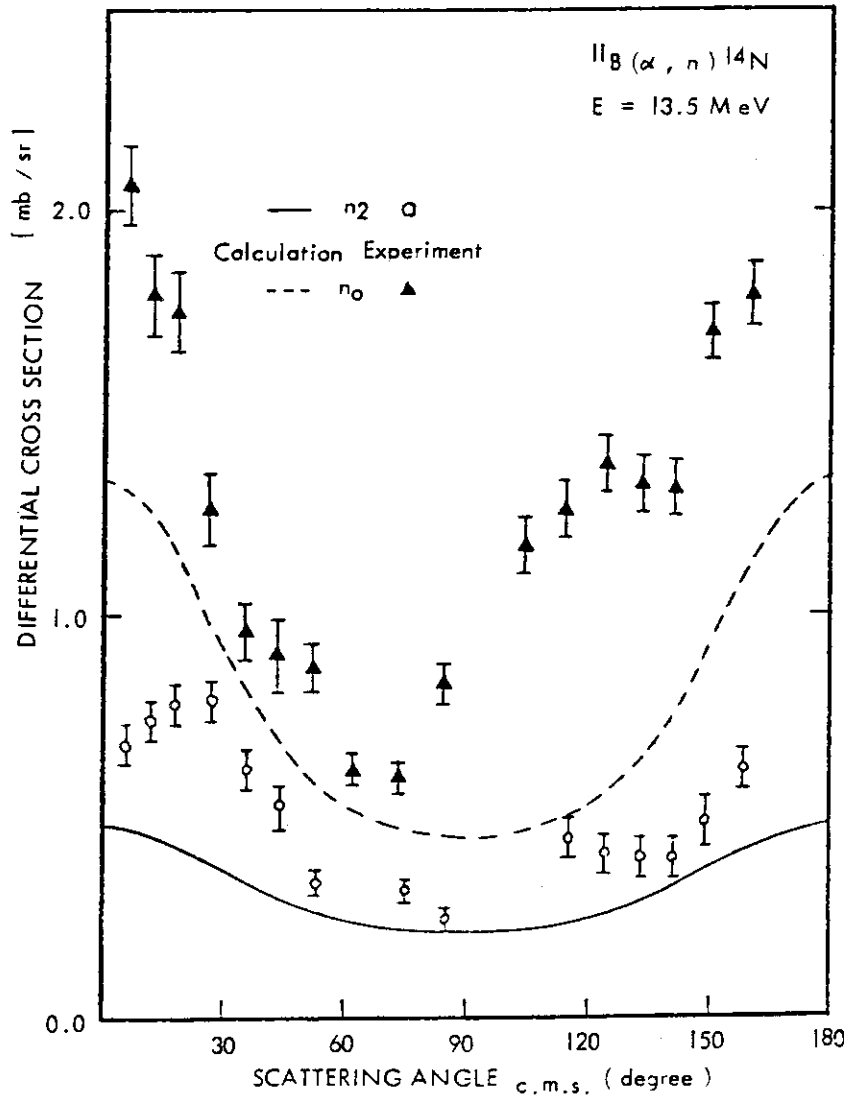


Fig.3.8.9 ($\alpha - n$) Differential Cross Section of $^{11}\text{B}(\alpha - n)^{14}\text{N}$
Experimental data shown in the figure are given in reference (25)

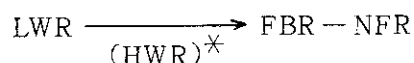
3.9 環境安全における核データ及び計算コード

3.9.1 環境安全

核燃料サイクル施設において発生する気・液・固体廃棄物を実用可能な限り環境に対する影響が少なくなるように処理処分することは、原子力産業の実施上避けることのできない問題である。

3.9.2 炉型戦略

資源に貧しい我が国では、核分裂炉としてウラン・プルトニウムのリサイクル戦略をとらざるを得ず、次いで核融合炉に移行することとなろう。それぞれにおいて発生する廃棄物について事前評価し、かつ出来る丈これを安全に処理処分しなければならない。



3.9.3 核燃料サイクルと廃棄物の発生

核分裂炉の核燃料サイクルにおける廃棄物採鉱→濃縮・加工等→発電→再処理の各段階において種々な廃棄物が発生する。また、施設の保守・解体・撤去ならびに廃棄物の処理・処分及び群分離消滅処理の工程においても二次廃棄物が発生する。

3.9.4 廃棄物の種類

- 1) 低・中レベル廃棄物 : 主として原子炉の運転によって発生し、Fe, Ni, Co及びCs, Srを含みレベルは低い、量的には多い。
- 2) 高レベル廃棄物 : 通称高レベル廃棄物は、使用済み燃料の再処理によって発生し、FPとしてNp, U, Pu, Am, Cm等を含み、放射線と崩壊熱に対する管理と、長半減期の核種を含むために、長期にわたる隔離を要する。低中レベル廃棄物に比し量的には少ない。
- 3) α汚染廃棄物 : α汚染廃棄物は主としてPuを取扱う施設で発生する。又、再処理施設においても発生する。
- 4) 解体廃棄物 : この中には高レベル廃棄物に分離されるもの、低レベルに分離されるものがあり、これらは主として放射化によるNb, Zr, Ni, Co, Cr, Cuなどを含む。このほかにα放射体によって汚染された廃棄物もあり、Pu取扱施設における解体廃棄物等はこれにあたるが上記のα廃棄物として取扱われることが望ましい。
- 5) 気体廃棄物及びエアロゾル : 原子炉運転、再処理などの工程で発生する。核種として、 ^3H , ^{14}C , ^{127}I , ^{129}I , ^{85}Kr などを含む気体廃棄物やFP及びα核種を含むエアロゾル、微粒子などがあげられる。

これまでの分類は、主として取扱い上の放射線レベルにもとづくものであり、処分を想定したときの長期評価の立場からの分類ではない。現在IAEAにおいて、分類についての再検討が行わ

* カッコ内は代替炉を示す。

れている。

3.9.5 廃棄物の処理処分法

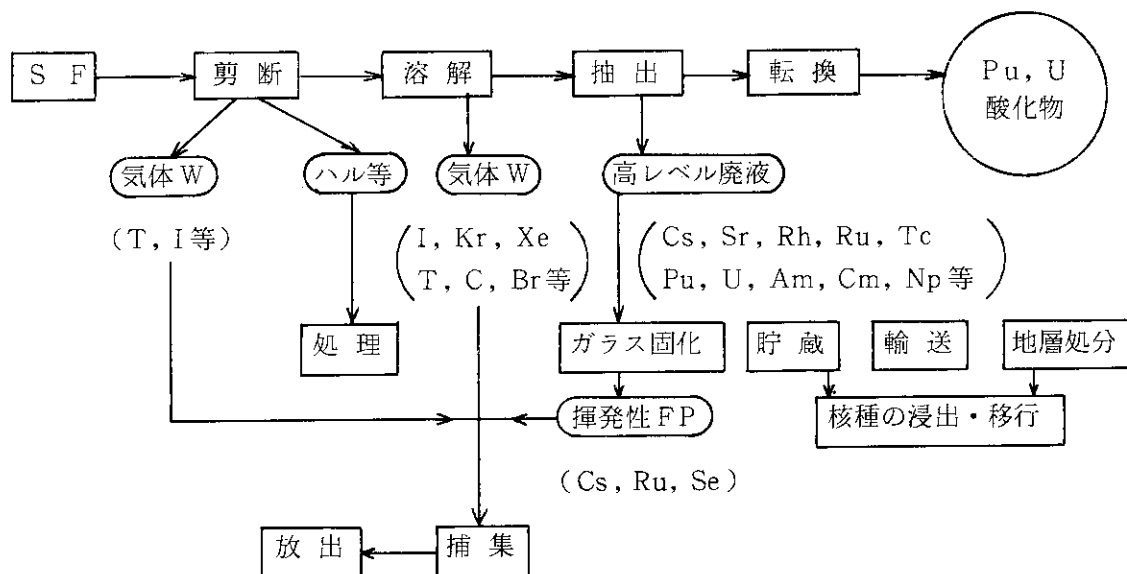
- 1) 極低レベル廃棄物^{*}については環境影響評価ののち、環境中に放出している。発生管理のために物理・化学的方法による捕促、濃縮あるいは貯蔵（遅延）によって低減を計ることもある。
- 2) 低・中レベル廃棄物等の熱を発生しない廃棄物については、セメント固化、アスファルト固化、プラスチック固化等により低浸出性の固化体とし、浅地層処分及び海洋投棄処分が考えられている。これらの廃棄物についても、発生管理のために、焼却や湿式酸化、濃縮によって減容が計られている。
- 3) 高レベル廃棄物については、ガラス固化や、人工岩石化、金属固化などの種々の方法が提案されていて、ガラス固化については商業ベースの固化プロセスが計画されている。処分方法としては、長期隔離を目的として、安定した地層中に500～2000 mの深部に処分する方法が実現性の高い方法として世界的に研究・開発が行われている。また代替法として、海洋底（地層）処分についても国際協力による調査・研究が行われている。
高レベル廃棄物の長半減期核種（超ウラン元素等）及び崩壊熱の著しい元素（Cs, Sr等）を分離し、管理をし易くしようという群分離法がある。特に超ウラン元素については高速中性子により、核反応を生じさせ半減期の比較的短い核分裂生成物に転換する研究が進められている。
- 4) α 汚染廃棄物及び、気体廃棄物については、現在は処理処分方法についての研究、開発が行われており暫定的に保管することとしており、長期安全評価が必要である。 α 廃棄物の海洋投棄処分については、IAEAの定義勧告により1 Ci/ton を超えるものはこれに適さないものとされており、現在は高レベル廃棄物の処分に準ずることが支配的な考え方になっている。
- 5) ハル・解体廃棄物等については、（冷却）保管及びモスボーリングなどによる保管が提案されている。発生の管理として、除染により放射能の高い部分と低い部分を分離あるいは減容し、管理を容易にする方法について研究開発が行われている。

3.9.6 核データとこれに基く計算コードを必要とするものの例

核データを最も必要とするケースとしては、使用済燃料組成及び高レベル廃棄物組成の推定と、消滅処理があげられる。

必要な計算コードとしては、高レベル廃棄物およびオフガス処理処分に関連するものが多い。次にプロセスの例を示す。

* 昭和35年科技庁告示第22号



必要な計算コードとしては、次のような例があげられる。

- ① 発生管理 : 高レベル廃棄物等の発生管理のためのコードで組成の推定及び時間変化(重量組成, α , β , γ , n 放射能を含む。アクチニウム及び Pb に至るまでの系列)を含むことが望まれる。
- ② 熱的安全 : 高レベル廃棄物の熱管理のための発生熱(貯蔵及び処分時の固化体及び環境の温度分布の推定を含む)に関するものが必要とされる。
- ③ 放射線安全 : 遮蔽計算のための体系のモデル作成, ビルドアップ係数の計算及びエネルギーを群に分けた線量率の計算コード(スカイシャインを含む)特に γ 及び n に関するものが必要とされる。
- ④ 臨界安全 : 臨界安全のためのコード(輸送, 貯蔵, 再処理のみならず, 処分後浸出した核分裂性核種が地層中で吸着し, 濃縮等により臨界に達しないことの事前評価)を必要とする。
- ⑤ 廃棄物の(長期)安全評価とこれに基く廃棄物の分類のための計算 : 地層処分は, 人工バリア及び天然バリアの遅延効果により, 生活環境への影響を低減するという思想に基くものであるが, 長期安全評価, 特に ^{225}Ra , ^{226}Ra , ^{99}Tc , ^{129}I とその親核種の生活圏への移行と, これに基く影響評価については, 方法が確立されたとはいいがたい。(そこでは, Pb に至るまでの壊変連鎖が組み込まれた計算コードを必要とする。)

この方法が確立することにより, 処分地層或は固化体等についての総合的事前評価が可能になり無制限な性能要求のくり返しから脱することができる。

また, 処分に関する長期及び短期の安全評価計算は, 処分を前提とした廃棄物の再分類を可能にする。現在は固体の状態が発生した廃棄物は如何に放射能レベルが低くとも, 放射性廃棄物として管理することが要求されている。たとえば廃炉解体に伴うコンクリートのうち, 一般産業廃棄物として扱うことが望ましい物は, 重量にして全体の約 90% を占めている。

3.9.7 計算コードの現状

環境安全上必要な計算コードには、次のようなものがあげられるが、必ずしも十分とはいえない。

- ① 核種組成及び放射能等 : ORIGEN, DCHAIN, COMRAD等。
- ② 遮蔽計算 : γ 線遮蔽として, QAD, SPAN, PALLAS-PLSP, ANISN, MORSE等。n遮蔽として, 一次元では, ANISN, PALLAS-TSSP, PALLAS-TS, 二次元としては, TWOTRAN, PALLAS-2DSY, 三次元では, PALLAS-XYZがある。
- ③ 熱計算 : HOT, HEATING-III, GLASS等。
- ④ 核種の拡散移行 : 地中移行として, GETOUT, MMT1Dがあり, 海洋拡散として, OCEAN-DIFFUSIDがある。また, 大気拡散, 被曝については, KARINE, HZRMZS等がある。
- ⑤ 地層処分の長期評価 : 確率論的評価法としてAMROWがある。
- ⑥ 臨界解析 : KENO-N, FEDM, CITATION等がある。

3.9.8 環境安全上必要なコード及び具備すべきことから

以上述べてきたように、環境安全上必要な核データ及び計算コードのうち、核データそのものに対しては、組成推定及び消滅処理の計算に必要なデータを実測値に近い計算値として与え得るような核データが提供されることが要望される。

むしろ、そのような核データを含めた各種計算コードシステムを必要とし、ユーザー側の要望に基づく output の追加などの改良が容易に行われることが必要である。特に計算コードへの接近及び使用の容易さとともに、改良コードの評価・登録はユーザーにとって重要な事柄の一つである。

〔荒木 邦夫〕

3.10 アクチノイドの核燃焼に関する核データの問題

3.10.1 はじめに

アクチノイド核種の核データ整備への要請は、エネルギー資源としての核エネルギー利用の重要性が認識されてくるにつれ重要度が増してきた^(26, 27)。すなわち、発電炉としての原子炉の運転管理と安全性の保障、核燃料サイクルの確立、あるいは高レベル廃棄物の処理処分方式の確立等の要請に対処するための基本的な物理量としての核データは、もはや学際的な見地からの研究目標ではなく、エネルギー政策全般に係る工学的研究課題の一環として取り扱わなければならないテーマである。

現在のところ、熱中性子炉を中心とした原子炉の運転管理に関する核データについては一応の整備が完了し、より安全で精度の高い原子炉特性の解明へ向けて研究が進められている。しかし、核燃料サイクルあるいは高レベル廃棄物の処理処分方式の確立等に関する核データは、原子炉等の運転に伴い生成する超ウラン元素の核特性に関するデータの収集が中心であるため必ずしも十分とは言えない。これら超プルトニウム元素に関する核データ整備の現状は残念ながら、燃焼に伴い生成消滅する超プルトニウム元素の原子炉運転特性に及ぼす影響を評価するにたりる程度である。

プルトニウム利用を含む総合的な核燃料サイクルを確立するためには、少なくとも以下に示す課題を解決しなければならない。

- (1) アクチノイド核種生成量推定
- (2) 再処理工程における放射線レベルと臨界安全性
- (3) 核燃料サイクルのバックエンドを含むアクチノイドの処理処分

これらの問題は炉物理的観点から見た場合、いずれも核データとこれを用いた数値解析により結果を予想し、処理手法を確立していくものである。この数値解析手段として用いる計算コード群の信頼性は、現在のところ、アクチノイド核データのそれに比し格段に高い。

ここではアクチノイドの生成消滅、更には高速炉系によるアクチノイド専焼炉の観点から検討してみる。

3.10.2 アクチノイド核種の遷移

アクチノイド核種の生成消滅過程の解析には、1群に縮約した群定数が用いられているのが通常であり、種々のデータ・セットが公開されている。高速炉のエネルギー・スペクトルで平均し作成したアクチノイド核種の1群群定数をTable 3.10.1に示す。ORIGEN⁽²⁸⁾はORNLで作成された計算コード用データ・セットであり、FISPIN⁽²⁹⁾はUKのデータ・セットである。又TNDは1957年の第1回Advisory group meeting on TND⁽²⁶⁾においてまとめられたものであり、SAVRはBenjamin et al⁽³⁰⁾により作成されたものである。

Table 3.10.1で明らかのように、Pu-239, Pu-241等を除く大部分の核種の群定数にはデータ・セット間で2倍以上もの違いがみられる。したがって、いずれのデータ・セットを採用するかによりアクチノイド核種生成量の計算結果には大きな違いが生じる。

H. Küster et al⁽³¹⁾は上記データ・セットを用い、フランスの実験炉「ラプソデー」

を対象とし、その燃料アッセンブリを80000 Mwd/tまで燃焼させ3年間冷却した後の主なアクチノイド核種の生成量を求め、その結果を相互に比較している。これをTable 3.10.2に示す。この計算結果はTable 3.10.1に示されている群定数の違いの割には良く一致している。これはアクチノイド核種の生成と消滅がFig. 3.10.1に示してあるように、単に中性子の吸収や核分裂断面積のみでなく β —あるいは α —崩壊チェーンにも依存しているためと考えられる。我々は、この種の生成消滅過程においてアクチノイドの群定数等の不確定さがどの程度最終的な濃度組成に影響するかを調べるため、アクチノイド生成量に対する感度解析を行った⁽³²⁾。

計算の一例としてBWR燃料から再処理したPu燃料を用いた1000MWRの高速炉で2年間照射し、180日間冷却したPu-238の生成量に対する感度係数(Pu-238の生成量に寄与する各パラメータを1%増加させた時に生成量が何%変わったかを示す係数)をTable 3.10.3に示す。このTableで明らかのようにPu-238の生成量に対して最も感度の高いパラメータはPu-241の β —崩壊定数 λ_β : 0.69であり10% λ_β が増加すればPu-238の生成量は6.9%増加する。以下感度の高いパラメータから順次列挙すると、 $\sigma_c(\text{Am-241})$: 0.63, $\lambda_\alpha(\text{Cm-244})$: 0.39, $\sigma_{n,2n}(\text{U-238})$: 0.234そして $\sigma_c(\text{Np-237})$: 0.23となる。生成量の多いアクチノイド10核種について感度係数の大きいものから順次第5位までをTable 3.10.4に示す。すなわち、最も生成量の多い核はAm-241であり、このAm-241の生成量の推定に最も影響を及ぼすパラメータはPu-241の β —崩壊定数であることを示している。この順位は必ずしも核データの整備に対する要求の優先度にはならない。この優先度は更に各パラメータの持つ誤差、あるいはアクチノイド処理工程における許容量(例えば発熱量、放射線、臨界量)等に依存するものである。しかし、この順位は優先度を定めるための重要な要素であり、当面はこの順位と誤差の現状を考慮し、核データ整備の優先順位を定めていくことが最良であると思われる。

3.10.3 核データの現状と縮約群定数

アクチノイド核種の生成消滅過程の解析に用いるデータ・セットは通常1群に縮約されたものを用いる。Table 3.10.1に示したデータ・セットは、この種の解析に良く用いられている代表的なものである。しかし、この1群に縮約された群定数セットにより直接核データを論ずることは出来ない。

いわゆる評価済核データとして現在整備されている代表的なファイルの中性子断面積の相互比較が、S. Igarashi et al.⁽³³⁾により第2回Advisory group meeting on TNDに報告されている。この報告書からAm-241, Am-243, Cm-244の吸収と核分裂断面積(1KeV~20KeV)をFig. 3.10.2からFig. 3.10.7に示す。これらの図に見られる評価済核データ間の相異は、Table 3.10.1に示した1群群定数の差とは本質的に異なる基本量の評価誤差である。

このENDF/Bに代表される評価済核データから炉心解析、あるいは前述したアクチノイド核種の生成消滅過程の評価解析には、何らかの意味で群定数化した断面積を用いる。その典型的なものがTable 3.10.1に示してある1群群定数である。ここで注意しなければならないのは核データは本来、核個有のものであり外的要因により変化するものではない。しかし、群定数は重み関数 $\phi(E)$ を重みとした断面積の平均値で定義されており、重み関数の形状に依存する。種々のエネルギー・スペクトルを有する高速炉におけるアクチノイド核種の核分裂比をTable 3.10.5に示

す。使用したアクチノイドの核データ・ファイルはENDL-78であり、Table 3.10.5の核分裂率比に見られる値の違いは、総て炉心のエネルギー・スペクトル、即ち重み関数の違いに起因している。このエネルギー・スペクトルの概要はFig. 3.10.8に示してあるが、非常に硬い中性子スペクトルをもったSH6から大型適用炉の中性子スペクトルよりもさらに軟化しているCH2炉心まで大巾にスペクトルが変化している。この核分裂率比の違いはTable 3.10.1に示した1群群定数の内、核分裂断面積のPu-239に対する比に対応する量であることを考えれば、1群に縮約した群定数の差により核データの精度等に言及するのは適切でないことが判る。

しかし、アクチノイド核種の生成消滅過程の解析は1群群定数を使用せざるを得ない。そこで我々はアクチノイド照射期間中のエネルギー・スペクトルの変化を補正し、より正確にアクチノイド生成量を推定するためにFig. 3.10.9に示すコード“ABC”を作成し、次項で紹介するアクチノイド専焼炉の解析を行った。その結果300日照射6サイクルの終りにおいて従来の手法を用いた結果に比べ、120日及び250日目のスペクトルにより1群群定数を補正再計算した場合、吸収断面積において50%もの違いが生じて来ることが明らかになった⁽³⁴⁾。この結果はTable 3.10.6に示してある。この解析はENDL-78より作成した25群群定数を用い⁽³⁵⁾ CITATION⁽³⁶⁾により原子炉の臨界計算を行い、得られた中性子束を重み関数として1群群定数を作成し、ORIGEN用データ・セット中の群定数を置き換え、ORIGEN-JR⁽³⁷⁾によりアクチノイド核種の生成消滅過程を解き、原子数密度の変化を求めたものである。すなわちこの計算は一定期間燃焼後の原子数密度により再度臨界計算を行う方法を取っており、原子炉内での燃焼に伴い変動する原子数密度と中性子のエネルギー・スペクトルの1群群定数に及ぼす効果を取り入れている。このような解析手法を用いることにより核データを燃焼解析に用いる1群群定数には一応矛盾のない形で繋がり、核データの含む誤差は直接アクチノイド生成量の誤差の主要因と見なされる段階に来ている。

3.10.4 アクチノイド専焼炉

高レベル廃棄物としてのアクチノイド核種の処理処分方式として種々の提案がなされている。しかし、いずれの方式にしてもその解決は容易ではない。即ち人間社会からの永久隔離か低害化のいずれかの方法によらなければ高レベル廃棄物の処理処分は完了しない。

前者の場合、アクチノイド核種の半減期が核分裂生成物のそれに比して格段に長く、600年以後の放射線危険指数 (Ingestion Hazard^{*}) はアクチノイド核種によるものが大部分となり、約10万年の隔離を必要とすることがFig. 3.10.10により予想される。

このアクチノイド核種を含む放射性廃棄物を地中処分する場合のサイトの選択規準案として、IAEA及び米国NRCは以下のような考え方を1977年に提案した。

- ① サイトは自国内に設けること。(IAEA)

＊ Hazard indexとしては種々の定義があるが、ここで用いられているのは

$$\text{hazard index} = \sum_i \lambda_i N_i / (\text{RCG})_i$$
である。(RCG)_i = radioactivity concentration guide for nuclide i for public consumption. ここでwater RCGを用いると、ingestion hazard - total volume of water required to dilute the wastes to public drinking water standards. となる。

- ② 政府が管理すること。(NRC)
- ③ 天然バリア内に隔離すること。(IAEA, NRC)
- ④ 10万年間の隔離を保障すること。(IAEA, NRC)
- ⑤ 過去1千万年間、サイト周辺の地質が安定していること。(NRC)
- ⑥ サイトから半径360kmの範囲内は地質的に調査し条件を満たしていること。(NRC)

しかし、我国のように火山国であり更に地震多発地帯では、このように厳しい規準案で要求される条件を満たす候補地の選択が非常に困難であることを考慮すれば、後者の危険指数低害化方式の検討もきわめて重要である。このアクチノイド低害化にも種々の方式が提案されている。

(1) 核分裂炉

- ① 熱中性子炉にリサイクルする。
- ② 高速炉にリサイクルする。
- ③ 専用燃焼高速炉により核種変換を行う。

(2) 加速器，溶融塩炉システム

(3) ハイブリッド核融合炉

この内、最も現実性の高い方式と考えられる核分裂炉による低害化、即ち核分裂反応を利用したアクチノイドの核分裂生成物への変換を取り上げる。

3000MWTの熱中性子炉と高速炉の各々について1基当りのアクチノイド年間生成量をTable 3.10.7に示す。このTableの値は、再処理過程においてU及びPuの0.5%が高レベル廃棄物に混入するとして求めたものである。このアクチノイド核種の問題点は、最初100年程度まではCm-242, Cm-244及びPu-241からの寄与が大きく、1000年程度になるとPu-238, Am-241の寄与が大きくなり、これ以上になるとAm-241, Am-243, Pu-239, Pu-240の核種が問題となり、Np-237に至っては10年以上にわたって問題となる核種である。結局、炉心からの生成量も多く更に長年にわたって問題となるNp-237, Am-241, 及びAm-243をいかに効率良く消滅処理するかが高レベル廃棄物低害化の問題点である。

このアクチノイド低害化は、当初、軽水炉によるリサイクルについて検討された。しかし、Fig. 3.10.2, 4及び6に代表されているアクチノイドの核分裂断面積は中性子の高エネルギー側で大きく、吸収断面積はFig. 3.10.3, 5及び7で見られるように低エネルギー側で大きくなる。このため、より有効に核分裂を起させるためには熱中性子炉より高速炉で燃焼させた方が得策であることが判る。

しかし、本来発電炉は安全性が確保される中で最大限の熱効率を得るように作られている。照射の為と言えども多量の超プルトニウム元素を炉心内に装荷することは、炉心全体の安全性を低下させる方向に動く。又、燃料製造工程においても多量に超プルトニウム元素を含んだ燃料ペレットを扱うことになり、プラントの放射線管理が困難である。

このような諸条件を考慮すると、高速炉によるアクチノイド専焼炉の概念が生ずる。アクチノイド専焼炉を含む核燃料サイクルをFig. 3.10.11に示す。この専焼炉は、高レベル廃棄物中のアクチノイドからウランを分離(分離効率は低くてよい)したものをを用いて高速炉心を構成しようとするものである。

この専焼炉の1例として1000MWT程度のLMFBR(炉心部組成比; 燃料/冷却材/構造材;

40/40/20)によりLWRとLMFBR各1基からのアクチノイドを燃焼させた場合の炉心組成の変化をFig. 3.10.12に示す。照射条件としては300日照射、300日冷却を1サイクルとし、各サイクルで燃焼したアクチノイドは、臨界性を保つよう高レベル廃棄物からのアクチノイドを追加している。Fig. 3.10.12に示されている全アクチノイド量が3サイクル以後一定であるということは、各サイクルごとに追加したアクチノイドが総て燃焼したことになり、しかも専焼炉自体は高レベル廃棄物中のアクチノイド自身で臨界性を保持している。

従って、この種の専焼炉において、アクチノイド自身が燃焼する条件を備えていれば十分であるとするならば、熱設計等を中心とした原子炉の設計値には大きな安全ファクターを見込むことが出来る。

しかし、この専焼炉の炉心設計を試みるためには、Fig. 3.10.12から明らかなようにNp-237, Pu-238, Am-241, Am-243等の核データが通常の高速炉に用いられている核燃料物質(U-235, Pu-239)のそれと同様に精度良く評価されていることが望ましい。この核データには核分裂、吸収等の断面積ばかりでなく専焼炉の動特性パラメータを決定する遅発中性子に関する核データをも含むことは当然である。このような見地からアクチノイド核データを見た場合、現在公開されている評価済核データに収録されている核データの信頼性が十分であるとは言いきれない。

3.10.5 アクチノイド核データへの要請

前節で述べた専焼炉を考える時、専焼炉は、U-235あるいはPu-239等の核燃料物質を除くアクチノイド核種のみで臨界性を保持し燃焼していく。この専焼炉の炉心特性、および燃焼特性を解明するためには、核データの整備をさらに強化し、より信頼性の高いものとしなければならない。

当然のことながら、この核データの整備は精度良い微分測定データに基づくものであることが望ましい。しかし、アクチノイド核種の大部分は不安定核種であり、分離アイソトープとしてのサンプルの入手すら容易ではない。このため、近々に微分断面積に関する測定データが入手され、より精度良い評価済核データ・ファイルが新たに公開される可能性は少い。一方、核データの間接的測定データである積分測定データによる群定数の評価修正の手法は既に確立されており、炉心特性の解析等は、この手法による修正済群定数を用いるのが常識化している。一般に積分データによる群定数の評価修正が、核データの修正に直接繋がるとは考えられない。しかし、核データの評価に重要な情報を提供していることは間違いない。この積分データによる群定数の修正には、評価済核データ・ファイル、評価時の情報、つまり評価誤差に関するデータ(エラー・ファイル)が必要となる。群定数の修正には通常最小二乗法を用い、各種積分データ群の解析誤差が最小になるよう群定数を修正する。又、核データのバリエーションは、そのパラメータの変移限界を規定するものであり、コバリエーションは、核特性に基づく断面積の形状、あるいは一連の核反応間のバランスを規定する情報となる。この種のエラー・ファイルの情報を無視し、群定数を修正するとその修正量は、群定数の感度係数に比例したものとなる可能性が強く、修正後の断面積は核理論に基づく断面積のエネルギー依存性から大巾に逸脱したものとなる。

即ちエラー・ファイルは、群定数の修正に対し、核特性を保つよう束縛条件を付加するための

ものであり、群定数の修正が常識化してきた現在、一般の核データと同様かそれ以上に重要な意味を持つことになる。又、最小二乗法による群定数の修正がエラー・ファイルによる束縛条件下で行われるとすると、群定数のエネルギー依存性に大巾な変更は許されない。従って、目標とするエネルギー範囲内の核データは、総べて過不足なく反応別断面積が処理され、バランスのとれたものでなければ群定数の修正の対象とするには不適當であることに留意していただきたい。

〔小山 謹二〕

Table 3.10.1 Comparison of one-group data from different sources

Nuclide	ORIGEN		FISPIN		TND		SAVR		ENDF/B4	
	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f
Np-237	0.76	0.36	1.87	0.34		0.32			1.76	0.32
Pu-238	0.22	1.38	0.44	1.15	0.68	1.12				
Pu-239	0.5	1.85	0.51	1.82						
Pu-240	0.41	0.35	0.59	0.38						
Pu-241	0.43	2.49	0.59	2.64						
Pu-242	0.34	0.28	0.38	0.3			0.23	0.25		
Am-241	0.99	0.46	1.91	0.4	1.88	0.45			1.09	0.4
Am-242	0.4	1.83	0.1	3.3	0.38	3.73				
Am-243	0.55	0.27	1.7	0.19	0.9	0.22	0.42	0.19	0.81	0.18
Cm-242	0.38	0.42	0.5	1.26						
Cm-243	0.4	0.32	0.1	3.14						
Cm-244	0.37	0.41	0.48	0.55		0.39	0.58	0.55	0.5	0.52

Table 3.10.2 Nuclide concentrations (gr/fuel weight), 3 years after discharge, for different data sets

Nuclide	ORIGEN	FISPIN		TND		SAVR	
			F/O*		T/O*		S/O*
Np-237	1.62(-2)	1.35(-2)	0.83	1.64(-2)	1.01	1.64(-2)	1.01
Pu-238	5.02(-4)	1.12(-3)	2.23	6.37(-4)	1.27	5.02(-4)	1.00
Am-241	2.79(-2)	2.98(-2)	1.07	2.77(-2)	0.99	2.79(-2)	1.00
Am-242m	3.71(-5)	7.45(-5)	2.01	6.74(-5)	1.82	3.71(-5)	1.00
Am-243	2.85(-5)	4.66(-5)	1.64	2.87(-5)	1.01	1.95(-5)	0.68
Cm-242	9.36(-7)	1.89(-6)	2.02	1.74(-6)	1.86	9.36(-7)	1.00
Cm-244	2.48(-7)	1.27(-6)	5.12	4.02(-7)	1.62	1.29(-7)	0.52

* Ratio to the results of ORIGEN

Table 3.10.3 Complete set of sensitivity coefficients for ²³⁸Pu in the core of 1000 MWe LMFBR [Pu fuel from BWR] (t_f = irradiation for 2 years + cooling for 180 days)

Precursor	λ_α	λ_β	σ_f	σ_c	$\sigma_{n, 2n}$
U-235*			-0.0027	0.0160	
U-236			-0.0002	0.0162	
U-237		0.0082	-0.0021	-0.0005	
U-238*			-0.0013	0.0027	0.2342
Np-236					
Np-237			-0.0102	0.2309	
Np-238		0.0055	-0.0011	-0.0001	
Np-239		0.0001			
Pu-236					
Pu-238	-0.0001		-0.1109	-0.0180	
Pu-239*			-0.0102	0.0045	0.0340
Pu-240*	0.0004		-0.0023	0.0726	
Pu-241*		0.6958	-0.1725	-0.0299	-0.0001
Pu-242*					
Am-241			-0.0369	0.6346	
Am-242m		0.0005			
Am-242		0.0037	-0.0006	-0.0001	
Am-243					
Cm-242	0.3873		-0.0189	-0.0171	
Cm-243					
Cm-244					
Cm-245					

* initial charged fuel

Table 3.10.4 Priority of decay constants and cross sections to be measured, which is derived from sensitivity analyses for build-up and decay of actinides in the core of 1000 MWe LMFBR *

Nuclides	Actinides reprocessed yearly (gr)**	Priority of decay constants and cross sections				
		1	2	3	4	5
1 Am-241	1.011 (+4)	λ_β (Pu-241)	σ_f (Pu-241)	σ_c (Pu-240)	σ_c (Am-241)	σ_c (Pu-241)
2 Am-243	4.878 (+3)	σ_c (Pu-242)	σ_c (Pu-241)	σ_c (Am-243)	σ_f (Pu-241)	σ_f (Pu-242)
3 Np-237	2.504 (+3)	$\sigma_{n,2n}$ (U-238)	σ_c (Np-237)	σ_c (U-236)	σ_c (U-235)	σ_f (Np-237)
4 U-236	1.908 (+3)	σ_c (U-235)	σ_f (U-235)	σ_c (U-236)	λ_α (Pu-240)	σ_f (U-236)
5 Pu-238	1.124 (+3)	λ_β (Pu-241)	σ_c (Am-241)	λ_α (Cm-242)	$\sigma_{n,2n}$ (U-238)	σ_c (Np-237)
6 Cm-244	4.243 (+2)	σ_c (Pu-242)	σ_c (Am-243)	σ_c (Pu-241)	σ_f (Cm-244)	σ_c (Cm-244)
7 Cm-242	2.168 (+2)	λ_β (Pu-241)	σ_c (Am-241)	σ_f (Pu-241)	σ_c (Pu-240)	λ_α (Cm-242)
8 Am-242m	2.148 (+2)	λ_β (Pu-241)	σ_c (Am-241)	σ_f (Pu-241)	σ_f (Am-242m)	σ_c (Pu-240)
9 Cm-243	2.619 (+1)	σ_c (Cm-242)	λ_β (Pu-241)	σ_c (Am-241)	λ_α (Cm-242)	σ_f (Pu-241)
10 Cm-245	1.542 (+1)	σ_c (Cm-244)	σ_c (Pu-242)	σ_c (Am-243)	σ_f (Cm-245)	σ_c (Pu-241)

* Pu fuel from BWR.

** irradiation for two years and cooling for 180 days.

Table 3.10.5 Fission rate ratios of actinides to Pu-239 to be measured on fast reactor with various neutron spectra

Core Names	SH2	SH4	SH6	CH2	CH4	CH6
Critical Radius (cm)	46.30	28.60	21.66	33.70	24.18	19.42
Actinides	Fission rate ratios of actinide to Pu-239					
Np - 237	0.253	0.347	0.401	0.222	0.335	0.396
Pu - 238	0.786	0.870	0.912	0.638	0.812	0.883
- 240	0.269	0.353	0.400	0.229	0.341	0.399
- 241	1.231	1.129	1.083	1.329	1.231	1.157
- 242	0.209	0.291	0.339	0.191	0.292	0.347
Am - 241	0.215	0.272	0.315	0.274	0.347	0.378
- 243	0.165	0.236	0.280	0.174	0.258	0.304
B - 10	1.111	0.793	0.665	1.785	1.257	0.956
U - 235	0.944	0.866	0.827	0.946	0.922	0.880
- 238	0.0307	0.0478	0.0574	0.0400	0.0614	0.0716

Table 3.10.6 Effective Microscopic Cross Sections of Actinides in ABR at 6th Cycle

		(unit barn)						
X.S.		Day	Np237	Pu238	Pu239	Am241	Am243	Cm244
σ_f	Sub 0	0	0.46	1.37	1.79	0.52	0.36	0.53
	Sub 2	0	0.46	1.38	1.79	0.52	0.36	0.53
		150	0.45	1.39	1.88	0.53	0.35	0.51
		250	0.44	1.40	1.97	0.54	0.34	0.51
σ_c	Sub 0	0	1.44	0.39	0.45	1.06	0.36	0.43
	Sub 2	0	1.45	0.39	0.46	1.07	0.37	0.43
		150	1.64	0.48	0.58	1.31	0.46	0.54
		250	1.81	0.56	0.68	1.54	0.56	0.63

Actinides recovered from waste of 3 LWRs + LMFBRs

Table 3.10.7 Actinide waste yearly produced from one 3000 MWT power reactor

	LWR (kg)	FBR (kg)
U-235	1.09	0.19
U-236	0.56	0.005
U-238	128.7	120.0
	130.3	120.2
Np-237	20.80	3.44
Pu-238	0.02	0.09
Pu-239	0.73	7.95
Pu-240	0.29	2.63
Pu-241	0.14	0.72
Pu-242	0.05	0.44
Am-241	1.45	13.23
Am-243	2.50	6.95
Cm-242	0.16	0.54
Cm-244	0.09	0.51
	25.7	36.5
	156.0 kg	156.7 kg

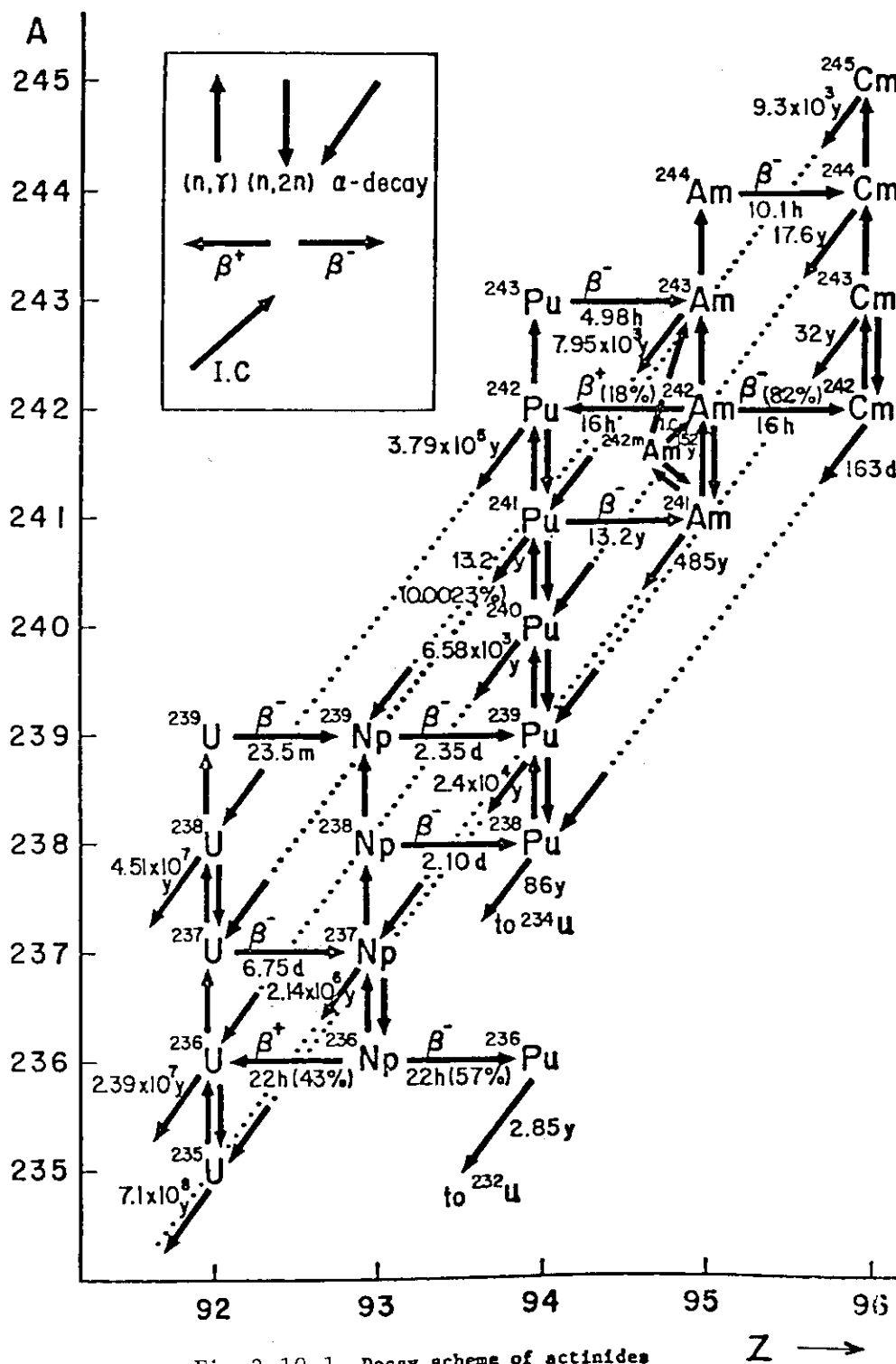


Fig. 3.10.1 Decay scheme of actinides

Fig.3.10.2 Neutron Cross Section ²⁴¹Am FISSION ENERGY 1.00(keV) - 20.00(MeV)

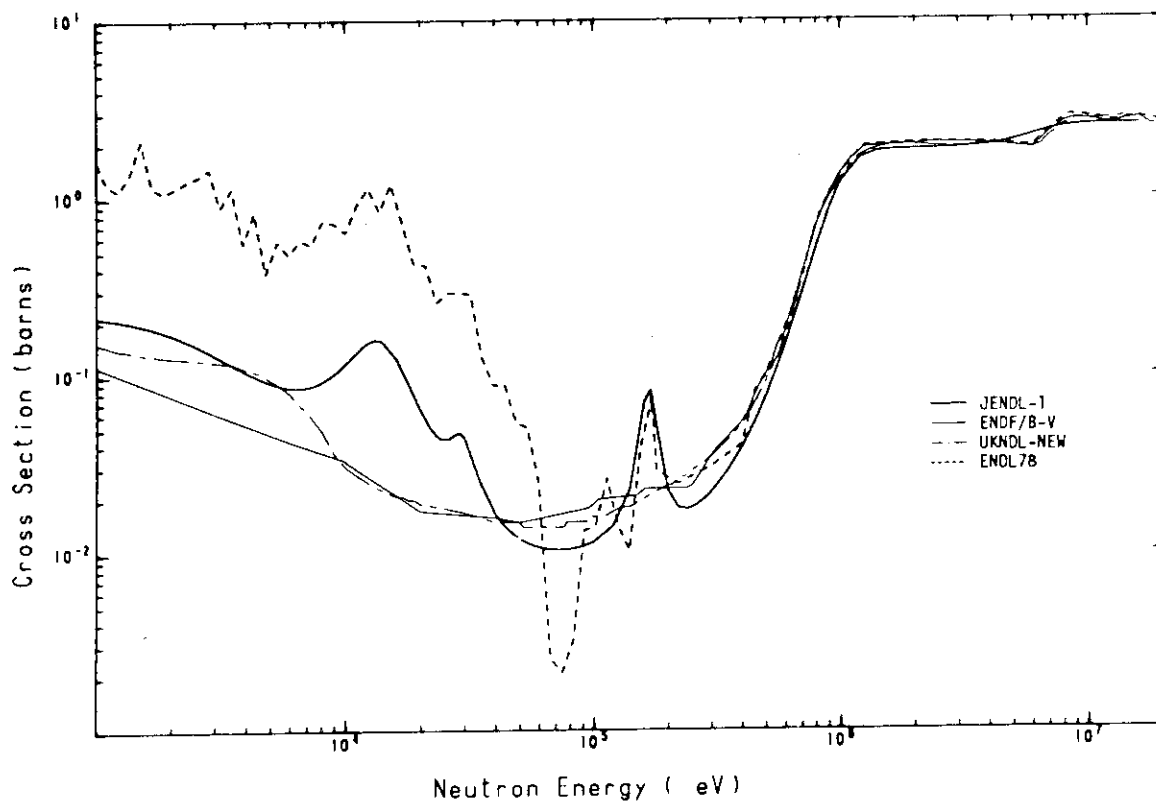


Fig.3.10.3 Neutron Cross Section ²⁴¹Am CAPTURE ENERGY 1.00(keV) - 20.00(MeV)

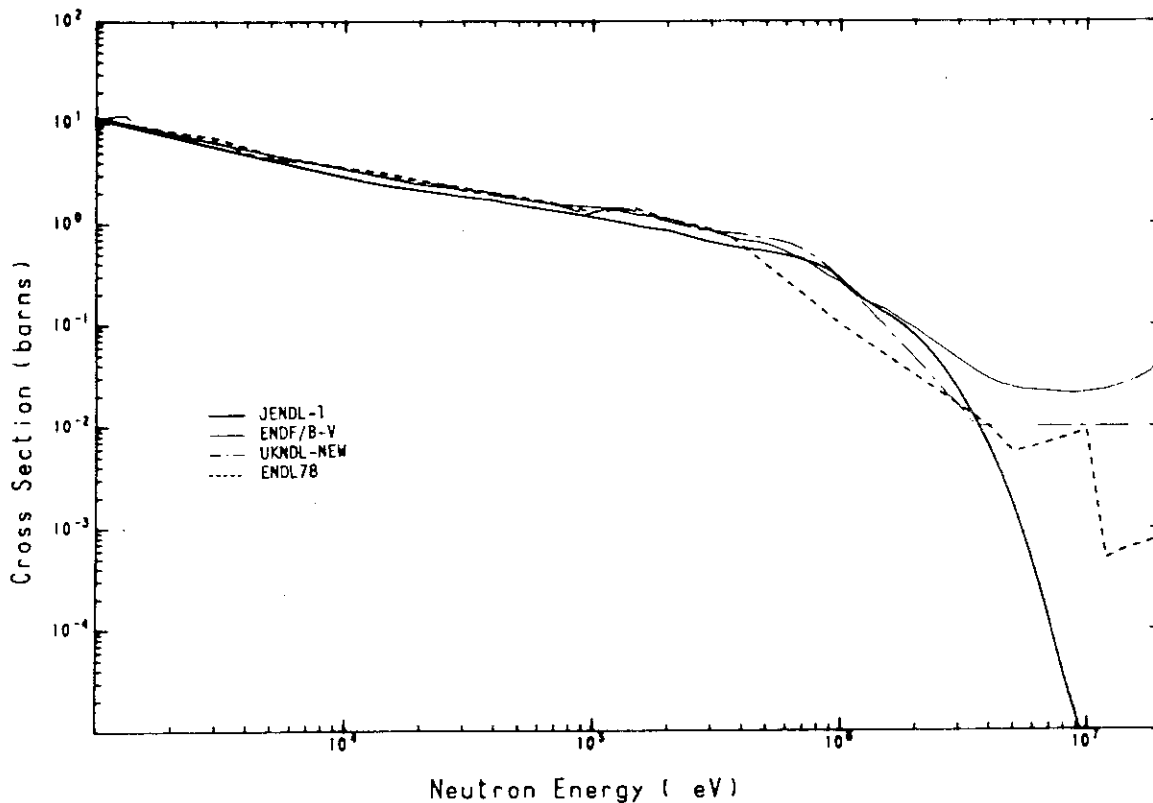


Fig.3.10.4 Neutron Cross Section ²⁴³Am FISSION ENERGY 1.00(keV) - 20.00(MeV)

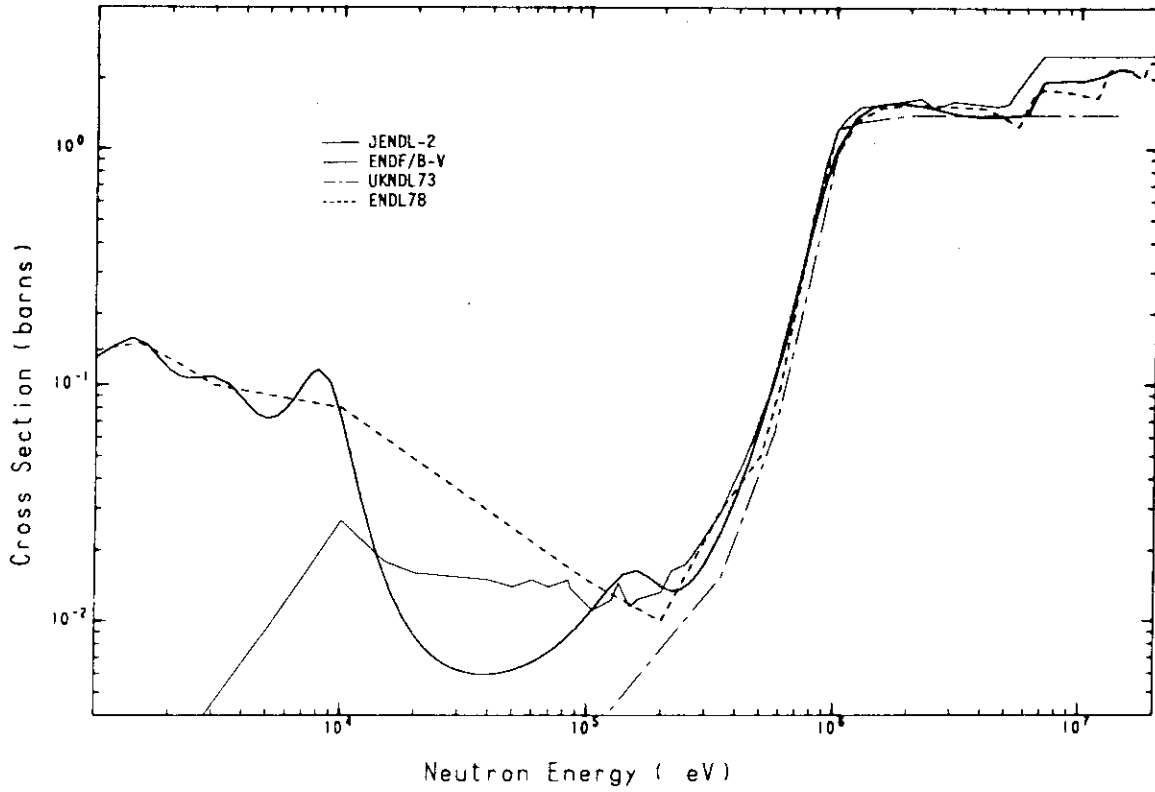


Fig.3.10.5 Neutron Cross Section ²⁴³Am CAPTURE ENERGY 1.00(keV) - 20.00(MeV)

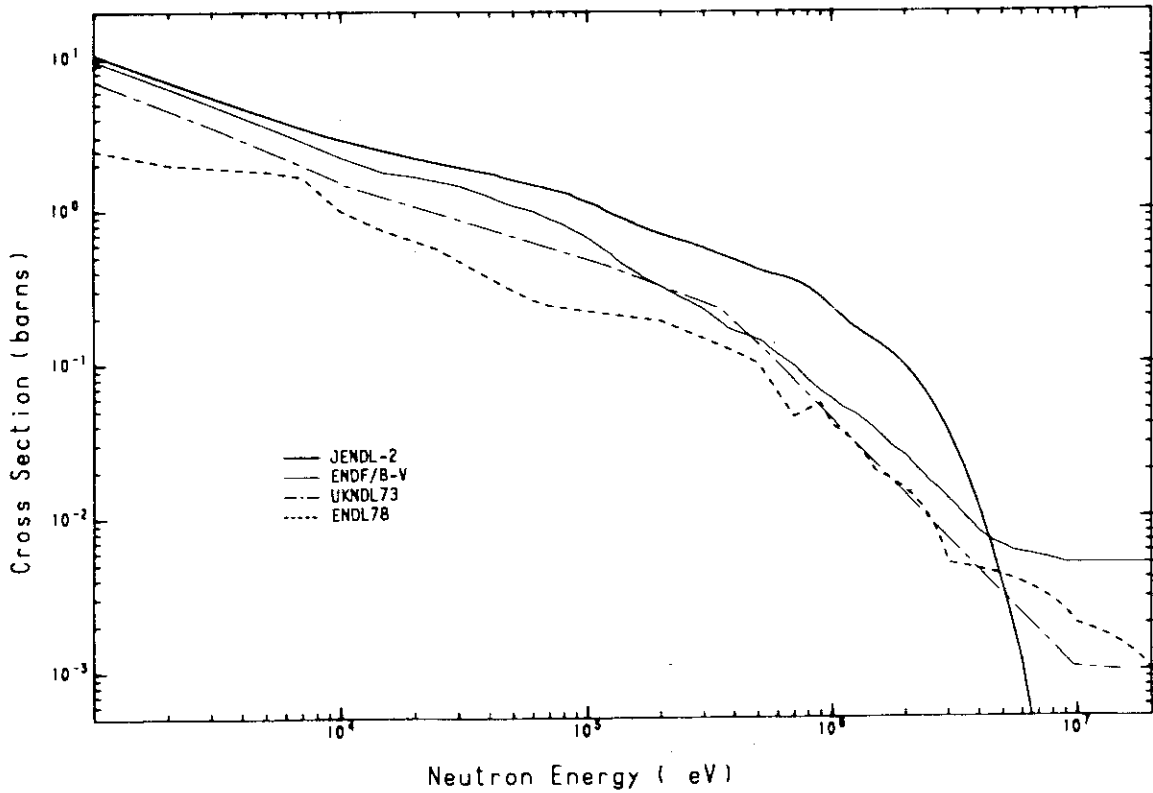


Fig.3.10.6 Neutron Cross Section ^{244}Cm FISSION ENERGY 1.00(keV) - 20.00(MeV)

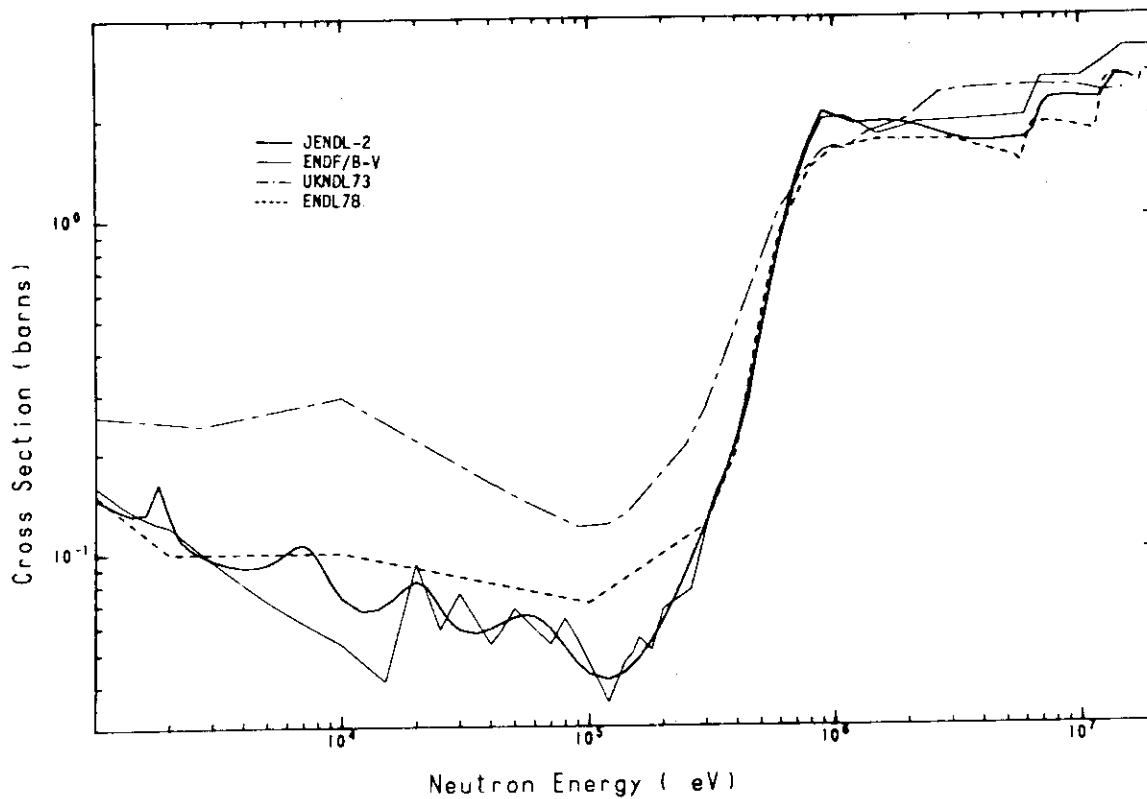


Fig.3.10.7 Neutron Cross Section ^{244}Cm CAPTURE ENERGY 1.00(keV) - 20.00(MeV)

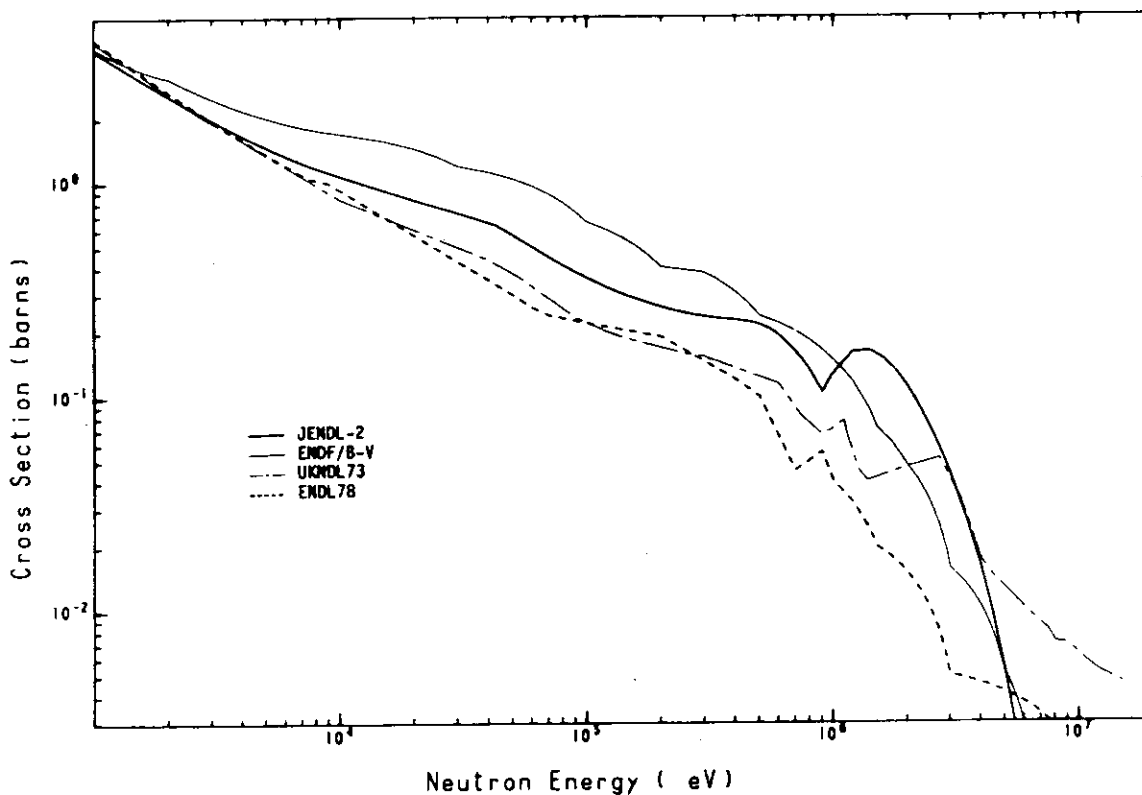


Fig.3.10.8 NEUTRON ENERGY SPECTRUM AT CORE CENTER

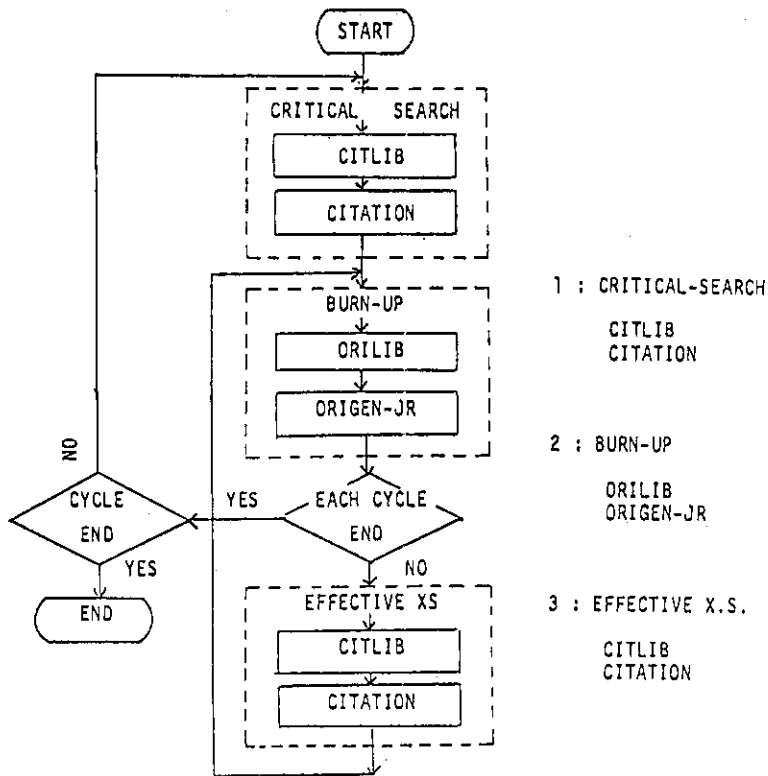
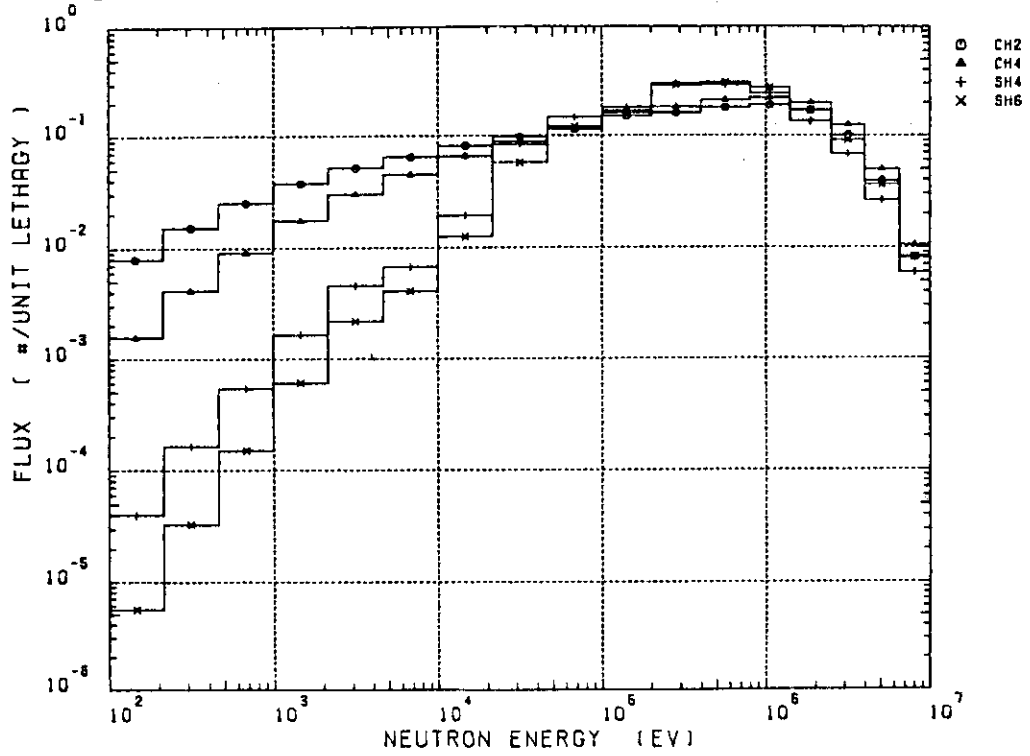


Fig.3.10.9 Flow of ABC code system

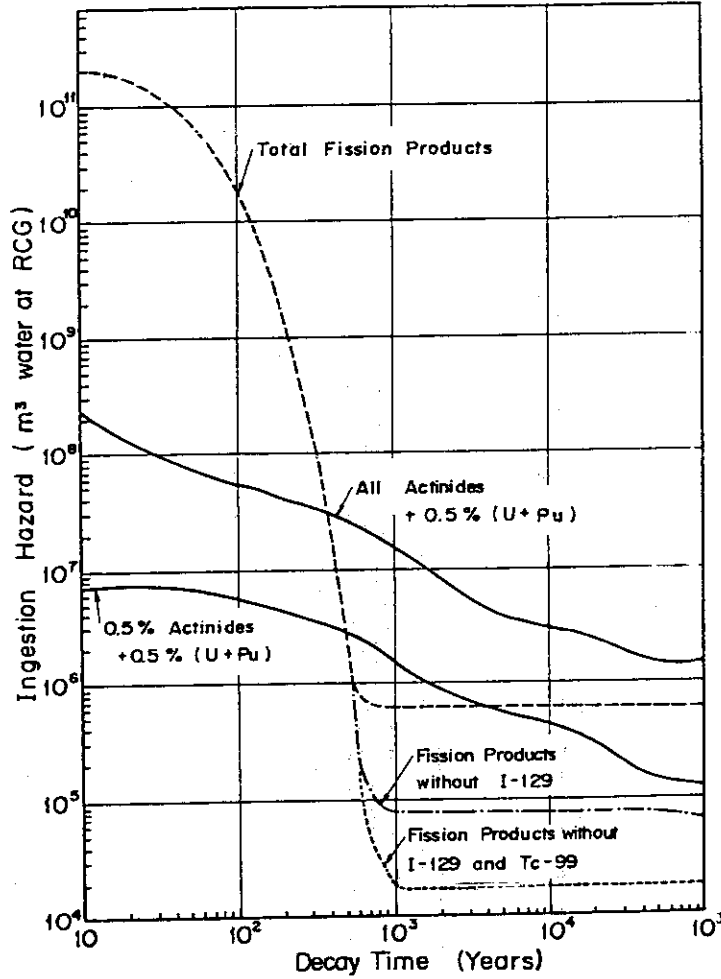


Fig.3.10.10 Radioactive Waste Hazard from a U-Feeded LWR (27,000 MWD/T)

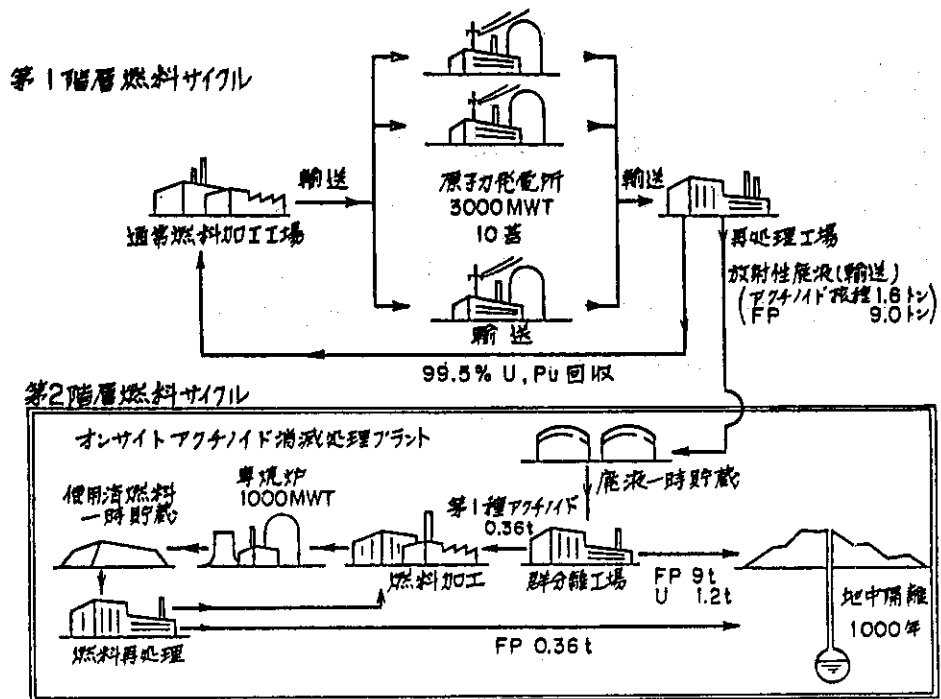
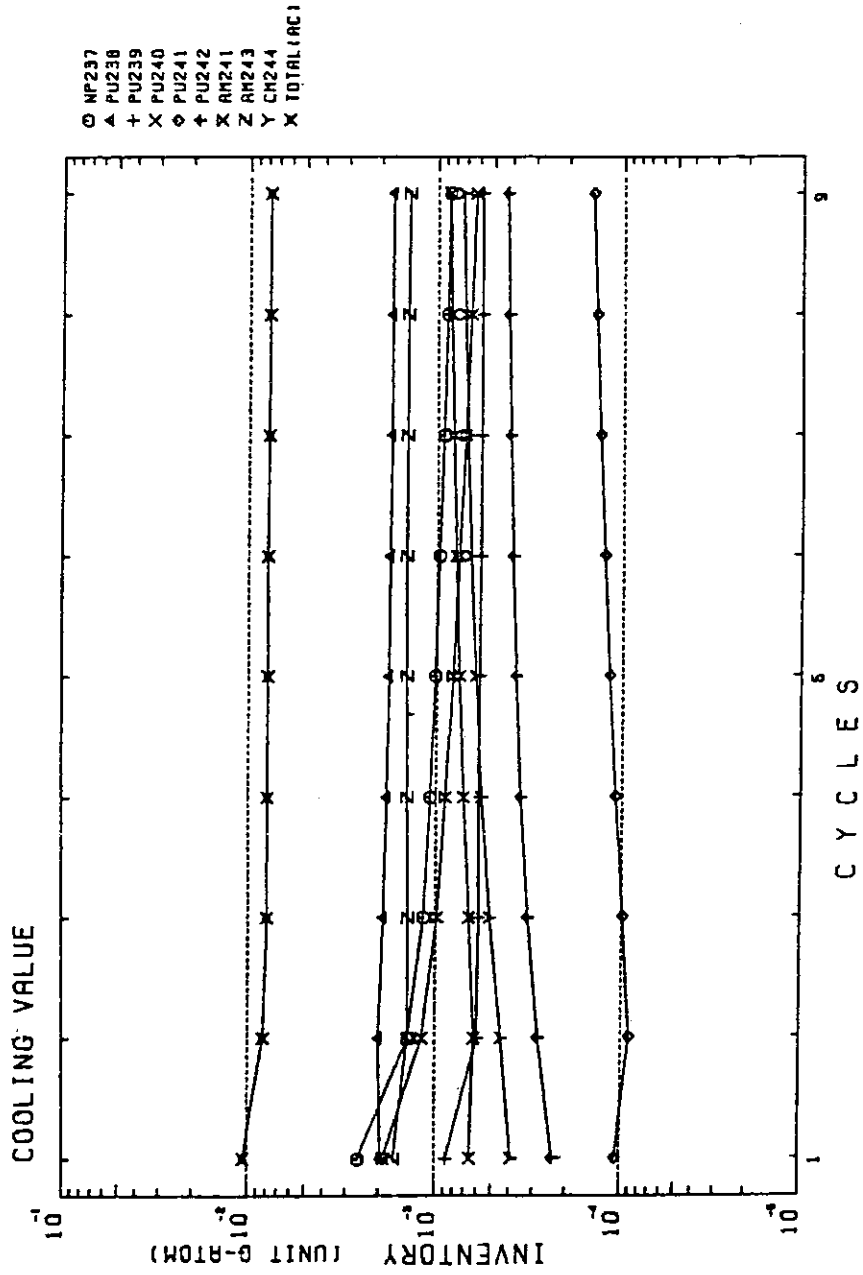


Fig.3.10.11 放射性廃棄物の年間量の流れ(専用炉)

Fig.3.10.12 ABR-301 SUB-2 POWER:1000MW/T



3.11 保障措置で用いる核データ

1977年、INDC (International Nuclear Data Committee) の作業の一環として、保障措置の分野に於ける核データへの要請について国際的調査が実施された。その結果は更田(原研)によってまとめられ、International Conference on Neutron Physics and Nuclear Data for Reactor and Applied Purpose で報告された⁽³⁸⁾。調査は質問書を発送し、その回答を分析するという方式で行なわれているが、このとき発送された質問書は合計183通、これに対し回答は52通あり、さらにその内で、質問書のエントリーに寄与してきたのは18通であったと報告されている。

当時の結果は、保障措置の分野における核データへの要請が必ずしも強いものではないことを暗示するものであった。その理由として以下のような点が指摘されている。

- (1) 現在の保障措置では「実施」が最重要課題であり、このため新しい核データの整備を待つというような状態にない。
- (2) 現在実施されている保障措置上の測定で核データを用いる方法の場合でも、その精度の良否を決める主要因子は、測定対象物の幾何的因子、非均質性、自己吸収効果、自己増倍効果、分裂生成物の移動、計測装置 dead time補正等々などであって、核データの不確かさの因子ではない。
- (3) 例えば ^{238}Pu や ^{241}Pu の正確な半減期が得られれば、ある種の核物質中のプルトニウムのカロリメトリー測定の精度向上に連がるが、しかしこの技術は未だ実用面で確立されるには到っていない。
- (4) プルトニウムのガンマ線エネルギー 分岐比等の核データが良くなればプルトニウムの同位体組成を測るためのガンマ・スペクトロメトリー測定の誤差レベルを引き上げることが出来るが、しかしそれでも(2)による誤差要因の方が大きく残って来るために、当面は(2)の解決の方が重要と認識されている。

以上のような理由で保障措置関係の技術者は、その技術開発の観点から核データの改良に高い優先度を置くことはしないのであるが、この事情は現時点でも同様である。しかし、常に最良のデータを使用したいと考えるのは当然であり、そのような仕事が核データの専門家によって理論的にも、実験的にも推進されることを願い、かつ期待しているのである。そのような核データの内容については、ここで引用した文献⁽³⁸⁾にまとめられたものや、本報告書第4章にまとめられている WRENDA (81/82)⁽³⁹⁾に収録されたデータなどがある。その大部分はアクチノイドの断面積、核分裂生成率、アクチノイドの半減期などであるが、これらは、将来、核燃料サイクル内の種々の施設間の Consistency Check という広い Safeguards Application の分野に於いて有効な同位体相関技術にとって重要なデータとなるものである。

〔猪川 浩次〕

4. 核データに対する要求の現状

4.1 要求された核データと要求元の分類

燃料サイクル核データ・ワーキンググループで調査、検討してきた核データを次の5項目に分け、その内でさらに括弧内に示す物理量を要求核データとして採用した：

- I. 崩壊核データ (半減期, $\bar{\nu}$, γ 線収率, 壊変スキーム)
- II. 中性子断面積 (σ_c , σ_f , $\sigma_{n,2n}$, $\sigma_{n,3n}$, ドシメトリー断面積)
- III. (α, n) 断面積
- IV. 核分裂生成物の収率
- V. 群定数

一方、核燃料サイクルにおけるこれらの核データの要求元を、次のように(1)から(9)までの分野に分類した：

- (1) ウラン採鉱
- (2) ウラン濃縮
- (3) ウラン燃料加工
- (4) 原子炉 (a. 燃焼, b. ドシメトリー)
- (5) 再処理
- (6) プルトニウム・ウラン加工
- (7) 保障措置
- (8) 廃棄物処理と環境安全
- (9) 輸送と取扱

ここで、(1)から(6)までは核燃料サイクルの各過程に対応しているが、(7)(8)(9)は全過程に共通する分野なので、別に分類した。これらの関連分野の関係を図4.1に示す。

核データの利用者側から要求のあったI, II, III, IV, の項目の物理量について、個々の要求核種を縦欄に、要求分野を横欄にした一覧表を作成した。これらの結果を表4.1から表4.13に示す(表4.5は除く)。これらの表の中の○印を見れば、個々の物理量毎に、それがどの分野で要求されている核種であるかがわかる。

(1)のウラン採鉱、(2)のウラン濃縮の分野には核データに対する要求がなかったので、上記の表の中に(1)および(2)の分野はのっていない。また(7)の保障措置の分野については、WRENDA 81 / 82⁽³⁹⁾に収録されているデータ(N記号のもの：Safeguards)を採用した。ただし、WRENDAのN記号の中で、上に述べたI, II, III, IV以外の項目は、調査の対象としなかった。

4.2 崩壊核データ

(a) 半減期： $T_{1/2}(SF)$ と $T_{1/2}(\alpha)$

核データの利用者は、自発核分裂の半減期 $T_{1/2}(SF)$ や核分裂当りの平均の中性子発生数 $\bar{\nu}$ よりも、両者を含めた中性子収率 $Y_n(SF)$ という値を要望している。しかし、ここでは核デ

ータの要求として、 $T_{1/2}(\text{SF})$ と $\bar{\nu}$ とに分けて別々の表(表4.1と表4.2)にのせた。何故なら、核燃料物質の自発核分裂(SF)による中性子収率 $Y_n(\text{SF})$ は、 $T_{1/2}(\text{SF})$ と $\bar{\nu}$ から次式により求めることができる：

$$Y_n(\text{SF}) = \left(\frac{1}{A} \times N_0 \right) \times \frac{0.693}{T_{1/2}(\text{SF})} \times \bar{\nu} \quad [\text{n/sec} \cdot \text{g}]$$

ここでAは原子量、 N_0 はアボガドロ数。

(6)のプルトニウム・ウラン加工の分野で要求されている $Y_n(\text{SF})$ については、その値がアイソトープの間で相対的に大きい核種の $T_{1/2}(\text{SF})$ を要求核データとして採用した。すなわち、表3.6.10(湯本)において、 ^{235}U と ^{239}Pu のそれは $2.70 \times 10^{-4} [\text{n/sec} \cdot \text{g}]$ および $2.26 \times 10^{-2} [\text{n/sec} \cdot \text{g}]$ と小さかったので、ここでは採用せず、したがって表4.1では○印がついていない。

α 崩壊の半減期 $T_{1/2}(\alpha)$ についての要求は、表4.2にまとめた。(6)のプルトニウム加工の分野で要求されている、 $O(\alpha, n)$ 反応による中性子収率 $Y_n(\alpha, n)$ については、その値がアイソトープの間で相対的に大きい核種の $T_{1/2}(\alpha)$ を採用した。すなわち、表3.6.10(湯本)において、ウランの中では ^{232}U ；ネプツニウムの中では ^{237}Np ；プルトニウムの中では ^{236}Pu 、 ^{238}Pu 、 ^{240}Pu ；アメリカシウムの中では ^{243}Am ；キリウムの中では ^{242}Cm 、 ^{243}Cm 、 ^{244}Cm ；という核種の $T_{1/2}(\alpha)$ を要求核データとして採用した。

また、表3.6.10(湯本)にある $T_{1/2}(\text{SF})$ および $T_{1/2}(\alpha)$ の値の代わりに、利用者の便宜を考慮して表4.1および表4.2には、最近のINDC(NDS)の推奨値⁽⁴⁰⁾がのせてある。

(b) 核分裂当りの平均の中性子発生数： $\bar{\nu}$

$\bar{\nu}$ を要求している分野は、表4.3に示すように、(6)のプルトニウム加工と(7)の保障措置である。

$\bar{\nu}$ に関連する核データは表4.1に示した $T_{1/2}(\text{SF})$ である。したがって表4.3にある核種は、表4.1にある核種と殆ど同じである。ただし(3)のウラン加工と(5)の再処理の分野では $\bar{\nu}$ の要求がないので、表4.1の ^{235}U と超ウラン元素が、表4.3では落ちている。

核データ利用者の便宜のため、表4.3には $\bar{\nu}$ の推奨値をのせてある。これらの推奨値は、ENDF/B5のアクチノイドファイルからとったものである。このファイルには ^{238}U と ^{240}Pu が含まれていないので、表4.3には非公開と書いてある。この両核種の $\bar{\nu}$ の値は、非公開のENDF/B5のジェネラルファイルに含まれているものと思われる。

(c) γ 線収率： Y_γ

Y_γ についての要求を、表4.4に示す。要求のある分野は(5)の再処理と(7)の保障措置だけである。

(d) 壊変スチーム

環境安全上、その壊変スキームに問題のある核種について、表4.5に示す。ここに報告されている核種は、これらの壊変スキームに線量評価上有意の不確定さが含まれていると、米国のNRC(Nuclear Regulatory Commission)がみなしたものである。⁽⁴¹⁾ちなみに、燃料サイクルの各

施設から日常的に放出されている核種として、約 200 核種がすでに NRC によって認定されているが、それらのうち大部分の核種の壊変スキームは、十分詳しくわかっている。

4.3 中性子断面積

(a) 捕獲断面積 σ_c

原子番号 Z が 63 以下の核種の捕獲断面積 σ_c に対する要求を表 4.6 に、アクチノイド核種の σ_c に対する要求を表 4.7 にまとめた。 $Z \leq 63$ の σ_c に対する要求は、(5)の再処理と(7)の保障措置の分野だけである。

一方、アクチノイド核種の σ_c に対する要求は、(8)の廃棄物処理と環境安全を除いて、すべての分野にわたっている。当然のことながら、要求件数 (○印) も 42 件と多い。

(b) 核分裂断面積 σ_f

σ_f に対する要求を表 4.8 に示す。(5)の再処理、(6)のプルトニウム加工、(9)の輸送の分野で、アクチノイド核種の σ_f に対する要求が多い。

(c) $(n, 2n)$ および $(n, 3n)$ 断面積

これらの断面積に対する要求については、表 4.9 と表 4.10 に示す。(6)のプルトニウム加工の分野で要求されているのが特徴的である。

(d) ドシメトリー断面積

原子炉ドシメトリーのために必要な、平均の放射化断面積が要求されている。⁽⁴⁵⁾ これらのドシメトリー断面積のうちいくつかを表 4.11 に示す。表 4.11 には、Table 3.4.1 (中沢、関口)の中で、 $\langle \sigma_m \rangle / \langle \sigma_c \rangle$ の値が 5%以上違っているものを採用した。ここで、 $\langle \sigma_m \rangle$ および $\langle \sigma_c \rangle$ は、 ^{252}Cf の中性子場で測定および計算された、平均の放射化断面積である。(m: measured, C: calculated)。

また、 $\langle \sigma_c \rangle$ の不確定性解析のために、 $\langle \sigma_c \rangle$ の誤差を可能な限り正確に表現すること、つまり 4次元共分散形式で記述することが要求されている。さらに、偶然誤差と系統誤差とを区別して $\langle \sigma_c \rangle$ の誤差を表示することも要求されている。このような事情は、最近の ENDF / B5 の Covariance File においても同様である。

4.4 (α, n) 断面積 $\sigma_{\alpha, n}$

$\sigma_{\alpha, n}$ の要求については、表 4.12 に示す。(5)の再処理、(6)のプルトニウム加工、(7)の保障措置、および(9)の輸送と取扱という分野で要求されている。(6)のプルトニウム・ウラン燃料加工の表 3.6.10 (湯本)に報告されている核種のなかから、 $^{17, 18}\text{O}(\alpha, n)$ による中性子収量 Y_n [$n/\text{sec} \cdot \text{g}$]が多い (> 341) ものだけを採用した。 (α, n) の断面積からどのようにして Y_n の値が推定されるのか、はっきりしない。

4.5 核分裂生成物の収量

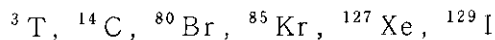
(a) 核分裂生成物の質量収率スペクトル Y_{FP}

WRENDA 81 / 82⁽⁴¹⁾ によれば、(7)の保障措置の分野で Y_{FP} が要求されている。これらをまとめると、表 4.13 になる。(n, f) 反応による収率だけを採用し、(γ , f) 反応による収率は特殊なので採用しなかった。

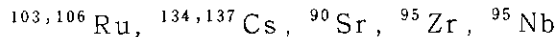
(b) 核分裂生成物の生成量

(5)の再処理や(8)の廃棄物処理と環境安全の分野で要求しているのは、微視的な核データの核分裂収率ではなく、むしろ巨視的な生成量である。それら核分裂生成物並びに誘導放射性物質の主な内容は、

(1) 環境放出上問題となる気体核種：



(2) 工程内挙動など施設運転管理上問題となる高レベル放射性核種：



などである。ただし、同時に問題となる超ウラン元素の生成量は、ここでは含めていない。

これらの核分裂生成物の生成量は、ORIGEN 等の計算コードで推定されているが、多くの場合、計算値と分析実測値との一致はよくない。したがって、(5)や(8)の分野における核データの利用者の要望は、核分裂生成物の生成量を高い信頼度で予測できるような計算コード(核データ・ライブラリー)の整備ということである。ちなみに、ORIGEN-2に含まれる核データ・ライブラリーとしては、次の3つがある：

(1) 壊変データ・ライブラリー

(2) 断面積およびFP収率データ・ライブラリー

(3) γ 線生成ライブラリー

4.6 群定数

核燃料サイクルにおける核データの利用者が共通して要望していることは、アクチノイド核種並びに核分裂生成物の主要核種の生成量を精度よく計算できる核データを整備して欲しいということである。ここでいう核データとは、一群または数群に縮約した熱中性子炉用の群定数で、燃焼計算コードに入力して使用する核データをいう。すなわち、アクチノイド核種に対する各種(σ_c , σ_f , $\sigma_{n,2n}$ など)の微分核断面積を、熱中性子炉のエネルギー・スペクトルで平均した群定数の核データ・ファイルである。

現状では、燃焼計算コードとしてORIGEN (1973), ORIGEN-2 (1978), KORIGEN (1978), HAMKOR (1979) などがあるが⁽⁴⁶⁾、上記の計算コードに入力する群定数の不確かさの方が、計算コードに含まれる計算式の解き方の不確かさよりも大きいと言われている⁽⁴⁷⁾。

(西村 和明)

Table 4.1 Half life of spontaneous fission : $T_{1/2}$ (SF)

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	$T_{1/2}$ (SF) の値 ⁽⁴³⁾
^{232}U			$(7.8 \pm 6.0) \times 10^{13} \text{ y}$
^{235}U	○		$(3.5 \pm 0.9) \times 10^{17} \text{ y}$
^{238}U	○		$(8.19 \pm 0.09) \times 10^{15} \text{ y}$
^{239}Np			$6.3 \times 10^{19} \text{ y}$ (x)
^{236}Pu			$(3.52 \pm 1.0) \times 10^9 \text{ y}$
^{238}Pu		○	$(4.77 \pm 0.13) \times 10^{10} \text{ y}$
^{240}Pu		○	$(1.2 \pm 0.1) \times 10^{11} \text{ y}$
^{242}Pu		○	$6.84 \pm 0.08 \times 10^{10} \text{ y}$
^{244}Pu			$(6.56 \pm 0.32) \times 10^{10} \text{ y}$
$^{242\text{m}}\text{Am}$			$(8.8 \pm 3.3) \times 10^{11} \text{ y}$
^{242}Am			$1.0 \times 10^{10} \text{ y}$ (x)
^{242}Cm			$(6.5 \pm 0.5) \times 10^4 \text{ y}$
^{244}Cm			$(1.344 \pm 0.002) \times 10^7 \text{ y}$
超ウラン 元素	○		

(x) 推定値 (表 3. 6. 1. 2 参照)

Table 4.2 Half life of α decay : $T_{1/2}$ (α)

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	$T_{1/2}$ (α) の値 ⁽⁴³⁾
^{232}U			$70.0 \pm 1.0 \text{ y}$
^{237}Np	○ ○ ○		$(2.14 \pm 0.01) \times 10^6 \text{ y}$
^{236}Pu			$2.851 \pm 0.008 \text{ y}$
^{238}Pu	○ ○ ○		$87.74 \pm 0.09 \text{ y}$
^{239}Pu	○ ○		$(2.411 \pm 0.03) \times 10^4 \text{ y}$
^{240}Pu	○ ○ ○		$(6.55 \pm 0.02) \times 10^3 \text{ y}$
^{241}Am	○ ○ ○		$432.6 \pm 0.6 \text{ y}$
^{243}Am	○ ○		$(7.38 \pm 0.04) \times 10^3 \text{ y}$
^{242}Cm	○ ○ ○		$162.8 \pm 0.4 \text{ d}$
^{243}Cm			$28.5 \pm 0.2 \text{ y}$
^{244}Cm	○ ○ ○		$18.11 \pm 0.02 \text{ y}$

Table 4.3 The average number of fission neutrons emitted per fission : $\bar{\nu}$

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	$\bar{\nu}$ の値 (ENDF/B5)
^{232}U			2.0 (x)
^{238}U			非公開
^{239}Np			2.053 (x)
^{236}Pu			2.86
^{238}Pu			2.895
^{240}Pu			非公開
^{242}Pu			2.81
^{244}Pu			2.884
^{242}Am			3.264
^{242}Am			3.36
^{242}Cm			3.44
^{244}Cm			3.46

(x) 推定値(表3-6-10参照)

Table 4.4 Gamma ray yield : Y_{γ}

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	コメント
$^{87,88}\text{Br}$		○	破損燃料検出
^{90}Kr		○	同上
^{90}Sr	○		工程内挙動
^{95}Zr	○		同上
^{95}Nb	○		同上
^{103}Ru	○	○	工程内挙動,破損燃料検出
^{106}Ru	○		工程内挙動
$^{135,137,138,139}\text{I}$		○	破損燃料検出
^{139}Xe		○	同上
^{134}Cs	○		工程内挙動, 燃焼計算
^{137}Cs	○		工程内挙動
^{140}La		○	FPのγ線による, 燃料中のUとPuの分析
^{144}Ce		○	同上
^{155}Eu	○	○	燃焼計算
$^{238,239,240,241}\text{Pu}$		○	Puアイソトープの分析

Table 4.5 Radio-nuclides of potential importance in the nuclear fuel cycle

核 種	型	コ メ ン ト
⁹² Sr (2.71 h)	β^-	1.384 MeVの γ 線絶対強度の誤差を $\pm 3\%$ にする。
^{115m} Cd (44.6 d)	β^-	γ 線の絶対強度の誤差を $\pm 25\%$ にする。
¹⁴¹ La (3.90 h)	β^-	同 上
^{133m} Te (55.4 m)	β^-	60本以上ある γ 線のうち、3本しか決っていない。
¹⁴² Ba (10.6 m)	β^-	77.6KeV レベルへの β^- 強度は $(18 \pm 14)\%$ と $\leq 6.4\%$ との報告があり、違っている。
^{166m} Ho (1.2×10^3 y)	β^-	2本のレベル以外に、5本のレベルに落ちる β 線がある。
²²⁹ Th (7.3×10^3 y)	α	転換電子強度の測定誤差は10~50%。
²⁴⁵ Cm (8.5×10^3 y)	α	2本の γ 線しか観測されていない。

Table 4.6 Capture cross section : σ_c ($Z \leq 63$)

核 種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	コ メ ン ト
⁸⁴ Kr			
⁸⁵ Kr			
⁹⁵ Zr	○	○	FPからの γ 線による、燃料中のUとPuの分析。
¹⁰⁸ Ru		○	同 上
¹³³ Cs		○	同 上
¹³⁴ Cs		○	同 上、およびND法による燃焼計算。
¹³⁷ Cs		○	FPからの γ 線による、燃料中のUとPuの分析
¹⁴⁰ Ba		○	同 上
¹⁴⁷ Pm		○	
¹⁴⁹ Sm		○	燃 焼 計 算
^{152,153,154,155} Eu		○	同 上

Table 4.7 Capture cross section : σ_c (Actinide nuclide $Z \geq 92$)

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	コメント
^{235}U	○ ○		^{236}U , ^{237}Np の生成 ^{237}Np , ^{236}U , ^{236}Pu の生成
^{236}U	○ ○	○	
^{238}U	○		
^{237}Np	○ ○ ○		^{237}Np , ^{238}Pu の生成
^{238}Np		○	
^{238}Pu	○		241 , $^{242\text{m}}$ Am, ^{242}Cm の生成 241 , 243 Am, 244 , ^{245}Cm の生成 ^{243}Am , 244 , ^{245}Cm の生成
^{239}Pu		○ (x) ○	
^{240}Pu	○ ○		
^{241}Pu	○ ○	○ (x)	^{238}Pu , 242 , ^{243}Cm , 241 , ^{242}Am の生成
^{242}Pu	○ ○	○	
^{241}Am	○ ○ ○		^{243}Am , 244 , ^{245}Cm の生成 ^{243}Cm の生成
$^{242\text{m}}\text{Am}$		○	
^{242}Am	○	○	244 , ^{245}Cm の生成
^{243}Am	○ ○ ○	○ ○	
^{242}Cm	○ ○		
^{243}Cm	○	○	244 , ^{245}Cm の生成
^{244}Cm	○ ○		
超ウラン 元素	○	○	臨界安全管理, 品質管理.

(*) $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ として要求されている.

Table 4.8 Fission cross section : σ_f

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	コメント
^{235}U	○ ○		^{236}U の生成
^{238}U	○		
^{237}Np		○	241 , $^{242\text{m}}$, ^{243}Am , 242 , ^{243}Cm の生成
^{238}Pu		○	
^{240}Pu		○ (x)	
^{241}Pu	○ ○		^{243}Am , 244 , ^{245}Cm の生成
^{242}Pu	○ ○		
^{242}Am		○	244 , ^{245}Cm の生成
$^{242\text{m}}\text{Am}$		○	
^{243}Am	○ ○	○	臨界量, 品質管理
^{242}Cm	○ ○	○	
^{243}Cm	○	○	
^{244}Cm	○	○	
超ウラン 元素	○ ○	○	

(*) $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ として要求されている.

Table 4.9 (n, 2n) cross section : $\sigma_{n, 2n}$

核種	(3) (4) (5) (6) ab	(7) (8) (9)	コメント
^{238}U	○ ○ ○		^{237}Np , ^{238}Pu の生成, サイクル炉心内 サイクル炉心外 サイクル炉心外
^{237}Np			
^{239}Pu			
超ウラン 元素		○	

Table 4.10 (n, 3n) cross section : $\sigma_{n, 3n}$

核種	(6)	コメント
^{238}Pu	○	^{239}Pu の生成

Table 4.11 Dosimetry cross section

反応	(4) ab	コメント
$^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$	○	$\langle \sigma_m \rangle / \langle \sigma_c \rangle = 0.950$
$^{47}\text{Ti} (n, p) ^{47}\text{Sc}$	○	0.786
$^{56}\text{Fe} (n, p) ^{56}\text{Mn}$	○	0.92
$^{64}\text{Zn} (n, p) ^{64}\text{Cu}$	○	1.056
$^{113}\text{In} (n, n') ^{113m}\text{In}$	○	1.121

Table 4.12 (α, n) cross section : $\sigma_{\alpha n}$

核種	α 線源	(5) (6)	(7) (8) (9)	コメント
17,18O	^{232}U		○	$Y_n = 3.63 \times 10^4$ (n/s·g) 1.18×10^6 3.18×10^4 341 6.27×10^3 9.19×10^6 1.12×10^5 1.86×10^5
	^{236}Pu		○	
	^{238}Pu	○ ○		
	^{240}Pu		○	
	^{241}Am	○ ○		
	^{242}Cm	○ ○		
	^{243}Cm		○	
	^{244}Cm	○ ○		
Li			○	厚いターゲットの中性子収量を 要求。 $E_\alpha = 0.1 \sim 6.5$ MeV,
^9Be			○	
B			○	
C			○	
^{13}C		○		
O, ^{18}O			○ ○	
^{19}F			○	
Mg			○	
^{27}Al			○	
Ca			○	

Table 4.13 Fission product mass yield spectrum : Y_{FP}

核種	(7)	コメント
^{235}U	○	FPの γ 線による、使用済燃料中の ウラン分析のために、 ^{95}Zr と ^{106}Ru の質量収率を要求。
^{238}U	○	破損燃料の検出のために、 $^{87,88}\text{Br}$, ^{90}Kr , $^{137,138,139}\text{I}$, $^{137,138}\text{Xe}$ の累積収率 を要求。
^{239}Pu	○	FPの γ 線による、使用済燃料中の プルトニウムの分析のために、 $^{133,137}\text{Cs}$, ^{95}Zr , ^{106}Ru , ^{140}Ba , ^{144}Ce の質量収率を 要求。
^{241}Pu	○	FPの γ 線による、使用済燃料中の プルトニウムの分析のために、 ^{144}Ru の質量収率を要求。

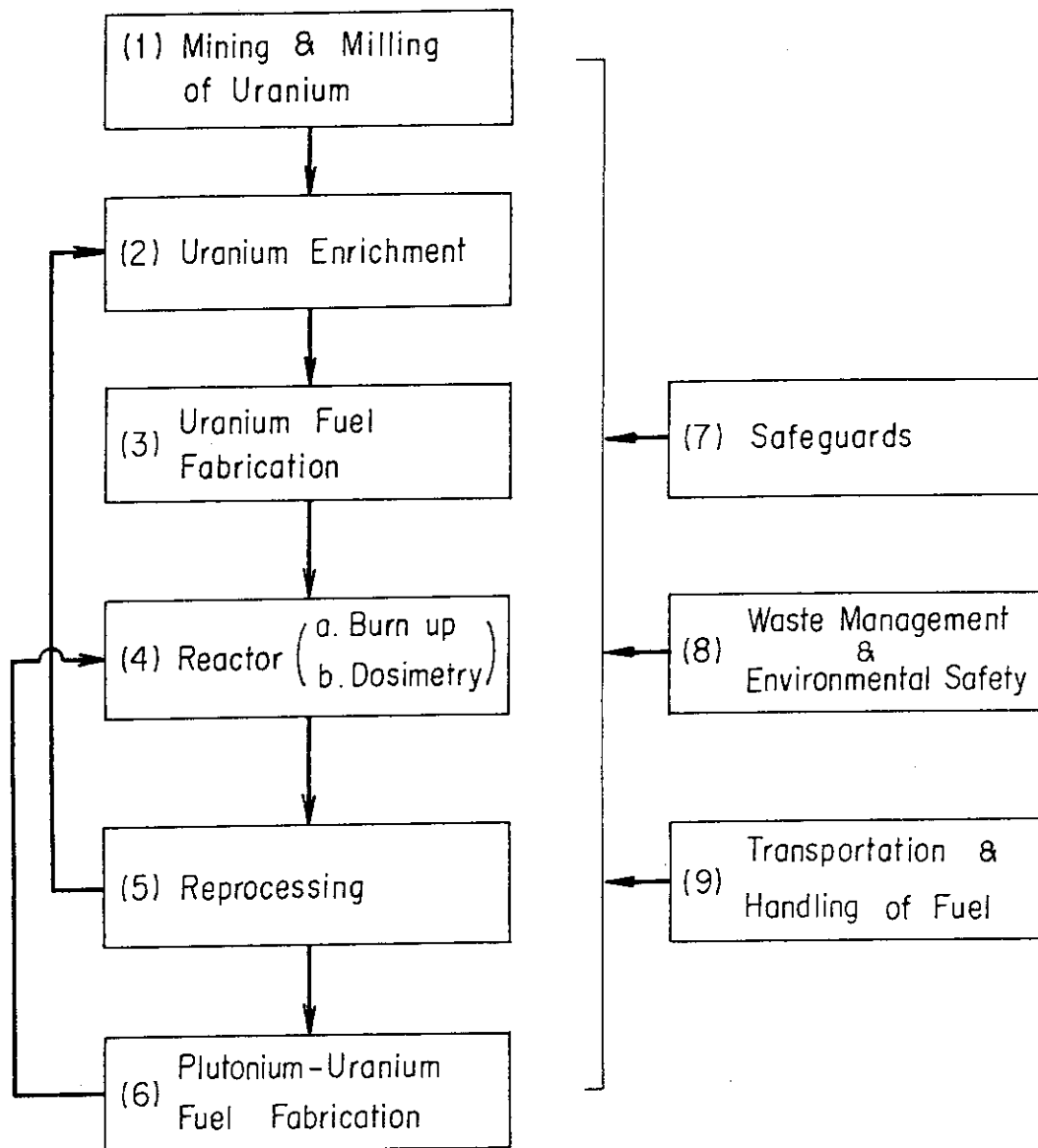


Fig. 4.1 Classification of Nuclear Fuel-Cycle Sector

5. 結論と提言

前章で分析されたように、核燃料サイクルを構成している各部分では、それぞれかなり異ったワークスコープをもった仕事が行われているにもかかわらず、核データに対する要望を調査した結果、諸分野に共通な内容の要求が多くあることがわかった。

ユーザーの核データに対する要求には、これまでにほぼ確立されてきているような分類によれば、前章で仕分されているように、①半減期、壊変スキーム、 γ 線強度、中性子放出率などの崩壊核データ、②各種反応に対する中性子断面積の微分値または積分値、および③核分裂における生成核種の収率などのデータのほかに、燃焼計算のインプットに用いる群定数データに関して広い範囲のユーザーからひとつのまとまった要望が出てきている。

崩壊核データについては、各々のユーザーとして核データ改善の要求の優先度が最も高いとは云えないものが多いが、これは利用者の本来の目的を達するには核データの改善以外の要因もあることが多いからである。しかしそのような場合にも、同じ核データが燃料サイクルの多くの過程から共通の要求になっていることが多いので、各個別にみたときに核データの改善が目的の達成に画期的役割を果たすものでなくとも、広い分野にわたり技術水準の向上をもたらすことができると考えられる。またこの種のデータは、分析結果の解析などの過程で定数として用いられる。それ故ユーザーとしては、核データの不確定さは他の誤差要因に比べて少くとも一桁以上小さな誤差の範囲におさまるようではなければならない。同時に各方面で使用する値が統一されることが望ましく、絶対誤差についてはある程度以下にはつめられない状況にあるものでも、核データのオーソリティが評価した値が、許容誤差を明示して供給されることが必要である。中性子断面積についても、いくつかのスペシフィックな要求がみられた。これらの要求は、既存の核データ評価ワーキンググループで考慮して取り上げることで対処されよう。核分裂生成物収率データについても、崩壊熱評価ワーキンググループの仕事の一部として考えることができよう。

原子炉ドシメトリー並びにアクチノイド燃焼などを対象とする断面積データの使用者からは、評価データの誤差に関する情報の必要性が示された。これは共分散ファイルの要求であるが、シグマ委員会でも、すでに1981年6月の核データ討論会で主題にとりあげたところであり⁽⁴³⁾、今後断面積の評価済データがすべて共分散ファイルを付した形で整備されるよう望まれる。

種々の分野のユーザーの多くに共通で、またこれまでの核データの分類にあてはまらない新たな要望は、使用済燃料あるいは原子炉で照射された核物質中のアクチノイドならびに核分裂生成物、とくに主要放射性核種の生成量を、比較的簡単にかつかなり良い精度で評価できるコードの確立である。このような目的には、通常ORIGENあるいはDCHAINなどいくつかの計算コードが使用されているが、こゝで問題になっているのは、それらのコードで使われている計算方式でなく、インプットデータとしていかにして最も適当な断面積の群定数を得るかと云うことである。計算対象核種が多いので、必ずしも一群にまでまとめなくとも、出来るだけ少数の群にまとめた形で整備されると便利である。しかもなお一定の精度の結果を与えるものでなくてはならない。

このような目的にそった汎用燃焼計算コードの開発努力が必要であって、それらの活動を発掘して、適用の範囲、結果の信頼限界などを明確に評価したコードシステムとして、利用者に提供するような活動を組織することが望ましい。例えば 50 - 100 万kw 級の BWR と PWR の使用済燃料に適用できて、そのうちのウラン、プルトニウムおよびその他の超ウラン元素 (Np, Am, Cm) ならびに主要核分裂生成物の存在量を、核種毎に、燃焼率あるいは照射量の関数として算出し得るものとし、その結果についての不確定さの限度を明らかに示したコードシステムが供給されるならば、現在の利用者の要求の大部分を満足させることができるであろう。

今回の調査では、対象をウラン・プルトニウム燃料サイクルのみに限ったが、代替サイクルとしてトリウム・ウラン燃料への関心も深い。トリウム系燃料原子炉に関する核データについては、文献 (44, 45) にまとめられている。トリウム利用については、核エネルギー資源多様化の方策のひとつとして、将来重要性が増すことも十分考えられる。その場合には、上記の文献にあるような炉物理の分野も含めて、トリウム関係の核データの新たな要求が生ずるであろう。

核データに対する利用者の要求は、燃料サイクルの開発の進展に伴って変遷するものである。今回行ったような調査を、数年毎くらいの頻度でくりかえし実施されるならば、時宜に応じた要求を把握し、核燃料サイクルの確立に有効に貢献することができよう。

[梅沢 弘一]

参 考 文 献

- (1) H. Küsters et al.: Private communication (NEACRP-A-345).
- (2) W.N. McErloy, "LWR Pressure Vessel Surveillance Dosimetry Improvement Program", NUREG/CR-1291 (HEDL-SA 1949) 1979 Annual Report.
- (3) R.C. Greenwood et al., "Non-Fission Reaction Rate Measurements", Nucl. Technology 25, (1975) 294.
- (4) W.L. Zijp, "On the Consistency between Integral Differential Cross Section Data", INDC(NDS)-103/M (1978) 220.
- (5) W.N. McErloy et al., Nucl. Technology 25 (1975).
- (6) "Proceedings of the Advisory Group Meeting on Nuclear Data for Reactor Dosimetry", (Vienna, 13-17 Nov. 1978) INDC(NDS)-103/M.
- (7) F. Kam, et al et al., "Status Report on Activities of ASTM E10.05.01 Task Group on Uncertainty Analysis", 第3回ASTM-Euratom Sympo. on Reactor Dosimetry (Ispra, 1979).
- (8) M. Nakazawa & A. Sekiguchi, *ibid.*
- (9) 谷口他 "J1法による放射化箔データの処理" 日本原子力学会秋期炉物理・炉工学分科会 (昭54年) A 39.
- (10) M. Nakazawa & A. Sekiguchi, "Proceedings of the 1974 Seminar on Nuclear Data", (1980, 3月) JAERI-M 8769 p.66.
- (11) W. G. Roesh : "Surface Dose Rates from Plutonium" : HW - 51317 (1957).
- (12) 「核燃料物質使用許可申請書」, 動燃プルトニウム燃料部 (1981).
- (13) 湯本 : 「Pu 取扱施設の安全性と超Pu 問題」, 第18回原子力総合シンポジウム (1979).
- (14) M.J. Bell, "ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-4628 (1973).
- (15) K. Tasaka, "DCHAIN : 放射性ならびに安定核種の生成崩壊解析コード, JAERI 1250 (1977) (in Japanese).
- (16) W.E. Ford, D.C. Wallace, "POPOP4", CTC-12 (1969).
- (17) D.T. Ingersoll, L.W. Williams, Trans. Am. Nucl. Soc. 35, 470 (1980).
- (18) K. Koyama, N. Yamano and S. Miyasaka, "ORIGEN-JR: A Computer Code for Calculating Radiation Sources and Analyzing Nuclide Transmutations", JAERI-M 8229 (1979).
- (19) D.L. Lessor et al., "Neutron Spectra from (α, n) reactions in Plutonium Compounds Calculated from Hauser-Feshbach Reaction Theory", BNWL-B-109 (1971).
- (20) S. Igarasi, "Program ELIESE-3; Program for Calculation of the Nuclear Cross Sections by Using Local and Non-local Optical Models and Statistical Model", JAERI 1224 (1972).

- (21) J.F. Ziegler, "HELIUM: Stopping Powers and Ranges in All Elemental Matter", Volume 4 of the Stopping and Ranges of Ion in Matter (1977), Pergamon Press.
- (22) D.W. Muir Ed., "WRENDA 79/80", INDC(SEC)-73/URSF (1979).
- (23) L.F. Hansen et al., Nucl. Phys., A98, 25 (1967).
- (24) J.K. Bair and F.X. Haas, Physical Review, C7, 1356 (1973).
- (25) J. Kjellman, Arkiv Fysik, 21, 543 (1962).
- (26) Proceedings of the IAEA Advisory Group Meeting on Transactinium Isotope Nuclear Data, Karlsruhe, 3-7 November 1975, IAEA-186, IAEA, Vienna (1976).
- (27) Proceedings of the 2nd IAEA Advisory Group Meeting on Transactinium Isotope Nuclear Data, Cadarache, 2-5 May 1979, IAEA-TECDOC-232, IAEA, Vienna (1980).
- (28) Bell, M.J.: ORIGEN - The ORNL Isotope generation and depletion code, ORNL-4682 (1973).
- (29) Beynon, S.M.: FISP4 and HYLAS2, Update version of the computer programs for calculating radioactive fuel inventories, RD/B/N 2633 (1973).
- (30) Benjamin, R.W. et al.: A consistent set of Heavy Actinide Multi-group Cross Sections, DP-1394 (1975).
- (31) Küsters, H. et al.: Private communication (NEACRP-A-310), 1977.
- (32) Mitani, H., Koyama, K. and Kuroi, H.: Sensitivity analysis for actinide production and depletion in fast reactors, JAERI-M 8133 (1979).
- (33) Igarasi, S. and Nakagawa, T.: Present status, critical comparison and assessment of different evaluations and files of neutron cross-section data for selected actinides: Transactinium Isotope Nuclear Data - 1979, Cadarach (1979) IAEA-TECDOC-252.
- (34) 向山武彦, 小山謹二, 細山田龍二: アクチニド核種燃焼に与える核分裂生成物の蓄積の影響, 日本原子力学会, 昭和 55 年秋の分科会 D-31 (1980).
- (35) 向山武彦, 小山謹二, 黒井英雄, ENDLを用いたアクチニド核種の高速炉用 25 群断面面積セットの作成, JAERI-M 8310 (1976).
- (36) Fowler, T.B., Vondy, D.R. and Cunningham, G.W.: Nuclear reactor core analysis code: CITATION, ORNL-TM-2496 (1969).
- (37) Koyama, K., Yamano, N. and Miyasaka, S.: ORIGEN-JR: A computer code for calculating radiation sources and analyzing nuclide transmutation, JAERI-M 8229 (1979).

- (38) T. Fuketa; "Nuclear Data for Safeguards", Proceedings of an International Conference on Neutron Physics and Nuclear Data for Reactor and Other Applied Purposes, pp.922-940, Harwell, September 1978.
- (39) Day Day, N.: WRENDA 81/82, INDC(SEC) 78/URSF (1981).
- (40) INDC(NDS)-121/NE: Proposed recommended list of transactinium isotope decay data, Part I, Half-lives, Dec. 1980.
- (41) Kocher, D.C.: Nuclear Sci. Eng. 77, 263 (1981), Decay schemes for radio-nuclides of potential importance in the nuclear fuel cycle.
- (42) Küster, H.: KFK 2917 (1980).
- (43) 「1980年核データ討論会報告」: JAERI - M 9523 (1981).
- (44) 「トリウム系燃料原子炉の核データ」木村, 小林編 KURRI - TR-184, 京大原子炉 (1979).
- (45) 「トリウムサイクル」, トリウムサイクル調査研究専門委員会, 日本原子力学会, 東京 (1980).

燃料サイクル核データワーキンググループ委員および協力メンバー

	荒木 邦夫 (原研)	54-56年度委員
	猪川 浩次 (原研)	53-56年度委員
	植松 邦彦 (動燃)	53・54年度委員
○	梅沢 弘一 (原研)	53-56年度委員
	長部 猛 (日本ニュー クリアフュエル)	53-56年度委員
	桂川 正己 (動燃)	55・56年度委員
	黒井 英雄 (原研)	54-56年度委員
	小泉 益通 (動燃)	53-55年度委員
	佐藤 元重 (三菱原燃)	53-56年度委員
	住田 健二 (阪大)	53-56年度委員
	関口 晃 (東大)	53-56年度委員
	高橋 正則 (第二精工舎)	55・56年度委員
	田村 務 (原研)	53-56年度委員
	夏目 晴夫 (原研)	53・54年度委員
	西村 和明 (原研)	53-56年度委員
	原 礼之助 (第二精工舎)	53・54年度委員
◎	久武 和夫 (東工大)	53-56年度委員
	平田 実穂 (原研)	53・54年度委員
	更田豊治郎 (原研)	53・54年度委員
	松浦祥次郎 (原研)	53-56年度委員
	松田 泰彦 (NAIG)	53-56年度委員
	湯本 鏝三 (動燃)	56 年度委員
	中沢 正治 (東大)	
	榎 彰 (動燃)	
	山野 直樹 (原研/住友原子力)	
	小山 謹二 (原研)	

◎ 専門部会長

○ ワーキンググループリーダー