

TVF ガラス固化体保管時における Ar 放射化量の試算

1991年3月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to : Technology Management Section. Tokai Works. Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-Mura, Nakagun, Ibaraki-Ken 319-11, Japan.

動力炉・核燃料開発事業団

(Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1991

公 開 資 料
PNC TN8430 91-002
1991年3月

TVFガラス固化体保管時におけるAr放射化量の試算

実施責任者 高橋 武士¹⁾
報告者 吉岡 正弘¹⁾
菊地 栄²⁾

要 旨

TVFガラス固化体保管庫において、ピットに沿って円環流路を流れる冷却空気中の⁴⁰Arがガラス固化体からの中性子によって放射化される量を試算した。

計算条件としてガラス固化体からの中性子発生数およびそのエネルギーの違いによる放射化の反応断面積を変えて試算を行った。ORIGENで計算される自発核分裂および(α, n)反応による中性子発生数で、かつその中性子を全て熱中性子と仮定した場合(ケースI)と、文献より求めたガラス固化体についての中性子発生数で、熱中性子および熱外中性子に対する放射化の反応断面積を考慮したより現実的な試算(ケースII)を行い、比較した。

その結果、スタックから放出される⁴¹Arの量は毎時 $1 \times 10^4 \sim 10^5$ (Bq)で、ほぼ同様の放射化量、となった。中性子発生数が増えた(10⁵倍)にも係わらず、放射化量がほぼ同じであったのは、ガラス固化体から発生する中性子の大部分が高速中性子であり、放射化に寄与しないからである。

1) 環境技術開発部 環境技術第一開発室

2) 環境施設部 技術課

1. 目的

TVFガラス固化体保管ピットに沿って円環流路を流れる冷却空気中の⁴⁰Arがガラス固化体から放出される中性子によって放射化される量を計算し、スタックから放出される⁴¹Arの放射能濃度および放射能量を試算する。

2. 結果

放射化により生成する放射性物質の放射能濃度は、原子力安全技術センターの発注によりセンチュリリサーチセンタ（CRC）が実施している以下の式に基づいて求めた。

(1) ケース I

本ケースは、ORIGENの結果による中性子発生数を用いて、その中性子を全て熱中性子と仮定して算出した場合の放出放射能を示す。

$$A = N \cdot \sigma \cdot \Phi [1 - e^{(-\lambda t)}]$$

$$W \cdot N_0$$

$$N = \frac{W \cdot N_0}{M} \cdot \theta$$

A : 放射化放射能濃度 (Bq/cm³)
 N : 標的同位体の原子数密度 (atoms/cm³)
 σ : 放射化断面積(barn) 注₁
 Φ : 照射中性子束(n/cm² · s)
 M : 標的元素原子量
 λ : 生成核種の崩壊定数(s⁻¹)
 t : 照射時間(s)
 W : 標的元素密度(g/cm³)
 N₀ : アボガドロ数: 6.022×10^{23}
 θ : 標的同位体存在比

$$A = N \cdot \sigma \cdot \Phi [1 - e^{(-\lambda t)}]$$

$$= 2.49 \times 10^{17} \times 0.66 \times 10^{-24} \times 5.50 \times 10^3 [1 - e^{-(1.05 \times 10^{-4} \times 19.3)}]$$

$$= 1.83 \times 10^{-6} [\text{Bq}/\text{cm}^3] (4.95 \times 10^{-17} \text{ Ci}/\text{cm}^3)$$

したがって、保管ピットの冷却空気中の⁴⁰Arが放射化されて、放射性の⁴¹Arとなってスタックから放出される時の放射能濃度は、単位体積あたり 1.8×10^{-6} [Bq]と試算される。

これは、TVFのスタックから毎時 1.4×10^5 [Bq] (3.78×10^{-6} Ci) の⁴¹Arが放出される計算になる。

なお、計算根拠は3項のケースIに示す。

注₁) 両辺の次元を合わせるために、変更した。

(2) ケースⅡ

上記のORIGIN結果による中性子発生数を用いて、その中性子を全て熱中性子と仮定して算出した放出放射能に対して、ガラス固化体の(α, n)反応の解析による中性子発生数を用い、一方放射化の反応断面積はエネルギー毎の放射化に対する反応断面積を用いた試算を行った。なお、計算根拠は3項のケースⅡに示す。

変更点は以下の2点である。

- 1) 中性子エネルギーによる放射化の反応断面積を考慮。

熱中性子 $\rho = 0.66 \text{ barn} (\sim 0.5 \text{ eV})$

熱外中性子 $\rho = 0.41 \text{ barn} (0.5 \sim 100 \text{ eV})$

高速中性子 ——

- 2) ガラス固化体についての解析[“(α, n) Reactions in Vitrified Glass”:Westinghouse Hanford Company, USA]による中性子発生数を使用。

中性子数 $3.5 \times 10^{12} \text{ n/sec/体}$

なお、各中性子数は中性子スペクトルを添付資料-3のスペクトルとして求めた。なお、中性子発生数解析の文献を添付資料-5に示す。

その結果は、ほぼ同様の放射能量となった。これはガラス固化体から(α, n)反応により発生する中性子がほとんど高速中性子であり、放射化に寄与しないからである。

以下に結果を示す。

$$\text{トータル放射能濃度} \quad A = A_1 + A_2 = 3.8 \times 10^{-18} [\text{Ci/cm}^3]$$

$$1) \text{ 热中性子による放射能濃度} \quad A_1 = 4.3 \times 10^{-12} [\text{Bq/cm}^3] (1.2 \times 10^{-22} \text{ Ci/cm}^3)$$

$$2) \text{ 热外中性子による放射能濃度} \quad A_2 = 1.4 \times 10^{-7} [\text{Bq/cm}^3] (3.8 \times 10^{-18} \text{ Ci/cm}^3)$$

したがって、スタックから毎時 $1.1 \times 10^4 [\text{Bq}] (2.9 \times 10^{-7} \text{ Ci})$ の ^{41}Ar が放出される。

3. 計算根拠の説明

(1) ケースⅠの場合

1) 照射中性子束; Φ

CRCでは、照射中性子束をANISNにより計算しているが、ここではORIGINにより(α, n)反応と自発核分裂反応により生成される中性子数を求めた。

計算した中性子数は、保管されているガラス固化体が全て再処理後5年を経過しているとして求めた。添付資料-1参照。

$$(\alpha, n) + (\text{自発核分裂}) = 1.37 \times 10^6 [\text{n/sec} \cdot \text{T}] + 6.17 \times 10^7 [\text{n/sec} \cdot \text{T}] \\ = 6.30 \times 10^7 [\text{n/sec} \cdot \text{T}]$$

次に計算に合うように使用済燃料 1 [T]、即ちキャニスター 1 本の表面積あたりの中性子束を求めた。

キャニスターに 300 [kg] 充填した時の充填部相当の表面積は、

$$M = 2 \pi r h = 2\pi \times 21.5 \times 84 = 1.135 \times 10^4 [\text{cm}^2/\text{T}]$$

従って、中性子束は、

$$\frac{6.30 \times 10^7 [\text{n/sec} \cdot \text{T}]}{1.135 \times 10^4 [\text{cm}^2/\text{T}]} = 5.55 \times 10^3 [\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}]$$

2) 放射化断面積 ; σ

^{40}Ar の熱中性子による放射化断面積は、添付資料一 2 の表より求めた。

また、 0.66 [barn] は次元を合わせるため、下記のとおり変更した。

$$0.66 [\text{barn}] \rightarrow 0.66 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]$$

なお、(1) 項で求めた中性子束は全て熱中性子と仮定した。

3) 標的元素原子量 ; M

添付資料一 2 の表より、

$$39.948$$

4) 生成核種の崩壊定数 ; λ

^{41}Ar の崩壊定数は、添付資料一 2 の表より求めた。

$$1.05 \times 10^{-4} (\text{s}^{-1})$$

5) 照射時間 ; t

保管セル内を冷却空気が通過する時間を算出するため、まず、保管セル内の空間容積を算出した。

① 空間容積 (概算)

a) 上部プレナム

$$V_1 = 5.5 \times 15.8 \times 2.5 = 217.3 [\text{m}^3]$$

b) 下部プレナム

$$V_2 = 5.5 \times 15.8 \times 1.3 = 113.0 [\text{m}^3]$$

c) 保管ピット

$$V_3 = \pi (0.265^2 \times 9.53 - 0.215^2 \times 6.53) = 1.15 [\text{m}^3/\text{本}]$$

$$\text{全ピット} = 1.15 \times 70 \text{ 本} = 80.5 [\text{m}^3]$$

$$V_1 + V_2 + V_3 = 217.3 + 113.0 + 80.5 = 411.0 [\text{m}^3]$$

②通過する時間は、

$$t = \frac{\text{空間容積}}{\text{換気設備風量}} = \frac{411 \text{ [m}^3\text{]}}{76500 \text{ [m}^3/\text{hr}\text{]}} = 19.3 \text{ [sec]}$$

(入口温度 35 °C、出口温度 69 °C)

6) 標的元素密度 ; W

添付資料-4により、乾燥空気中のアルゴンの重量組織は 1.28 Wt% であり、これから標準状態の空気(密度 ; 0.001293 g/cm³) 中のアルゴン密度を求めた。

$$W = 0.001293 \times 1.28 / 100 = 1.66 \times 10^{-5} \text{ [g/cm}^3\text{]}$$

7) 標的同位体存在比 ; θ

添付資料-2により、同位体存在比を求めた。

99.6 [%]

8) 標的同位体の原子数密度 ; N

(1) ~ (7)項で求めた値により、下式に代入して求めた。

$$N = \frac{W \cdot N_o}{M} \cdot \theta = \frac{1.66 \times 10^{-5} \times 6.022 \times 10^{23} \times 0.996}{39.948}$$

$$= 2.49 \times 10^{17} \text{ [atoms/cm}^3\text{]}$$

(2) ケースⅡの場合

1) 照射中性子 Φ

$$\Phi = \frac{3.5 \times 10^{12} (\text{n/sec} \cdot \text{T})}{1.135 \times 10^{-4} (\text{cm}^2/\text{T})} = 3.1 \times 10^8 (\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec})$$

2) 放出放射化放射能

① 热中性子による放射能濃度 A₁ [Bq/cm³]

$$A_1 = N \cdot \rho \cdot \Phi [1 - e^{(-\lambda t)}]$$

$$= (2.49 \times 10^{17}) \times (0.66 \times 10^{-24}) \times (3.1 \times 10^8 \times 4.18 \times 10^{-11})$$

$$\times [1 - e^{-(1.05 \times 10^{-4} \times 19.3)}]$$

$$= 4.3 \times 10^{-12} \text{ [Bq/cm}^3\text{]} (1.2 \times 10^{-22} \text{ Ci/cm}^3)$$

② 热外中性子による放射能濃度 A_2 [Bq/cm³]

$$\begin{aligned}
 A_2 &= N \cdot \rho \cdot \Phi [1 - e^{(-\lambda t)}] \\
 &= (2.49 \times 10^{17}) \times (0.41 \times 10^{-24}) \times (3.1 \times 10^8 \times 2.21 \times 10^{-6}) \\
 &\quad \times [1 - e^{-(1.05 \times 10^{-4} \times 19.3)}] \\
 &= 1.4 \times 10^{-7} [\text{Bq}/\text{cm}^3] (3.8 \times 10^{-18} \text{ Ci}/\text{cm}^3)
 \end{aligned}$$

③ トータル放射能濃度 A [Ci/cm³]

$$\begin{aligned}
 A &= A_1 + A_2 \\
 &= 1.2 \times 10^{-22} + 3.8 \times 10^{-18} = 3.8 \times 10^{-18} (\text{Ci}/\text{cm}^3)
 \end{aligned}$$

④ TVFから放出される放射能量 RA [Ci/h]

$$\begin{aligned}
 RA &= A \times \text{排気風量} \\
 &= 3.8 \times 10^{-18} (\text{Ci}/\text{cm}^3) \times 76500 (\text{m}^3/\text{h}) \\
 &= 2.9 \times 10^{-7} [\text{Ci}/\text{h}]
 \end{aligned}$$

添付資料-1

(α 、n) 反応と自発核分裂反応により生成される中性子数

STANDARD PWR FUEL ** HALW DECAY **

ALPHA-N NEUTRON SOURCE IN DISCHARGED FUEL, NEUTRONS/SEC
BASIS = 1.0 MTU

	INITIAL	5.YR.
NP237	3.40E+02	3.40E+02
PU236	1.23E+00	3.65E-01
PU238	9.14E+03	7.09E+04
PU239	1.44E+03	1.44E+03
PU240	1.79E+03	2.17E+03
PU241	2.47E-10	1.95E-10
PU242	2.44E+00	2.45E+00
PU244	7.08E-16	1.74E-12
AM241	2.06E+05	2.07E+05
AM243	1.66E+04	1.66E+04
CM242	1.89E+07	1.85E+04
CM243	3.28E+03	2.94E+03
CM244	1.27E+06	1.05E+06
CM245	9.52E+01	9.51E+01
CM246	1.49E+01	1.49E+01
CM247	3.35E-05	3.35E-05
CM248	1.07E-02	1.07E-02
BK249	5.39E-14	9.57E-16
CF249	5.95E-04	1.50E-03
CF250	3.94E-03	3.02E-03
CF251	2.16E-05	2.16E-05
CF252	3.10E-02	8.35E-03
CF253	2.40E-16	0.0
CF254	5.26E-06	4.30E-15
ES253	3.21E-06	0.0
TOTAL	2.04E+07	1.37E+06

STANDARD PWR FUEL ** HALW DECAY **

SPONTANEOUS FISSION NEUTRON SOURCE IN DISCHARGED FUEL, NEUTRONS/SEC
BASIS = 1.0 MTU

	INITIAL	5.YR.
PU238	6.35E+02	4.93E+03
PU240	4.83E+03	5.88E+03
PU242	9.65E+02	9.68E+02
PU244	9.08E-11	2.23E-07
CM242	3.84E+07	3.76E+04
CM244	7.43E+07	6.14E+07
CM246	2.34E+05	2.33E+05
CM248	4.50E+02	4.51E+02
CM250	4.50E-04	4.49E-04
CF250	1.37E+02	1.05E+02
CF252	4.03E+03	1.09E+03
CF254	3.05E-01	2.49E-10
TOTAL	1.13E+08	6.17E+07

TOTAL 1.33E+08 6.30E+07

添付資料一2

空 気 中 元 素 の 放 射 化 反 応

標的同位体	同位体存在比(%)	反 応	生成核種	生成核種半減期	崩壊定数(s ⁻¹)	放射化断面積(barn)
³⁶ Ar	0.337	(n、γ)	³⁷ Ar	35.0d	2.29×10^{-7}	5.1
³⁸ Ar	0.067	(n、γ)	³⁹ Ar	269y	8.17×10^{-11}	0.82
⁴⁰ Ar	99.60	(n、γ)	⁴¹ Ar	1.83h	1.05×10^{-4}	0.66
¹⁴ N	99.635	(n、p)	¹⁴ C	5730y	3.84×10^{-12}	1.81
¹⁵ N	0.365	(n、γ)	¹⁶ N	7.13s	9.72×10^{-2}	2.48×10^{-5}
¹⁷ O	0.037	(n、α)	¹⁴ C	5730y	3.84×10^{-12}	2.35×10^{-1}
¹⁸ O	0.204	(n、γ)	¹⁹ O	26.9s	2.58×10^{-2}	1.61×10^{-4}
¹³ C	1.108	(n、γ)	¹⁴ C	5730y	3.84×10^{-12}	9.2×10^{-4}

*放射線データブック(昭和57年、地図書館)による。

添付資料-3

DLC-23Eに合わせた中性子線スペクトル

エネルギー群	Upper Energy (eV)	中性子
1	1.492×10^7	5.27×10^{-6}
2	1.22×10^7	3.03×10^{-4}
3	1.0×10^7	1.20×10^{-3}
4	8.18×10^6	3.34×10^{-3}
5	6.36×10^6	5.27×10^{-3}
6	4.96×10^6	2.07×10^{-2}
7	4.06×10^6	1.13×10^{-1}
8	3.01×10^6	2.05×10^{-1}
9	2.46×10^6	6.55×10^{-2}
10	2.35×10^6	1.62×10^{-1}
11	1.83×10^6	1.92×10^{-1}
12	1.11×10^6	1.10×10^{-1}
13	5.5×10^5	7.29×10^{-2}
14	1.11×10^5	4.70×10^{-2}
15	3.35×10^3	5.55×10^{-3}
16	5.83×10^2	2.82×10^{-5}
17	1.01×10^2	2.05×10^{-6}
18	2.90×10	1.59×10^{-7}
19	1.01×10	4.65×10^{-8}
20	3.06	6.53×10^{-10}
21	1.12	1.44×10^{-10}
22	4.14×10^{-1}	4.18×10^{-11}
TOTAL		1.00

注) ^{242}Cm 及び ^{244}Cm の自発核分裂並びに(α 、n) 反応による中性子を重ね合わせた合成中性子スペクトル。

添付資料一 4

乾燥空気の組成

成分	組成(wt%)
N ₂	75.47
O ₂	23.20
A r	1.28
C O ₂	0.046
H ₂	0.001
N e	0.0012
H e	0.00007
K r	0.0003
X e	0.00004
合計	100

*化学便覧基礎編（改訂3版、日本化学会館）による。

添付資料一 5

"(α , n) Reactions in Vitrified Waste"
 H.J. Goldberg, Westinghouse Hanford Company
 P.313~316, in Proceeding of Spectrum '90, 1990

(Alpha,n) Reactions in Vitrified Waste

H. J. Goldberg
 Westinghouse Hanford Company
 P.O. Box 1970
 Richland, Washington
 99352

A package consisting of radioactive wastes immobilized in a glass matrix must have adequate shielding in order to be handled safely. In addition to the gamma radiation from the decay of the fission products and the neutron radiation from the spontaneous fission of any actinides present, the effects of alpha-emitting radionuclides must be considered. These alpha particles will interact with the light elements present in the matrix and give rise to neutron and gamma radiation over and above that arising from the waste directly. The main thrust of this paper is to calculate the (α ,n) contribution to the neutron flux and spectrum.

Although alpha particles interact primarily with the electrons of the material through which they pass, occasionally they interact with the nuclei of the stopping material. These interactions consist of elastic scattering, inelastic scattering, alpha capture, and the emission of nuclear particles. The probability of the emission of various nuclear particles depends on the laws of conservation of energy and momentum, as well as the potential barrier surrounding the target nucleus.

The full energy of the alpha particle is not available for excitation of the product nucleus because, as a result of the conservation of momentum, some of the energy must be used for the kinetic energy of the products.

$$E = \frac{A}{A+4} E_\alpha,$$

where A is the atomic mass of the target,

and E_α is the alpha particle energy.

Conservation of energy determines whether energy is liberated or absorbed in a reaction. This is called the reaction energy. If the value of the reaction is negative the alpha particle must contribute at least that amount of energy to the reaction. This minimum required energy is called the threshold energy of the reaction.

Because alpha particle and the nucleus are both positively charged, there is a repulsive potential between them due to electrostatic repulsion. The magnitude (in MeV) of this barrier is

$$V = \frac{2.88 \times 10^{-13} Z}{R_o (A^{1/3} + 4^{1/3})},$$

where Z is the atomic number of the nucleus,
 A is the atomic mass of the nucleus,
 and R_o is the radius of the nuclear particle in the nucleus.

The atomic mass of the alpha particle has been included.

Classically the reaction is not allowed if the energy of the alpha particle is below this barrier potential even if it is above the threshold energy. Quantum mechanically however, there is a probability for the reaction even at energies below the potential barrier. Here the barrier does not prohibit the reaction, but reduces the rate. Additional barriers exist when the angular momentum is not zero.

The nucleus formed from alpha capture is in a highly excited state called a compound nucleus. This compound nucleus can always decay by the emission of an alpha particle,

but the probability is very low if the energy is much below the potential barrier. It can also decay by gamma emission, but the time required is usually a few orders of magnitude longer than the time needed for nuclear particle emission. Nuclear particles that may be emitted are neutrons, protons, deuterons, and tritons.

Because of the potential barrier and the short range of the alpha particle, this effect is only important for light elements in intimate contact with the alpha-emitting radionuclide. The waste form for the Hanford Waste Vitrification Plant (HWP) is borosilicate glass. The glass composition is based on 25 percent waste oxides and 75 percent glass frit. The waste is in the form of a cylinder 29.5 cm in radius and 239 cm in height, having a volume of 6.60×10^5 cm³.

The glass composition is given in Table 1. The basic information is taken from the "Hanford Waste Vitrification Plant Description of Waste Form and Canister"¹, and the atomic percentages were calculated using a spreadsheet installed on a "PC-AT Clone". It was assumed that the reaction rate of the alpha particle with the various elements within the glass matrix is proportional to the atom percentage of that element in the matrix. Light elements up to silicon were considered. In any shielding calculations, these neutrons will have to be added to those produced from spontaneous fission.

Table 1. Composition of HWP Waste Product

Compound	wt% of Compound	Element/ Isotope	Atomic %
----------	-----------------	------------------	----------

AgO	2.5E-03	Ag	4.0E-04
As ₂ O ₃	1.1E-05	As	1.1E-06
Al ₂ O ₃	2.3E+00	Al	4.5E-01
Am ₂ O ₃	5.0E-03	Am241	3.7E-04
		Am242	5.7E-07
		Am243	6.6E-08
B ₂ O	1.1E+01	B	1.2E+01
BaO	1.0E-01	Ba	1.3E-02
BeO	2.5E-02	Be	2.0E-02
CaO	8.3E-01	Ca	2.9E-01
CdO	7.6E-01	Cd	1.2E-01
CeO	1.5E-01	Ce	1.9E-02

Cr ₂ O ₃	1.3E-01	Cr	3.4E-02
Cs ₂ O	1.5E-01	Cs	2.1E-02
CuO	1.5E-01	Ca	3.7E-02
Dy ₂ O ₃	2.6E-05	Dy	2.8E-06
Er ₂ O ₃	7.7E-07	Er	8.0E-08
Eu ₂ O ₃	5.0E-03	Eu	5.6E-04
F	3.0E-01	F	3.1E-01
Fe ₂ O ₃	7.0E+00	Fe	1.7E+00
Gd ₂ O ₃	2.5E-03	Gd	2.7E-04
GeO ₂	3.9E-05	Ge	7.4E-06
Hf ₂ O ₃	1.3E-06	Hf	1.4E-07
In ₂ O ₃	3.3E-04	In	4.7E-05
K ₂ O	1.3E-02	K	2.7E-03
La ₂ O ₃	7.3E-01	La	8.9E-02
Li ₂ O ₃	3.7E+00	Li	2.4E+00
MgO	8.0E-01	Mg	3.9E-01
MnO	1.5E-01	Mn	4.2E-02
MoO	3.0E-01	Mo	5.3E-02
Na ₂ O	1.1E+01	Na	7.0E+00
Nb ₂ O ₃	2.5E-03	Nb	4.2E-04
Nd ₂ O ₃	3.9E-01	Nd	4.6E-02
NiO	5.8E-01	Ni	1.5E-01
NpO ₂	2.5E-02	Np237	1.8E-03
P ₂ O ₅	2.2E-01	P	6.2E-02
PbO	1.3E-02	Pb	1.1E-03
PdO	5.0E-02	Pd	8.1E-03
Pm ₂ O ₃	2.5E-02	Pm	2.9E-03
Pr ₂ O ₃	1.0E-01	Pr	1.2E-02
PuO ₂	5.0E-03	Pu238	6.6E-07
		Pu239	3.3E-04
		Pu240	3.6E-04
		Pu242	3.7E-04
Rb ₂ O	5.0E-02	Rb	9.1E-03
Rh ₂ O ₃	5.0E-02	Rh	7.8E-03
Ru ₂ O ₃	1.5E-01	Ru	2.4E-02
SiO ₂	1.6E-01	S	4.0E-02
Sb ₂ O ₃	1.5E-03	Sb	2.0E-04
SeO ₂	7.6E-03	Se	1.4E-03
SiO ₂	5.4E+01	Si	1.8E+01
Sm ₂ O ₃	5.0E-02	Sm	5.7E-03
SnO	1.0E-02	Sn	1.5E-03
SrO	1.0E-01	Sr	1.9E-02
Ta ₂ O ₅	7.6E-03	Ta	6.8E-04
Tb ₂ O ₃	5.6E-05	Tb	-6.1E-06
Tc ₂ O ₇	1.0E-01	Tc	1.3E-02
TlO ₂	2.5E-02	Tl	3.1E-03
TlO ₂	2.5E-03	Tl	6.2E-04
Tm ₂ O ₃	4.2E-11	Tm	4.4E-12
UO ₈	1.2E+00	U234	6.2E-06
		U235	7.4E-04
		U236	5.9E-05
		U238	8.9E-02

Table 1. Continued

Compound	wt% of Compound	Element/ Isotope	Atomic %
Y_2O_3	5.0E-02	Y	8.0E-03
ZrU_2	3.0E+00	Zr	6.1E-01
Atomic% of Oxygen = 5.6E+01			

The neutron yields and energy spectra were taken from "Calculated Alpha-Induced Thick Target Neutron Yields and Spectra, with Comparison to Measured Data"² and "Energy Spectra of Neutrons Produced by Alpha-Particles in Thick Targets of Light Elements."³ Table 2 lists the neutron fluxes in each energy group. The contribution from each element is listed as well as the total.

In addition to the neutrons produced by (α, n) reactions, there will be gamma rays. Gamma rays will also be produced in other charged particle reactions such as alpha-proton reactions, alpha-deuteron reactions, and inelastic scattering of the alpha particles i.e., alpha, alpha' reactions.

The gamma yields were generally taken from "Assay of Transuranic Wastes Containing (α, n) Sources"⁴ and "Reaction Gamma Rates in Plutonium Compounds, Mixtures, and Alloys."⁵ In addition, much information was obtained from H. H. van Tuyl in private communication. Table 3 lists the calculated gamma fluxes and energies. Although some of the gammas come from non-neutron producing reactions, such as (α, μ) reactions, the tables are given in terms of gammas per neutron.

The computer code ISOSHILD was run on a CRAY mainframe computer in order to obtain the spectrum of the photons from the waste itself. Compared to these, the alpha produced gamma rays represented a negligible contribution to the dose rate when compared to the photons produced by the decay of the isotopes within the waste form.

The neutron flux from (α, n) reaction will have to be taken into account in any design

of shielding of radioactive waste within a glass matrix. Many computer codes such as ORIGEN2 or ORNL-MG are programmed to calculate the neutron fields assuming an oxide chemical form, or perhaps a nitride, fluoride, or carbide form. These numbers should not be used for this waste form, because while oxygen contributed 50 percent of the neutron flux, the contributions from boron, magnesium, and silicon are significant. However, the gamma rays from the reactions of alpha particles with the matrix may be neglected as they are negligible compared to those generated by the fission products.

This research was sponsored by the Division of Waste Management Projects for the United States Department of Energy under Contract DE-AC06-BGRL10838 with Westinghouse Hanford Company.

References

1. "Hanford Waste Vitrification Plant Preliminary Description of Waste Form and Canister - FY 1980 Update" WHC-EP-008, Rev.1, Westinghouse Hanford Company, Richland, WA.
2. "Calculated Alpha-Induced Thick Target Yields and Spectra, with Comparison to Measured Data," W. B. Wilson, M. Bozoian, and R. T. Perry, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Mito, Japan, May 1980, COHF-86-0616126, (1193).
3. "Energy Spectra of Neutrons Produced by Alpha-Particles in Thick Targets of Light Elements," G. J. H. Jacobs, and H. Liskien, Annals of Nuclear Energy, Vol. 10, No. 10, (541), 1983.
4. "Assay of Transuranic Wastes Containing (α, n) Sources," C. E. Moss and J. T. Caldwell, Institute of Nuclear Materials Management Meeting, New Orleans, LA., June 1986, Proceedings of the Institute, Vol. 15, (427).
5. "Reaction Gamma Rays in Plutonium Compounds, Mixtures, and Alloys," H. R. Martin, TID-4500-R62, Rocky Flats Division of Dow Chemical, Golden, CO.

**Table 2. Neutron Yield and Energy Spectrum for HMVP Waste
(n/sec) in 10²⁰dy⁻² glass :**

E _n (MeV)	B	O	F	Hg	Al	Si	Total
0.1	7.5E+09	1.3E+11	2.6E+09	2.2E+10	4.5E+09	1.5E+11	3.1E+11
0.2	9.3E+09	1.4E+11	2.6E+09	2.0E+10	4.4E+09	1.5E+11	3.3E+11
0.3	1.1E+10	1.4E+11	2.6E+09	2.0E+10	4.1E+09	1.5E+11	3.2E+11
0.4	1.2E+10	1.7E+11	2.7E+09	2.1E+10	3.5E+09	1.6E+11	3.6E+11
0.5	1.3E+10	2.2E+11	2.7E+09	2.0E+10	4.2E+09	2.0E+11	4.7E+11
0.6	1.4E+10	2.5E+11	2.7E+09	2.1E+10	4.5E+09	2.6E+11	5.5E+11
0.7	1.6E+10	2.8E+11	2.5E+09	2.2E+10	4.4E+09	2.7E+11	6.0E+11
0.8	2.3E+10	3.0E+11	2.4E+09	2.2E+10	4.2E+09	2.8E+11	6.3E+11
0.9	2.6E+10	2.9E+11	2.5E+09	2.2E+10	4.1E+09	2.7E+11	6.1E+11
1.0	2.6E+10	2.4E+11	2.7E+09	2.2E+10	4.1E+09	2.5E+11	5.4E+11
1.1	2.6E+10	2.5E+11	3.0E+09	2.2E+10	4.6E+09	2.2E+11	5.2E+11
1.2	3.1E+10	2.7E+11	3.5E+09	2.3E+10	4.4E+09	1.5E+11	4.9E+11
1.3	2.8E+10	3.1E+11	3.7E+09	2.4E+10	4.4E+09	1.1E+11	4.0E+11
1.4	2.9E+10	3.3E+11	3.8E+09	2.6E+10	4.6E+09	8.4E+10	4.0E+11
1.5	3.1E+10	3.4E+11	3.5E+09	3.0E+10	4.0E+09	6.3E+10	4.7E+11
1.6	3.4E+10	3.5E+11	3.2E+09	3.5E+10	4.9E+09	4.5E+10	4.0E+11
1.7	3.7E+10	3.8E+11	3.0E+09	3.5E+10	4.0E+09	3.3E+10	5.0E+11
1.8	4.3E+10	4.3E+11	2.7E+09	3.8E+10	4.1E+09	2.9E+10	5.4E+11
1.9	4.7E+10	4.4E+11	2.4E+09	4.1E+10	3.5E+09	3.3E+10	5.7E+11
2.0	5.2E+10	4.7E+11	2.2E+09	4.6E+10	3.3E+09	3.6E+10	6.1E+11
2.1	6.0E+10	4.7E+11	2.1E+09	4.0E+10	3.1E+09	4.3E+10	6.3E+11
2.2	6.6E+10	4.9E+11	1.8E+09	4.0E+10	2.0E+09	5.1E+10	6.6E+11
2.3	7.7E+10	5.0E+11	1.5E+09	4.5E+10	2.4E+09	5.9E+10	6.0E+11
2.4	8.8E+10	4.8E+11	1.2E+09	4.4E+10	1.7E+09	6.3E+10	6.7E+11
2.5	1.1E+11	4.6E+11	8.6E+08	4.3E+10	7.7E+08	6.5E+10	6.7E+11
2.6	1.2E+11	4.4E+11	6.5E+08	4.1E+10	1.9E+08	7.1E+10	7.1E+11
2.7	1.3E+11	4.2E+11	4.9E+08	4.1E+10		7.0E+10	6.6E+11
2.8	1.4E+11	3.9E+11	3.8E+08	4.1E+10		8.2E+10	6.5E+11
2.9	1.4E+11	3.7E+11	2.6E+08	4.1E+10		8.0E+10	6.4E+11
3.0	1.5E+11	3.5E+11	1.9E+08	3.6E+10		7.4E+10	6.1E+11
3.1	1.4E+11	3.1E+11	1.2E+08	3.1E+10		6.5E+10	5.5E+11
3.2	1.4E+11	2.9E+11	7.0E+07	2.4E+10		5.0E+10	5.0E+11
3.3	1.3E+11	2.5E+11		2.0E+10		4.0E+10	4.4E+11
3.4	1.2E+11	2.0E+11		2.0E+10		3.6E+10	3.0E+11
3.5	1.1E+11	1.7E+11		2.1E+10		3.2E+10	3.4E+11
3.6	1.0E+11	1.5E+11		2.1E+10		2.7E+10	3.0E+11
3.7	9.5E+10	1.2E+11		2.2E+10		1.9E+10	2.5E+11
3.8	8.3E+10	1.0E+11		2.2E+10		7.9E+09	2.2E+11
3.9	7.7E+10	9.0E+10		2.2E+10			1.9E+11
4.0	6.8E+10	7.3E+10		2.2E+10			1.6E+11
4.1	6.0E+10	6.5E+10		2.2E+10			1.5E+11
4.2	5.6E+10	4.3E+10		2.2E+10			1.2E+11
4.3	4.8E+10	-3.4E+10		2.3E+10			1.0E+11
4.4	4.6E+10	2.1E+10		2.2E+10			8.8E+10
4.5	4.3E+10	1.3E+10		2.1E+10			7.7E+10
4.6	3.9E+10				2.0E+10		5.9E+10
4.7	3.6E+10				2.0E+10		5.7E+10
4.8	3.3E+10				2.1E+10		5.3E+10
4.9	2.5E+10				2.0E+10		4.5E+10
5.0	1.0E+10				1.9E+10		3.7E+10
5.1	1.4E+10				1.8E+10		3.2E+10
5.2	1.1E+10				1.8E+10		2.8E+10
5.3	4.7E+09				1.7E+10		2.1E+10
5.4	2.7E+09				1.4E+10		1.7E+10
5.5	2.0E+09				1.2E+10		1.4E+10
5.6	1.7E+09				1.1E+10		1.3E+10
5.7	1.5E+09				9.7E+09		1.1E+10
5.8	9.0E+09				0.7E+09		9.6E+09
5.9	7.5E+09				7.5E+09		0.3E+09
6.0	7.5E+09				6.7E+09		7.4E+09
6.1	6.0E+09				6.1E+09		6.7E+09
6.2					5.4E+09		5.4E+09
6.3					4.7E+09		4.7E+09
6.4					4.3E+09		4.3E+09
6.5					4.1E+09		4.1E+09
6.6					4.1E+09		4.1E+09
6.7					3.7E+09		3.7E+09
6.8					3.6E+09		3.6E+09
6.9					3.2E+09		3.2E+09
7.0					3.0E+09		3.0E+09
7.1					2.9E+09		2.9E+09
7.2					2.5E+09		2.5E+09
7.3					2.5E+09		2.5E+09
7.4					2.4E+09		2.4E+09
7.5					2.4E+09		2.4E+09
7.6					2.4E+09		2.4E+09
7.7					2.4E+09		2.4E+09
7.8					2.5E+09		2.5E+09
7.9					2.1E+09		2.1E+09
8.0					1.9E+09		1.9E+09
8.1					4.0E+08		4.0E+08
Total	3.1E+12	1.2E+13	6.7E+10	1.6E+12	9.7E+12	3.9E+12	2.1E+13

$\rightarrow 3.5 \times 10^{12} \text{ (TUF)}$