

本資料は 年 月 日付で登録区分
変更する。

〔技術情報室〕

核分裂生成物の消滅処理に関する 核データの調査研究

1993年5月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけ
に開示するものです。については複製、転載、引用等を行わないよう、また第三

外

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

配 布 限 定
P N C ^イ Y 8601 93-001
1 9 9 3 年 5 月

核分裂生成物の消滅処理に関する核データの調査研究



編集担当者 加瀬 健*

中村 尚司** 山寺 亮**

宇野 喜智** 高田 真志**

要 旨

平成3～4年度にわたり東北大学との共同研究で、核分裂生成物の消滅処理に関する核データの調査研究を行った。具体的には⁸⁵Kr、⁸⁰Sr、⁸³Zr、⁸⁹Tc、¹⁰⁷Pd、¹²⁹I、¹³⁵Cs、¹³⁷Csの8核種に対する中性子、陽子、光子の核反応断面積の調査と⁹⁰Sr、⁹⁹Tc、¹²⁹I、¹³⁷Csの4核種に対する核反応断面積の計算評価を行った。本資料は、この2年間の研究成果をまとめたものである。

* 核燃料技術開発部 先端技術開発室

** 東北大学 サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター

目 次

1. はじめに	1
2. 核反応断面積データの調査	1
2-1. 中性子による核反応	1
2-2. 光核反応	3
2-3. 陽子による核反応	3
3. 計算による評価	4
3-1. 中性子による核反応	4
3-2. 光核反応	4
3-3. 陽子による核反応	4
3-3-1. 陽子による全核反応	5
3-3-2. ^{124}Xe の (p, 2n) 反応断面積	6
4. 核反応断面積の計算結果の検討	6
4-1. 中性子による核反応	6
4-2. 光核反応	34
4-3. 陽子による核反応	64
4-3-1. 陽子による全核反応	64
4-3-2. ^{124}Xe の (p, 2n) 反応断面積	65
5. 核反応断面積計算コードの概要	67
6. まとめ	69
7. 謝辞	70
参考文献	71

1. はじめに

長寿命核分裂生成物の消滅処理には、

- 1)原子炉
- 2)陽子加速器
- 3)電子加速器
- 4)核融合炉

等を利用する方法が考えられているが、いずれの場合も放射線による核反応が重要になる。原子炉の場合は主に (n, γ) 反応が対象となり、陽子加速器では、高エネルギー陽子によるスプローション反応、あるいはカスケード蒸発過程によって発生する 2 次中性子による核反応、電子加速器では光核反応や光核反応で発生する光中性子による反応が消滅処理に使用される核反応として、考えられている。また、核融合炉を利用する消滅処理では、主に $d - T$ 反応で発生する中性子が重要であり、これらの中性子による $(n, 2n)$ 、 (n, p) 、 (n, α) 等、様々な核反応による消滅処理方法が提案されている。

そこでは、長寿命核分裂生成物の中から、 ^{85}Kr 、 ^{90}Sr 、 ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs 、 ^{137}Cs の 8 核種を選び、これらの核種に対する核反応断面積の調査研究を行い、実験値の存在しない核種については計算コードによる評価を行ったので、ここに報告する。

2. 核反応断面積データの調査

2-1. 中性子による核反応

Table 1 が、今回の調査で得られた上記 8 核種の (n, γ) 反応断面積の実験値をまとめたものである。また、その他の反応断面積に関しては ^{99}Tc ($n, 2n$) (14MeV) 反応⁽¹⁾ を除いて全く存在しないようである。ただし、安定核に対する核反応断面積はいくつかの実験値があり、データ集にまとめられている⁽²⁾。また、計算値としては、中川により PBGASUS コードを用いて計算されたものが、JENDL-3⁽³⁾ の 172 核分裂生成物核種に対する中性子による核反応断面積データとしてまとめられている。

Table 1 長寿命核分裂生成物の (n, γ) 反応断面積⁽¹⁶⁾

核種	核分裂収率*	半減期	Data No.	捕獲断面積	測定方法	測定者等(文献)
⁸⁵ Kr	0.27 %	11 年	1	1.66 ± 0.20 b	⁸⁵ Krを埋め込んだ Al 箔を ORNLの原子炉で照射、質量分析で ⁸⁶ Kr/ ⁸⁵ Krを得た。	C. E. Bemis, et al., N. S. E., 47, 371('72)
			2	1.66 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
⁸⁰ Sr	5.9	29	3	0.8 ± 0.5 b	ガンマ線スペクトル測定	G. Zeisel, Acta Phys Austr 23, 223('66)
			4	14.0 ± 2.4 mb	放射化法, ガンマ線測定	L. A. McVey, J. Radioanal Chem 76, 131('83)
			5	15.3 ± 1.3 mb	放射化法, ⁸⁵ Srを指標として ⁸⁵ Srと ⁸⁹ Srのガンマ線を比較測定	原田, 関根, 加藤その他 核データ研究会で発表 ('91)
			6	0.9 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
⁹³ Zr	6.39	1.5E6	7	2.25 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
			8	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E., 92, 525('86)
⁹⁰ Tc	6.1	2.1E5	9	24 ± 4 b	²³⁸ Pu-Be 線源を用いた放射化法	B. B. Ovechkin et al INIS-mf-1543,
			10	30 ± 2 b	原子炉に設置した結晶スペクトロメーターで測定	N. J. Pattenden, P/11 UK
			11	19.9	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
			12	$20 + 186$ r	原子炉での放射化法	M. Lucas, IAEA-TC-119/14
			13	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 81, 520('82)
¹⁰⁷ Pd	0.14	6.5E6	14	(共鳴パラメータの測定)		U. N. Singh, N. S. E. 67, 54('78)
			15	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 89, 79('85)
			16	2.0 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
¹²⁹ I	0.71	1.6E7	17	35 ± 4 b	ORNL fast chopper TOF	R. C. Block et al., N. S. E. 8, 112('60)
			18	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 85, 85, 350('83)
			19	27 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
¹³⁵ Cs	6.5	2.3E6	20	14.5 ± 4 b	放射化法, 吸収, 崩壊曲線	N. Sugarman, Phys Rev 75, 1473('49)
			21	8.7 ± 0.5 b	放射化法, ¹³⁵ Cs/ ¹³⁷ Csの質量分析と ¹³⁶ Cs/ ¹³⁷ Csの放射能比から	A. P. Baerg, Can J Phys 36, 863('58)
			22	$\alpha \cdot \sigma = 16$ b	放射化法, ¹³⁶ Cs/ ¹³⁷ Csの放射能比を求めた。 α は ¹³⁵ Cs/ ¹³⁷ Cs の原子核数比	原田, 関根, 加藤その他 未発表
			23	6.5 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
¹³⁷ Cs	6.27	30.	24	0.11 ± 0.03 b	放射化法, 試料核と生成核は別々に測定	D. C. Stupergia, J. Nucl. Energy, 12, 16('60)
			25	0.250 ± 0.013 b	放射化法, 試料核と生成核の放射能の同時測定	H. Harada, T. Sekine, T. Katoh et al., J. Nucl. Sci. Tech. 27, 577('90)
			26	0.11 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)

*核分裂収率は "JNDC: JAERI 1320('90)" から引用

2-2. 光核反応

光核反応断面積の実験値も安定核種についてのデータ集⁽⁴⁾は存在するが、上記8核種については、山寺らによる¹³⁷Cs (γ , n) 反応の平均断面積の実験値⁽⁵⁾が唯一のものである。これは制動放射線を γ 線源として用いているために平均断面積のデータしか得られていない。参考までに述べると、上記8核種の安定な同位体に対する光核反応断面積の実験値としては、Table 2に上げたものが存在する。

Table 2 光核反応の実験値調査結果

核種	測定者(文献)
^{nat} S r	A. Lepretre et al., Nucl. Phys. A175, 609(1971).
^{nat} Z r	B. L. Berman et al., Bull. Am. Phys. Soc. 31, 855(1986).
⁹⁰ Z r	B. L. Berman et al., Phys. Rev. 162, 1098(1967). A. Lepretre et al., Nucl. Phys. A175, 609(1971).
⁹¹ Z r	B. L. Berman et al., Phys. Rev. 162, 1098(1967).
⁹² Z r	B. L. Berman et al., Phys. Rev. 162, 1098(1967).
^{nat} P d	A. Lepretre et al., Nucl. Phys. A219, 39(1974).
¹²⁷ I	R. L. Bramblett et al., Phys. Rev. 143, 790(1966). R. Bergere et al., Nucl. Phys. A133, 417(1969). B. L. Berman et al., Bull. Am. Phys. Soc. 31, 855(1986).
¹³³ C s	B. L. Berman et al., Phys. Rev. 177, 1745(1969). A. Lepretre et al., Nucl. Phys. A219, 39(1974).

2-3. 陽子による核反応

陽子による核反応に関しては、ENDF/B-VI等のように一部にこれらの核データを含むものもあるが、中性子の核データに比較すると総じて未整備状態であり、十分な評価済みの核データライブラリは存在しない。一般に陽子による核反応断面積、特に高エネルギー陽子による核反応断面積の実験値は少なく、また、その実験値間の差も大きい。そのため、今回の調査の対象となっている⁸⁵Kr、⁹⁰Sr、⁹³Zr、⁹⁸Tc、¹⁰⁷Pd、¹²⁹I、¹³⁵Cs、¹³⁷Csの核反応断面積データは見つからなかった。なお、上記の8核種の安定な同位体に関しては、いくつか全核反応断面積に対する実験値が存在した⁽⁶⁾。

陽子による全核反応の以外の実験値、例えば、(p, n)、(p, 2n) 反応等の実験値はさらに少ない。また、存在しても数MeV～数十MeV位の低いエネルギー範囲の実験値であることが多く、現在、陽子による消滅処理で考えられているような数百MeV～数千MeVのエネルギー範囲のデータではない。そして、やはり今回の調査対象の8核種に関するデータはなかった。

3. 計算による評価

前述のように、今回調査を行った8核種に関しては、いくつかの核反応断面積の実験値は存在したが、存在しないデータの方が遥かに多かった。そこで、本研究ではこれらの核種の核反応断面積の計算による評価を行うことにした。

ただし、今回の調査・研究の対象となっている核種は8核種と多く、また、対象となる核反応の種類も多い。そこで、これら8核種の中からには、⁹⁰Sr、⁹⁸Tc、¹²⁰I、¹³⁷Csの4核種を選択し、これら4核種に対し計算評価を行うことにした。

3-1. 中性子による核反応

中性子による核反応では、前平衡・統計モデルに基づくSINCROS-IIIコード⁽⁷⁾を用いた計算により断面積の評価を行った。このコードは統計モデルに基づくELIESEコード⁽⁸⁾と前平衡モデルに基づくGNASHコード⁽⁹⁾を統合したEGNASHコードに、計算に必要な光学モデルポテンシャル、準位密度、ガンマ線遷移などの入力パラメータをあらかじめ組み込んで、入力を簡単にしたものである。したがって、これらの値を内蔵されたデフォルト値にすることによって、精度はやや落ちるものの中でも簡単に計算することができる。

3-2. 光核反応

光核反応断面積の励起関数の計算は、前平衡・統計モデルに基づくMCPHOTOコード⁽¹⁰⁾を用いて行うこととした。

3-3. 陽子による核反応

陽子による核反応断面積の計算による評価は、高エネルギー核反応・核子輸送シミュレーションコードNMT C/JAERI⁽¹¹⁾を用いて行い、その計算値を実験値(⁹⁰Sr、⁹⁸Tc、¹²⁰I、¹³⁷Cs)のデータは存在しないので、実験値の存在する安定核種やその近傍の核種のもの)と比較し、その精度の評価を試みた。評価を行う核反応としては、実験値が存在する反応として全核反応と¹²⁴Xeの(p, 2n)反応^{(12), (13)}を選んだ。

同コードは直接、核反応断面積は出力しないので、前述の4核種の円盤型のターゲットに高エネルギー陽子が入射した場合の核反応数を計算し、反応確率を求め、核反応断面積を求めた。具体的には、以下の式を用いた。なお、上述したNMT C/JAERIの計算結果の解析にはNMT A⁽¹⁴⁾を利用した。

$$P = 1 - e \times p \quad (-N \sigma \ell)$$

$$\therefore \sigma = \frac{-\ell n (1-P)}{N \cdot \ell}$$

P : 入射陽子が核反応を起こす確率 (1次反応の確率)

N : ターゲットの個数密度 [コ/cm³]

σ : 核反応断面積 [cm²]

ℓ : ターゲットの長さ [cm]

3-3-1. 陽子による全核反応

NMT C / J A E R I による計算にあたっては、円盤の半径は 5 cm に固定した。また、核反応数をなるべく多くするために、円盤の長さは入射陽子エネルギーのロスが 10% 以下で、できるだけ長い値に設定した⁽¹⁵⁾。入射陽子エネルギーは、とりあえず、100、500、1000 MeV の 3 種類とした。以上の計算条件をまとめて、Table 3 に示す。⁽¹²⁾ I に関してはその安定核種⁽¹²⁷⁾ I の実験値と比較するために 236、346、412、497、567 MeV のエネルギーに関しても計算を行った⁽⁶⁾。

Table 3 計算条件

核種	陽子エネルギー [MeV]	半径 [cm]	長さ [cm]	核種	陽子エネルギー [MeV]	半径 [cm]	長さ [cm]
⁹⁰ S r	100	5	0.5	¹²⁸ I	100	5	0.5
	500	5	1		500	5	1
	1000	5	2		1000	5	1
⁹⁸ T c	100	5	0.2	¹²⁷ I	236	5	0.5
	500	5	0.5		346	5	0.5
	1000	5	1		412	5	0.5
¹³⁷ C s	100	5	1		497	5	0.5
	500	5	1		567	5	0.5
	1000	5	2				

3-3-2. ^{124}Xe の (p, 2n) 反応断面積

今回の調査では ^{129}I と ^{137}Cs に原子番号、質量数の比較的近い ^{124}Xe の (p, 2n) 反応断面積が 2 種類見つかったので、参考のためにこれらの実験値と計算値の比較を行った^{(12), (13)}。全核反応断面積の場合と同様に、円盤の半径は 5 cm に固定した。また、円盤の長さは、入射陽子エネルギーのロスが 10% 以下で、できるだけ長い値に設定した。陽子のエネルギーは、Kurenkov ら⁽¹²⁾ の実験値と同様の値 (18.0, 21.7, 24.4, 27.1, 30.2, 33.2 MeV) に設定した。計算条件を Table 4 に示す。

Table 4 計算条件

核種	陽子エネルギー [MeV]	半径 [cm]	長さ [cm]
^{124}Xe	18.0	5	30
	21.7	5	50
	24.4	5	50
	27.1	5	50
	30.2	5	50
	33.2	5	50

4. 核反応断面積の計算結果の検討

4-1. 中性子による核反応

SINCROS-III コードによる計算がどれ位実験値を再現するかを見るために、まずデフォルト値を用いて、実験値が存在する安定核種 ^{88}Sr , ^{127}I , ^{133}Cs に対する断面積を計算し、実験値と比較した。計算は ^{88}Sr (n, p) ^{88}Rb , ^{88}Sr (n, 2n) ^{87}Sr , ^{127}I (n, 2n) ^{126}I 、及び ^{133}Cs (n, 2n) ^{132}Cs 反応断面積について行った。このうち ^{88}Sr (n, 2n) 反応は生成核 ^{87}Sr が安定核種のため、 ^{88}Sr (n, 2n) ^{87m}Sr の実験値しかなかったので比較できなかった。SINCROS コードの入力パラメータのうち、中性子及び陽子前平衡過程の調節因子である F2 パラメータだけはデフォルト値が内蔵されていないので、ユーザーが指定しなければならない。F2 パラメータは Kalbach 定数の 1/100 に等しく、一般に 1.0 近傍の値をとるので、ここでは 0.8, 1.0, 1.2 の 3 つの値に対して断面積を計算した。

得られた計算結果を実験値と比較して、Fig. 1-1~1-4 に中性子エネルギーの関数として示す。

F_2 を変化させても断面積の形はほとんど同じで絶対値の差もそう大きくないことがわかる。 ^{133}Cs ($n, 2n$) 反応断面積の計算値は、実験値が大きくばらついているので判断しにくいかが、このばらつきの中に入っていてかなりよい精度で実験値を再現していることがわかる。実験値との比較の結果、SINCROS-IIIコードはかなり妥当な断面積を与えることがわかったので、次に目的とする ^{137}Cs 、 ^{129}I 、 ^{90}Sr 、 ^{89}Tc に対する ($n, 2n$)、($n, 3n$)、(n, p)、(n, np)、(n, α) 核反応断面積を計算した。

デフォルト値を使用しない場合、離散準位データを入力として必要とする。この原子核の離散準位データは、ENSDFファイルから山室が作成したプログラムにより作成できる。しかし、ENSDFファイルにデータの無い核種や、スピン及びパリティあるいは、 γ 線崩壊の分岐比の不明な準位が含まれている場合がある。ENSDFファイルに準位データの無い核種については、EGNASHは基底状態のみとして計算を行う。不明なスピン、パリティについては、中川がJENDL 3、F.Pライブラリの評価を、PEGASUSコードを用いて計算したときの準位データを参考にして決めた。この準位データに含まれていない核種については、不明なスピン、パリティは、適当に決めた。

準位データは、標的核、複合核、生成核について各々用意する必要がある。Table 5 に用意した離散準位データの準位数を示す。ENSDFファイルにレベルデータがなかった 4 核種 ^{91}Sr 、 ^{90}Rb 、 ^{89}Rb 、 ^{100}Tc については、すべて基底準位に落ちるものとした。EGNASHでは準位データに基づいて核異性体ごとの生成断面積が計算される。したがって、励起状態と基底状態の全断面積を計算するには、離散準位データの γ 線崩壊の分岐はすべて基底状態に崩壊するようにしておく必要がある。

離散準位データを用意し、実際の計算の実行では、入力データは入射粒子エネルギー、標的原子核及び F_2 パラメータ、標的核の準位密度パラメータ以外はデフォルト値を用いた。準位密度パラメータ a'' の値は指定しなければ、山室の評価式に基づく内蔵値が使用されるが、標的核については、中川がJENDL 3、F.P用に評価した値を用いることにした。

Table 5 計算に使用した離散準位数

親 核	複合核	反 応 生 成 核				
		(n, 2n)	(n, 3n)	(n, p)	(n, np)	(n, α)
^{137}Cs	^{138}Cs	^{136}Cs	^{135}Cs	^{137}Xe	^{136}Xe	^{134}I
8	9	2	5	7	16	10
^{90}Sr	^{91}Sr	^{89}Sr	^{88}Sr	^{89}Rb	^{89}Rb	^{87}Kr
6	1	13	14	1	1	10
^{98}Tc	^{100}Tc	^{98}Tc	^{97}Tc	^{99}Mo	^{98}Mo	^{96}Nb
14	1	5	11	17	15	8
^{129}I	^{130}I	^{128}I	^{127}I	^{129}Te	^{128}Te	^{126}Sb
20	6	6	13	25	12	6

またF 2パラメータは今回、0.6、1.0、1.4の3つの場合について計算した。得られた計算結果を、 ^{137}Cs についてはFig. 1-5~1-9に、 ^{90}Sr についてはFig. 1-10~1-14に、 ^{129}I についてはFig. 1-15~1-19に、 ^{98}Tc についてはFig. 1-20~1-24に示す。これらのグラフにおいては、実線(—)は中川による JENDL F.Pライブラリーの評価値、点線(….)はF 2=1.0、鎖線(---)F 2=0.6、一点鎖線(-·-)はF 2=1.4としたときのSINCROS-IIIの計算値を示している。JENDLの計算値⁽³⁾と本計算値を比べると以下のことが明らかである。

- 1) F 2の値を変えたときの断面積の変化は(n, α)反応に対してはほとんど差がなく、次いで(n, 2n)、(n, 3n)反応の場合に差が比較的小さい。それに反し(n, np)、(n, p)反応は差が大きく、特に(n, p)反応は差が2倍近くもある。
- 2) 唯一存在する実験値であるQaimの ^{98}Tc (n, 2n)反応の14MeVでのデータをFig. 1-20に示している⁽¹⁾が、その結果はJENDLの計算値とよく一致しており、本計算値とも実験値の誤差の最大巾の値に大体一致していて、約25%の過大評価を与えている。
- 3) JENDLの計算値と比べて、 ^{90}Sr (n, 2n)、 ^{98}Tc (n, p)、 ^{98}Tc (n, np)反応は本計算値が比較的よく一致している。これに対し(n, α)、(n, 3n)反応では、JENDLに比べ本計算値は約半分位の過少評価となっている。

4) ^{137}Cs と ^{129}I については、(n, 2n) 及び (n, 3n) 反応では JENDL の計算値は本計算値の 2 倍弱、(n, α) 反応では 2 ~ 3 倍となっているのに対し、(n, p)、(n, np) 反応では逆に 0.4 ~ 0.5 倍となっている。いずれにしても実測値がほとんどないので、どちらが正しいかは判定がつかないが、およそそのところファクター 2 程度の精度はあるものと推定される。

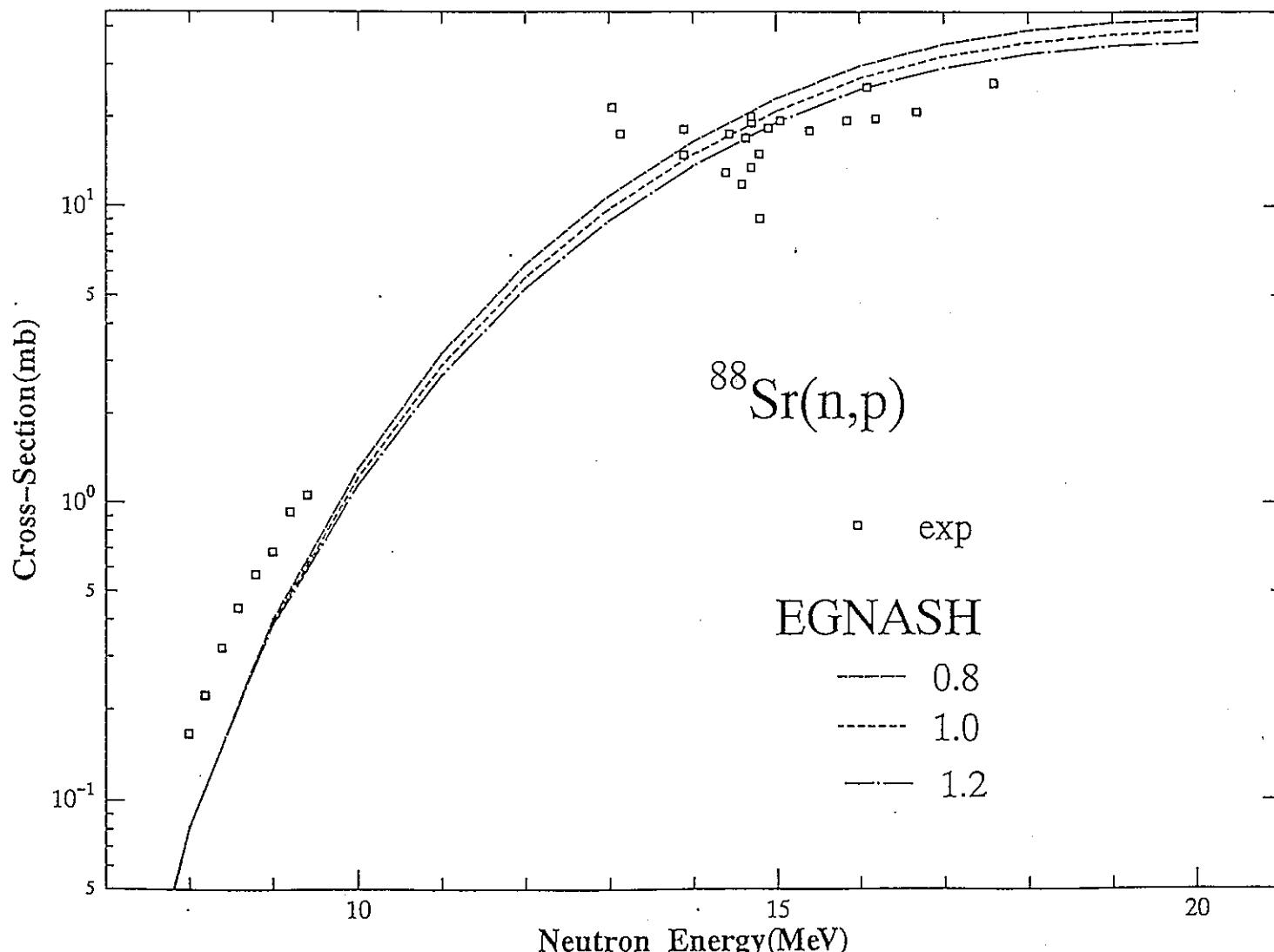


Fig. 1-1 $^{88}\text{Sr}(\text{n}, \text{p})$ 反応断面積の計算値と実験値との比較

点線 (…) が $F_2 = 1.0$ 、鎖線 (---) が $F_2 = 0.8$ 、一点鎖線 (-·-) が $F_2 = 1.2$
の場合のSINCROS-III計算値。以下の図ですべて同じ。

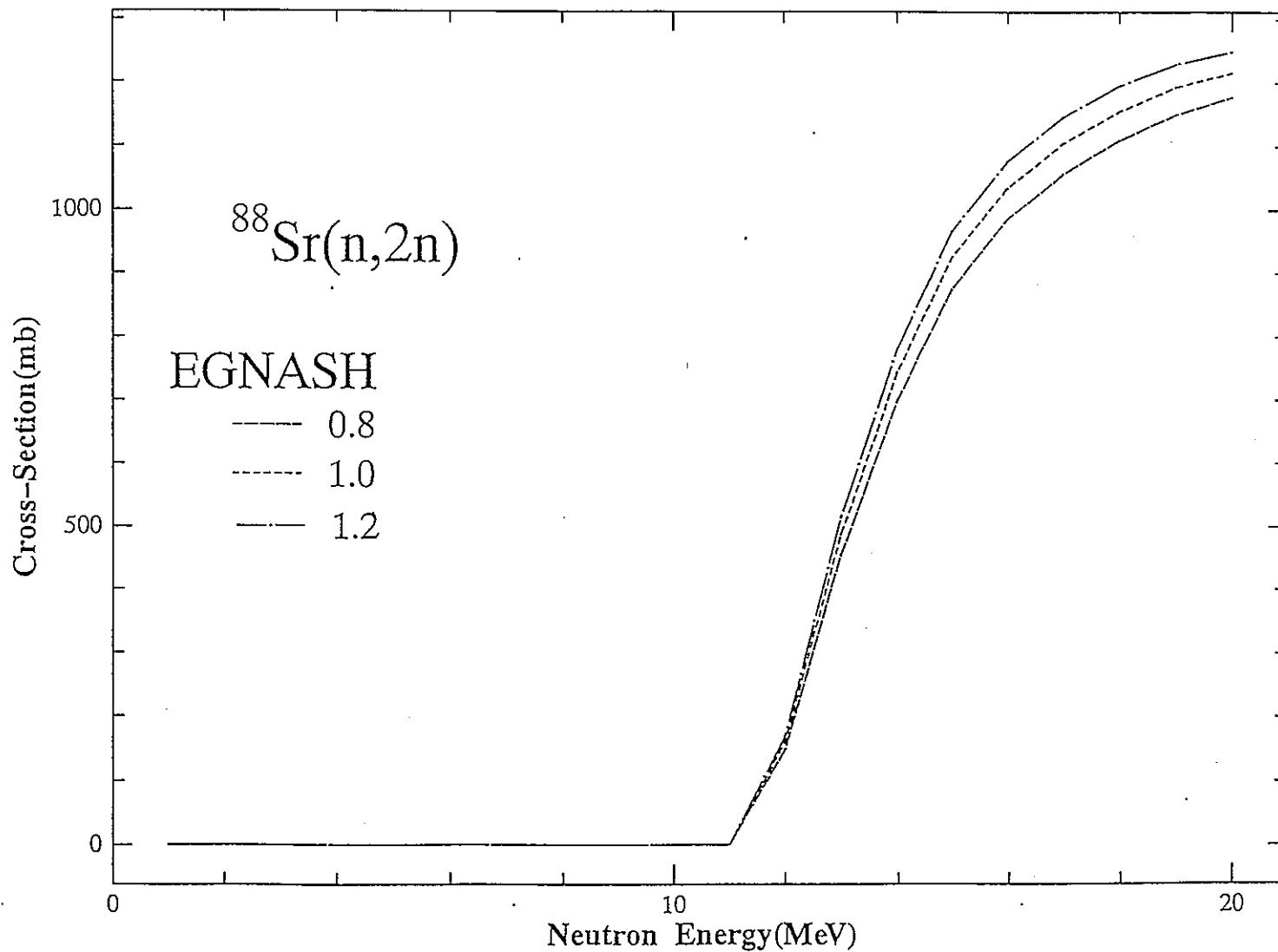


Fig. 1-2 $^{88}\text{Sr}(n,2n)$ 反応断面積の計算値

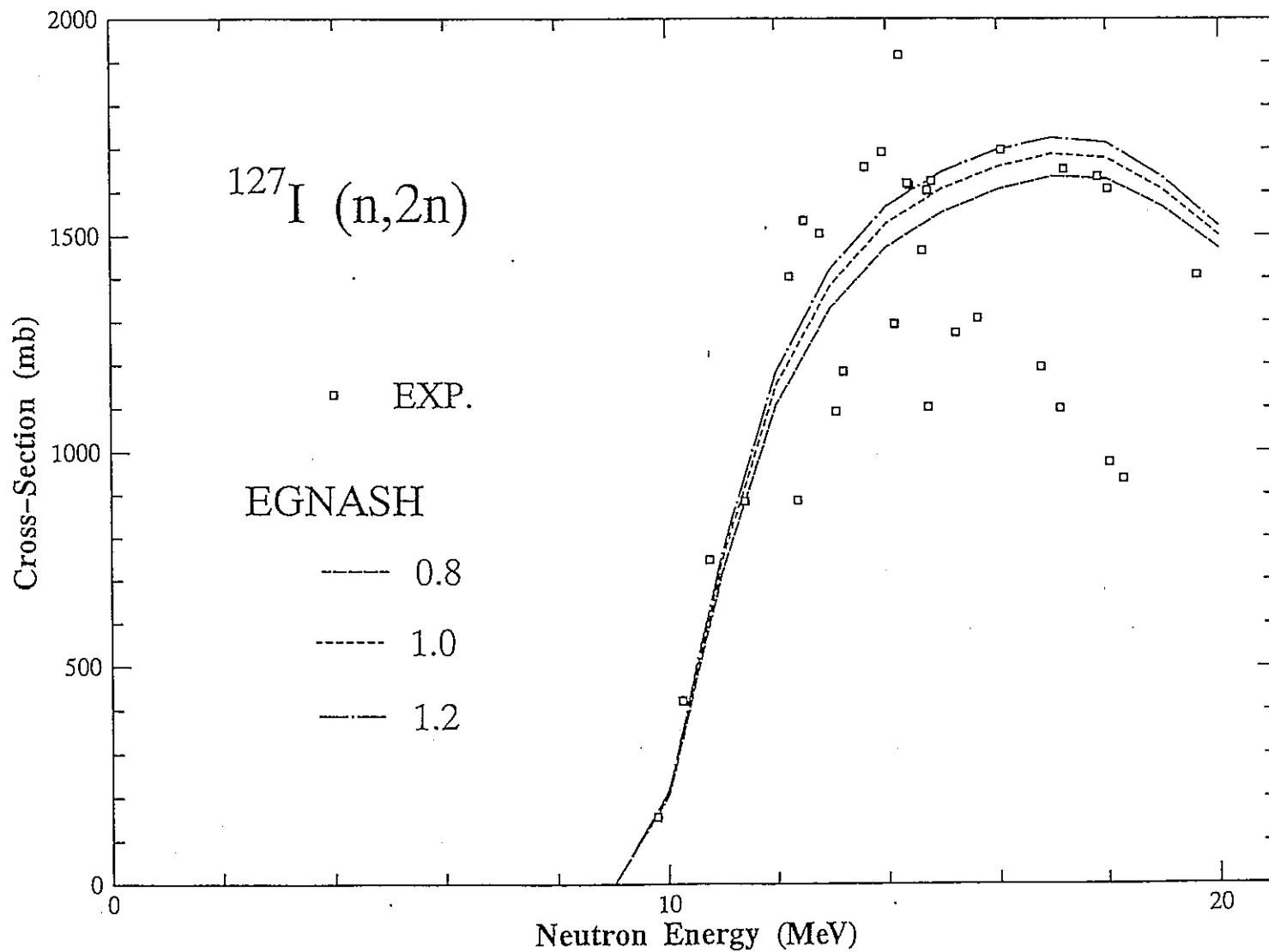
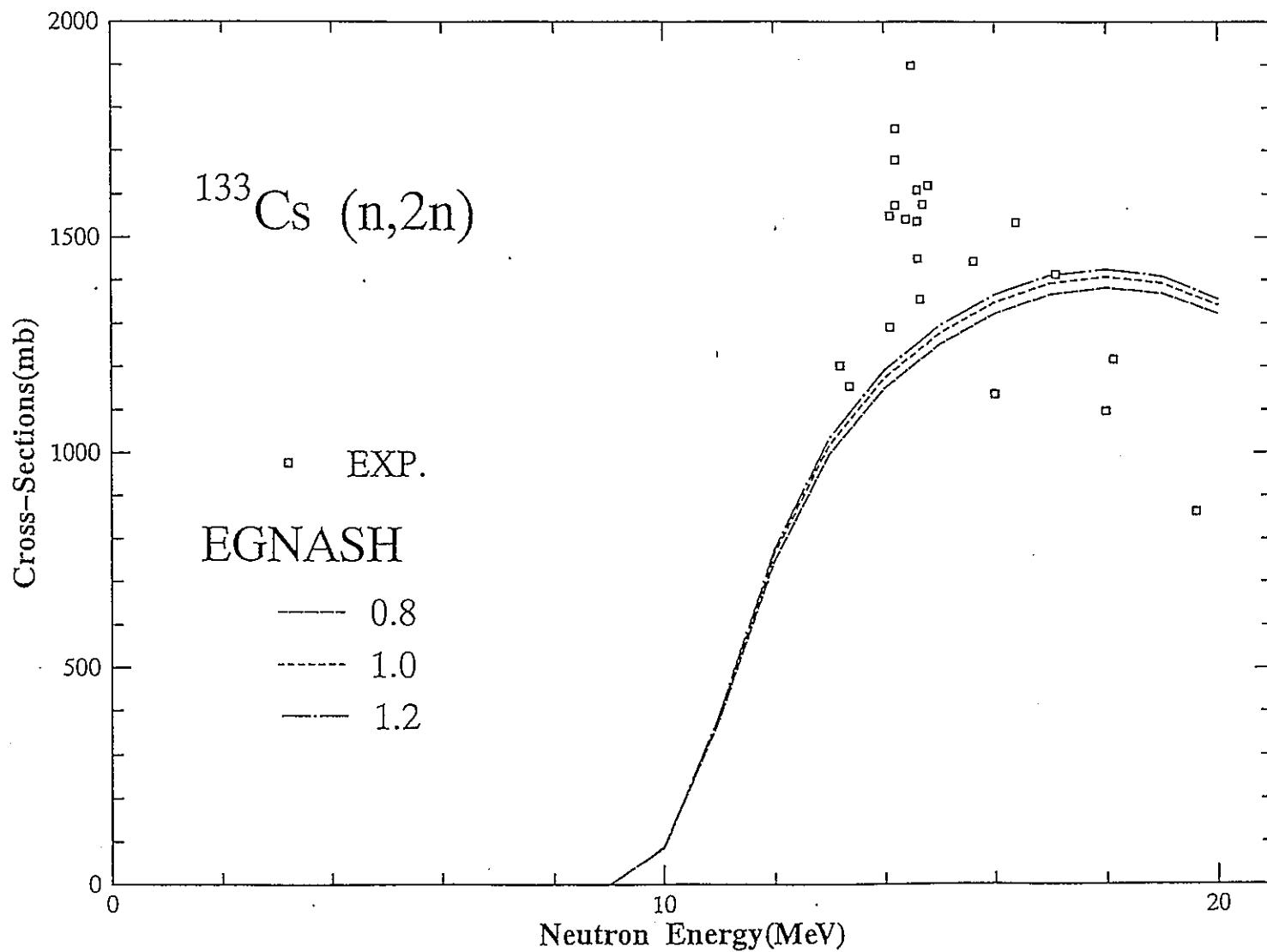


Fig. 1-3 ^{127}I ($n, 2n$) 反応断面積の計算値と実験値との比較

Fig. 1-4 ^{133}Cs ($n, 2n$) 反応断面積の計算値と実験値との比較

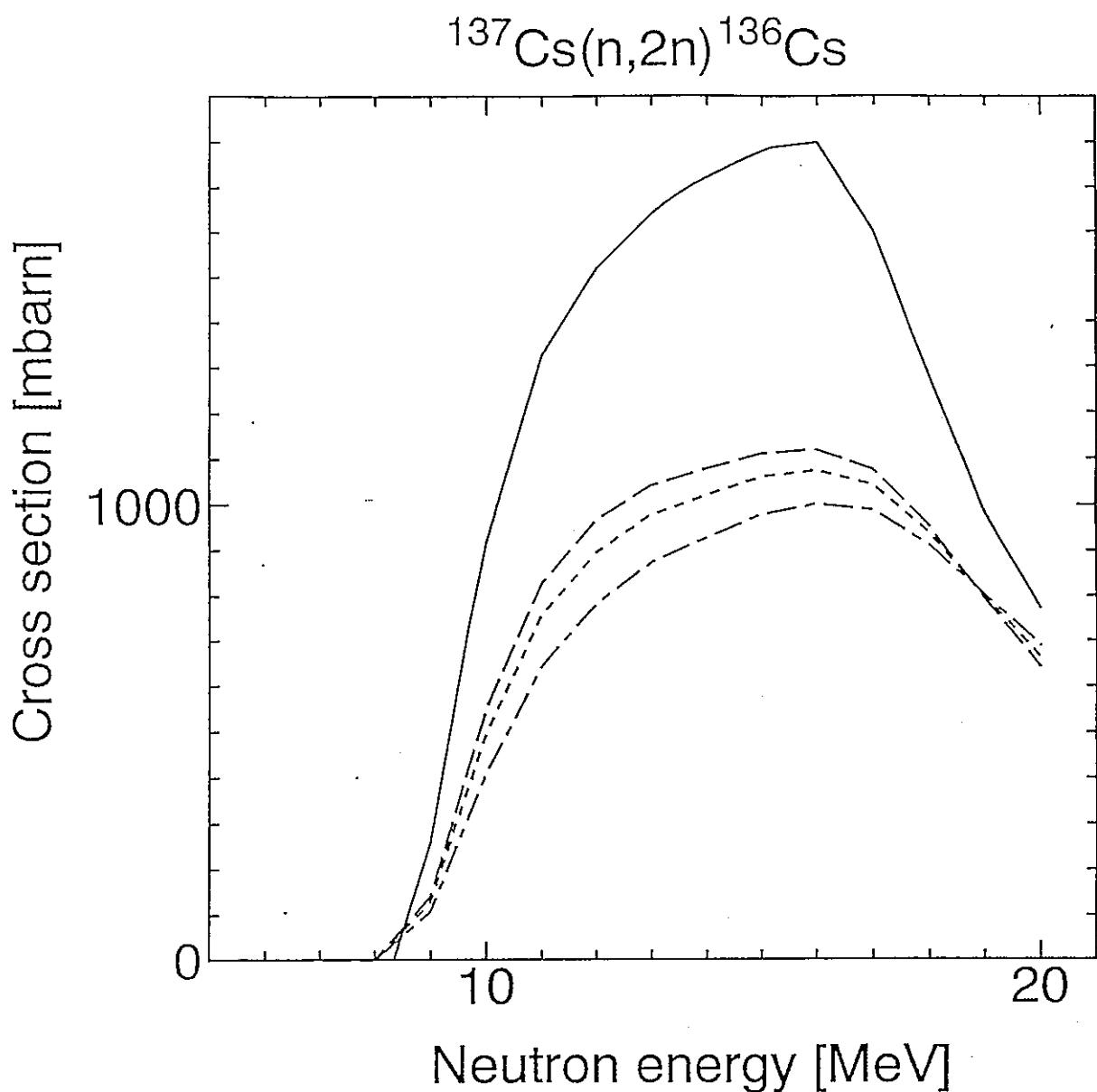


Fig. 1-5 $^{137}\text{Cs}(n, 2n)$ 反応断面積の計算値と JENDL-3F.P. 計算値⁽³⁾との比較
実線(—)がJENDL-3 F.P. 計算値、点線(…)がF2=1.0、
鎖線(---)がF2=0.6、一点鎖線(···)がF2=1.4
の場合のSINCROS-III計算値。以下の図ですべて同じ

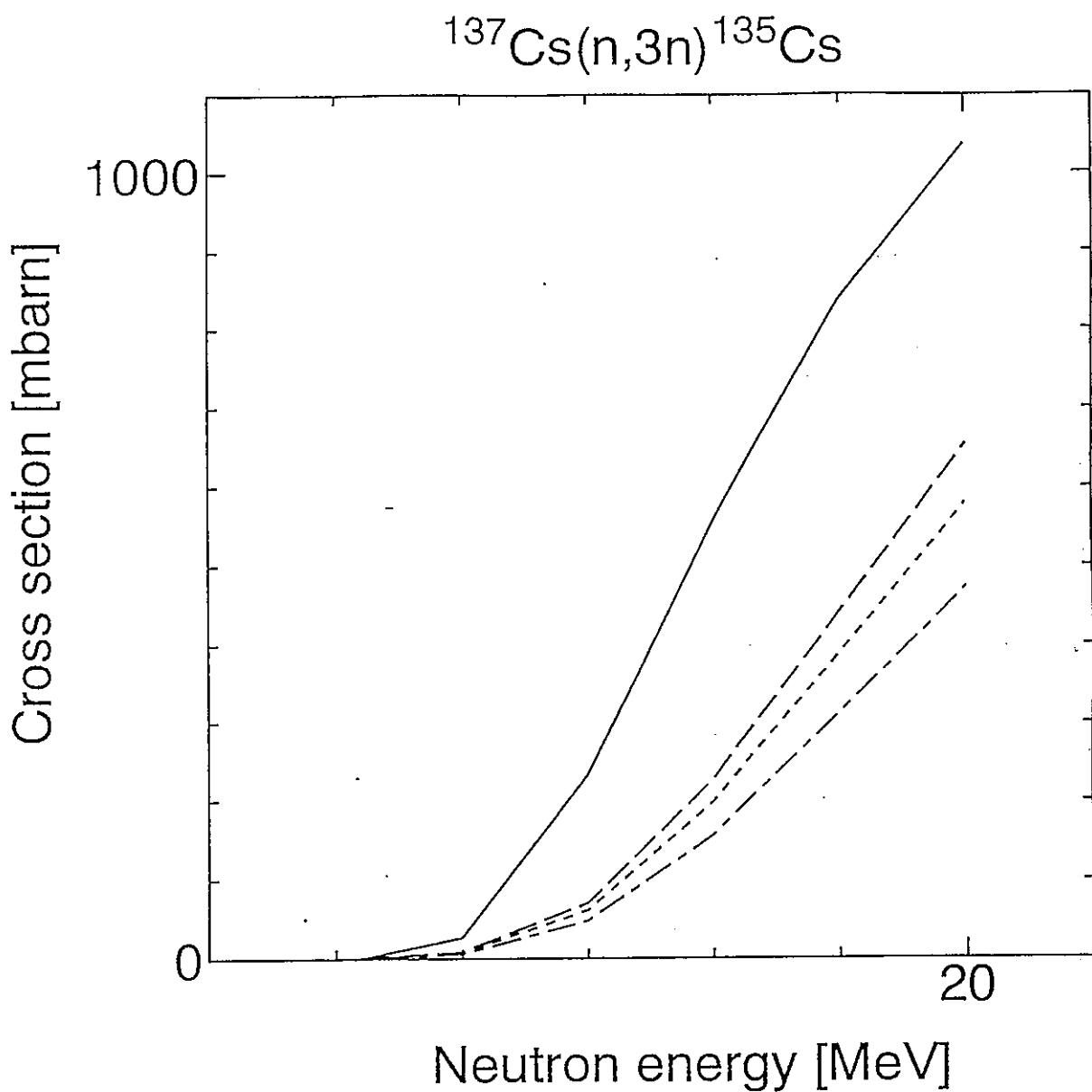


Fig. 1-6 $^{137}\text{Cs}(n,3n)$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

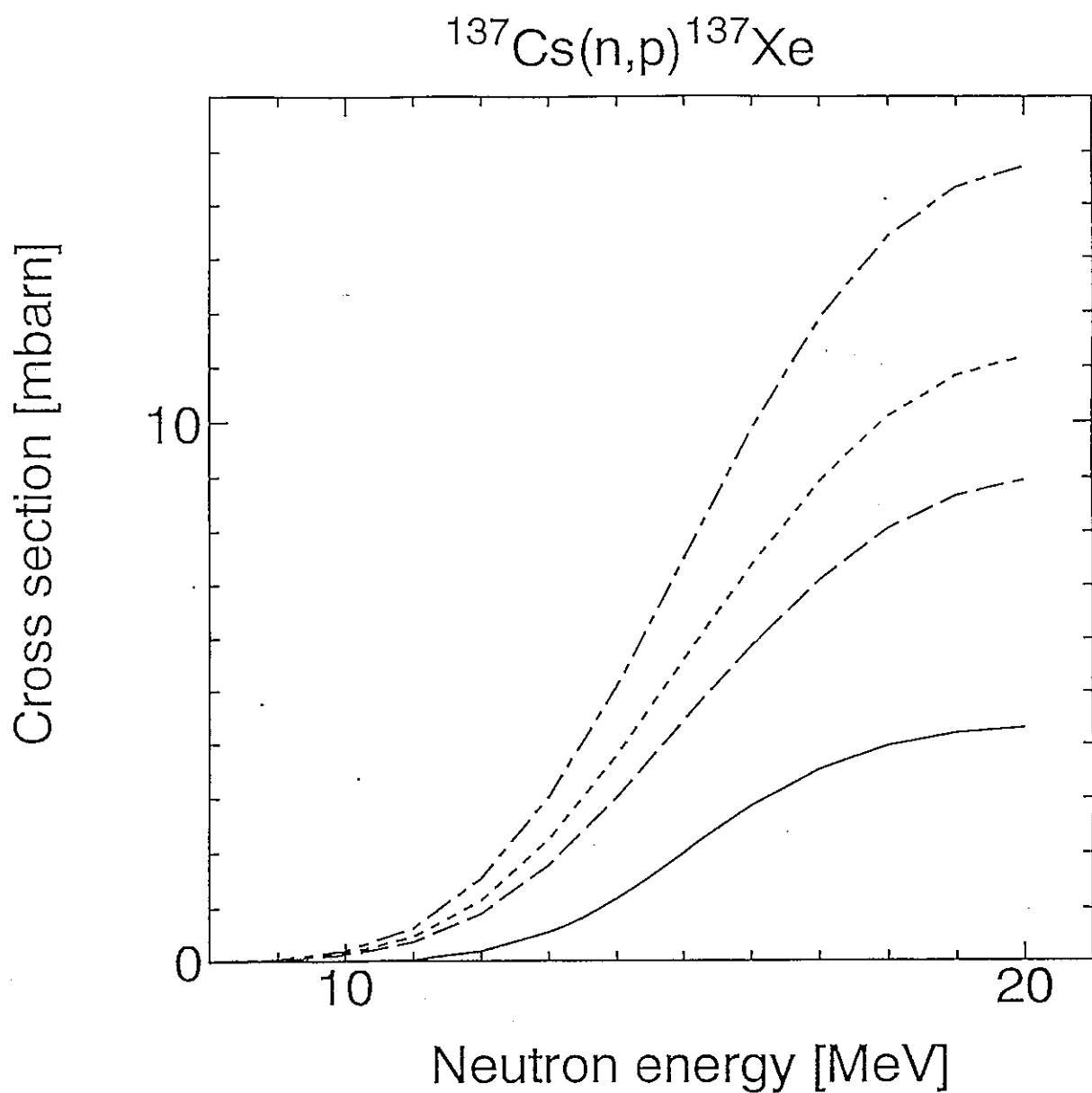


Fig. 1-7 $^{137}\text{Cs}(\text{n}, \text{p})$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

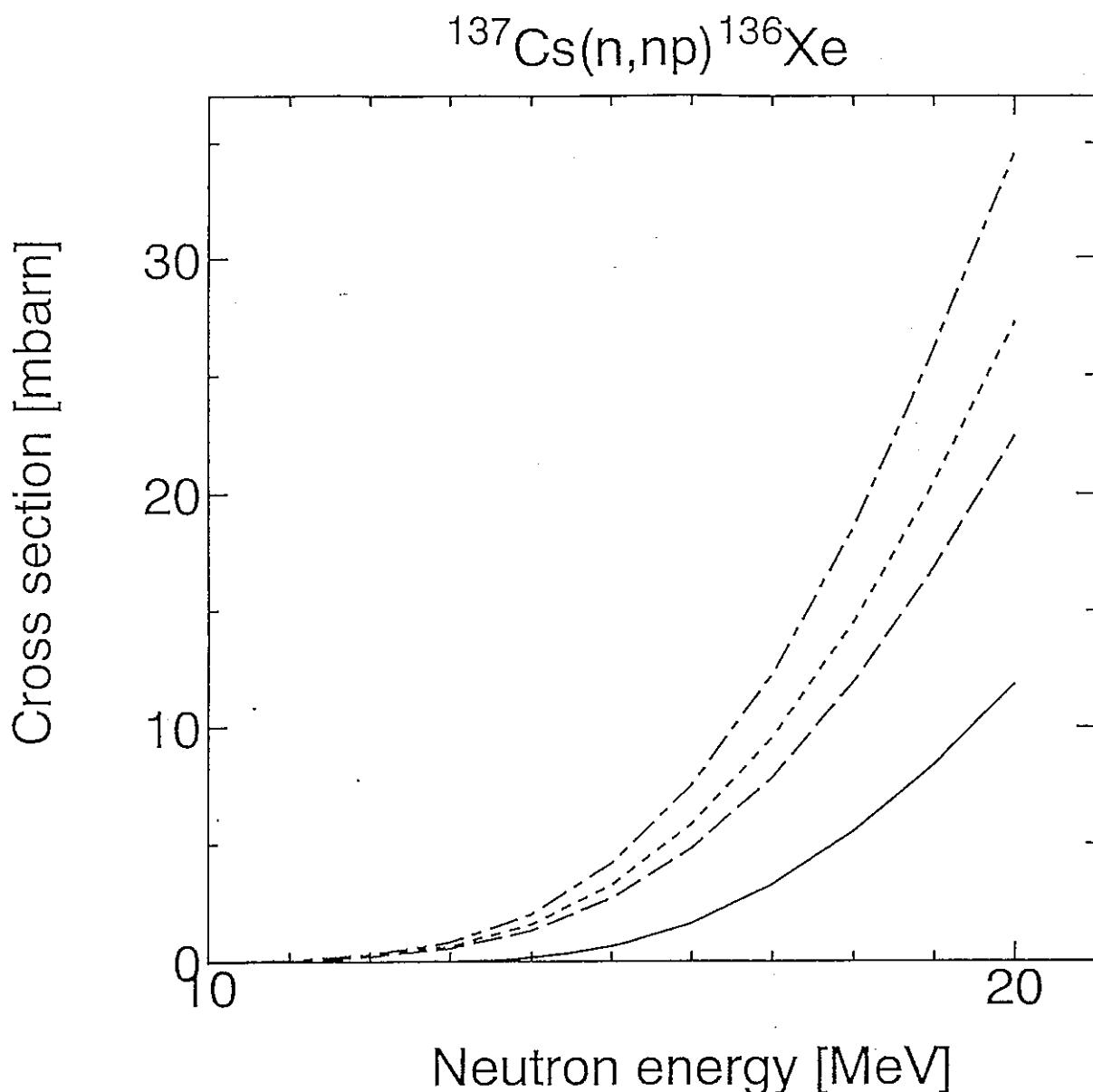


Fig. 1-8 ^{137}Cs (n, np) 反応断面積の計算値とJBNDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

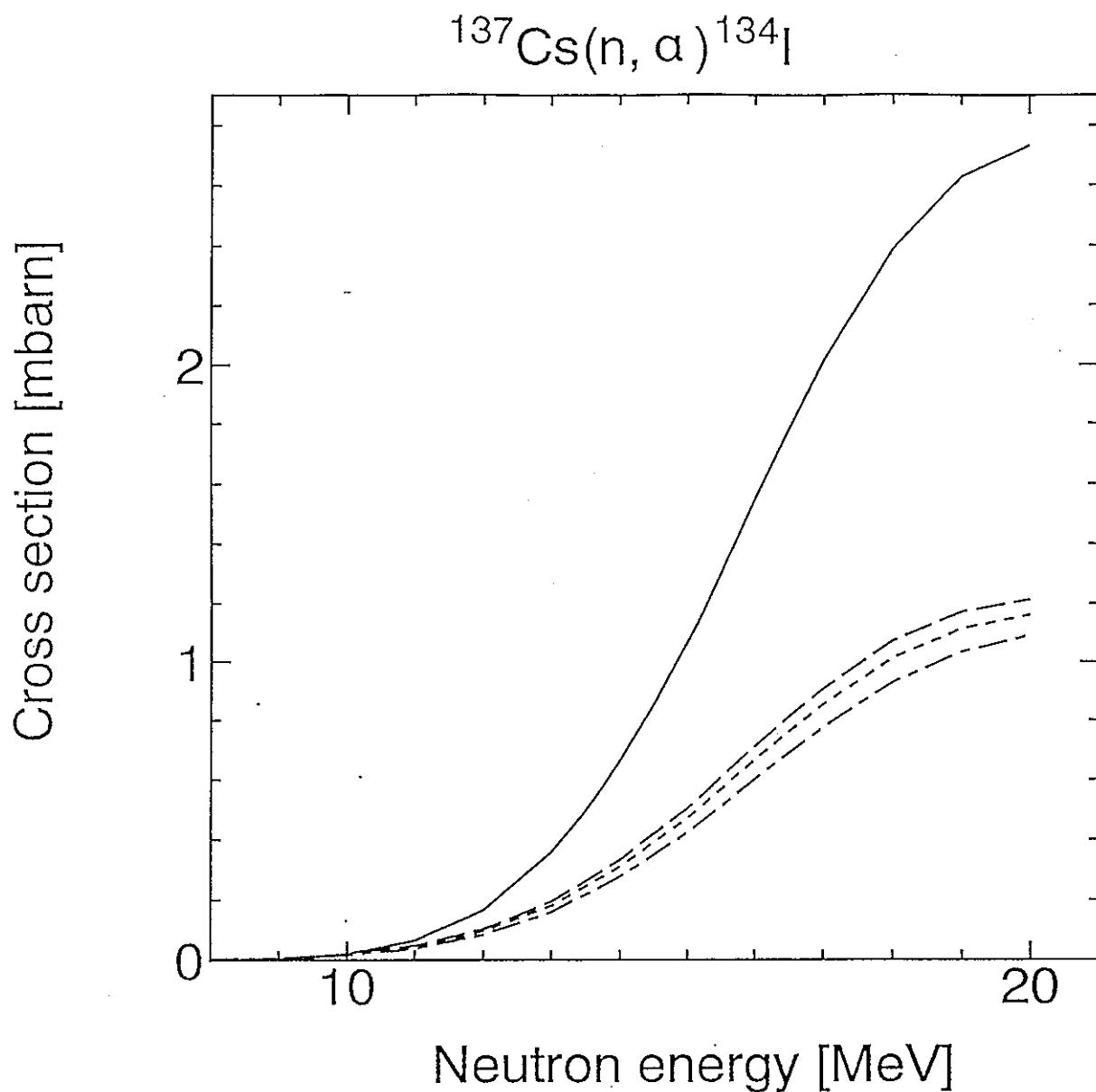


Fig. 1-9 $^{137}\text{Cs}(\text{n}, \alpha)$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

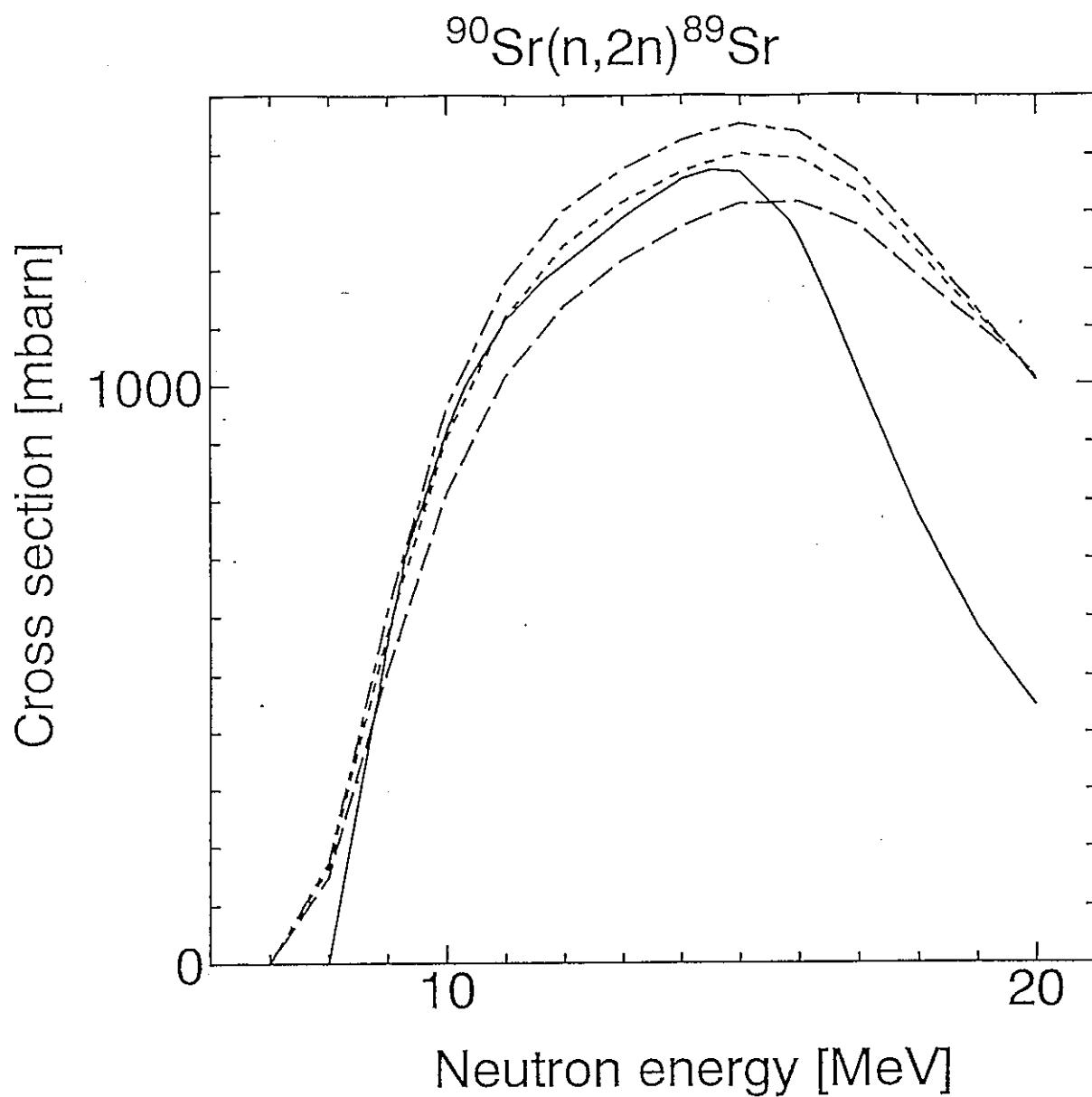


Fig. 1-10 $^{90}\text{Sr}(n, 2n)$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

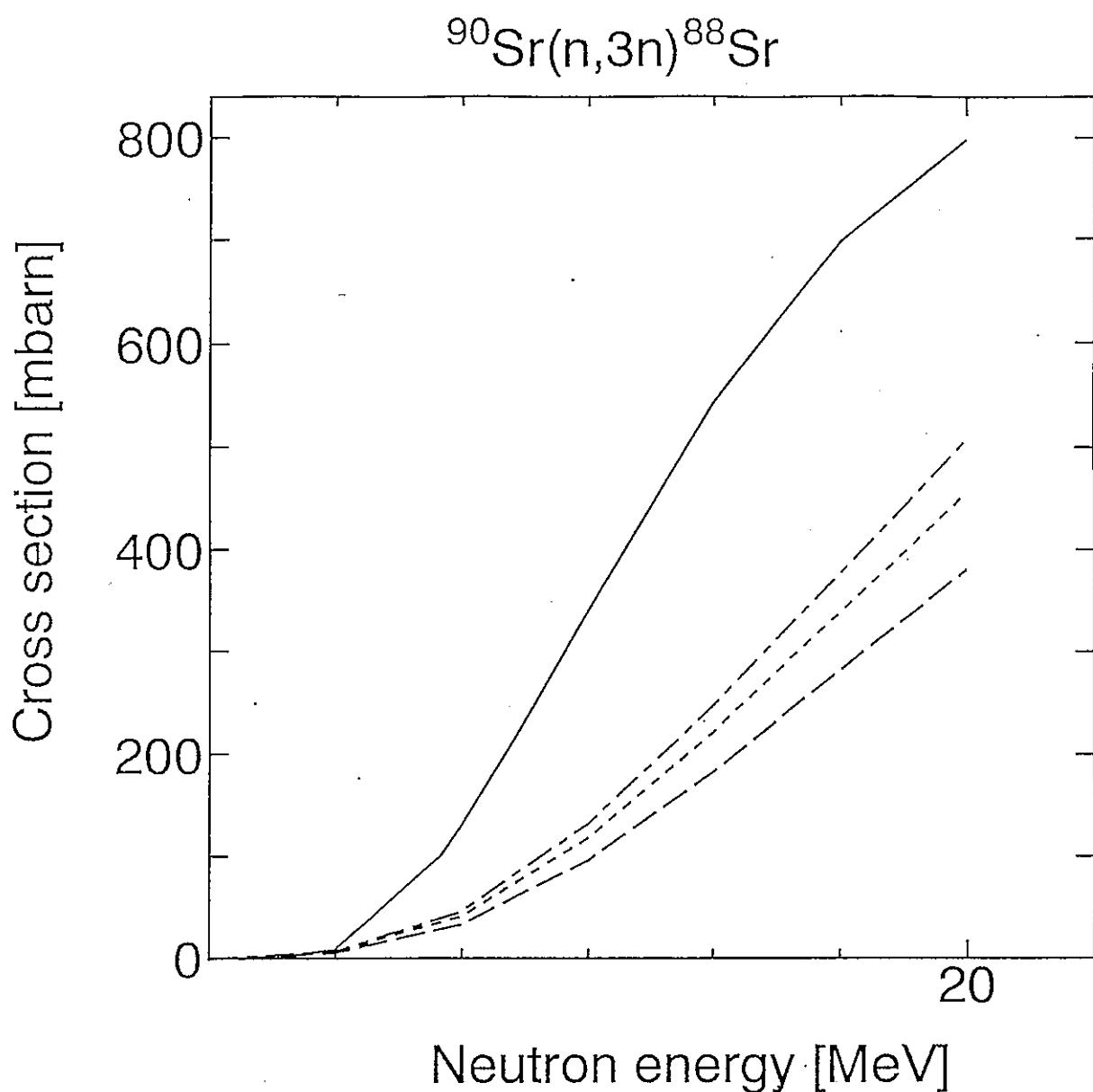


Fig. 1-11 ^{90}Sr ($\text{n}, 3\text{n}$) 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

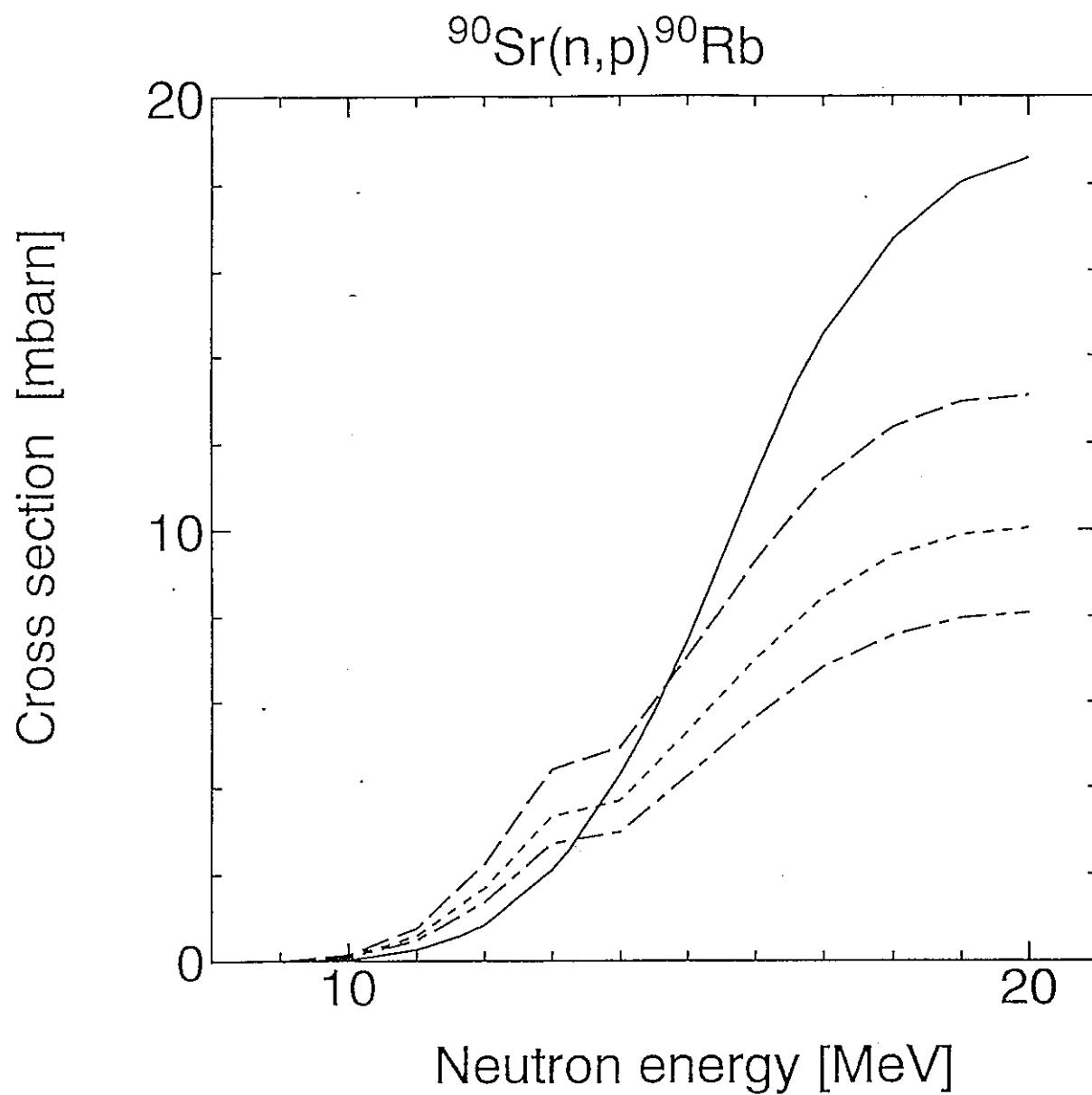


Fig. 1-12 ^{90}Sr (n, p) 反応断面積の計算値とJBNDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

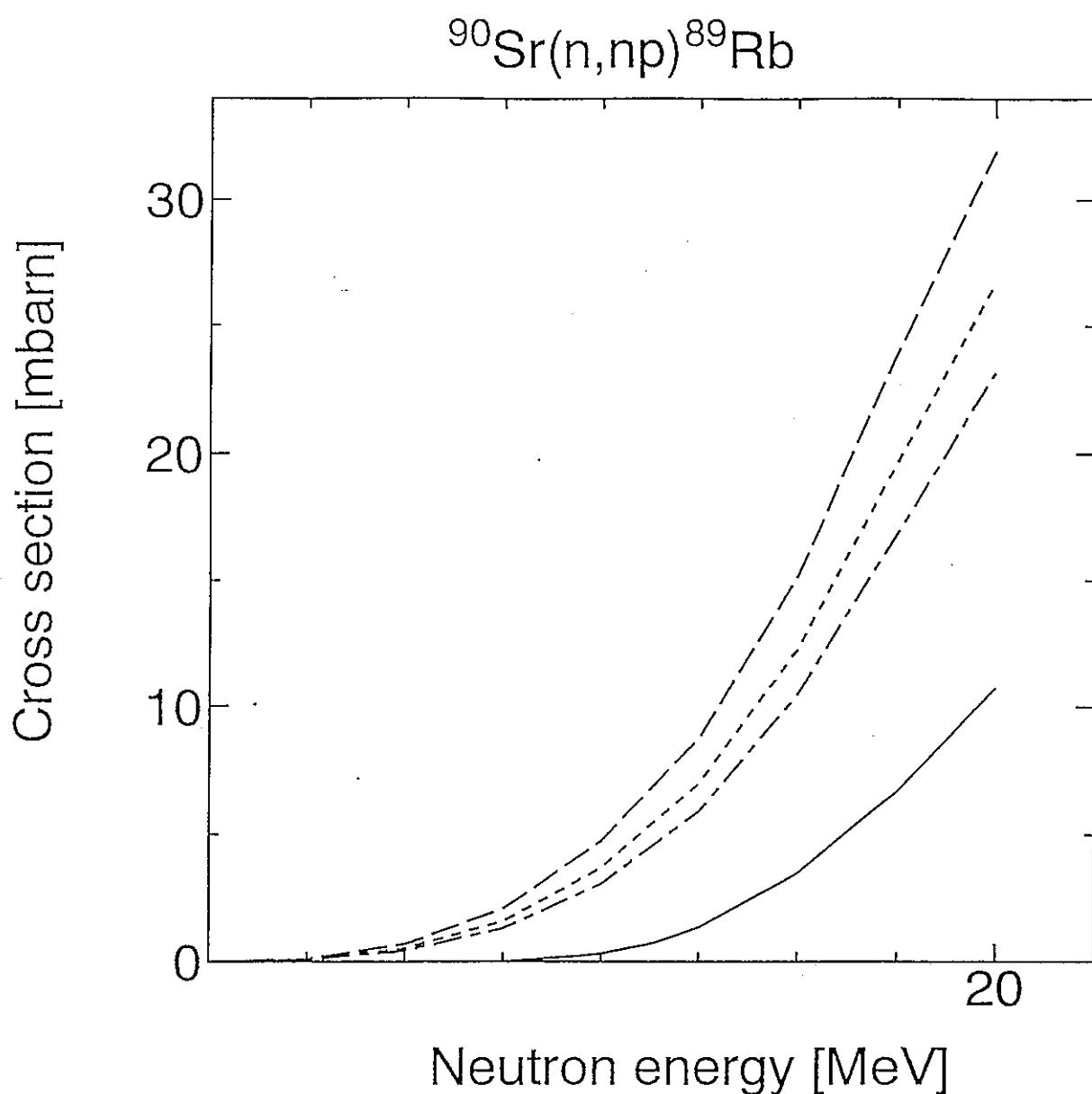


Fig. 1-13 ^{90}Sr ($n, n\text{p}$) 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

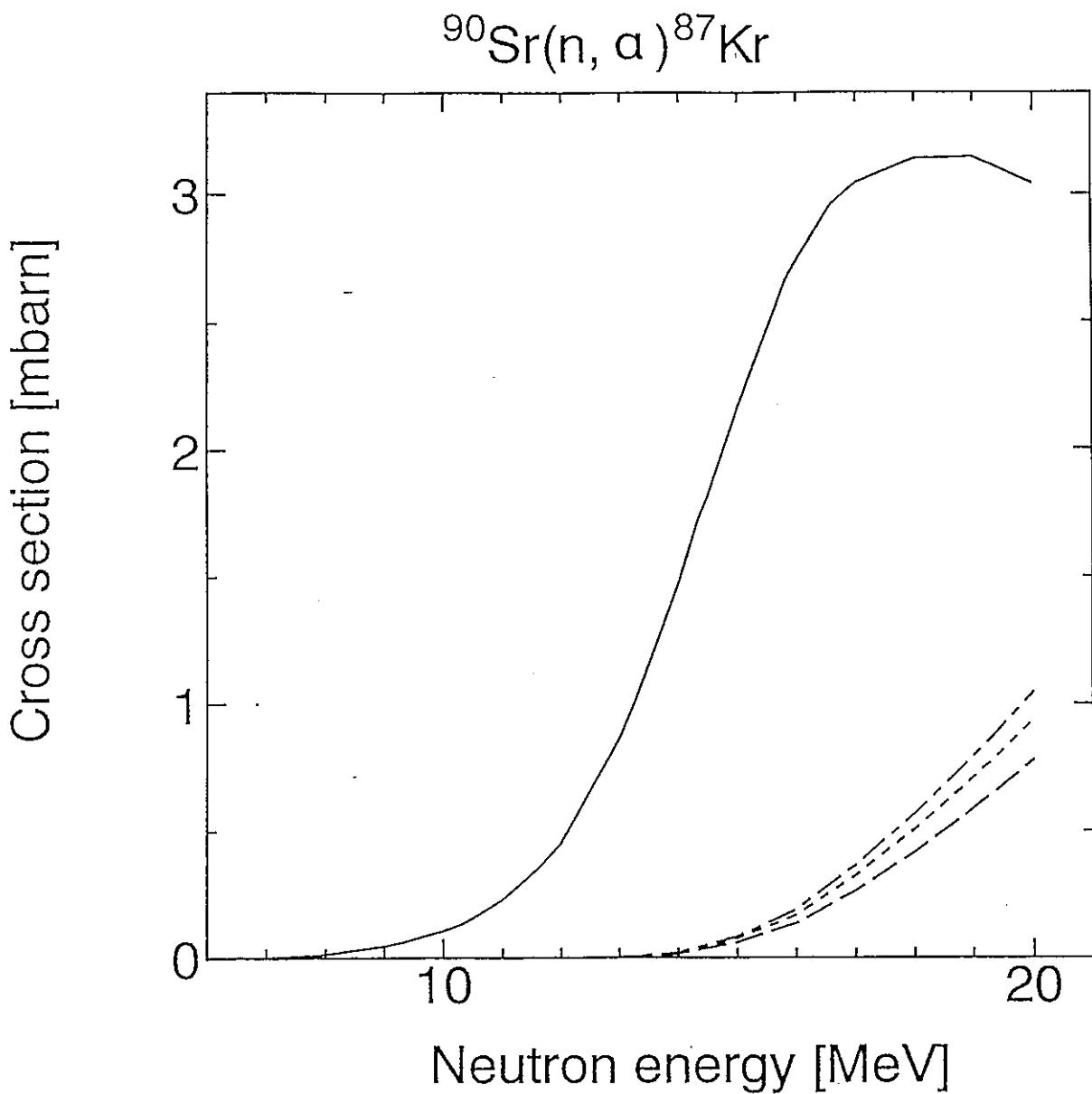


Fig. 1-14 $^{90}\text{Sr}(n, \alpha)$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

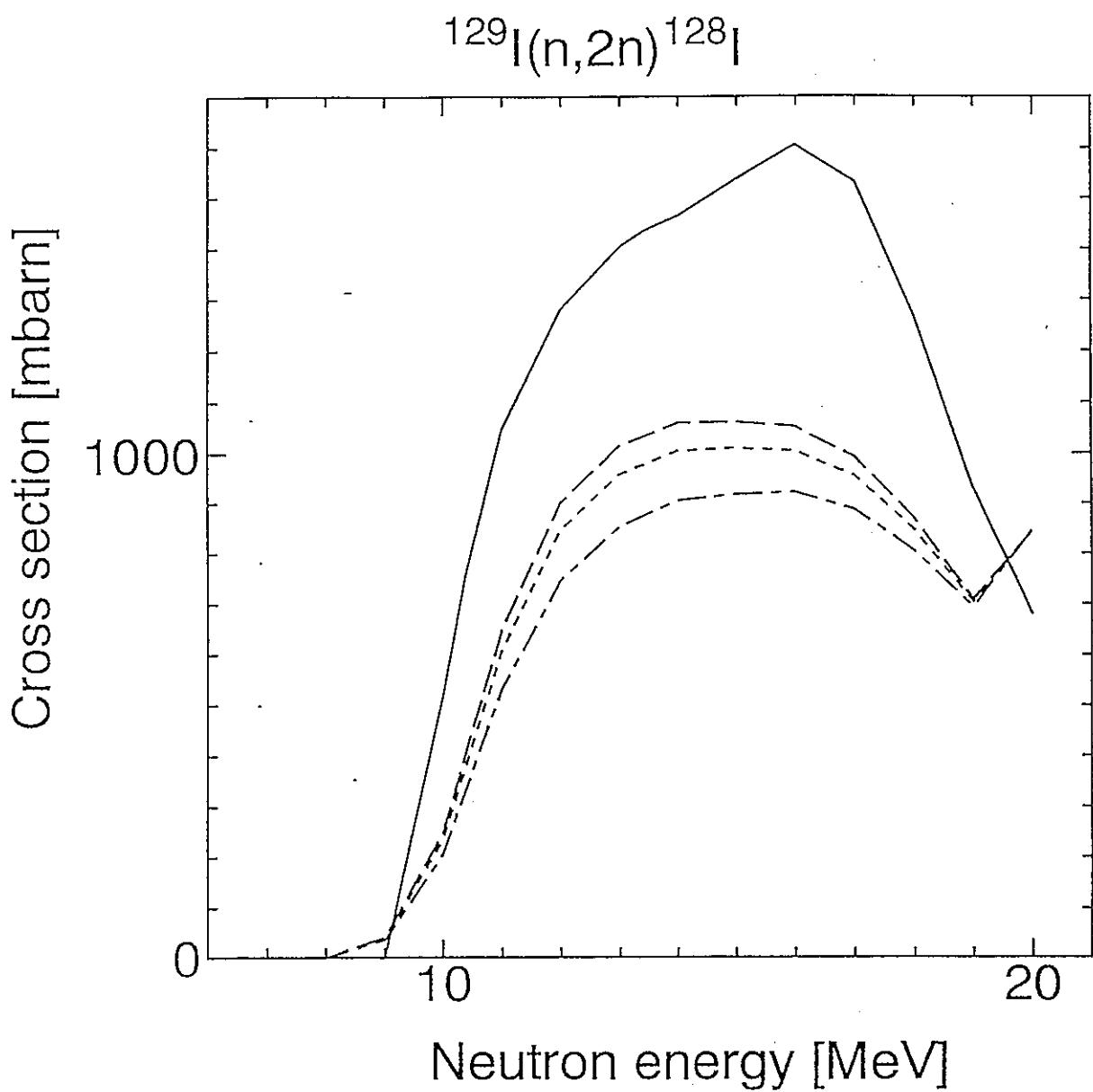


Fig. 1-15 $^{129}\text{I} (\text{n}, 2\text{n})$ 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

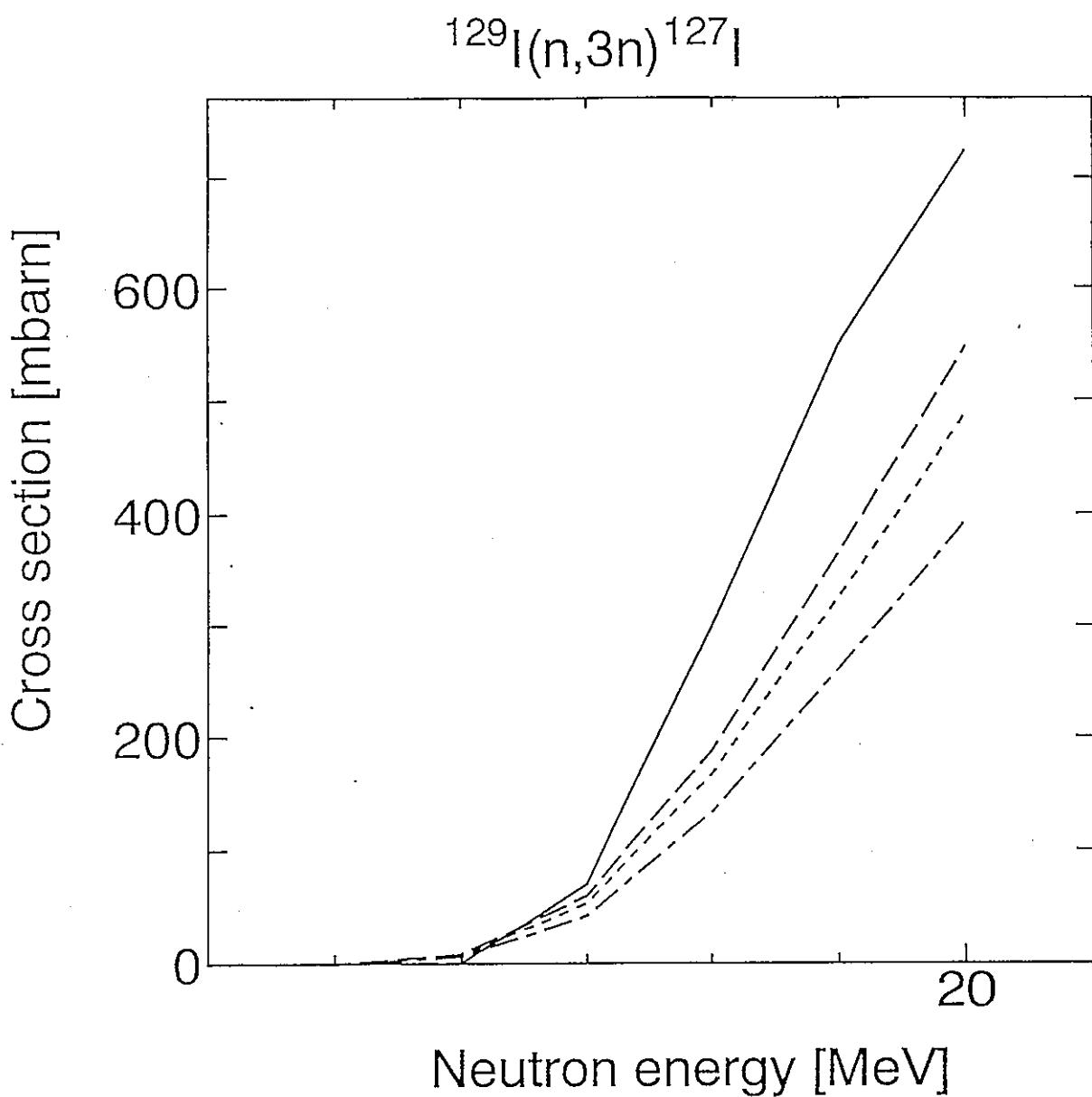


Fig. 1-16 ^{129}I ($\text{n}, 3\text{n}$) 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

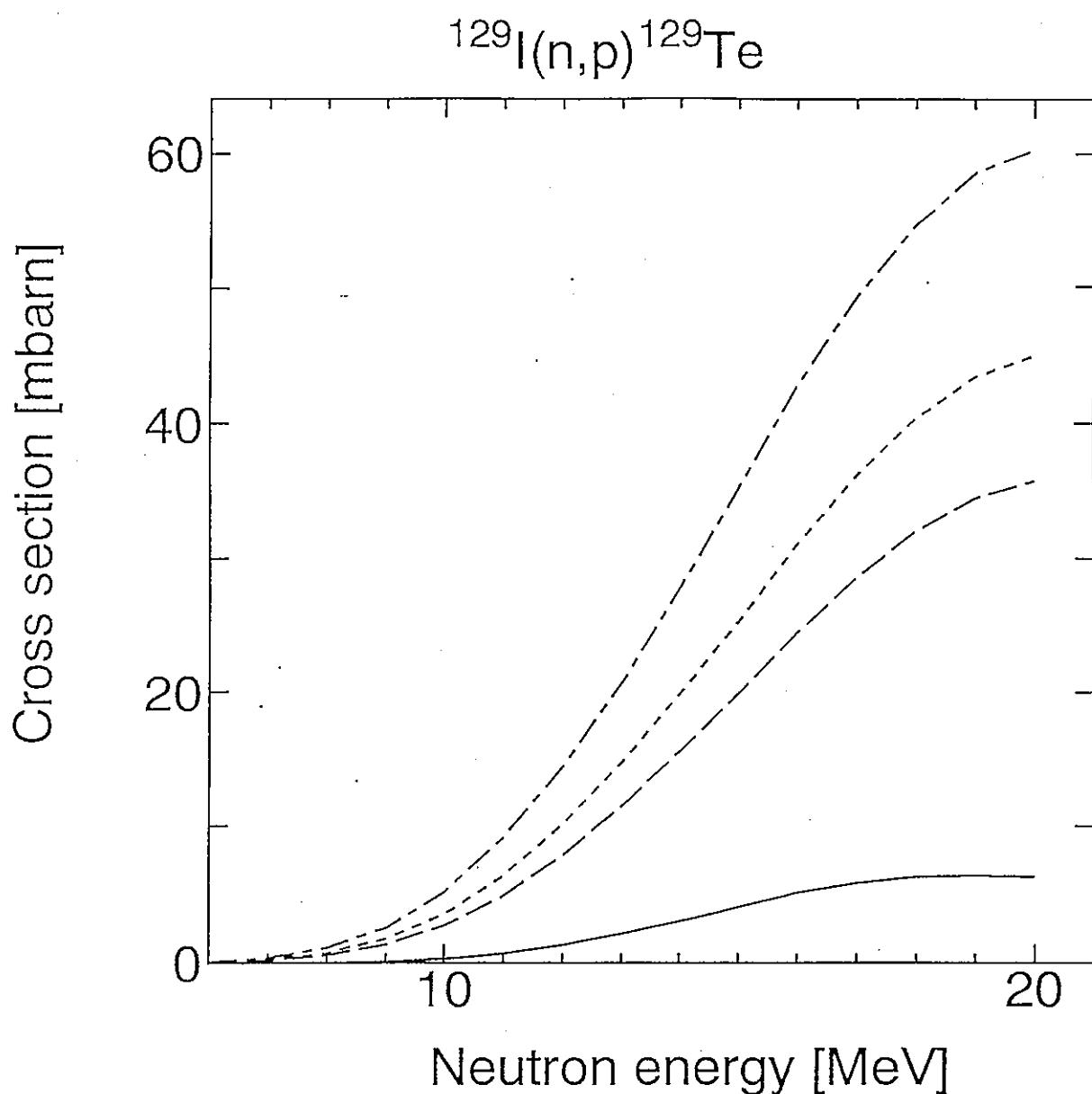


Fig. 1-17 $^{129}\text{I} (\text{n}, \text{p})$ 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

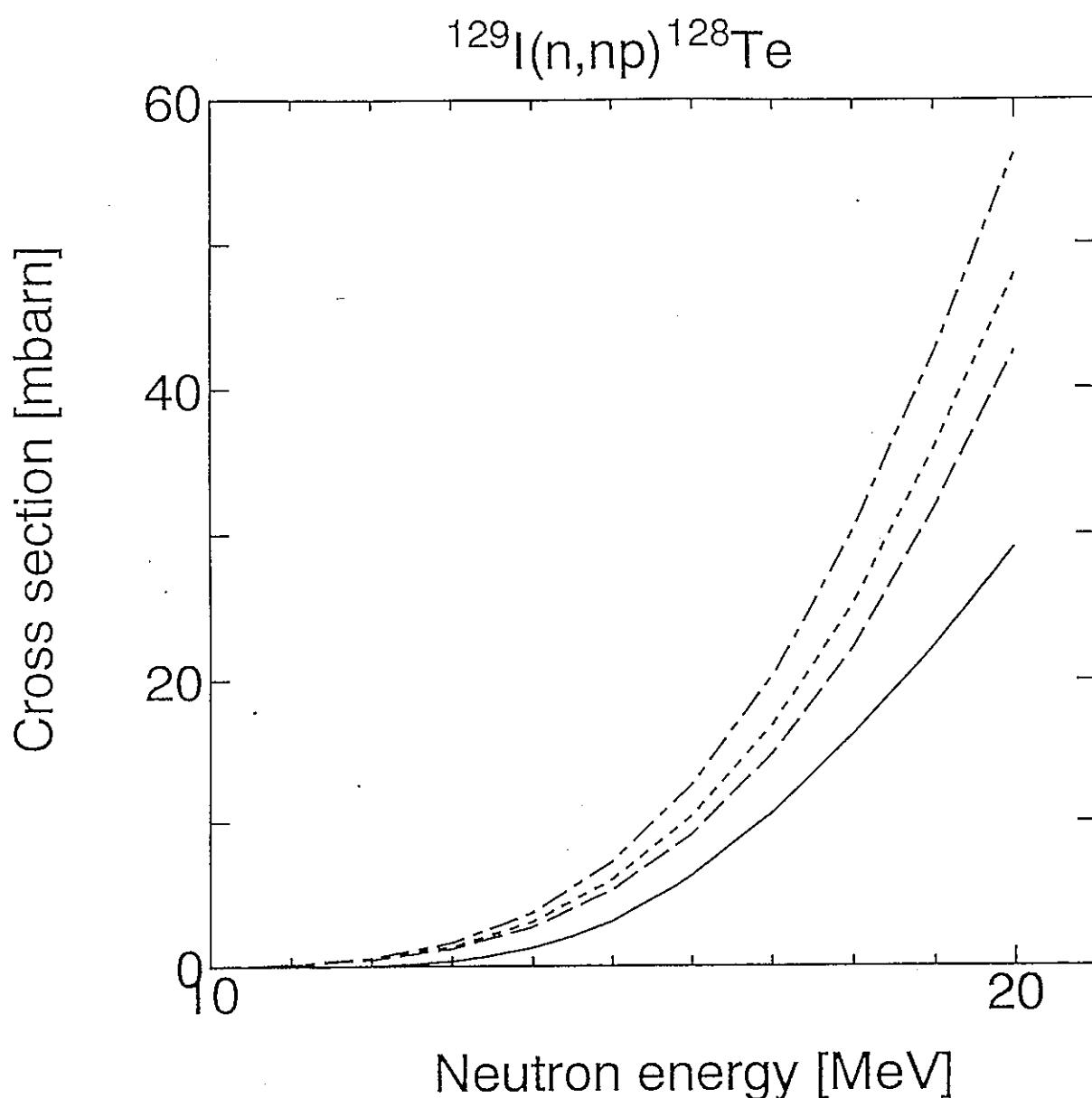


Fig. 1-18 $^{129}\text{I} (\text{n}, \text{np})$ 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

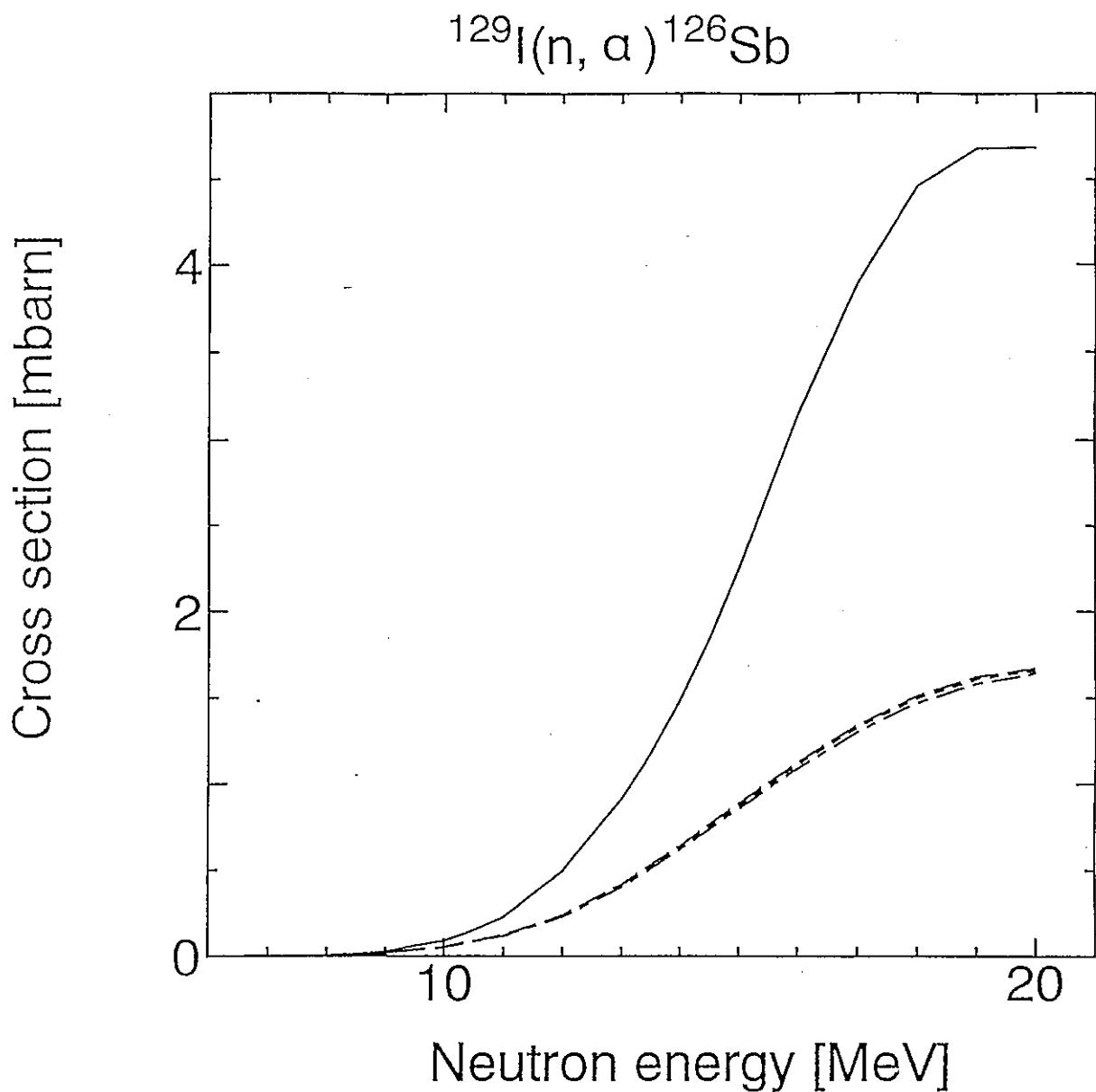


Fig. 1-19 $^{129}\text{I}(\text{n}, \alpha)$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P.計算値⁽³⁾との比較

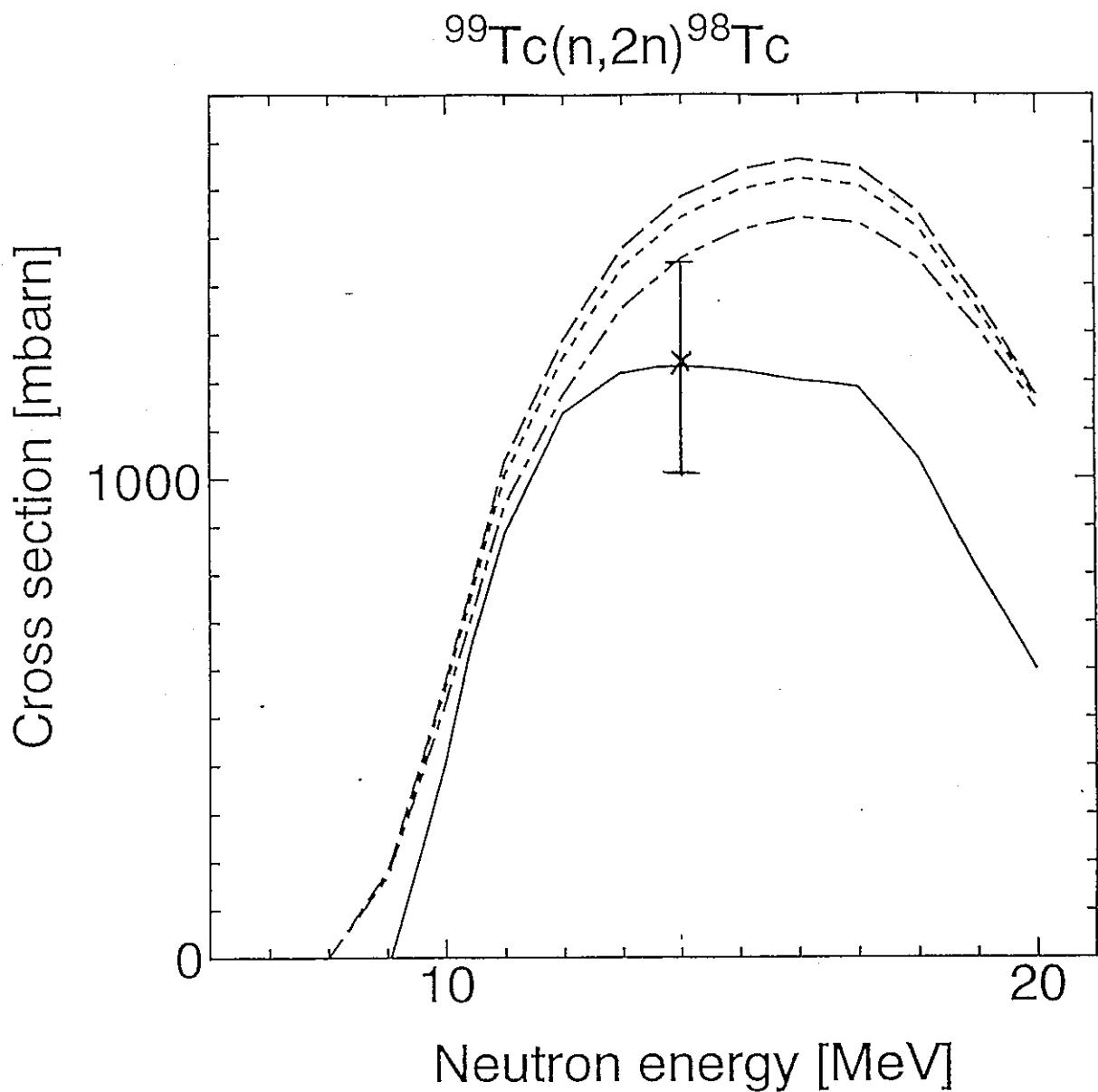


Fig. 1-20 $^{99}\text{Tc}(n, 2n)$ 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較
(14MeVでの実験値(1)とも比較)

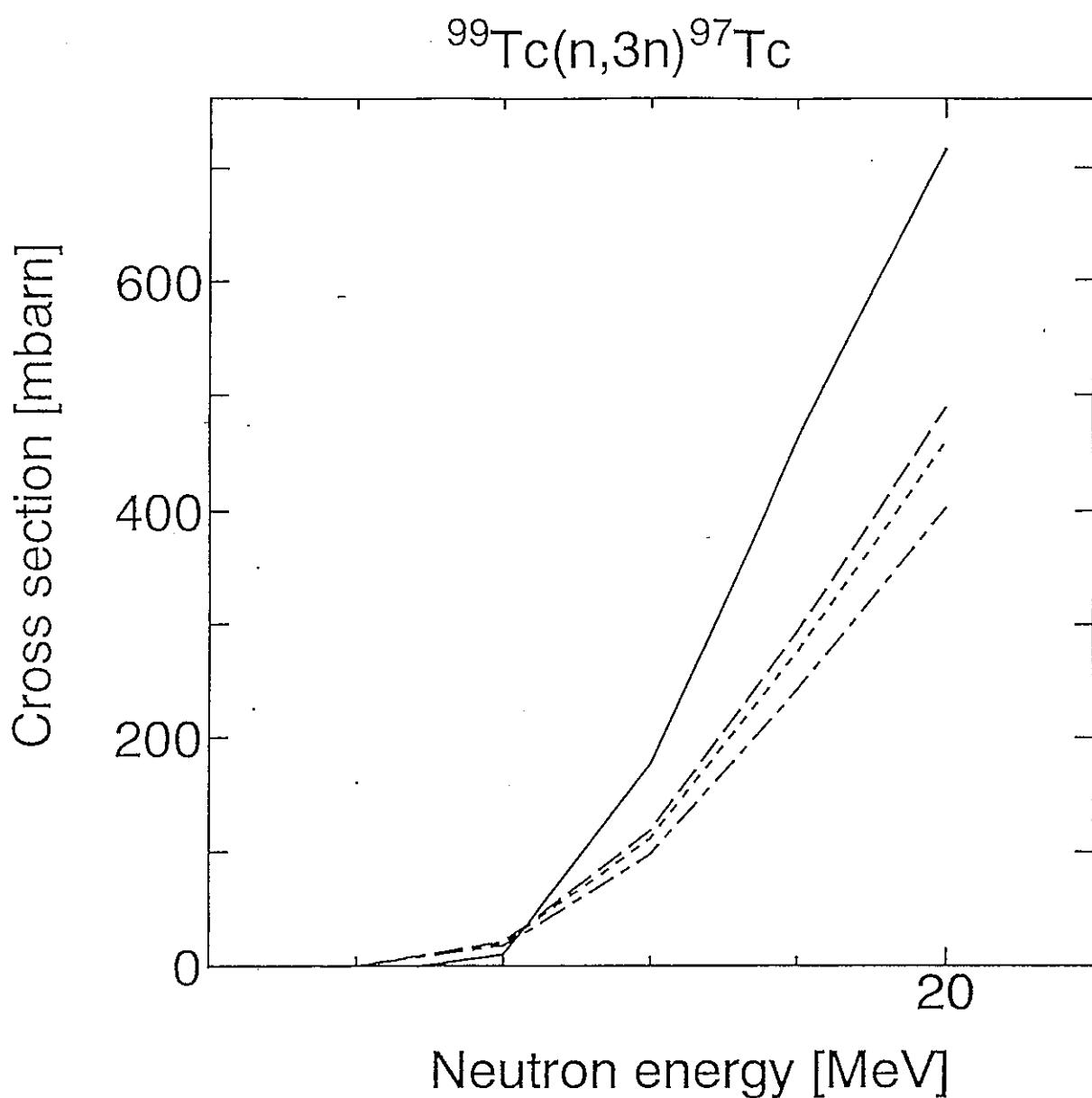


Fig. 1-21 $^{99}\text{Tc}(n, 3n)$ 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

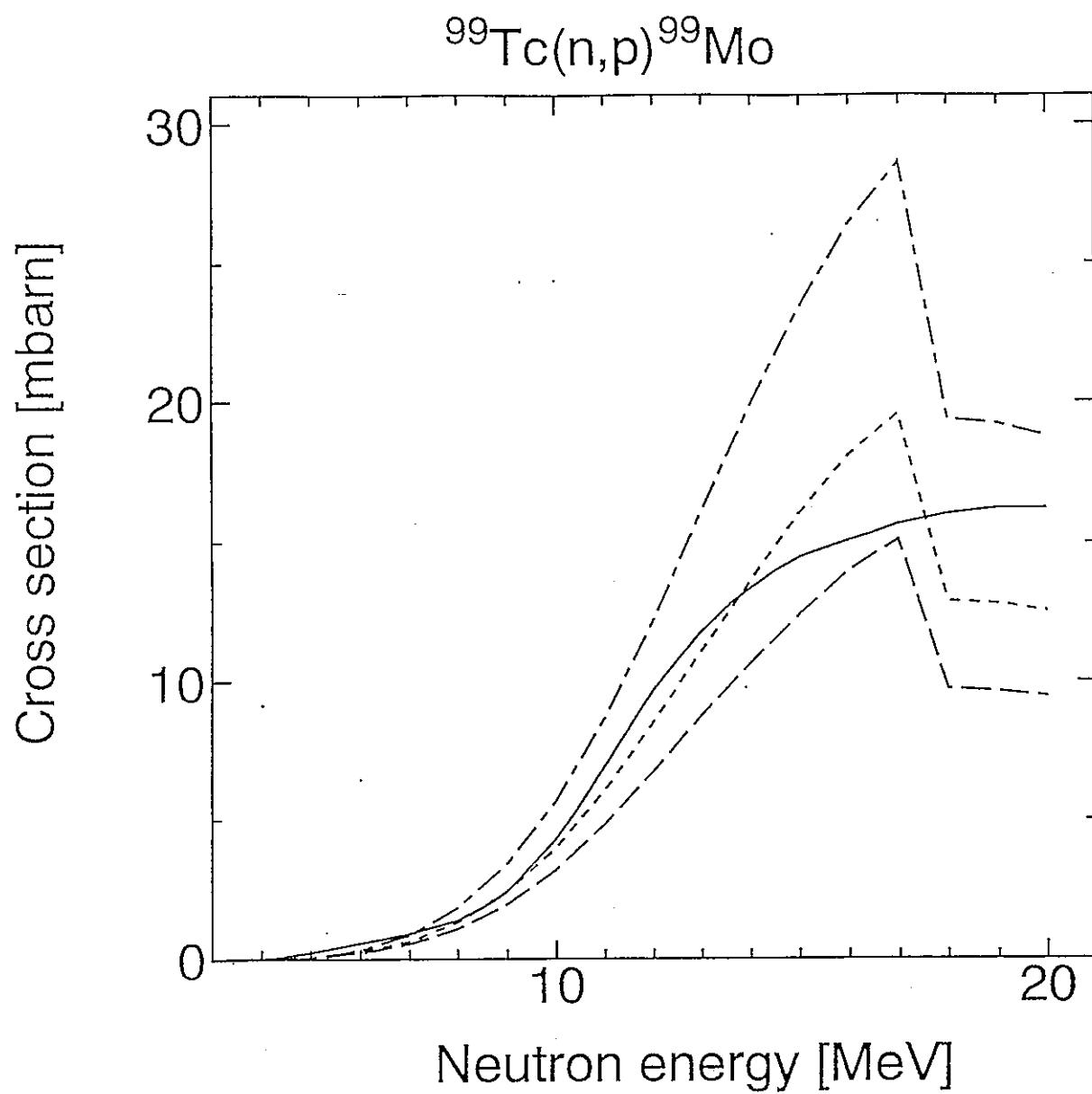


Fig. 1-22 $^{99}\text{Tc}(n,p)$ 反応断面積の計算値と JENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

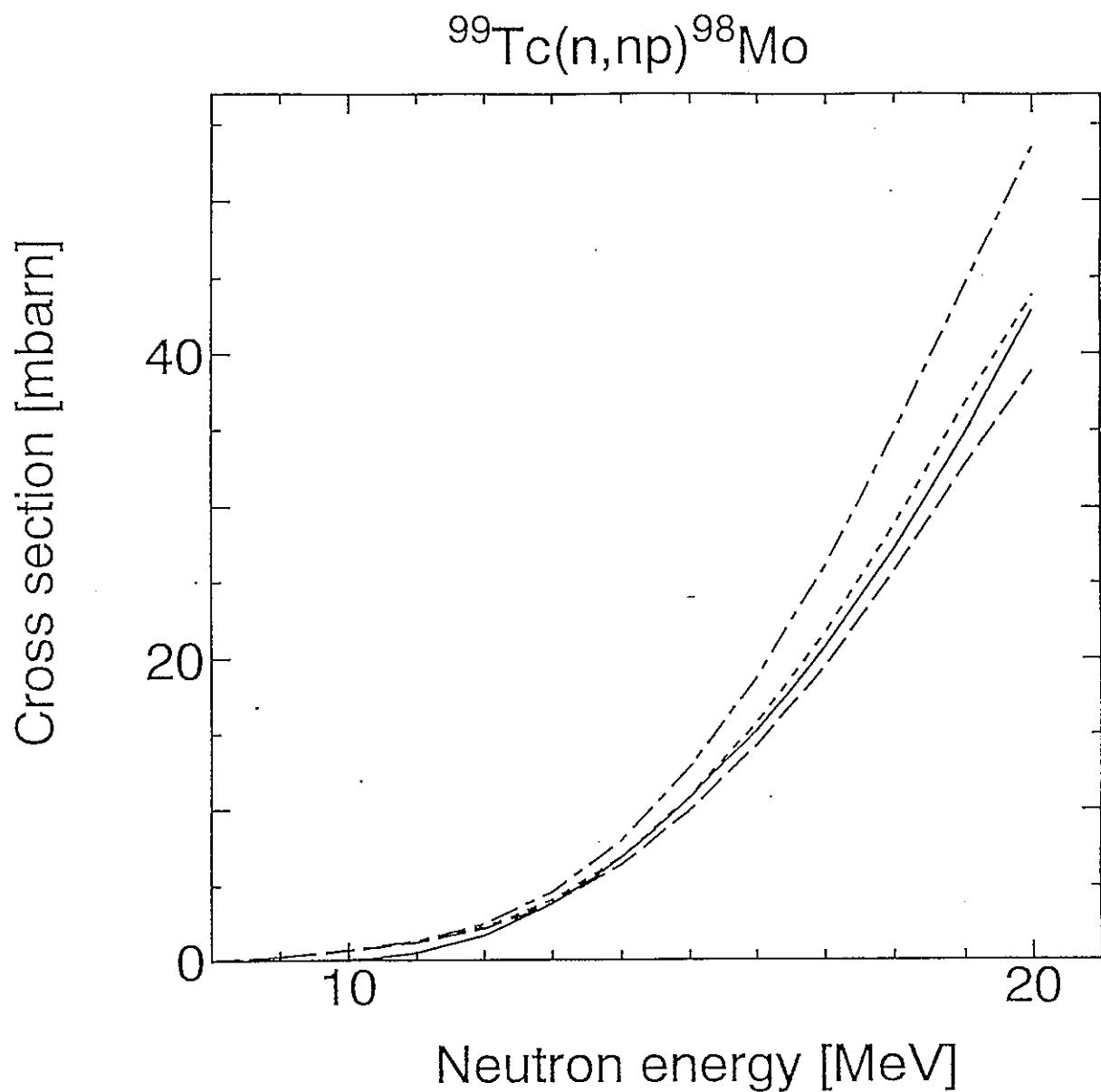


Fig. 1-23 ^{99}Tc ($n, n\text{p}$) 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

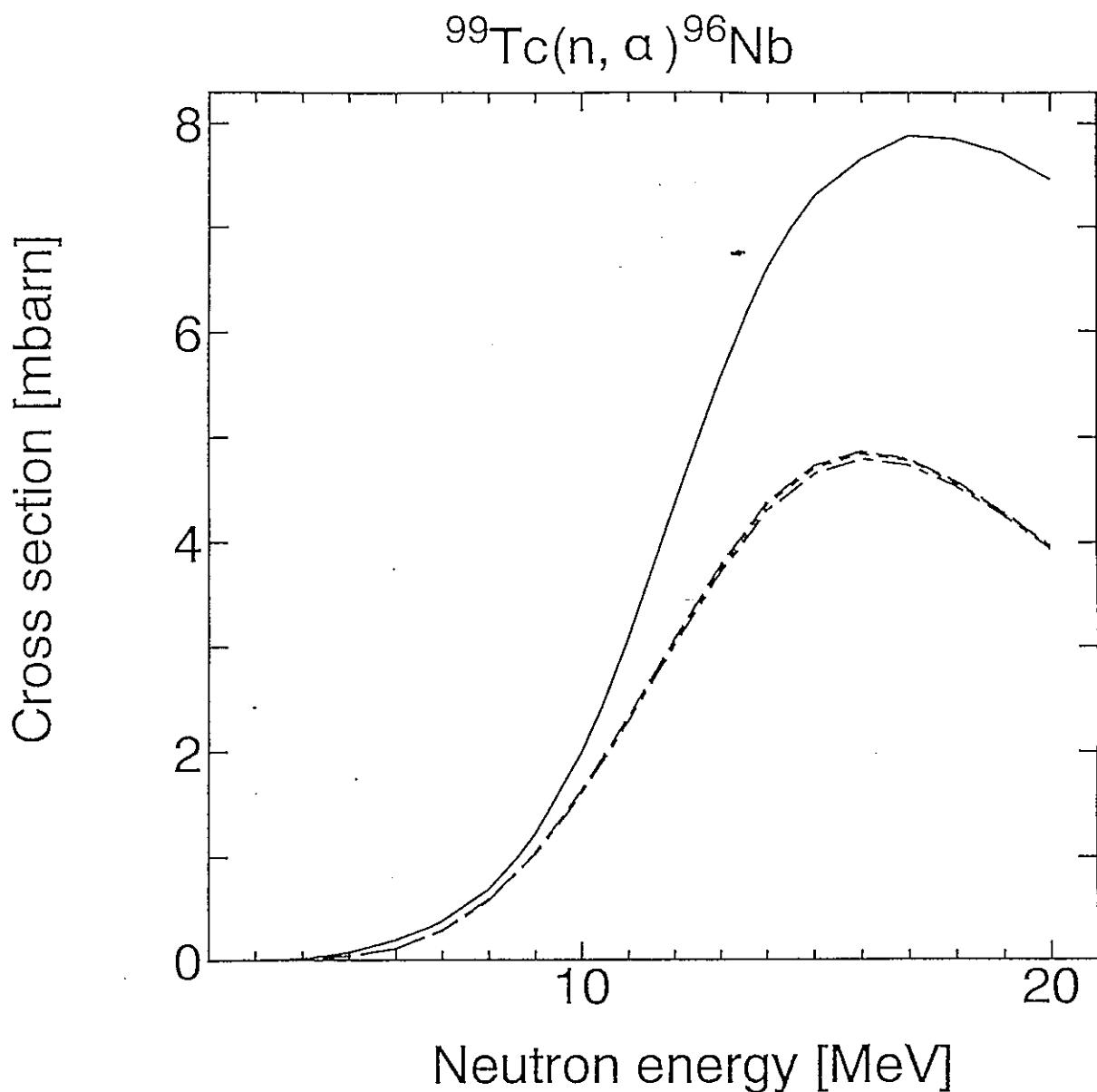


Fig. 1-24 $^{99}\text{Tc}(n, \alpha)$ 反応断面積の計算値とJENDL-3 F.P. 計算値⁽³⁾との比較

4-2. 光核反応

MCPHOTOコードによる計算値の精度を検証するために、実験値の存在する安定核種¹³³C sに対する(γ , n)反応の断面積を計算した。MCPHOTOはモンテカルロコードで、計算のヒストリー数は、10,000ヒストリーとした。入力データのうち必要とされるのは、コメントカードと入射エネルギーカードとターゲットカードのみである。実際の計算においては、入射 γ 線のエネルギーとターゲットの質量数、及びターゲットの原子番号だけを指定しただけで、その他のパラメータはすべてデフォルト値で計算した。計算結果をFig. 1-25に示すが、実験値⁽⁴⁾に比べやや過少評価気味であるが、巨大共鳴ピーク領域では10~20%程度でよく一致している。そこでこのコードにより、¹³⁷C s、⁸⁰S r、¹²⁹I、⁸⁸T cに対する(γ , n)、(γ , 2n)、(γ , 3n)、(γ , p)、(γ , 2p)、(γ , np)、(γ , 2np)の7核反応の断面積を光子エネルギーの関数として計算した結果を、¹³⁷C sについてはFig. 1-26~1-32に、⁸⁰S rについてFig. 1-33~1-39に、¹²⁹IについてFig. 1-40~1-46に、⁸⁸T cについてFig. 1-47~1-53に示す。これらの反応のうちで絶対値から見て最も大きく重要なのは(γ , n)反応である。この反応の断面積はいずれも巨大共鳴ピークを10~20MeVの領域に持ち、そのピークの値は、⁸⁰S rで70mb、⁸⁸T cで150mb、¹²⁹Iと¹³⁷C sで250mbと原子番号とともに大きくなっている。光核反応については他に全く比較する計算値もないでこれ以上の検討はできない。

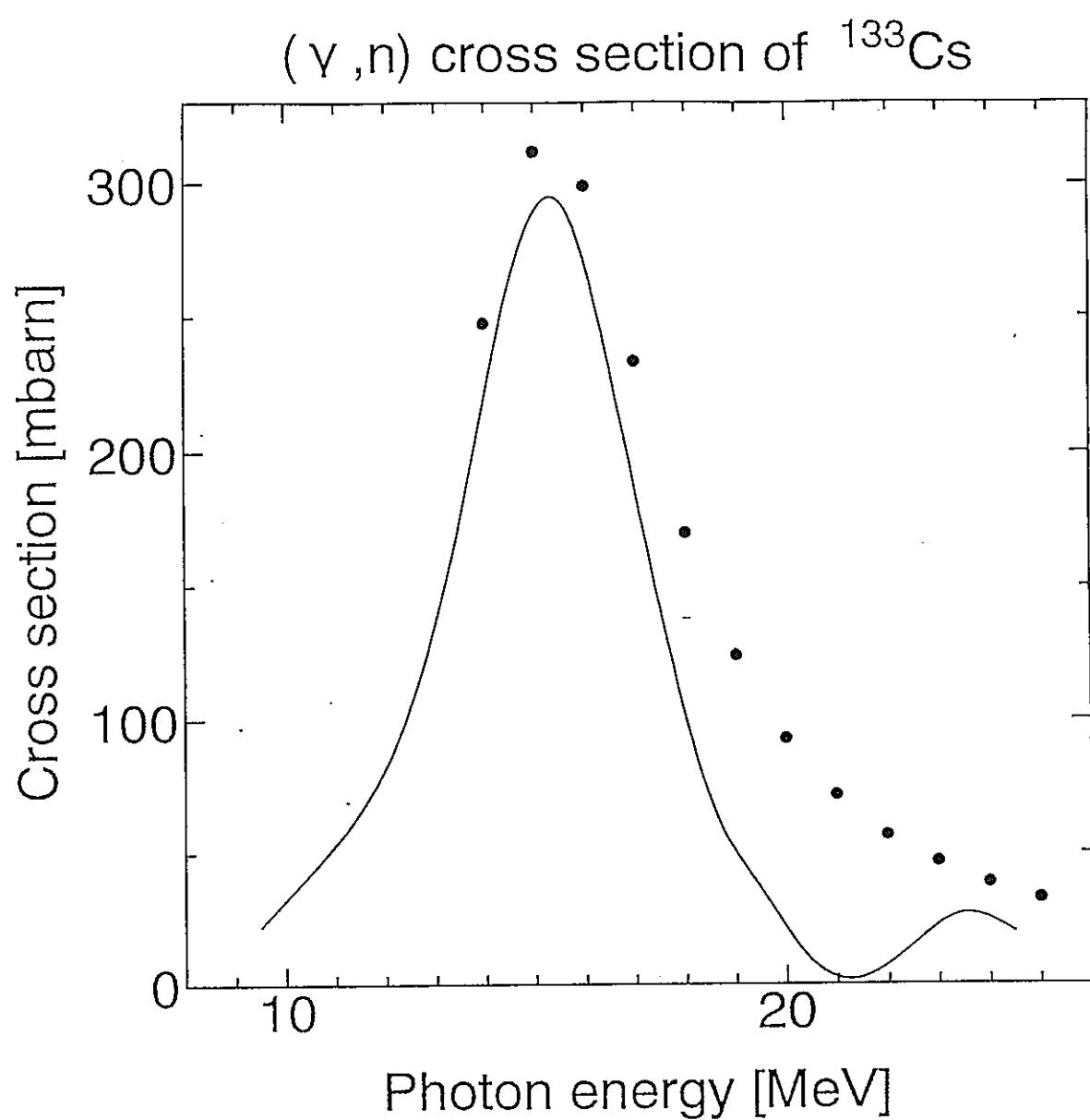
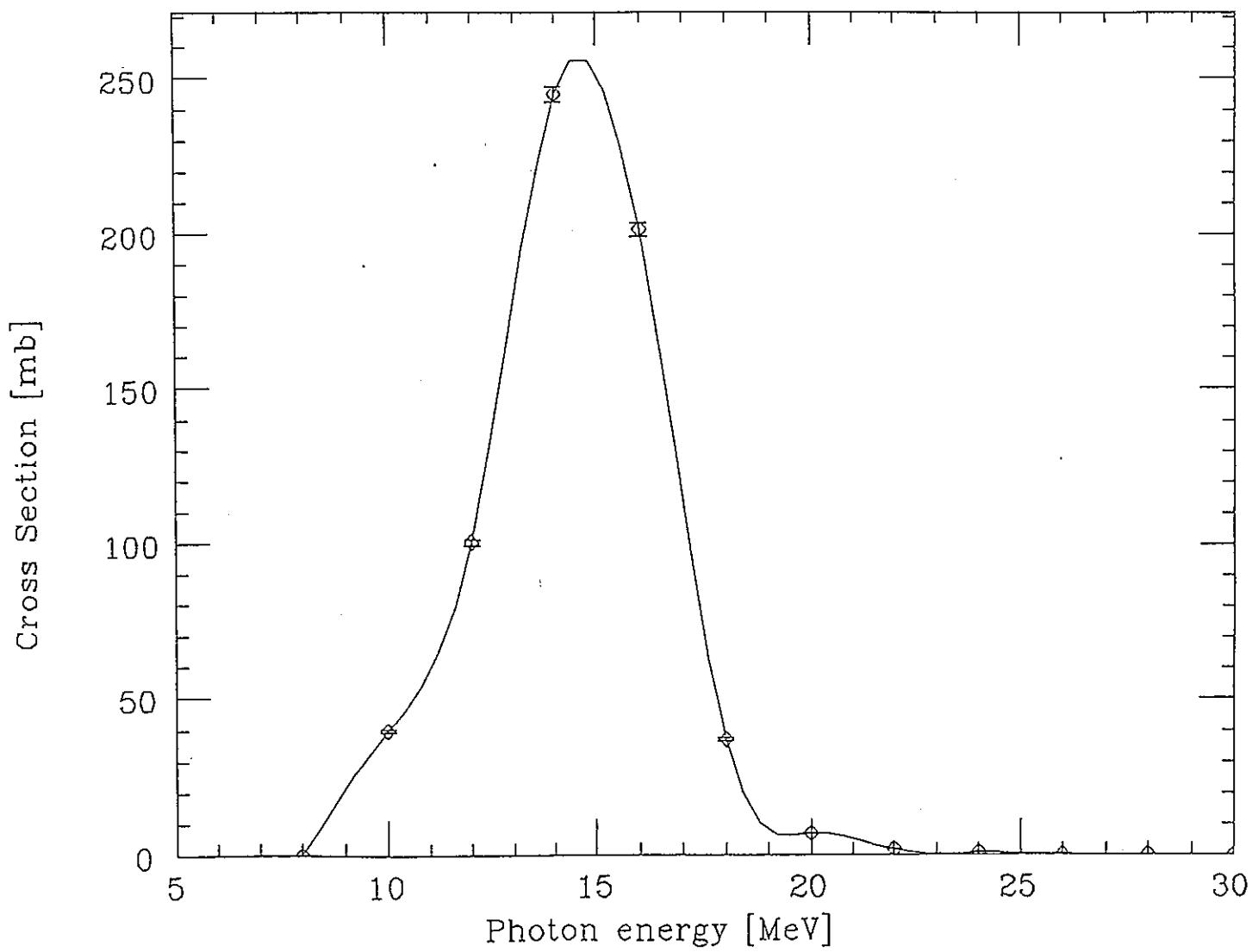


Fig. 1-25 ^{133}Cs (γ , n) 反応断面積の計算値と実験値⁽⁴⁾との比較

(γ, n) Cross Section of ^{137}Cs Fig. 1-26 $^{137}\text{Cs} (\gamma, n)$ 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2n)$ Cross Section of ^{137}Cs

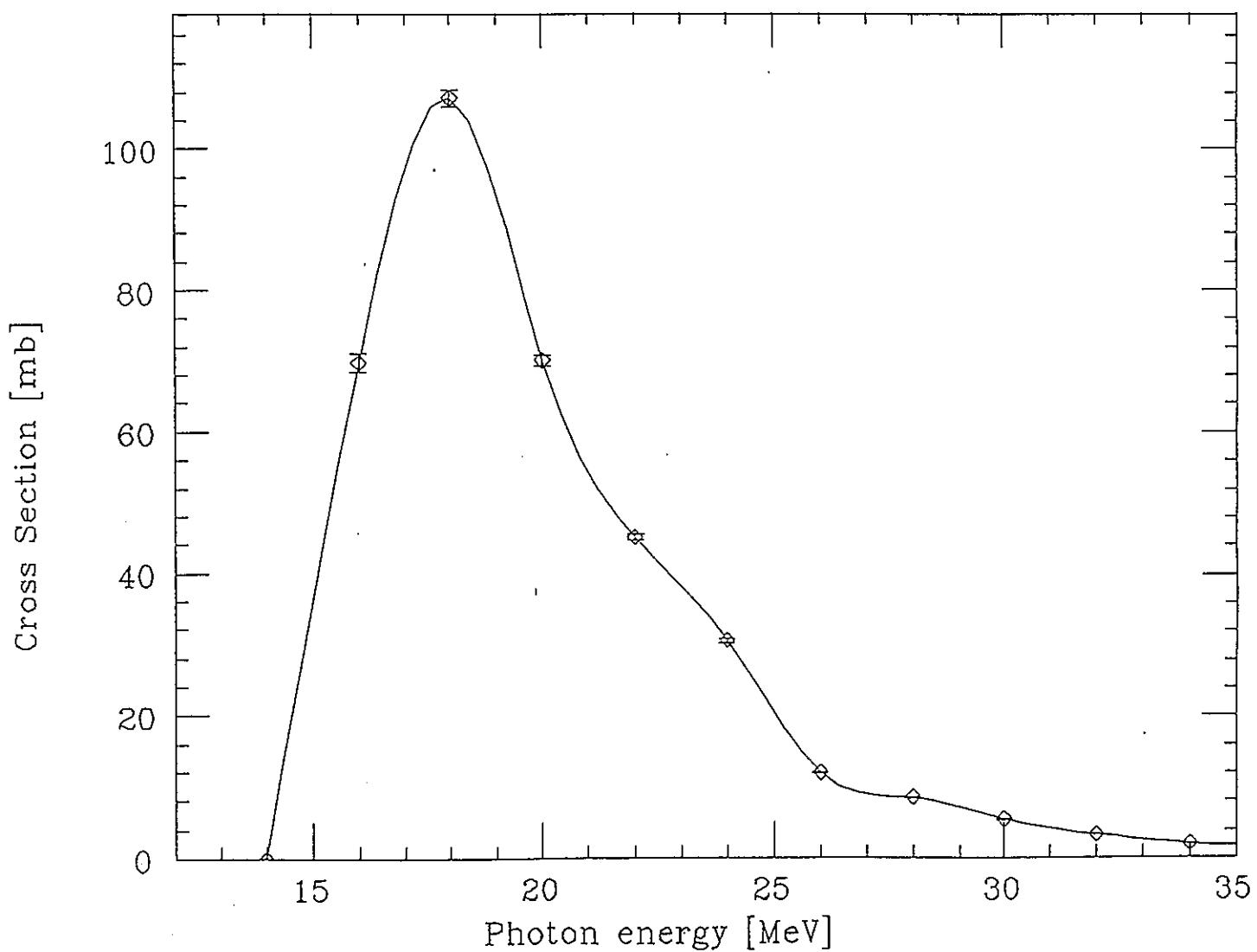
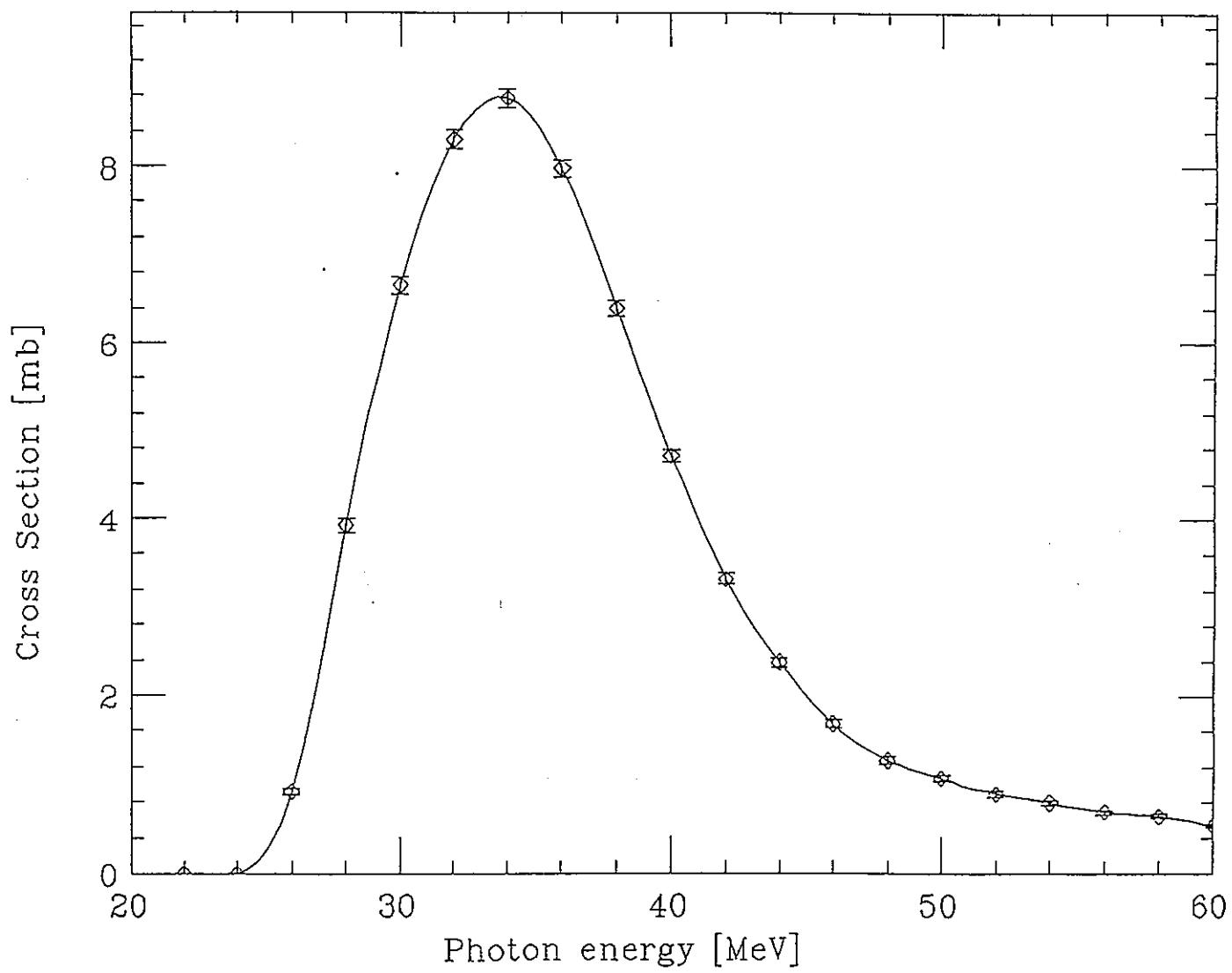
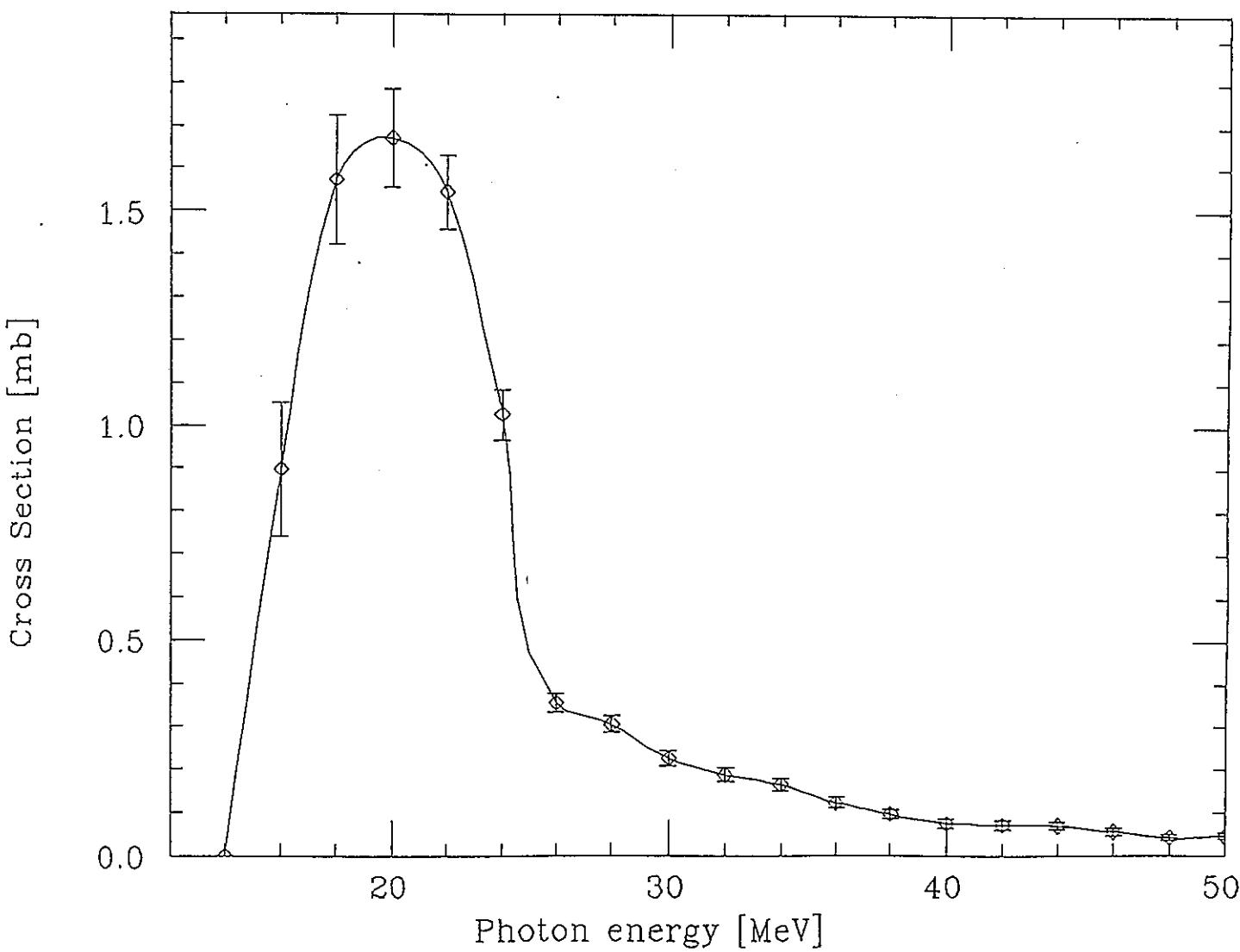


Fig. 1-27 $^{137}\text{Cs} (\gamma, 2n)$ 反応断面積の計算値

$(\gamma, 3n)$ Cross Section of ^{137}Cs Fig. 1-28 ^{137}Cs (γ , 3 n) 反応断面積の計算値

(γ, p) Cross Section of ^{137}Cs Fig. 1-29 ^{137}Cs (γ , p) 反応断面積の計算値

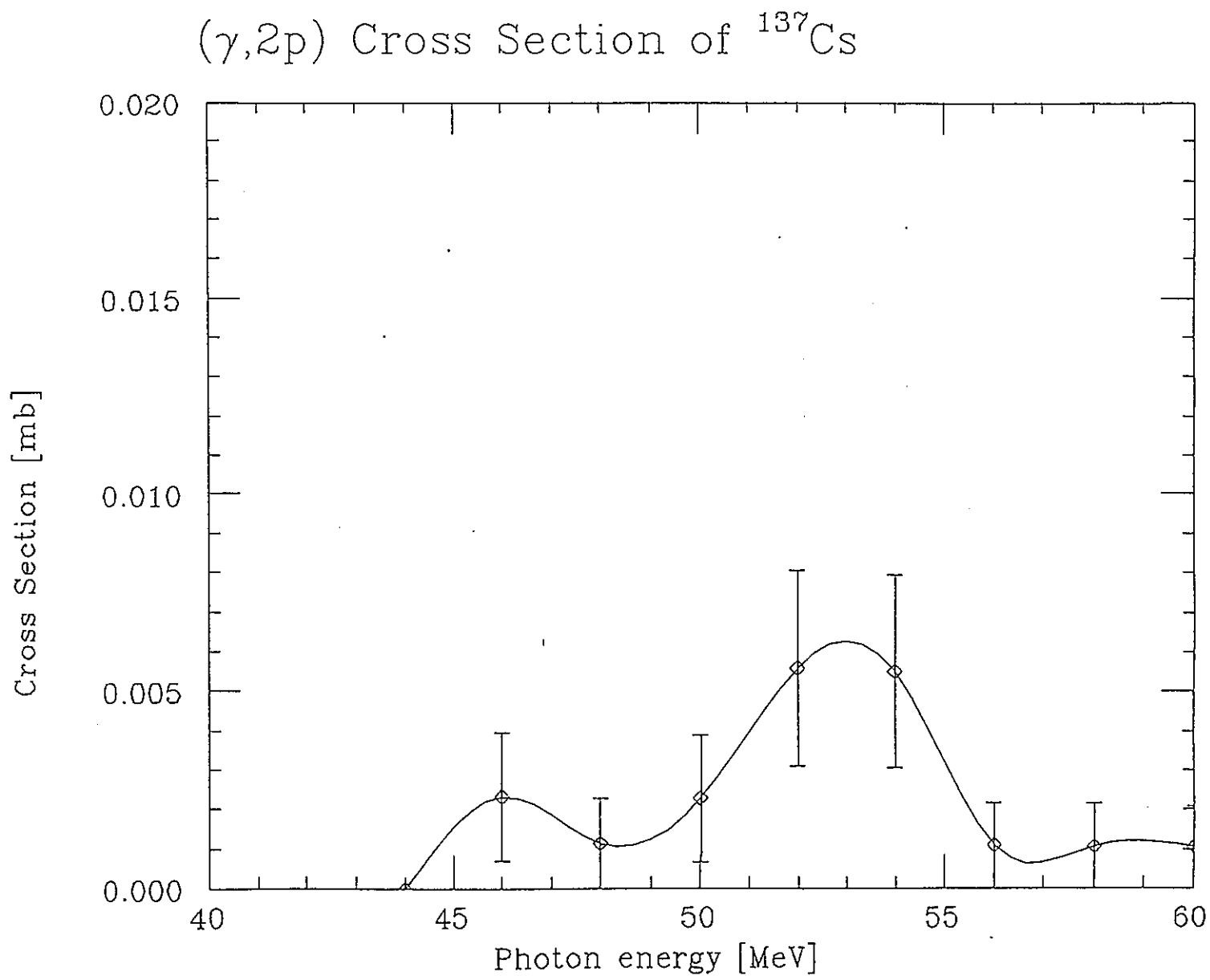
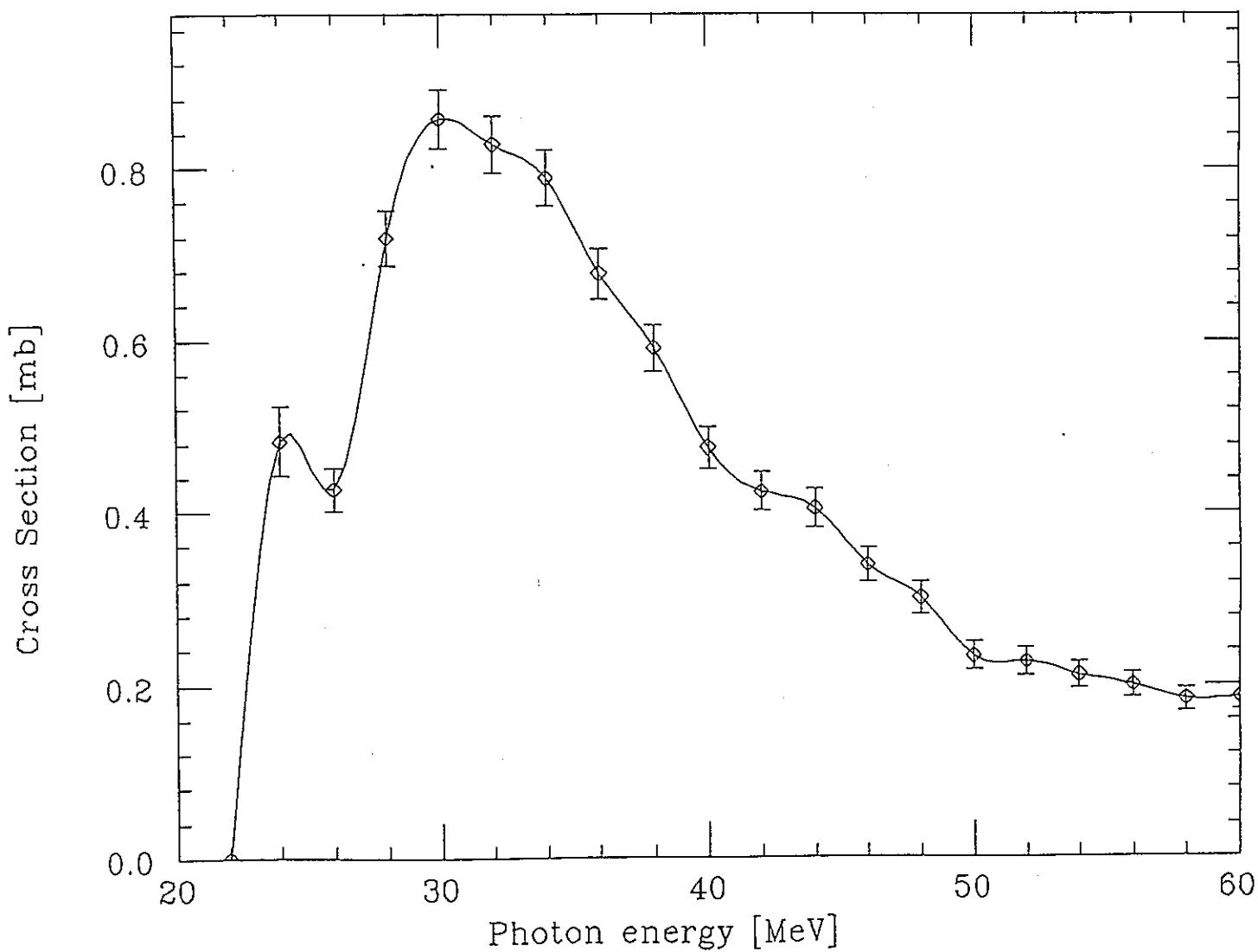
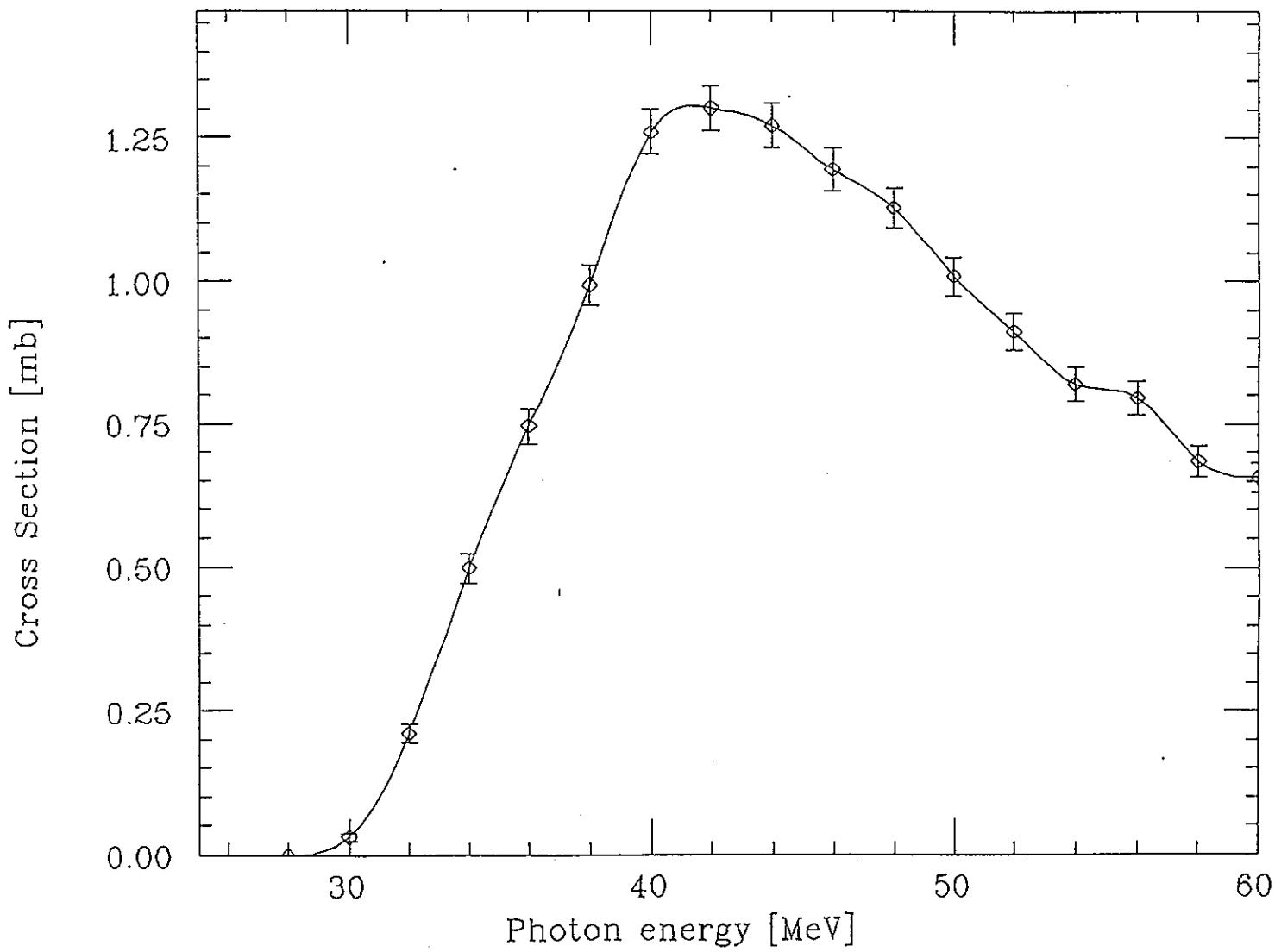


Fig. 1-30 ^{137}Cs (γ, 2 p) 反応断面積の計算値

(γ, np) Cross Section of ^{137}Cs Fig. 1-31 ^{137}Cs (γ , n p) 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2np)$ Cross Section of ^{137}Cs Fig. 1-32 ^{137}Cs (γ , 2 np) 反応断面積の計算値

(γ ,n) Cross Section of ^{90}Sr

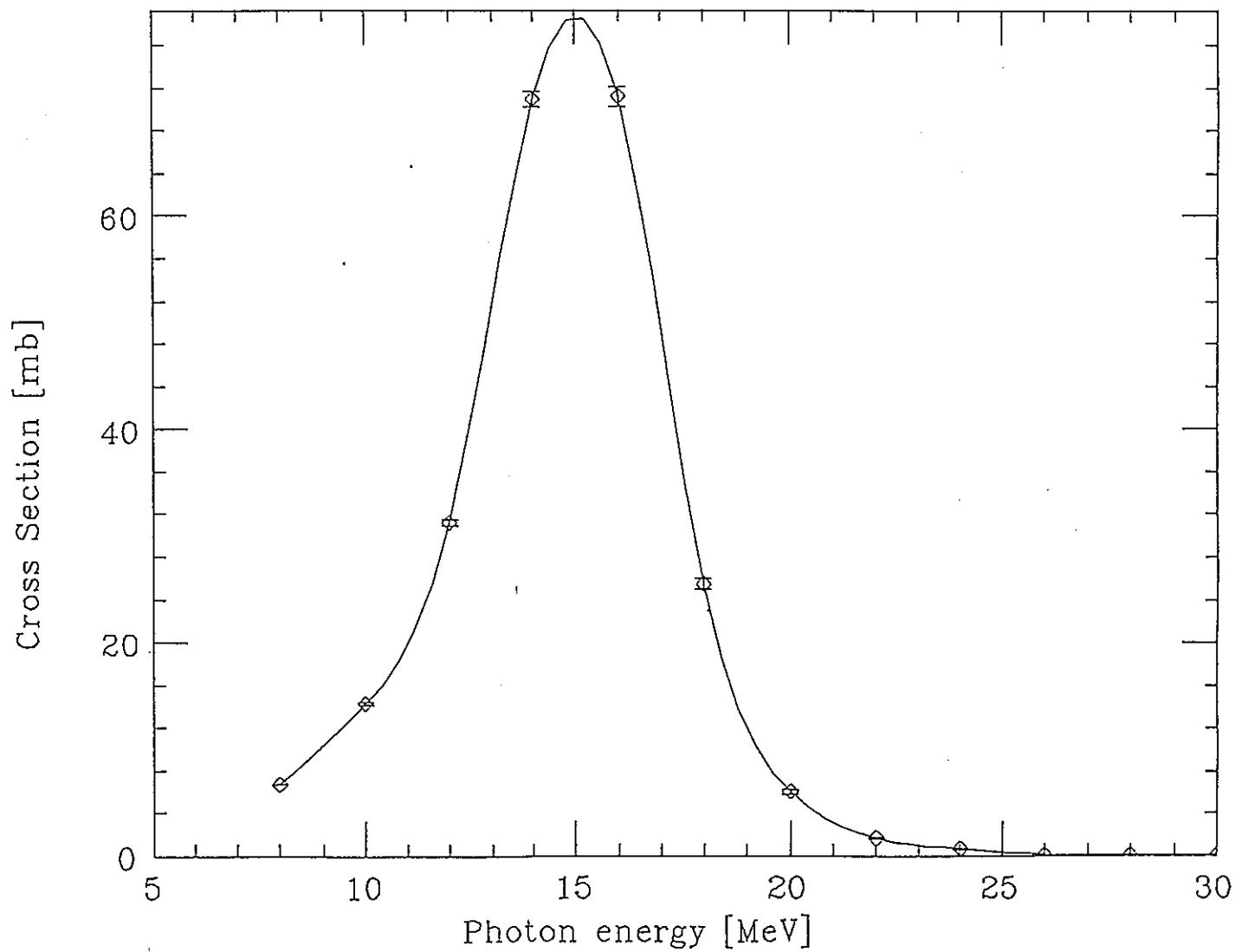


Fig. 1-33 ^{90}Sr (γ , n) 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2n)$ Cross Section of ^{90}Sr

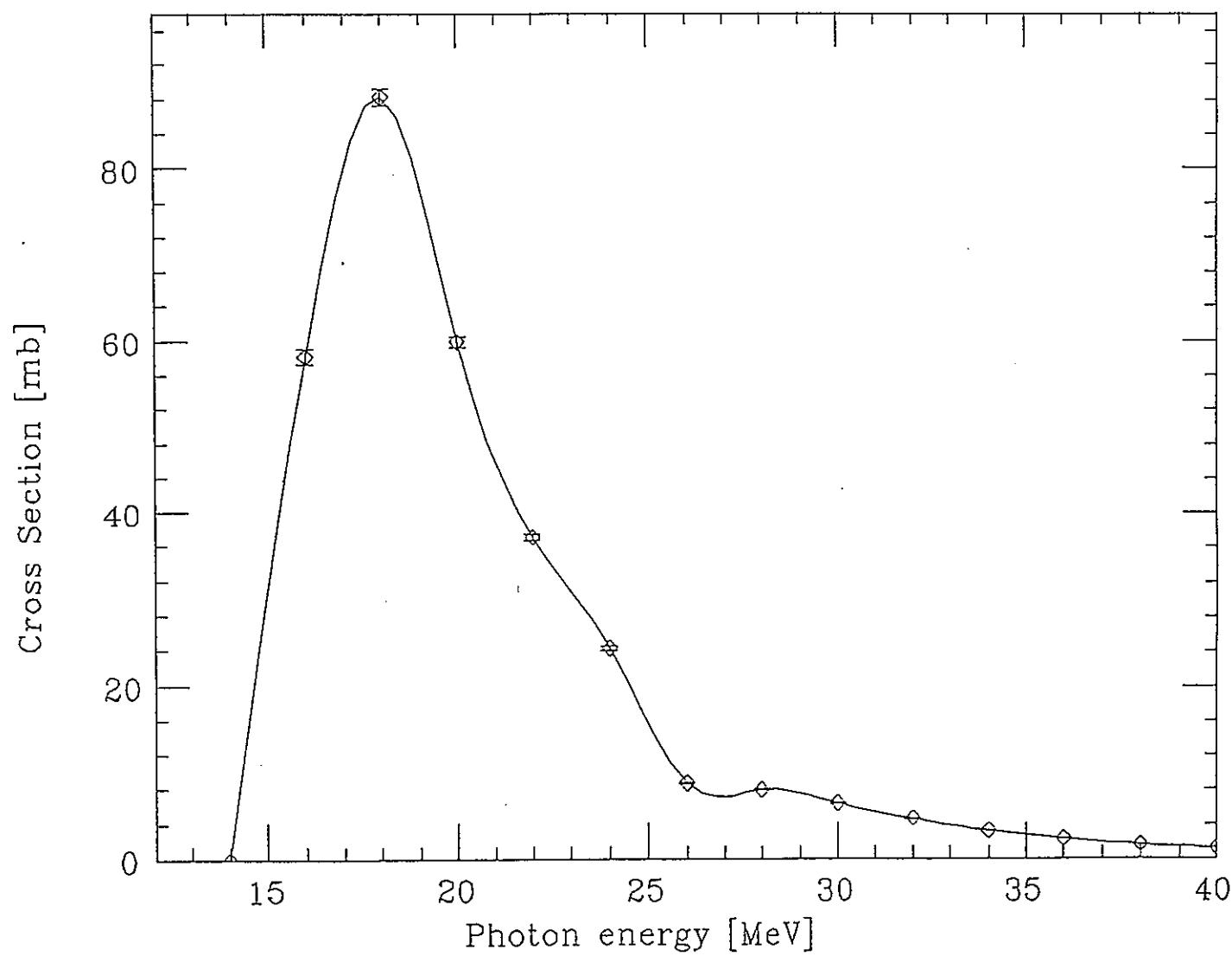
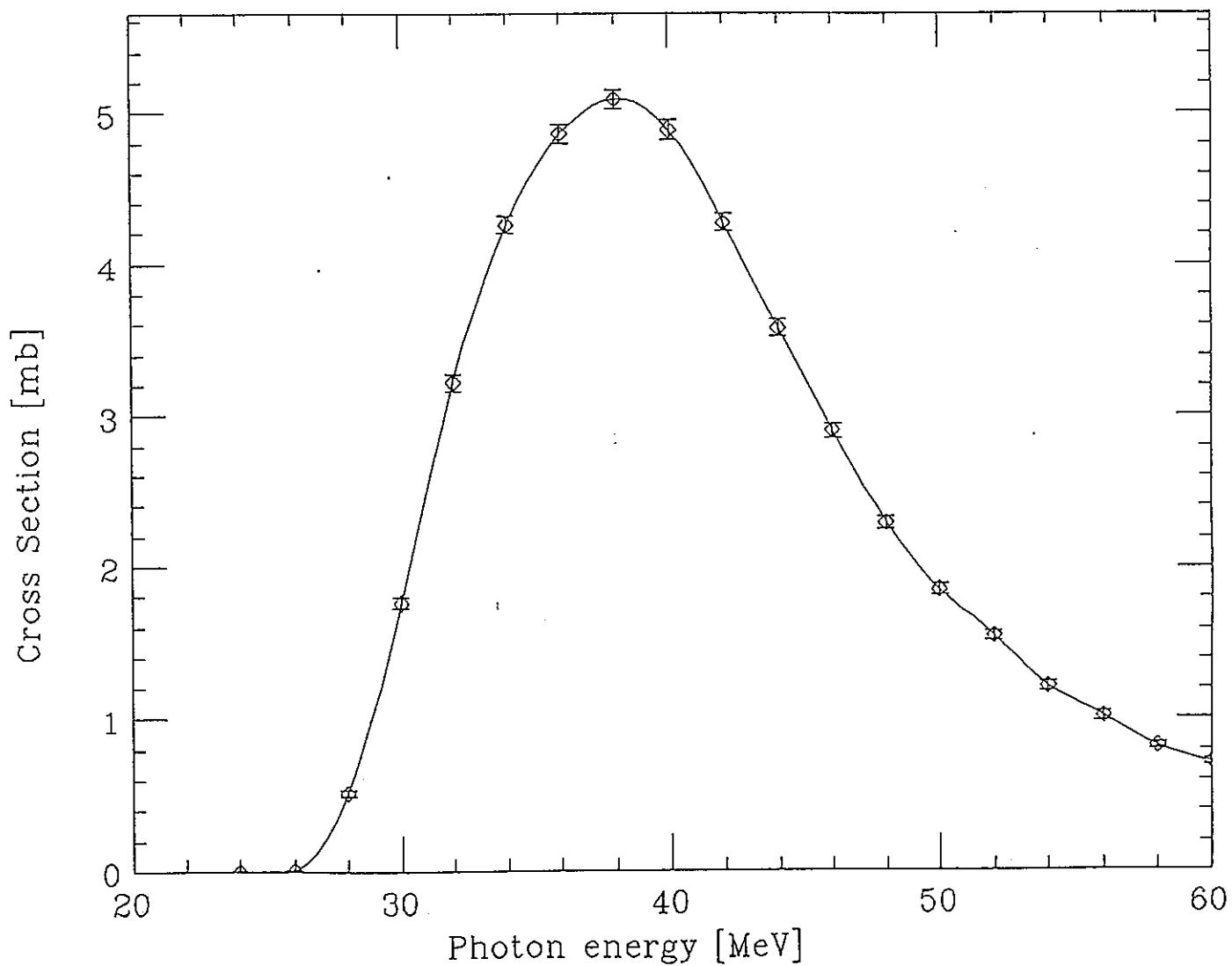
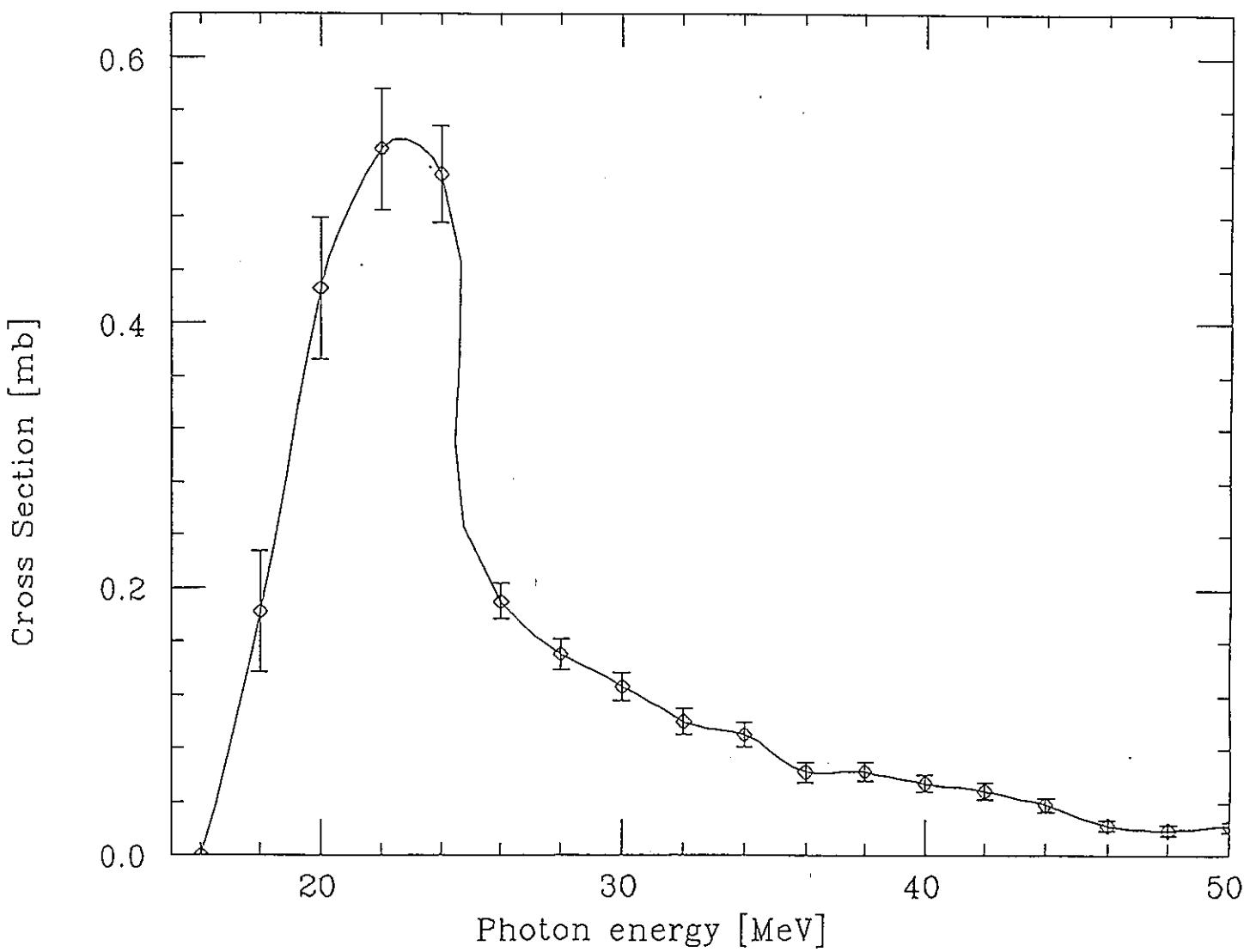
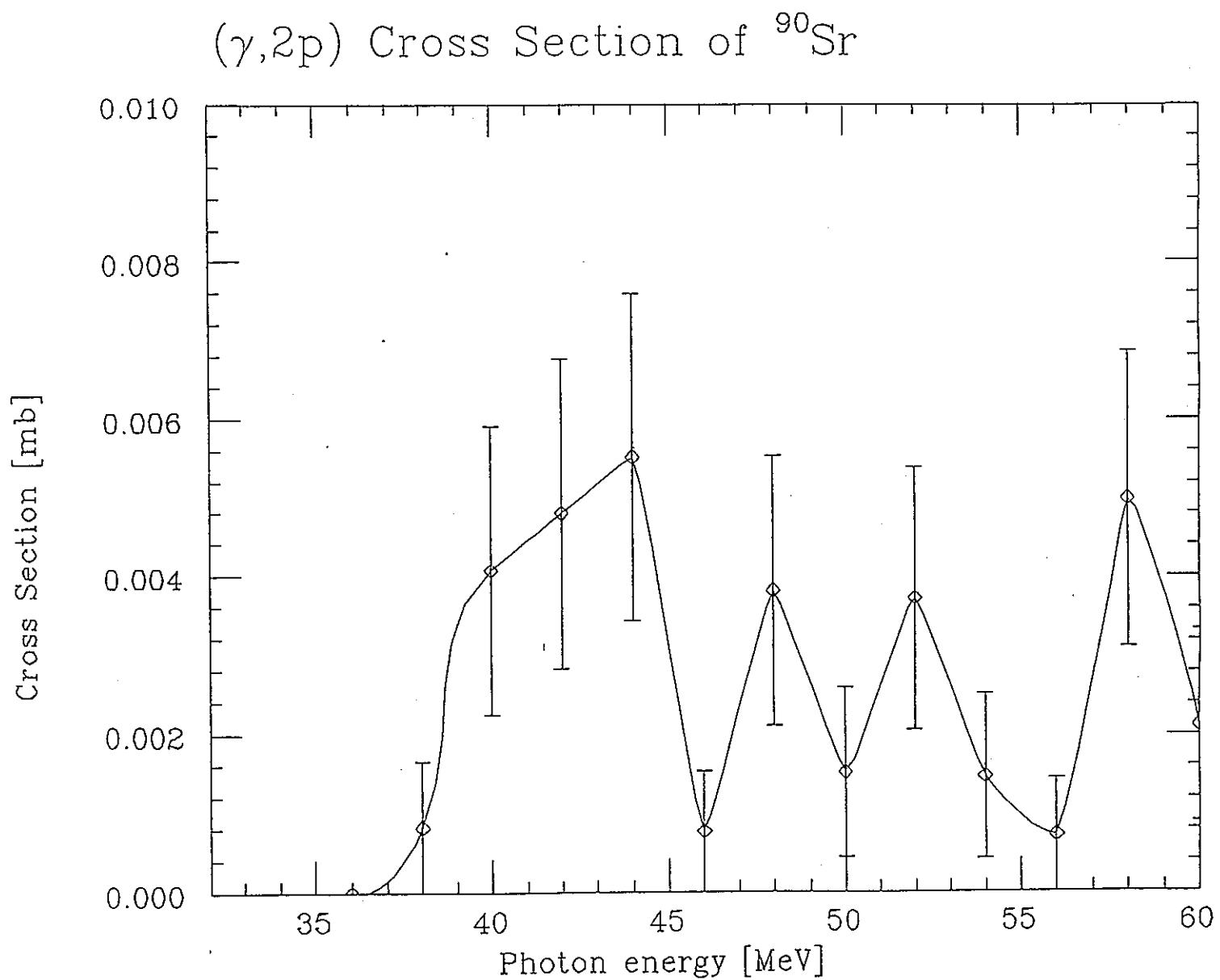
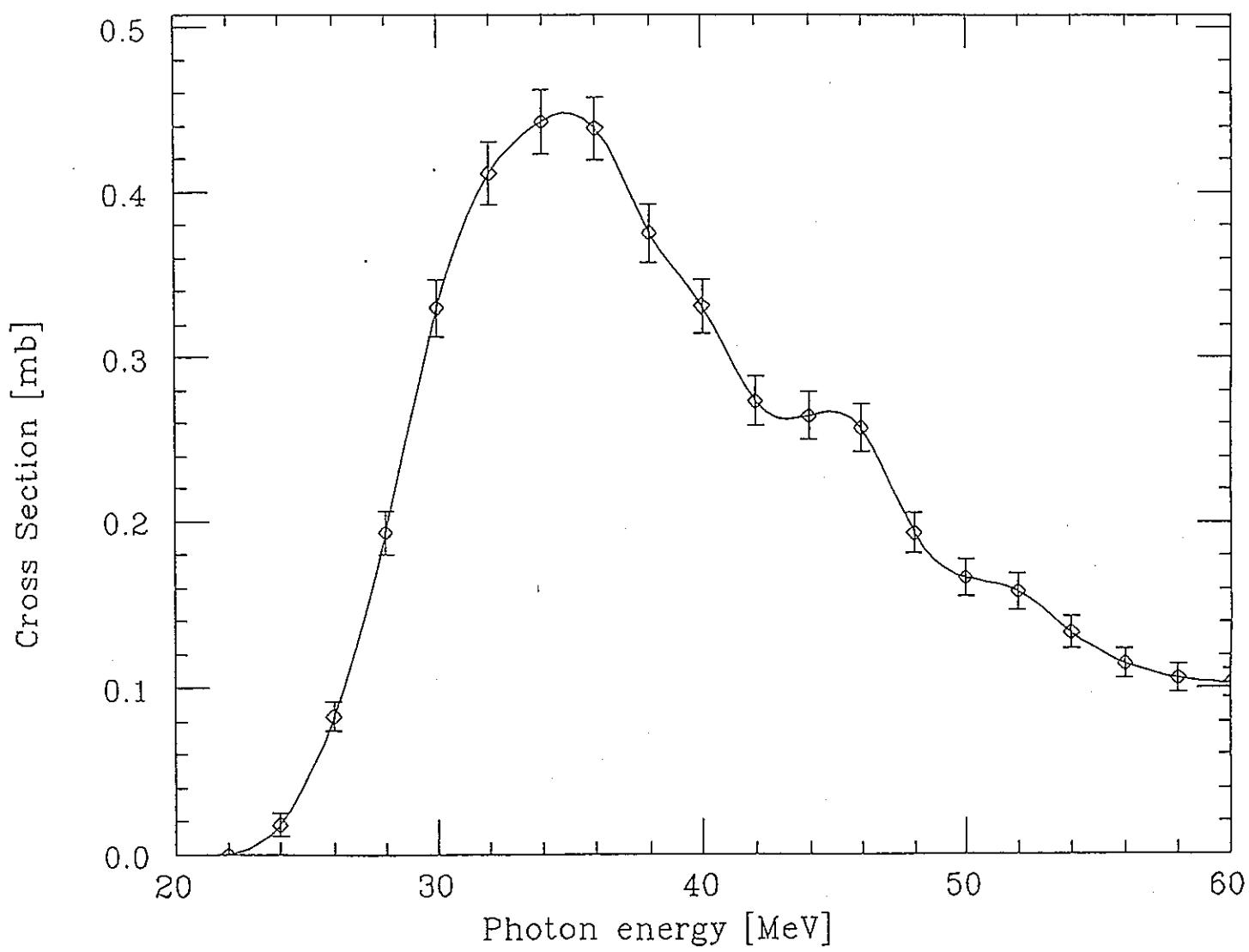


Fig. 1-34 $^{90}\text{Sr} (\gamma, 2n)$ 反応断面積の計算値

$(\gamma, 3n)$ Cross Section of ^{90}Sr Fig. 1-35 $^{90}\text{Sr} (\gamma, 3n)$ 反応断面積の計算値

(γ, p) Cross Section of ^{90}Sr Fig. 1-36 $^{90}\text{Sr} (\gamma, p)$ 反応断面積の計算値

Fig. 1-37 ^{90}Sr (γ , 2 p) 反応断面積の計算値

(γ, np) Cross Section of ^{90}Sr Fig. 1-38 $^{90}\text{Sr} (\gamma, np)$ 反応断面積の計算値

(γ , 2np) Cross Section of ^{90}Sr

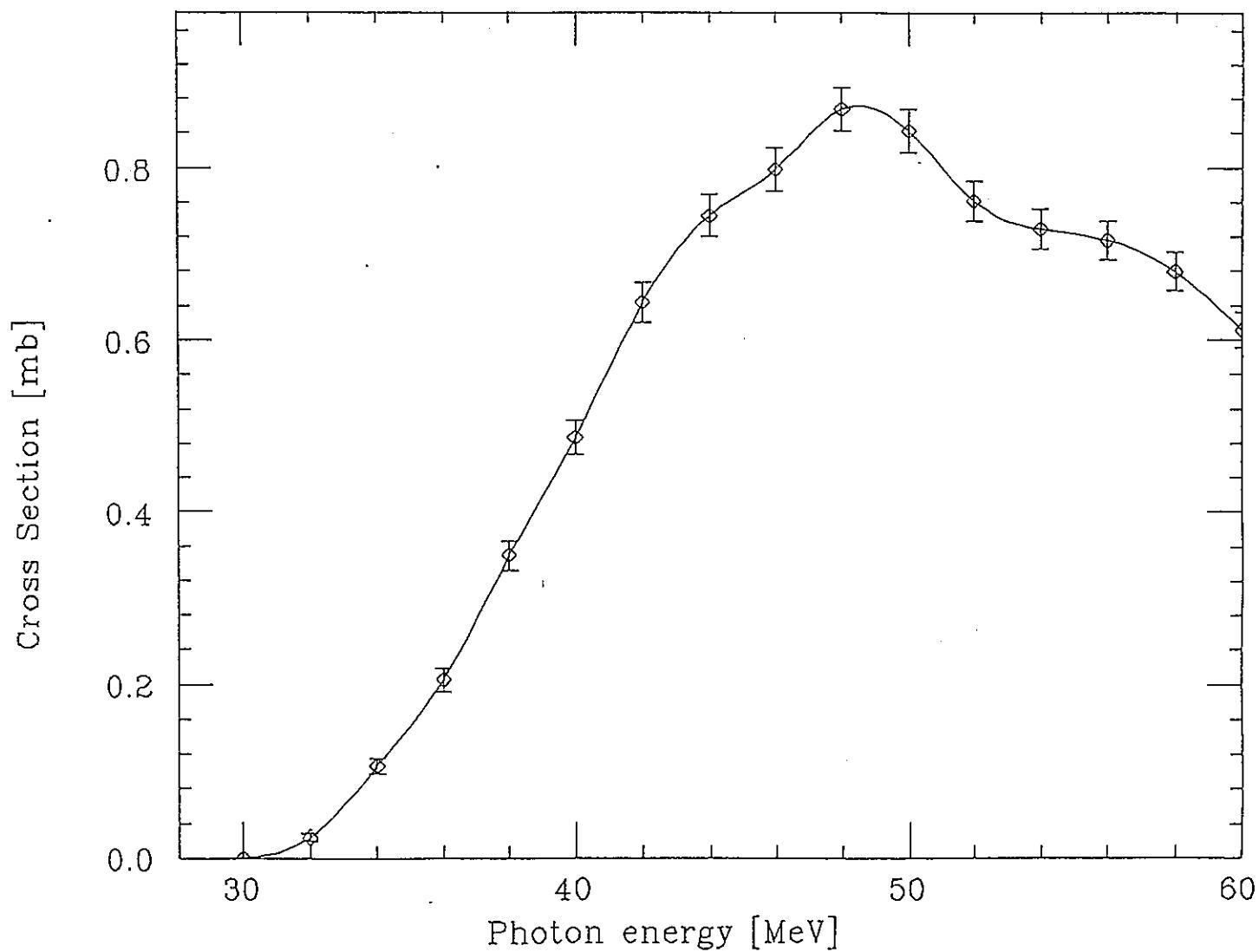
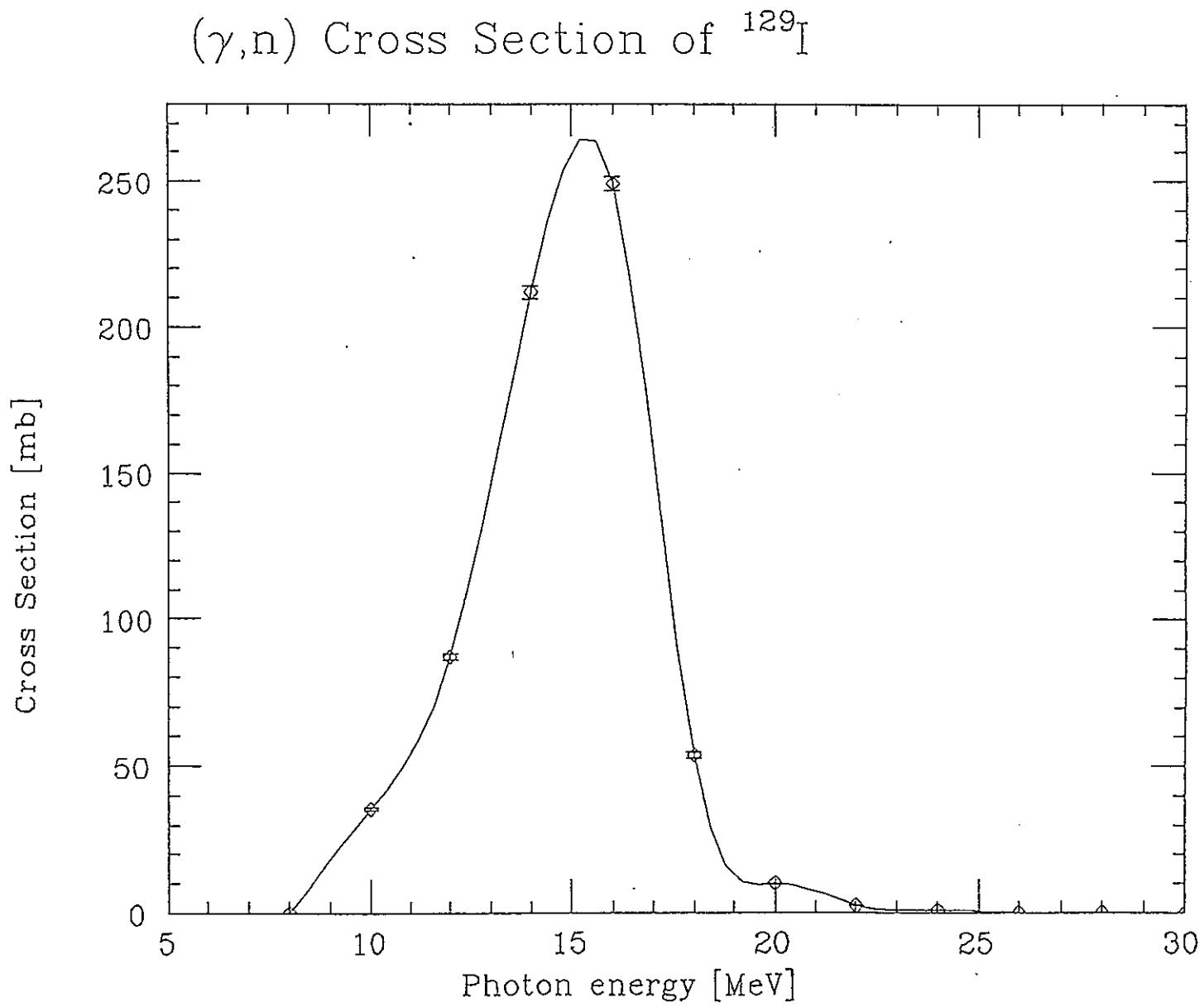
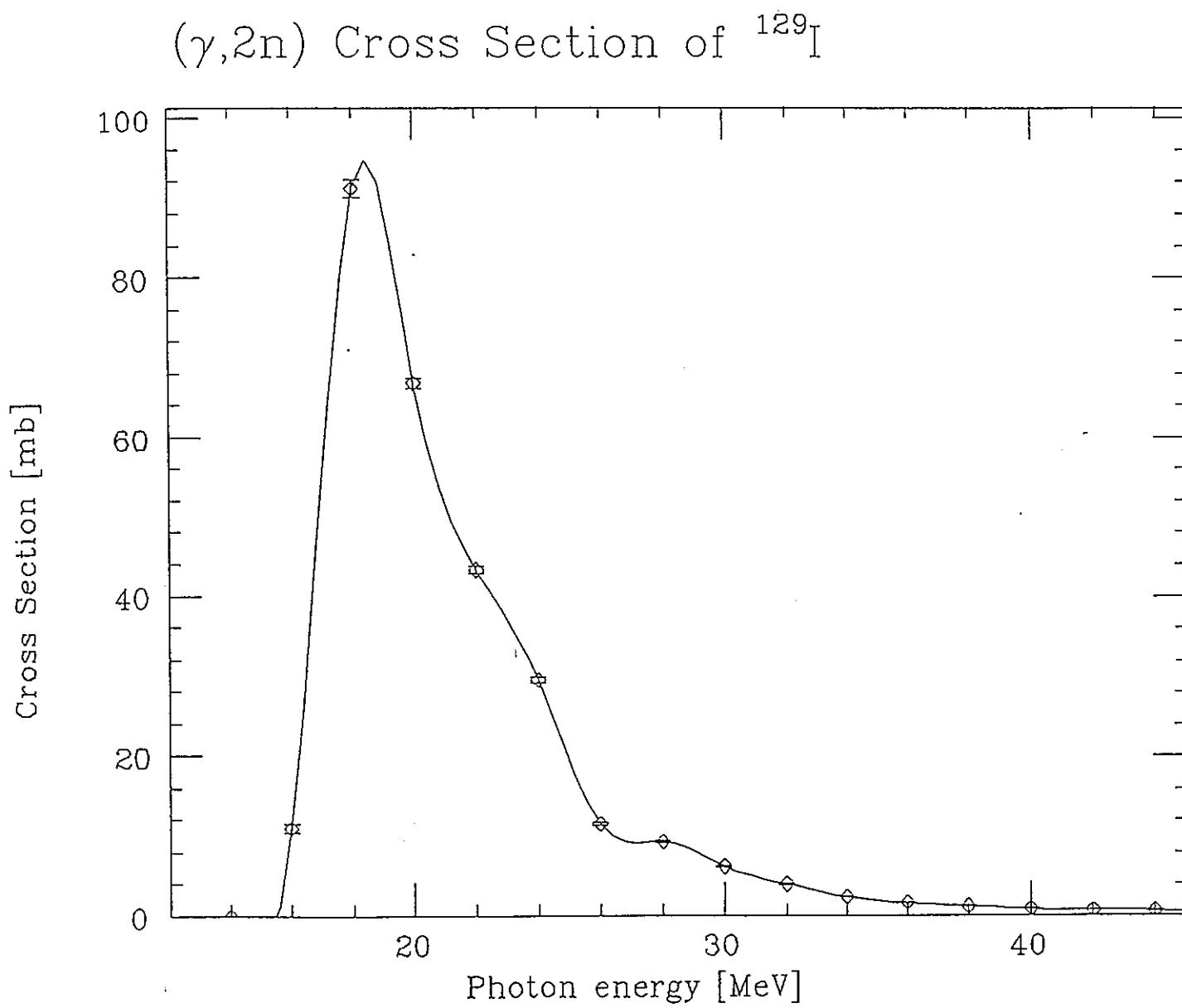
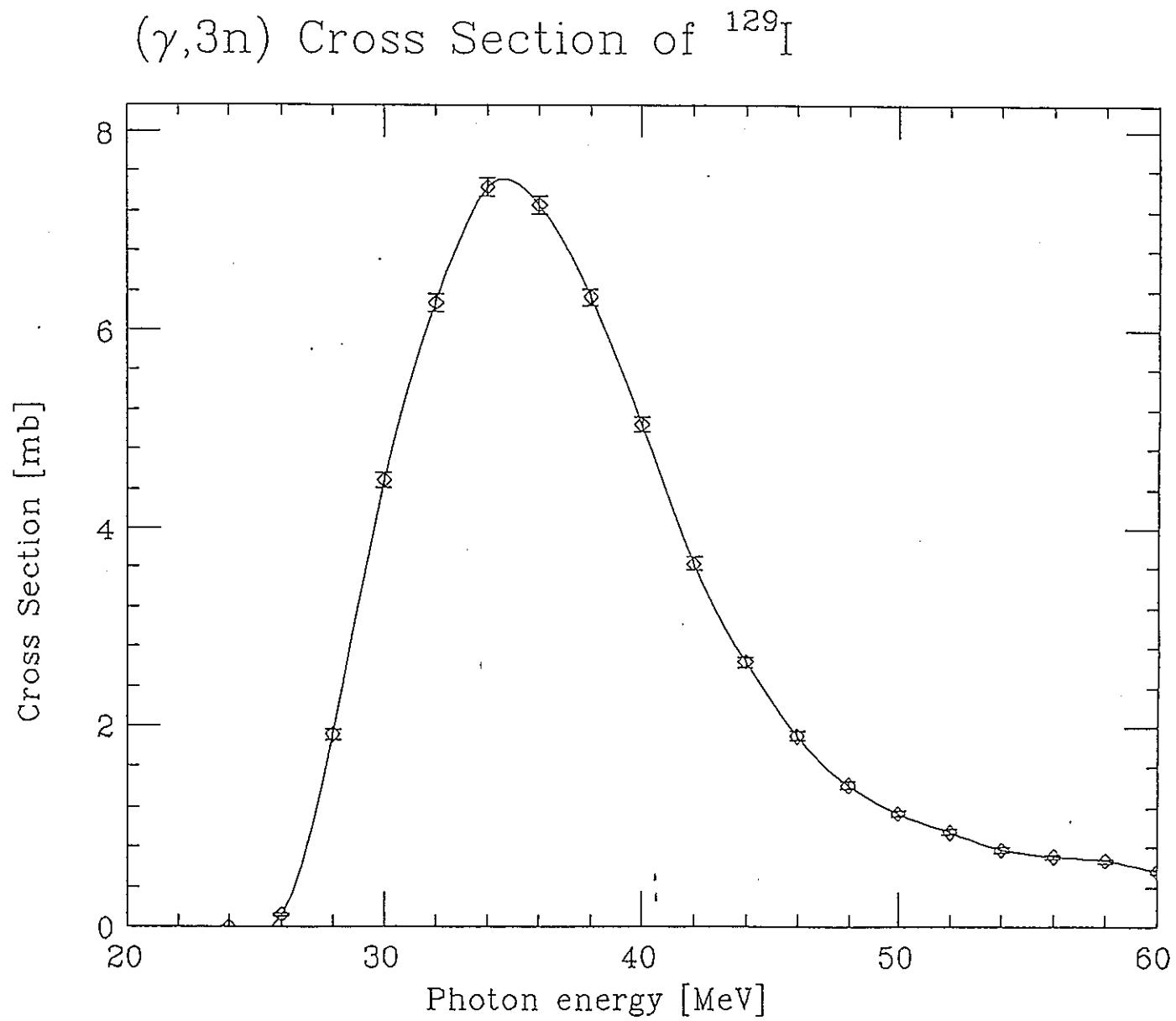


Fig. 1-39 ^{90}Sr (γ , 2np) 反応断面積の計算値

Fig. 1-40 ^{129}I (γ , n) 反応断面積の計算値

Fig. 1-41 ^{129}I (γ , 2 n) 反応断面積の計算値

Fig. 1-42 ^{129}I (γ , 3 n) 反応断面積の計算値

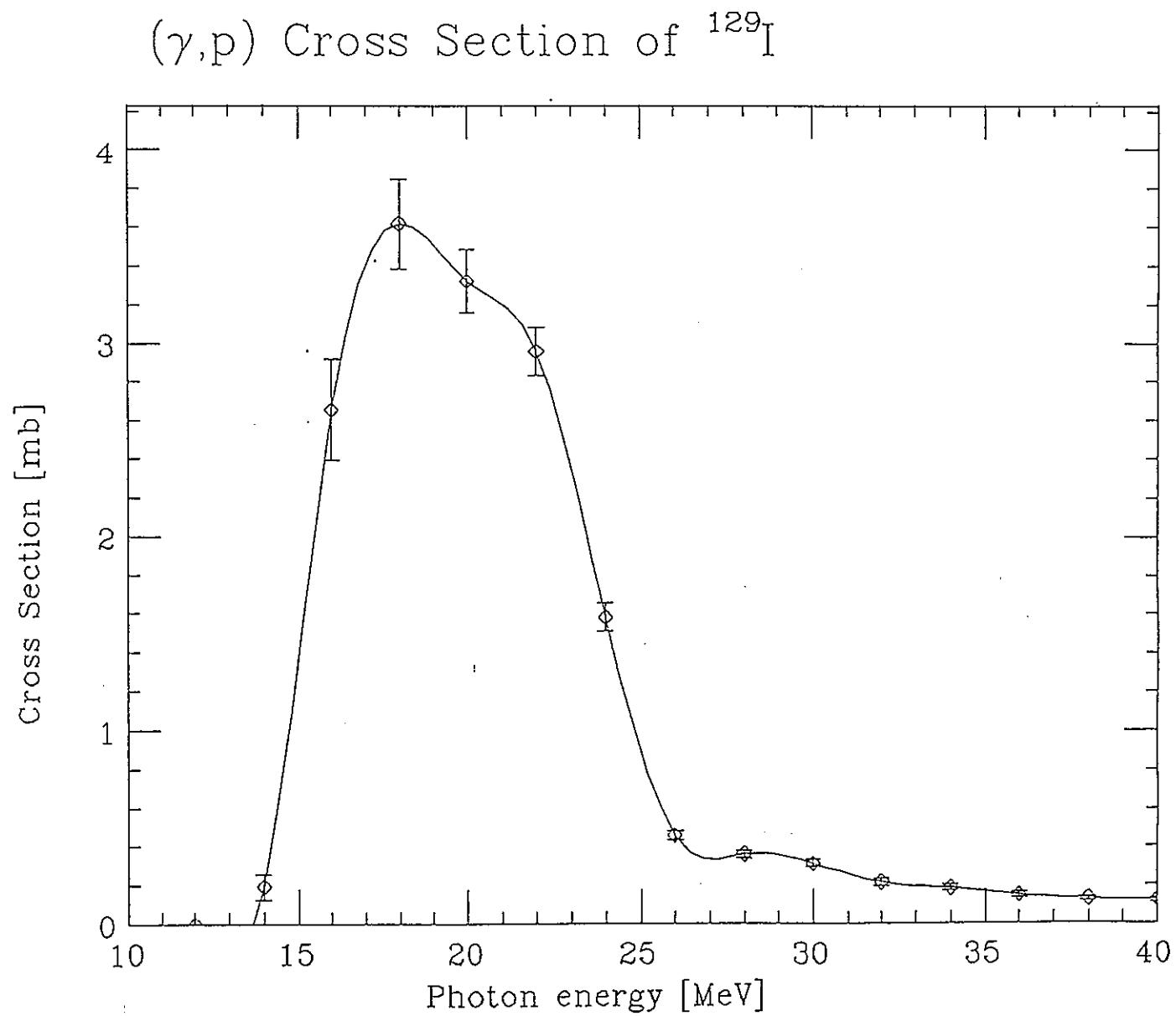
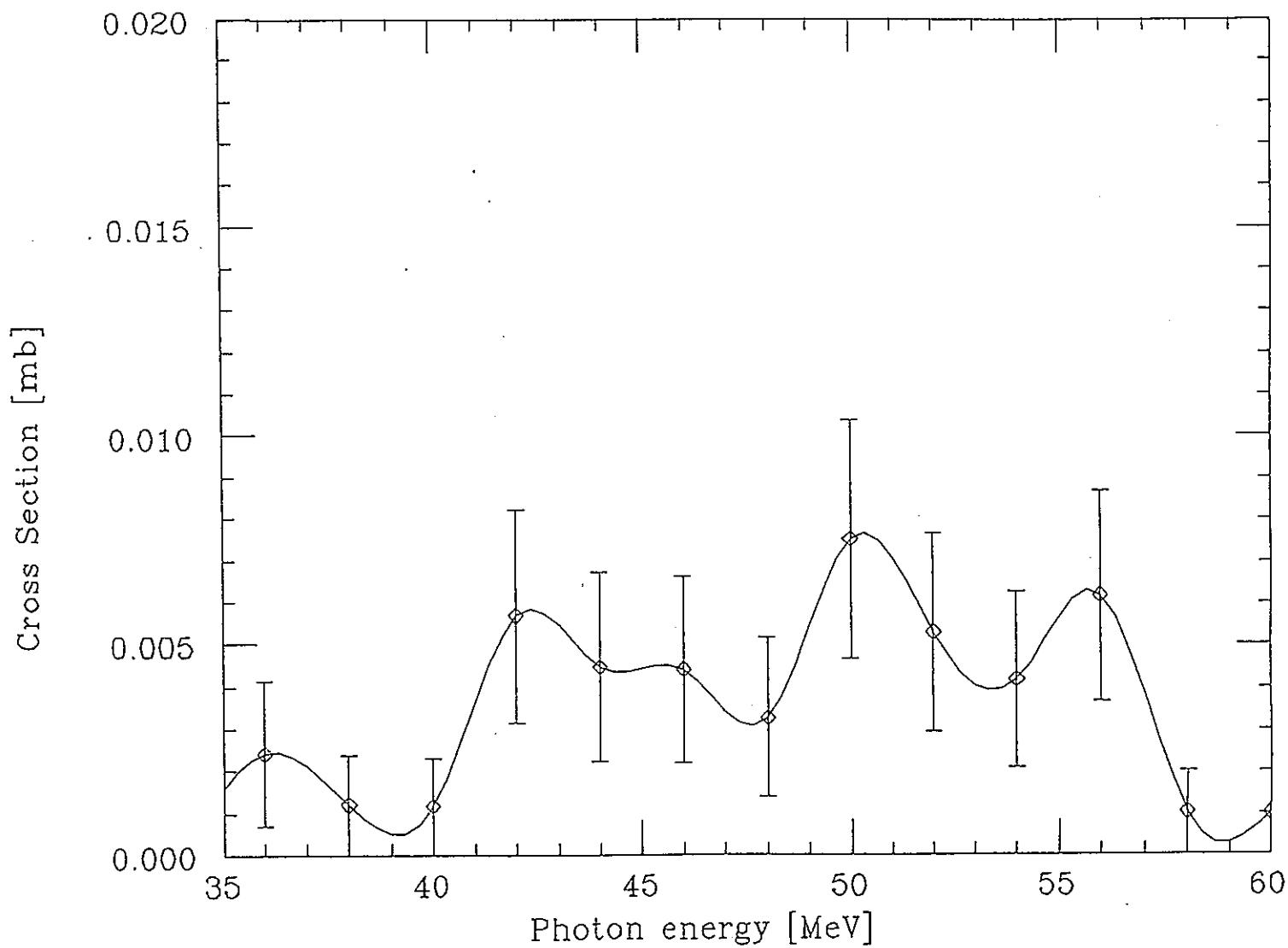
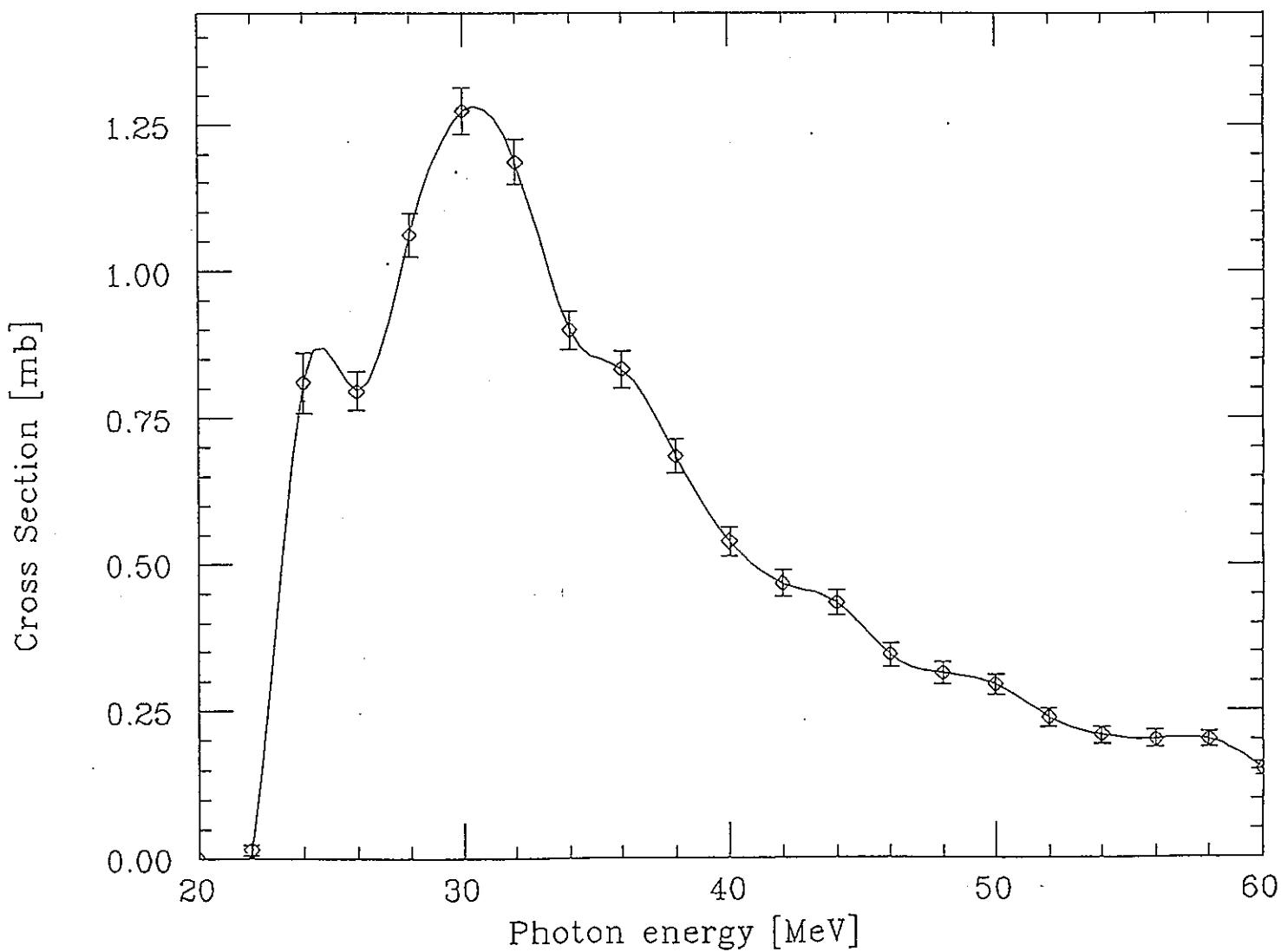


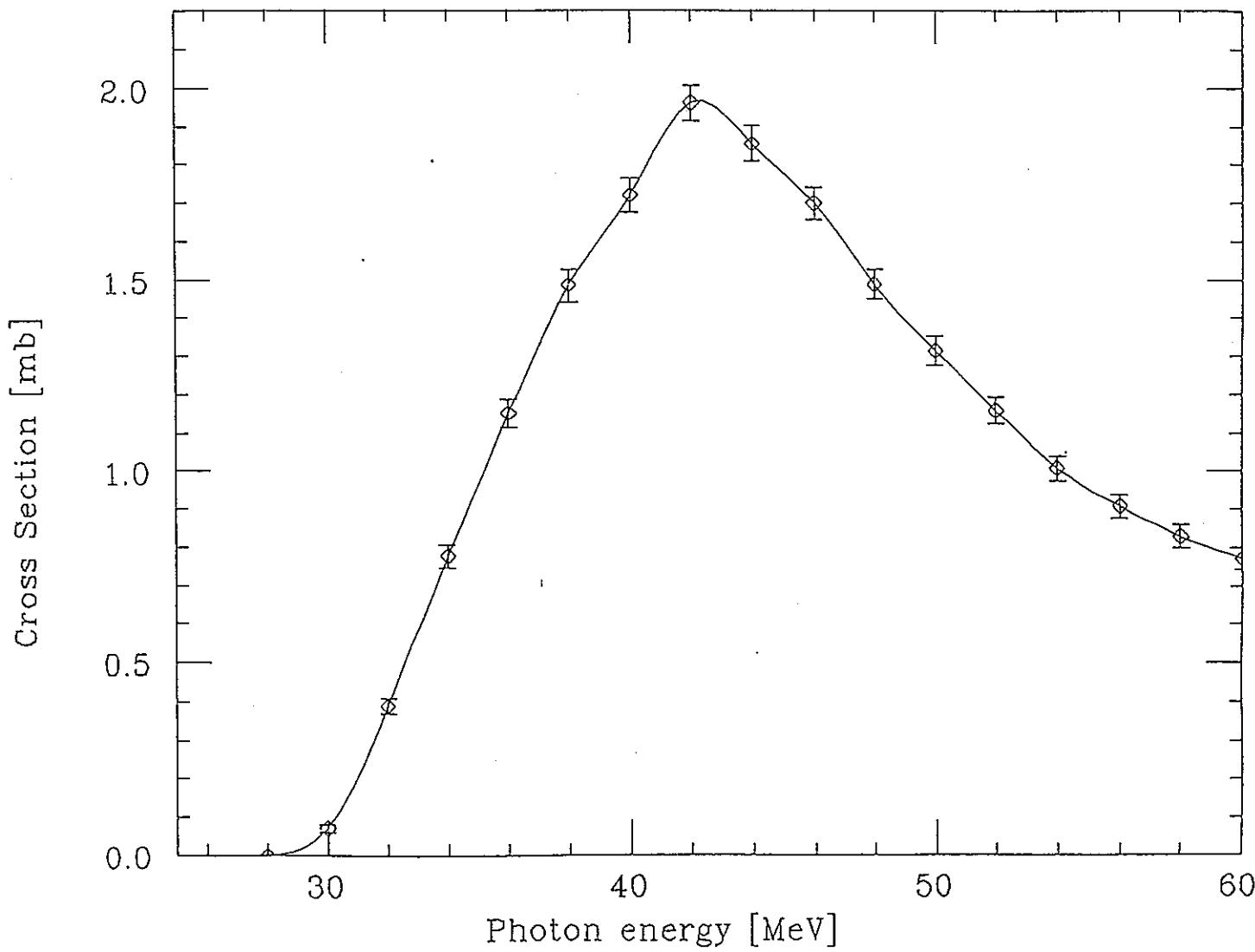
Fig. 1-43 $^{129}\text{I} (\gamma, p)$ 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2p)$ Cross Section of ^{129}I Fig. 1-44 ^{129}I (γ , 2 p) 反応断面積の計算値

(γ, np) Cross Section of ^{129}I

- 69 -

Fig. 1-45 ^{129}I (γ , n p) 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2np)$ Cross Section of ^{129}I Fig. 1-46 ^{129}I (γ , 2 np) 反応断面積の計算値

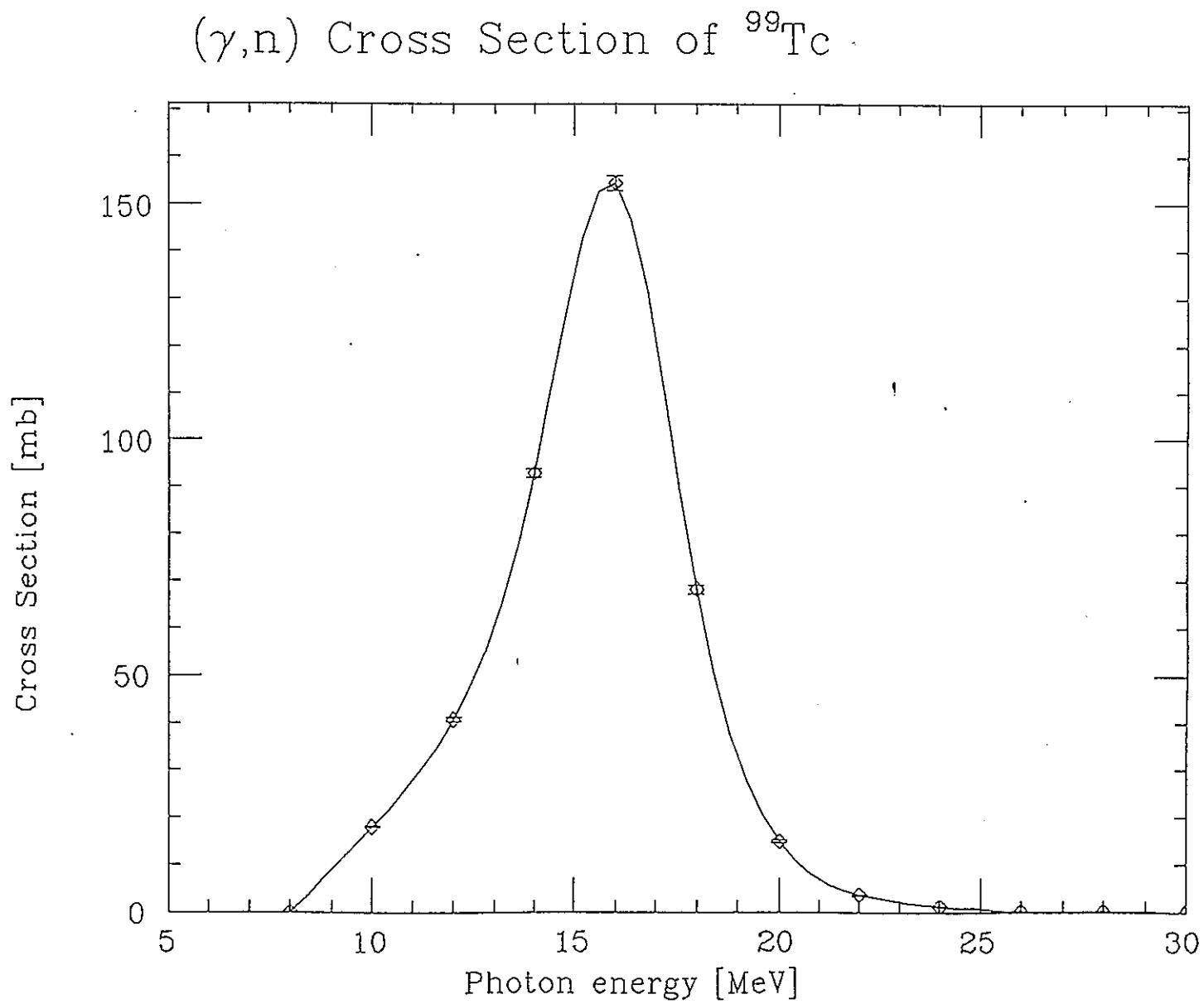


Fig. 1-47 ^{99}Tc (γ , n) 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2n)$ Cross Section of ^{99}Tc

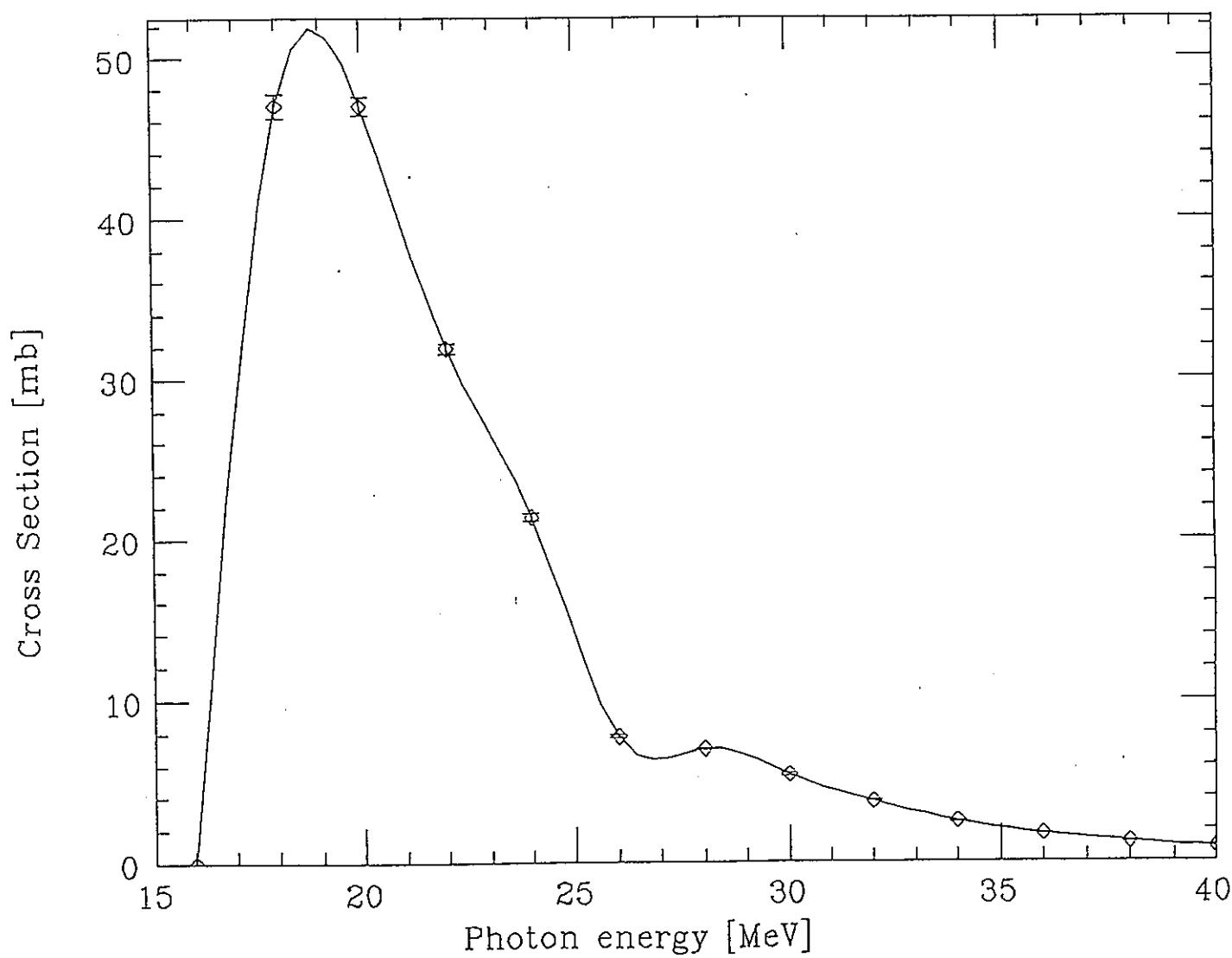
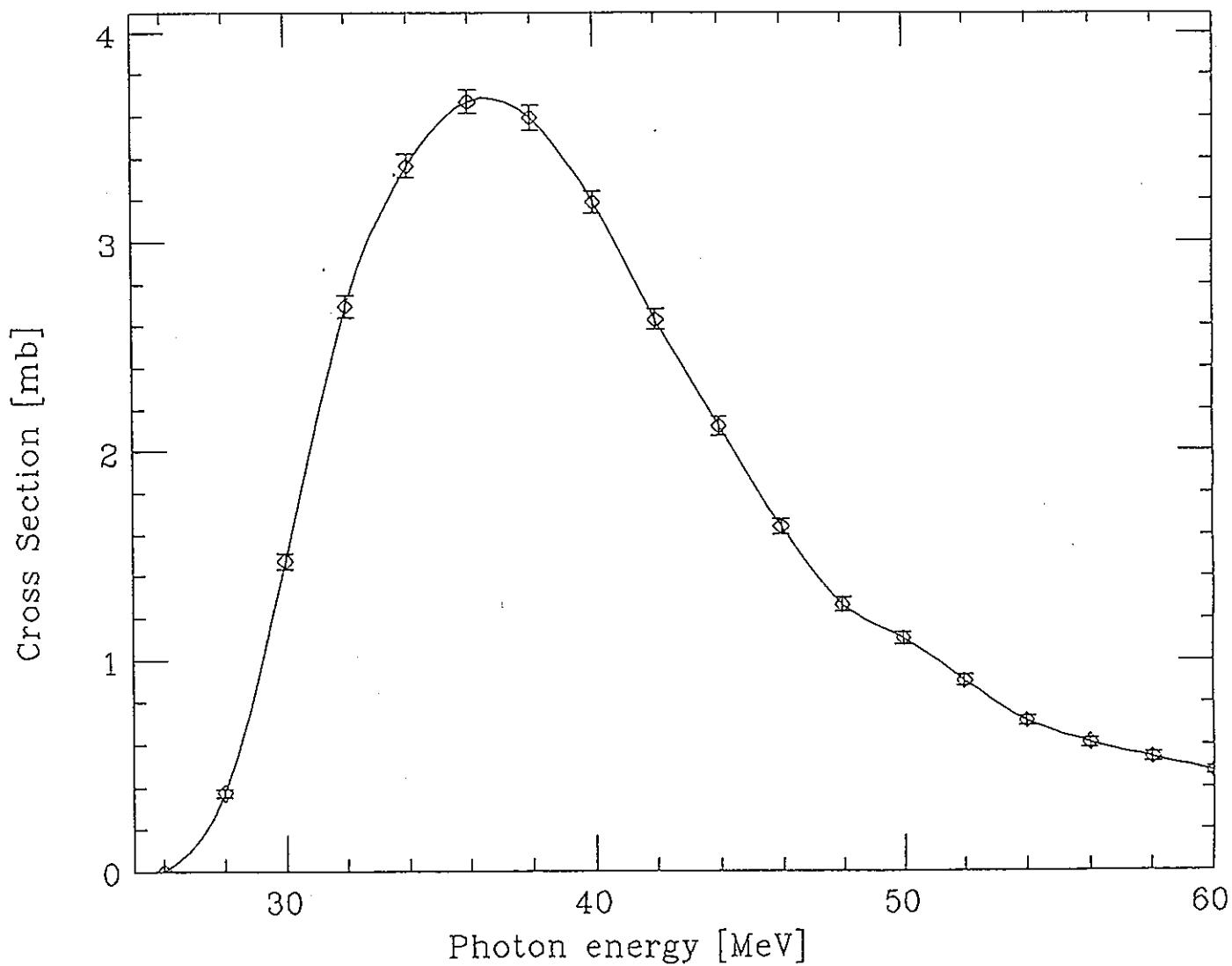
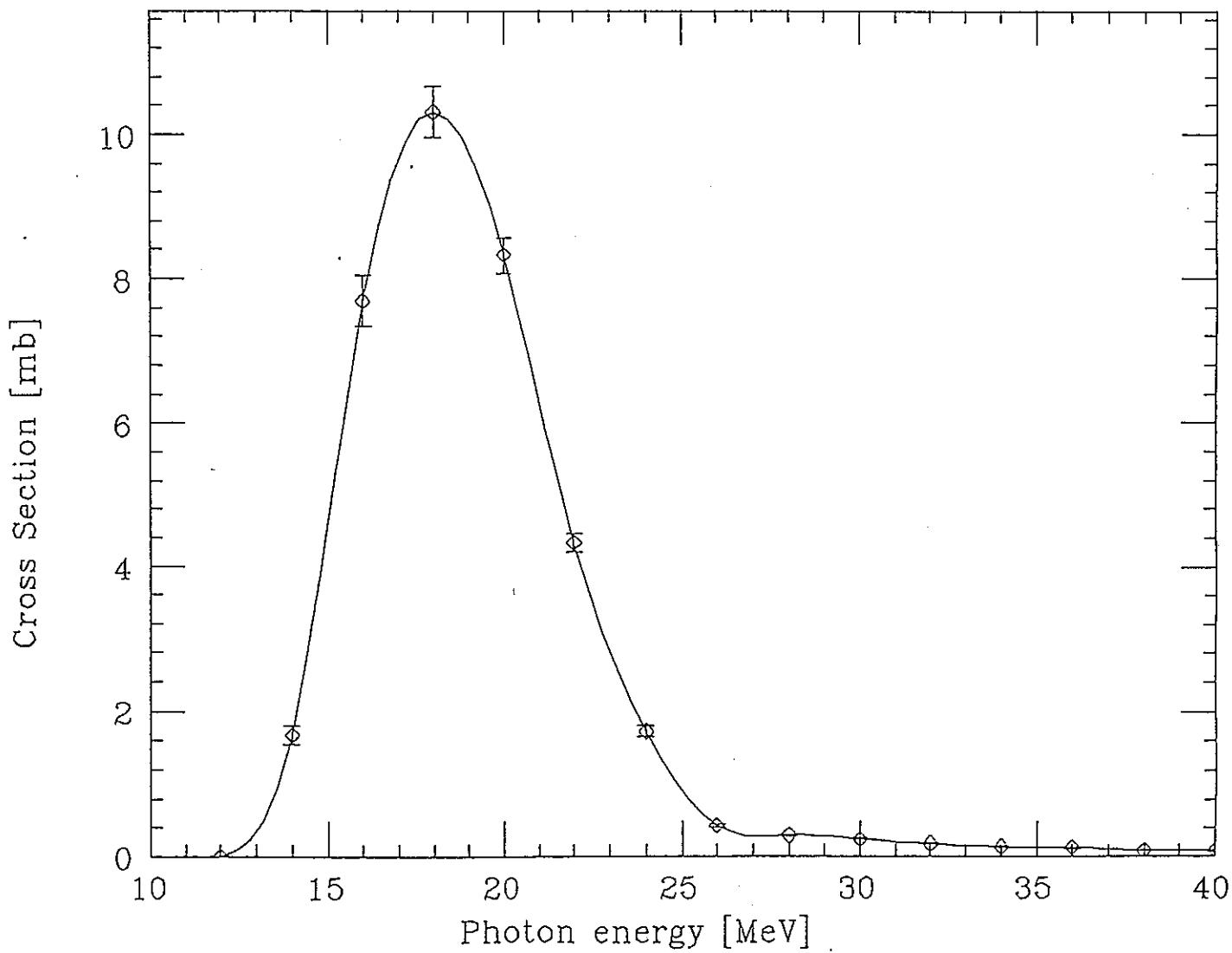
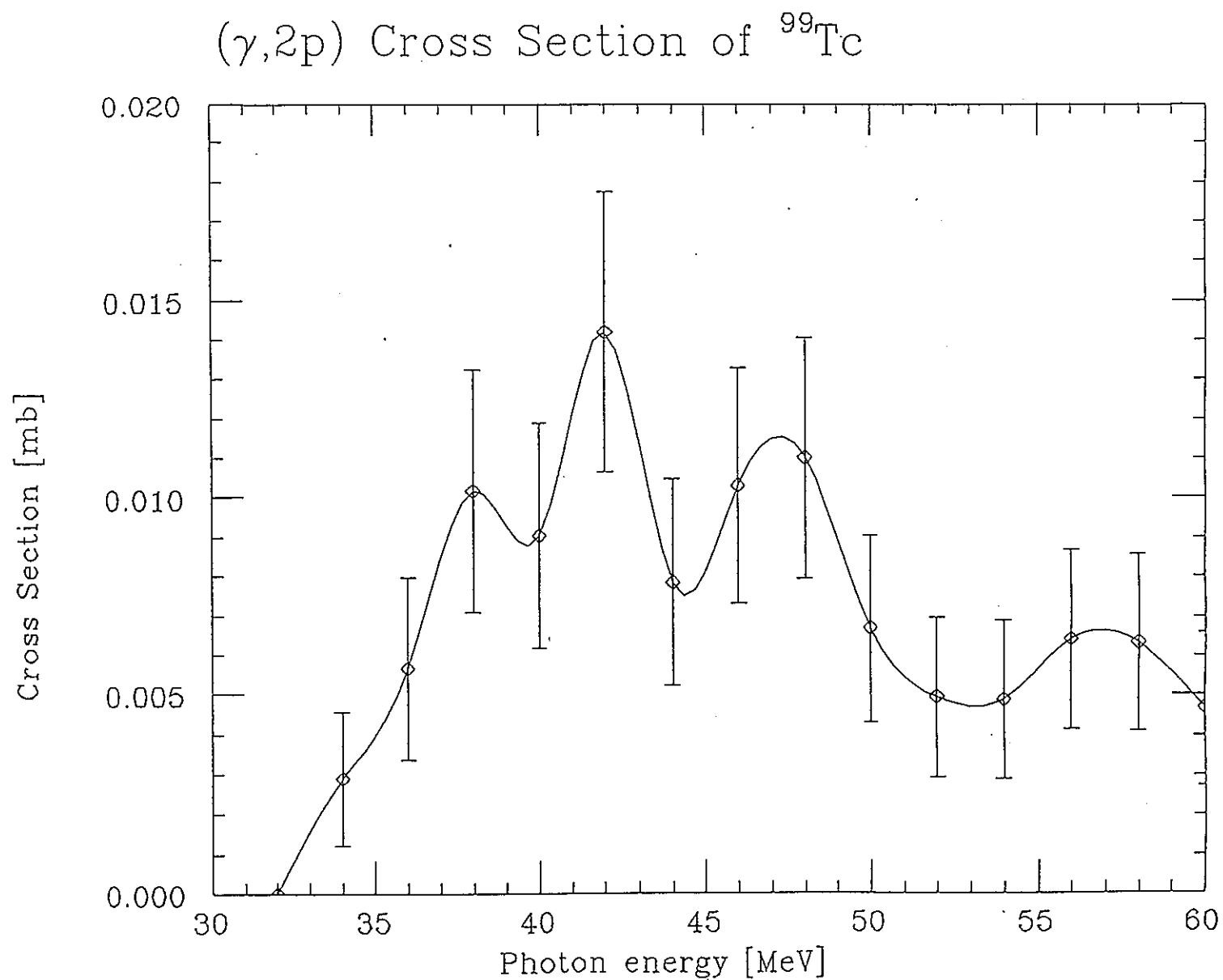
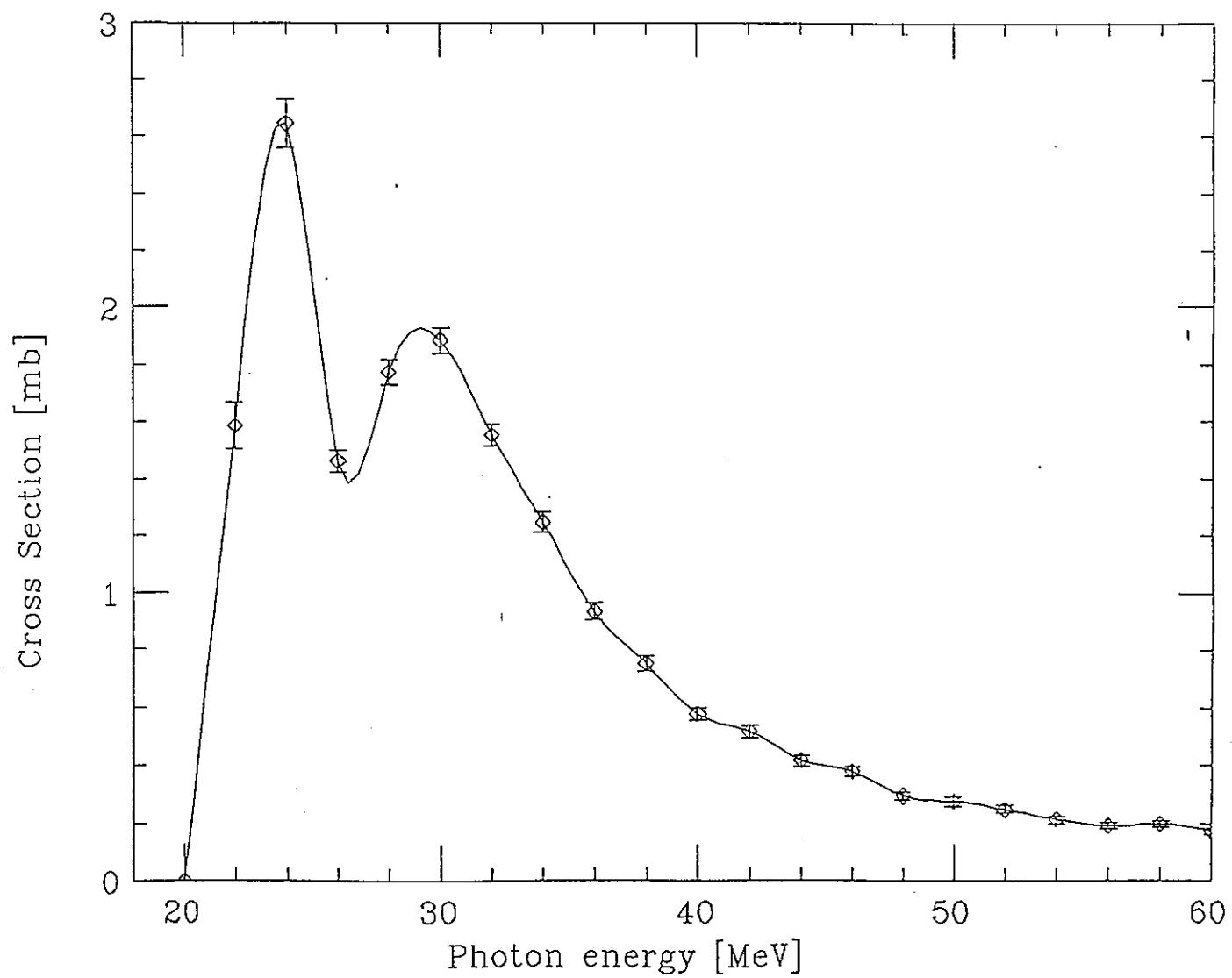


Fig. 1-48 $^{99}\text{Tc} (\gamma, 2n)$ 反応断面積の計算値

$(\gamma, 3n)$ Cross Section of ^{99}Tc Fig. 1-49 $^{99}\text{Tc} (\gamma, 3n)$ 反応断面積の計算値

(γ, p) Cross Section of ^{99}Tc Fig. 1-50 ^{99}Tc (γ , p) 反応断面積の計算値

Fig. 1-51 ^{99}Tc (γ , 2 p) 反応断面積の計算値

(γ, np) Cross Section of ^{99}Tc Fig. 1-52 ^{99}Tc (γ , n p) 反応断面積の計算値

$(\gamma, 2np)$ Cross Section of ^{99}Tc

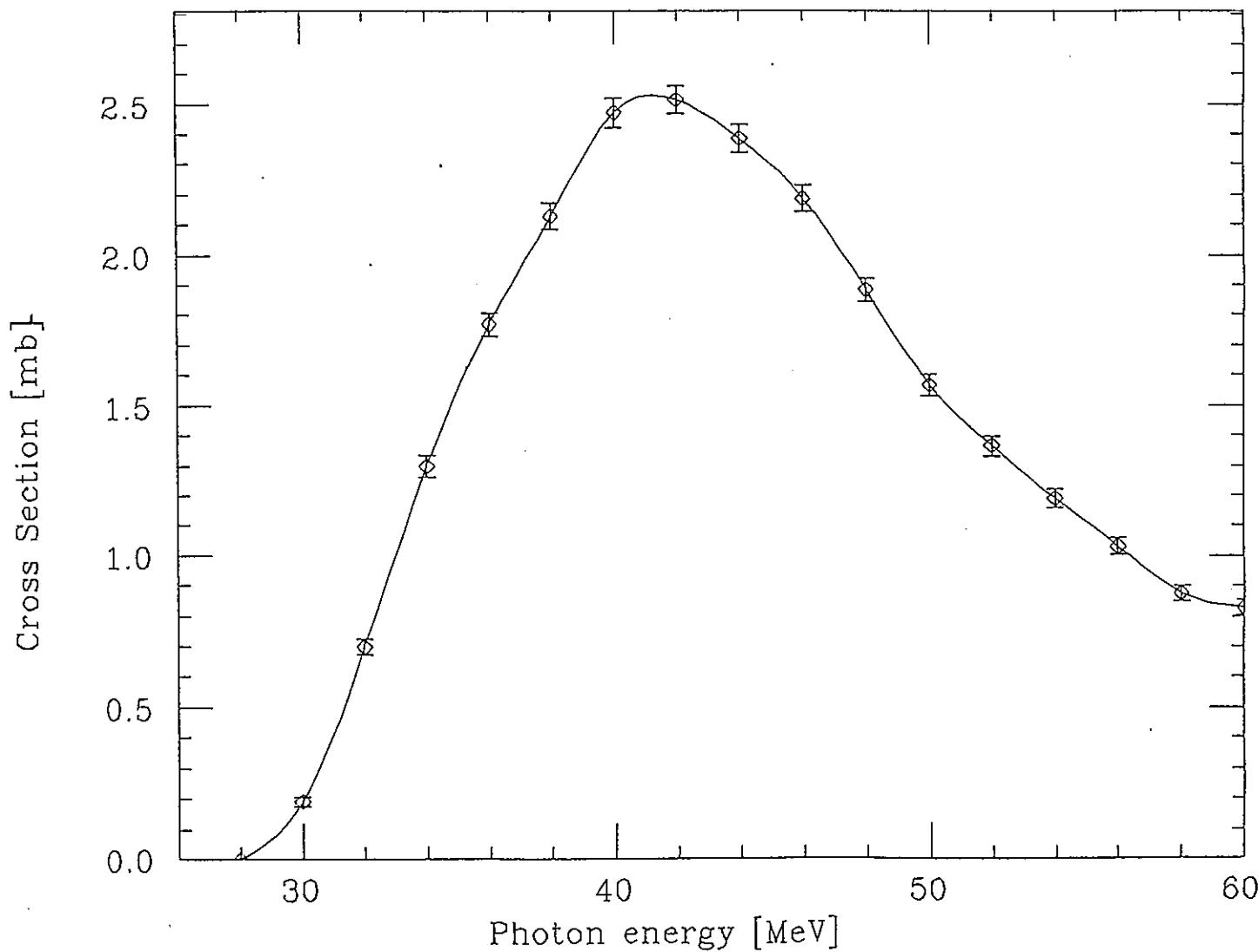


Fig. 1-53 $^{99}\text{Tc} (\gamma, 2np)$ 反応断面積の計算値

4-3. 陽子による核反応

4-3-1. 陽子による全核反応

計算結果をTable 6に示す。

Table 6 計算結果

核種	陽子エネルギー [MeV]	断面積 [b]	核種	陽子エネルギー [MeV]	断面積 [b]
⁹⁰ S r	100	0.9739	¹²⁹ I	100	1.221
	500	1.001		500	1.291
	1000	1.037		1000	1.273
⁹⁹ T c	100	1.047	¹²⁷ I	236	1.120
	500	1.042		346	1.214
	1000	1.084		412	1.248
¹³⁷ C s	100	1.327		497	1.219
	500	1.306		567	1.149
	1000	1.328			

また、比較のために実験値のある核種のうち計算対象の4核種に原子番号、質量数が近いものをTable 7にまとめておく⁽⁶⁾。

Table 7 陽子による核反応断面積の実験値⁽⁶⁾

核種	陽子エネルギー [MeV]	断面積 [b]	核種	陽子エネルギー [MeV]	断面積 [b]
^{nat} Zr	98.8	1.077	¹²⁷ I	236.0	1.279
⁹³ Nb	98.8	1.094		346.0	1.287
^{nat} Mo	99.1	1.119		412.0	1.272
^{nat} Pd	98.9	1.189		497.0	1.325
				567.0	1.325

¹²⁷I の全核反応断面積の実験値と計算値を比較すると、どの陽子エネルギーでも10%以内の差で両者はよく一致していることがわかる。原子番号や質量数、陽子エネルギーは多少異なるが、^{nat}Zr、⁹³Nb、^{nat}Mo、^{nat}Pd、¹²⁷I と ⁹⁰Sr、⁹⁸Tc、¹²⁹I、¹³⁷Cs の間でも同様のことが言える。今回、計算値と実験値の比較を行った100MeV～1000MeV位のエネルギー範囲では、全核反応断面積はほぼその核種の幾何学的断面積に等しいことがわかつており、計算コードもそのことをふまえてプログラムされている。そのため、今回の比較のようによく一致するものと思われる。

4-3-2. ¹²⁴Xe の (p, 2n) 反応断面積

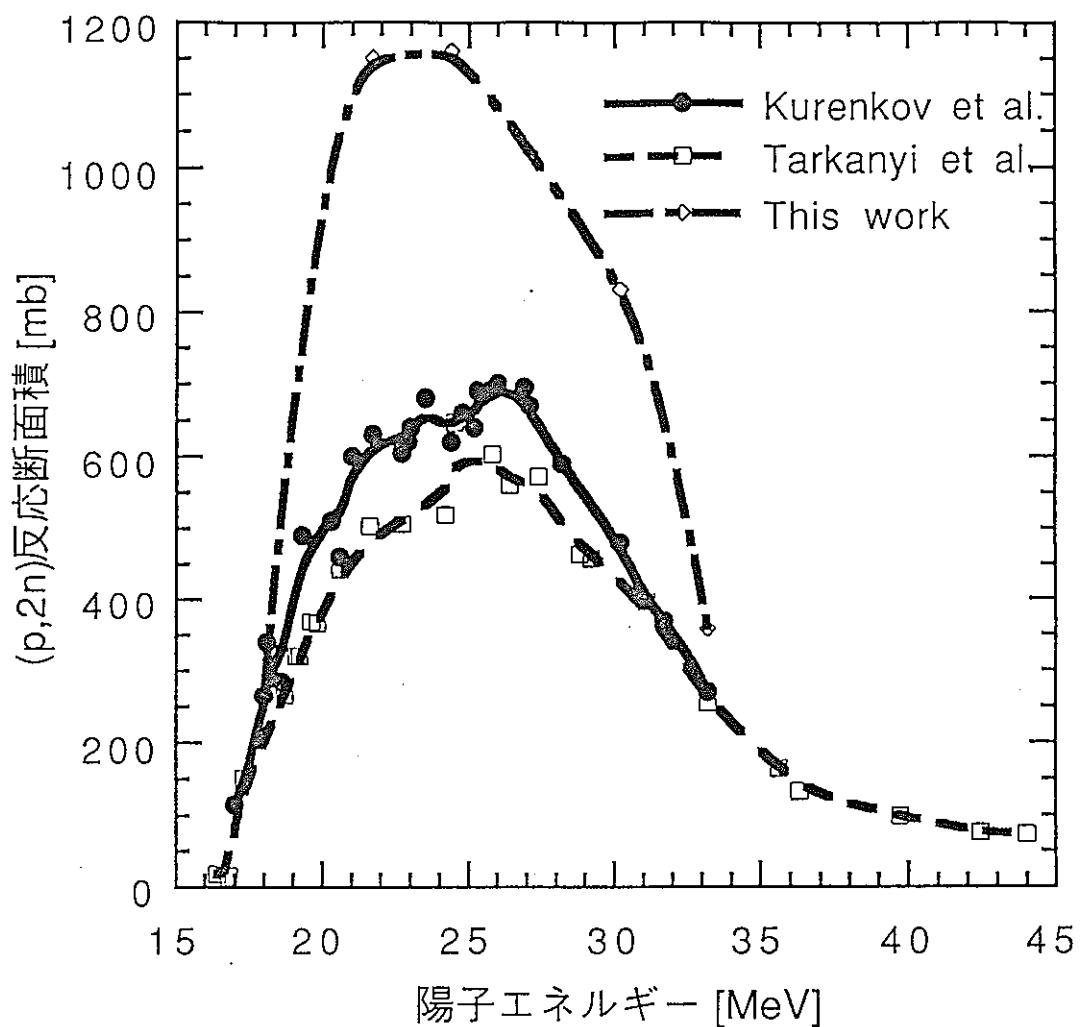
Table 8 と Fig. 2 に計算結果と実験値の比較を示す。

Table 8 計算値と実験値^{(12), (13)}の比較

核種	陽子エネルギー [MeV]	計算値	実験値 ⁽¹²⁾	実験値 ⁽¹³⁾
		[mb]	[mb]	[mb]
¹²⁴ Xe	18.0	265	265	150
	21.7	1150	630	503
	24.4	1160	620	647
	27.1	1020	670	572
	30.2	830	480	458
	33.2	359	270	255

実験値と計算値の差は、計算値により近い実験値⁽¹²⁾と比較しても、計算値の方が1.5～1.9倍の大きさとなり、あまりよく一致していない。原因としては、計算に使用しているNMT C／J A E R I コードの核データの古さが上げらるかもしれない。NMT C／J A E R I コードでは、核内カスケードの計算に必要な核子・核子データライブラリは1950年代の実験値に基づいて作成されたもの使用しており、現在となってはいささか古く、再評価が必要な時期にきている。また、同コードでは考慮されている物理過程としては核内カスケードと粒子蒸発だけであるが、前平衡過程等を考慮する必要もあるかも知れない。

いずれにしても、今回の調査では前述の4核種の陽子による核反応断面積の計算値の精度評価に使用できる実験値は、1核種しか見つからず、それも陽子による消滅処理法で考えられているエネルギー範囲よりもかなり低いエネルギーのものであった。比較すべき実験値の数としても、その種類としても十分とは言い難い。そのため、全核反応断面積はよいとしてもその他の断面積の計算にNMT C／J A E R I コードが適当か否かまでは判断することは難しい。やはり、陽子による消滅処理を評価するうえでは高エネルギー領域における核反応断面積の系統的な収集、評価が必要である。それを待たねば、計算値による評価の妥当性を議論することも難しいと思われる。

Fig. 2 ^{124}Xe の (p, 2n) 反応断面積の計算値と実験値の比較

5. 核反応断面積計算コードの概要

ここで述べている核反応断面積計算コードの概要について簡単にまとめておく。

- 光核反応断面積計算コード

- 1) MCPHOTO (CRC、原研で開発)

モ デ ル	前平衡過程	- エキシトンモデル (Gudima)
	平衡過程	- 統計的蒸発モデル (Weisskopf)
	光核分裂過程	- 統計理論による核分裂モデル
	巨大E1共鳴吸収	- 単一ローレンツ型共鳴曲線

適用範囲 しきいエネルギーから140MeVまで (π 発生無視)
ターゲットはVより重い核種がよいが、吸収断面積以外はVより軽い核種でもよい。
出 力 吸収断面積、粒子放出断面積、放出粒子のエネルギー分布、角度分布、二重微分断面積

2) PICA (ORNLで開発)

モ デ ル 核内カスケード Fermi自由ガスモデル
蒸発 統計的蒸発モデル
適用範囲 約100MeV～1GeV
ターゲットはA ℥より重い核種がよいが、C以上なら適用可能
出 力 吸収断面積、粒子放出断面積

核子（中性子・陽子）核反応断面積計算コード

1) GNA SH (LANLで開発)、TNG (F uが開発)

モ デ ル 複合核（平衡）過程多段階 Hauser-Feshbach 理論
(最初の複合核は崩壊後さらに複合核を作る) 複合核形成の前後で全角運動量、
スピニ、パリティ保存
GNA SH : Kalbachのエキシトンモデル
TNG : 上記に角運動量保存則を組込み
前平衡過程 : エキシトンモデル
適用範囲 パラメータが多いのでその設定が難しく、値も変わる
エネルギー < 200MeV (最近より高いエネルギーまで適用されている) 核種は
A ℥以上がよい
出 力 吸収断面積、粒子放出断面積、放出粒子 (γ 線を含む) エネルギー分布
前平衡過程断面積は絶対値を与えられない

2) ALICE (LNLで開発)

モ デ ル 複合核（平衡）過程 Weisskopfの蒸発理論
全角運動量、スピニ、パリティ保存無し
前平衡過程 Geometry Dependent Hybridモデル

適用範囲 パラメータが少なく使用が容易で、絶対値が得られる
放出粒子 n、 p、 d、 α
エネルギー < 200MeV (複合核励起エネルギー)
ただし最近800MeV位まで適用したものあり
核種は A ℓ 以上がよい

3) SINCROS (山室が開発)

ELIESEとGNASHを接続し、かつ入力形式を簡単にし使い易くしたもの。パラメータを与えて
いる。

モデル ELIESE : 光学模型、統計模型によって粒子透過係数を計算する。
GNASH : 前述
適用範囲 質量数 20 以上
エネルギー < 200MeV、主として100MeV以下
出 力 吸収断面積、粒子放出断面積
n、 p、 α 、 d、 ^3He 、 t 及び γ が放出される

なお、核反応断面積計算コードではないが、今回、核反応断面積の評価に使用したNMT C / J A E R I コードは、ORNLで開発されたものを原研で高エネルギー核分裂反応を考慮するように改良したバージョンである。計算モデルとしては、核内カスケード及び蒸発モデルを採用している。エネルギーとしては15MeV以上、核種は質量数 6 以上のものに適用できる。

6. まとめ

本研究では、 ^{85}Kr 、 ^{90}Sr 、 ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs 、 ^{137}Cs の8核種に対する中性子、陽子、光子の核反応断面積の調査を行った。その結果、これら8核種に対する核反応断面積の実験値は、今まで述べてきたようにほとんど存在しないことがわかった。特に、陽子に対する核反応断面積は1つも発見できなかった。比較的、実験値の多かったものは(n, γ)反応断面積であるが、それでも ^{93}Zr 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs の4核種については実験値がないか、あるいは存在しても1970年代以前の古いデータであった。

^{90}Sr 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs の4核種については、核反応断面積計算コードを利用しての核反応断面積の評価も行った。これらの値は他の研究者による同様の値と比較を行った。さらに、使用した計算コードの精度を推定するため、これら4核種の安定な同位体あるいは近傍の核種で実験値の存在するものの核反応断面積を計算し、その実験値との比較も行った。これらの比較の結果は、

そのおおよその傾向としては、実験値との比較ではかなりよい一致を示し、計算値間の比較ではその値の差が約2倍程度であることがわかった。前者に関しては、計算コード内で使用するパラメータが実験値を考慮して決定されているために、よい一致を示すものと思われる。後者に関しては、実験値が存在しないため、その判断は難しい。しかし、本計算結果の精度はほぼファクター2以内と推定される。

本研究の結果、消滅処理対象核種に関する核データの実験値は少なく、まだまだ未整備状態であることが確認できた。今後、消滅処理研究を行っていくうえで、精度の高い評価をするため、これら核データが不可欠であることは否定できない。やはり、これら核データの早急な測定が必要であろう。

7. 謝辞

本研究にあたり、SINCROS-IIIコードによる計算に際しての様々な助言やデータを頂いた日本原子力研究所核データセンターの千葉敏、中川庸雄の両氏、及び船舶技術研究所東海支所の小田野直光氏に深く感謝いたします。MCPHOTOコードによる計算にあたっては、センチュリーリサーチセンター株式会社の岸田則生氏に指導頂いたことを深く感謝いたします。最後に、本研究を遂行するにあたり、お世話になった東北大学及び、動力炉・核燃料開発事業団の関係者の皆様に深く感謝いたします。

参考文献

- (1) Qaim, S.M. : J.Inorg. Nucl. Chem., 35, 3669 (1973)
- (2) McLane, V., Dunford, C.L., Rose, P.F. : "Neutron Cross Sections, Vol.2 Neutron Cross Section Curves" Academic Press Inc. (1988)
- (3) Shibata, K. et al. : "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3, JENDL-3", JAERI 1319 (1990)
- (4) Dietrich, S.S., Berman, B.L. : "Atlas of Photoneutron Cross Sections Obtained with Monoenergetic Photons", UCRL-94820 (1986)
- (5) Yamadera, A. et al. : Nucl. Instrum. Methods, A239(1993)188.
- (6) Bauhoff, W., Atomic Data and Nuclear Data Tables, 35(1986)429.
- (7) Yamamuro, N. : "A Nuclear Cross Section Calculation System with Simplified Input-Format", JAERI-M 90-006 (1990)
- (8) Igarashi, S. : "Program ELIESE-3; Program for Calculation of the Nuclear Cross Section by Using Local and Non-Local Optical Models and Statistical Model", JAERI 1224 (1972)
- (9) Young, P.G., Arthur, E.D. : "GNASH : A Preequilibrium, Statistical Nuclear Model Code for Calculation of Cross Sections and Emission Spectra", LA-6947 (1977)
- (10) 岸田則生, 角谷浩享 : "光核反応断面積計算コードシステム MCPHOTO", JAERI-memo 02-291 (1990)
- (11) 中原他, JAERI-M 82-198(1982)
- (12) Kurenkov, N.V. et al., J. Radional. Nucl. Chem. Letters 135(1989)39.
- (13) Tarkanyi, F. et al., Appl. Radiat. Isot., 42(1991)221.
- (14) Armstrong, T.W. et al., ORNL-4736(1971).
- (15) Janni, J.F., Atomic Data and Nuclear Data Tables 27(1982)147.
- (16) 加藤敏郎 : "「核変換研究会」報告書", PNC TN8100 92-011, (1992)47.