# 

## 崩壊熱計算に対するTAGSデータの影響

武蔵工業大学 吉田 正<sup>\*、</sup>本間 明 \*yos@ph.ns.musashi-tech.ac.jp

1. ことのおこり

まず表題の TAGS というあまり馴染みのない略称であるが、Total Absorption Gamma-ray Spectrometer の頭文字を取ったものである。訳せば全吸収ガンマ線分光であろうか。定訳 があればお教え願いたい。この手法の概略と問題点については次節で述べる。

ことは3年前の筑波での核データ国際会議にさかのぼる。早稲田の橘孝博氏が、髭の スペイン人が吉田を探しているからと教えてくれた。会ってみるとJose L. Tain 氏という 小柄で精悍な感じの人物で、CERN あるいはフィンランド・ヨヴァスキラ大学のオンライ ン同位体分離装置を使って、テクネチウムを中心に短半減期同位体の TAGS 測定を計画 中とのこと。ついてはテクネチウム同位体(Tc-102,-104,-105)の、崩壊熱総和計算にお ける重要性についての我々の指摘に興味があると言う。

その後、メイルやデータのやり取りを続けたが、測定計画のヒヤリング過程で、アイ ダホのグループ(現在の Idaho National Engineering and Environmental Laboratory)が長期 にわたり取ってきた FP 領域の TAGS データ[1]が崩壊熱計算にどう反映されているのか、 という質問が出たという。実は、日本も、ヨーロッパも、お膝元アメリカも、崩壊熱計 算ではアイダホのデータを採っていない。そこでアイダホの一連の論文を調べ、シグマ 委員会の崩壊熱評価ワーキンググループでは、名大におられた加藤敏郎氏に測定手法の 観点から論文の内容をレビューして頂いた。

一方、早稲田の橘氏はアイダホのβ強度データを読み取り、これから一崩壊あたりの放 出 $\beta$ 線、 $\gamma$ 線の平均エネルギーを、44 の FP 核種 (Rb, Sr, Y, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu の同位体) について計算された。これは普通  $E_{\beta}$ 、 $E_{\gamma}$ と表記され、核分裂収率や崩壊定数 と並び、FP 崩壊熱における最も重要な核データといえる。

### 2. TAGS: 全吸収ガンマ線分光

アイダホの Greenwood や Helmer を中心とするグループが使っている TAGS (Total Absorption Gamma-ray Spectrometer)の中核は直径 25.4cm、長さ 30.5cm の大きな円柱状 NaI(TI)シンチレーターである。同位体分離されたサンプルは、この円柱の中心線に沿ってくりぬかれた導入孔を通って、円柱の真ん中にセットされる。サンプルから出たガンマ線のエネルギーはすべて発光に寄与し、系外には逃れないと考える。実際には、シンチレーターの有限の大きさ、サンプル導入孔の存在等さまざまな理由から、この理想どおりには行かない。なるべく理想に近づけるため、Greenwood らはいろいろ工夫し、補正計算を行っている。この辺が技術の妙なのだろうが、ここでは文献[1]とそこに示されている関連文献に譲るしかない。

図1で TAGS の理想的なシナリオを説明すると次のようになる。親核のβ崩壊で娘核の エネルギーE<sub>x</sub>の励起状態が励起されたとする。この励起状態はγ崩壊で脱励起する。この

時放出されるγ線は、こ の、説明のために単純化 した崩壊スキームでは、 イ、ロ+ハ、二+ホ、ヘ +ト、チ+リの五つのパ ターンのいずれかであ り、エネルギーの和はど れも励起エネルギー $E_x$ に等しい。検出効率を度 外視すれば、上に述べた TAGS の仮定から、いず れの場合にもエネル ギー $E_x$ のピークが得ら



れることになる。したがって、各ピークのエネルギーは親核からβフィードされた娘核の 励起エネルギーに等しいということになる。このようにして、娘核の各励起レベルへのβ 遷移強度の相対値が、全励起レベルについて得られる。

この手法を評価するのはなかなか難しい。TAGS には多くの仮定があり、ハード上の工 夫や補正計算により、現実がどれだけ理想に近づいているのか、読み取りにくい。冒頭 に記したように、1990 年代の大半を使って、アイダホグループは44 に及ぶ FP 同位体核 種のβ強度分布を測定したが、お膝元のアメリカでもこのデータを使っての FP 崩壊熱計 算を行っていない。あるいは、われわれが特に注目した核種のひとつである La-144 を例 にとっても Nuclear Date Sheets はアイダホの TAGS データを引用しつつも崩壊スキームに 反映させていない[2]。

#### 3. TAGS データと崩壊熱計算

崩壊熱総和計算の結果は、積分測定値と比較され、信頼性や精度の議論がなされる。 ウランやプルトニウムサンプルを実験炉炉心で照射し、取り出し後の発熱量の時間経過 を、β線成分、γ線成分に分け測定する場合が多い。両成分の和が崩壊熱となる。中でも 東大弥生炉での測定は、精度や網羅性の観点から評価が高い。この種の測定では、照射 時間が冷却時間に比べ非常に短い場合がほとんどで、瞬時照射測定とよばれる。本題と は離れるが、「常陽」では集合体をまるごと特製のカロリメーターに入れ、長期にわたっ て崩壊熱を測るというたいへんユニークな測定が行われてきた[3]。ここでは照射も長期 にわたっている。

さて、日本の JENDL FP Decay Data File[4]を使った計算は、弥生炉をはじめとする積分 測定値を、 $\beta$ 、 $\gamma$ 成分ともに非常に良好に再現する。従って、上記 44 核種について、JENDL の  $E_{\beta}$ 、 $E_{\gamma}$ データをアイダホのデータで置き換えても、積分測定値との一致はそのまま保 持されるものと期待した。

図1、図2はU-235の弥生炉での瞬時照射後のFP崩壊熱積分測定値と、JENDL及びJEF2.2 に基づく計算値とを比較したものである。縦軸は慣例に従い、崩壊熱f(t)そのものではな く、それに冷却時間tを掛けた $t \times f(t)$ で表示してある。また、崩壊特性の知られていな い、もしくは不十分にしか知られていない短寿命 FP 核種の $E_{\beta}$ 、 $E\gamma$ 値を、日本に習ってβ 崩壊の大局的理論に基いて推定している ENDF/B-VI は JEDNL と殆ど同じ挙動を見せる ので、煩雑さを避け、これらの図には載せていない。

図 2 のβ線成分では、アイダホの TAGS データ(以下 TAGS データと記す)の導入前(実 線)と導入後(点線)で顕著な差異はなく、どの場合もほぼ測定誤差内に収まっている。 しかし、図 3 のγ線成分では TAGS データ導入の効果は顕著である。TAGS データ導入前 は著しく過小評価であった JEF2.2 は誤差棒の下端にはぼ収まるところまで改善されてい る。一方、測定値そのもの(〇)をほぼ貫いて走っていた JENDL は、冷却時間 10 秒か ら数百秒で特に増加し、実験値の誤差棒上端をつなぐような結果となっている。

図4には瞬時照射後の全崩壊熱(あるいは単に崩壊熱)を示す。これはすでに示したβ 線成分とγ線成分の和であり、実際の原子炉崩壊熱ではこの和がまず問題となる訳である。 全崩壊熱で見ると冷却時間10秒~1000秒で明らかに過小評価であったJEF2.2が誤差棒 の下端になんとか入り、JENDLではやや大きくなりながらもほぼ測定値を再現している。

このように、全崩壊熱で見る限り、期待どおり JENDL の  $E_{\beta}$ 、 $E_{\gamma}$ データをアイダホのデー タで置き換えても積分測定値との一致ははぼ保持された。しかし、  $\beta$ 線と $\gamma$ 線の両成分に 分けてみると、特に $\gamma$ 線成分で、これまで合っていなかった JEF2.2 では顕著な改善が見ら れる一方、JENDL ではかえって一致が悪くなってしまった。



図 2 TAGS データ導入の効果; U-235 瞬時照射後の崩壊熱β線成分



図3 TAGS データ導入の効果; U-235 瞬時照射後の崩壊熱γ線成



図 4 TAGS データ導入の効果; U-235 瞬時照射後の全崩壊熱(β+γ)

#### 4. 長期照射後の崩壊熱への影響

前節では実験値との比較を目的に、瞬時照射後の崩壊熱を、そのβ線成分、γ線成分に 分けて見てきた。ここで問題とされた冷却時間 10 秒~10000 秒は、原子炉の冷却材喪失 事故(LOCA)に関連して重要となる時間帯である。しかし実際に考えられる LOCAで は、瞬時照射ではなく長期照射が問題となる。そこで一年照射後の崩壊熱に対して TAGS 導入の効果を見たのが図 5 である。この図では縦軸は照射時間のかからない崩壊熱値そ のものであるので、値は時間とともに一様に減少してゆく。しかしこの表示では各計算 値間の差異が見にくいので、図 6 に JENDL、JEF2.2 への TAGS データ導入によって、そ れぞれの一年照射後の崩壊熱が何%変化したかを、同じく冷却時間の関数として示した。 JENDL の場合、冷却時間 10 秒での 0.7%強から次第に減少し、1500 秒でマイナスに転じ、 数千秒で-0.2%程度となる。学会推奨値[5]では、この冷却時間帯で 1.1%~0.8%とかなり 小さな誤差値をとっているが、TAGS 導入効果はこの推定誤差より小さい。JEF2.2 の場合 TAGS 導入による変化は JENDL の場合の 2 倍強と大きい。以上、U-235 だけを採り上げ て議論してきたが、参考のため Pu-239 についての同様な図を付す(図 7)。





図 6 TAGS データ導入の効果; U-235 一年照射後の全崩壊熱(β+γ) TAGS データ導入によるの JENDL、JEF2.2 計算値のパーセンテージ変化



図 7 TAGS データ導入の効果; Pu-239 一年照射後の全崩壊熱 (β+γ)

#### 4. おわりに

ここまで、TAGS データの導入により、積分実験値を非常に良好に再現していた JENDL で、特にそのγ線成分の再現性が低下(過大評価)することを述べた。しかし、一方では、 実際に問題となる長期照射後の冷却時間 10~10000 秒での TAGS データの導入による変 動は高々0.7%強であり、崩壊熱総和計算の実用上、影響はそれほど大きなものではない。 また、TAGS データそのものの信頼性評価はたいへん難しい。OECD/NEA の核データ評 価ワーキングパーティー(WPEC)も TAGS データの扱いに興味をもち、サブグループの 立ち上げを打診されているが、問題を詰めてゆくための方向性が出しにくく大いに悩ん でいる。本稿脱稿後の9月、筑波に続く核データ国際会議(ND2004)が Santa Fe 開催さ れるが、参加者リストに、冒頭で述べた Jose L. Tain 氏の名が見える。欧州 TAGS 計画の 進捗をぜひ詳しく聞いてきたいと思っている。

### 参考文献

- [1] R.C. Greenwood et al., Nucl. Instr. and Meth.: A390 (1997) 95 and references therein
- [2] A.A. Sonzogni, Nucl. Data Sheets: 93 (2001) 599
- [3] S. Maeda et al., Annals Nucl. Engery: 31 (2004) 1119
- [4] J. Katakura et al.: JENDL FP Decay Data File 2000, JAERI 1343 (2001)
- [5] 崩壊熱の推奨値とその使用法(「原子炉崩壊熱とその推奨値」別冊)、日本原子力学 会(1990)