

企画セッション（核データ部会主催）

「先端データサイエンスの核データへの適用」

(2) 核データ共分散の利用および Total Monte Carlo 法による誤差伝播

東京工業大学

科学技術創成研究院 先導原子力研究所

山野 直樹

yamano@lane.iir.titech.ac.jp

1. はじめに

炉物理解析、遮蔽解析や廃止措置に伴う放射化放射能の評価において、核データの不確かさに起因する誤差評価は原子力設計手法の信頼性向上および Verification and Validation (V&V) の観点から重要な課題である。

炉物理分野では断面積の不確かさに起因する炉物理量の影響を評価するため、Boltzmann 輸送方程式並びにその随伴方程式と断面積共分散を用いた一般化摂動法が実効増倍係数などの炉物理量の感度解析に適用されている。遮蔽解析や放射化解析にもその適用が試みられているが、後述するように中性子の流れの場における誤差伝播を精度よく評価するためには幾つかの課題が存在する。

核データ共分散の利用の観点から、この課題を解決できる Total Monte Carlo (TMC) 法による新たな不確かさ解析手法を構築した。本報では幾つかの適用例を示しながら、TMC 法による不確かさ解析手法を紹介する。

2. 核データの不確かさの誤差伝播

評価済核データには最確値としての評価データが格納されているのは言うまでもないが、評価者は実験値の誤差や計算値に含まれる不確かさを評価して、その誤差データを共分散ファイル（MF30～40）に格納している。この共分散ファイルと一般化摂動法を用いて、断面積誤差から注目する物理量への誤差伝播を計算することができる。

しかしながら、JENDL-4 [1]の評価済核データライブラリには全ての核種について共分散ファイルが格納されてはおらず、また格納されている核種でも表 1 に示すように一部のデータのみが格納されており、全ての共分散データが評価されているわけではない。これらの完備していないデータの取り扱いが今後の課題である。

表 1 ENDF-6 型式と JENDL-4 に格納されている共分散データ

MF 番号	共分散の種類
31	核分裂当たりの平均中性子数 $\bar{\nu}$ の共分散
32	共鳴パラメータの共分散
33	断面積の共分散 (異なる反応間の相関なし)
34	二次中性子の角度分布の共分散 (MT=251 のみ)
35	二次中性子のエネルギー分布の共分散 (MT=18 のみ)
40	放射性核種生成の共分散 (なし)

3. 不確かさ解析手法

新たに構築した手法は T6 [2] と SANDY [3] を用い、TMC [4] 法を適用した図 1 に示す流れに沿って下記の手順により解析を行う手法である。

(1) T6 を用いて評価済み核データ (JENDL-4) の断面積を再現した後に、各種モデルパラメータをランダムに振って 1,000 個のランダム核データファイルを生成する。

T6 は下記に示す断面積計算コード群であり、これを用いる理由は、JENDL-4 に共分散データが存在しない異なる反応毎の相関や二次中性子の角度・エネルギー分布の相関の情報を補完することができることにある。共分散データが全く無い場合でも断面積を可能な限り再現することで、断面積の評価値と整合性のある共分散データを作成することが可能となる。炉物理分野の一部で、JENDL-4 に共分散が無い核種に対して ENDF/B-VIII など他の共分散データを流用するケースが時折見受けられるが、評価ポリシーが違い断面積の値も異なる誤差データを流用することは、物理的にも論理的にも違和感がある。

(2) 共分散ファイルを含む核データファイルから SANDY を用いて 1,000 個のランダムファイルを生成し TMC 計算を行う。

SANDY はベルギーの MOL で開発されたコードで、コレスキー分解によって共分散付きの核データファイルから複数個のランダムファイルを生成する。共分散付きの核データファイルに存在する共分散情報のみを基にランダムファイルを作成できる。T6 で作成されたランダムファイルを用いた TMC 計算と比較することで、共分散データの相関情報の有無による影響を検討することができる。

(3) 各々 1,000 個のランダムファイルを用いて、TMC 法により対象とする物理量の期待値と分散 (標準偏差) を求める。

TMC は特定の計算コードではなくスクリプトで構成される。従って、TMC で用いるソルバーは利用者が注目したい物理量を計算する計算コードを組み合わせることで構成することができる。すなわち、利用者は対象とする解析に最適なソルバーを選択可能である。本手法では上記(1)または(2)で生成される複数個のランダムファイルを図 1 の下の部分であ

る TMC で用いることで、注目する物理量の期待値と分散を算出する。

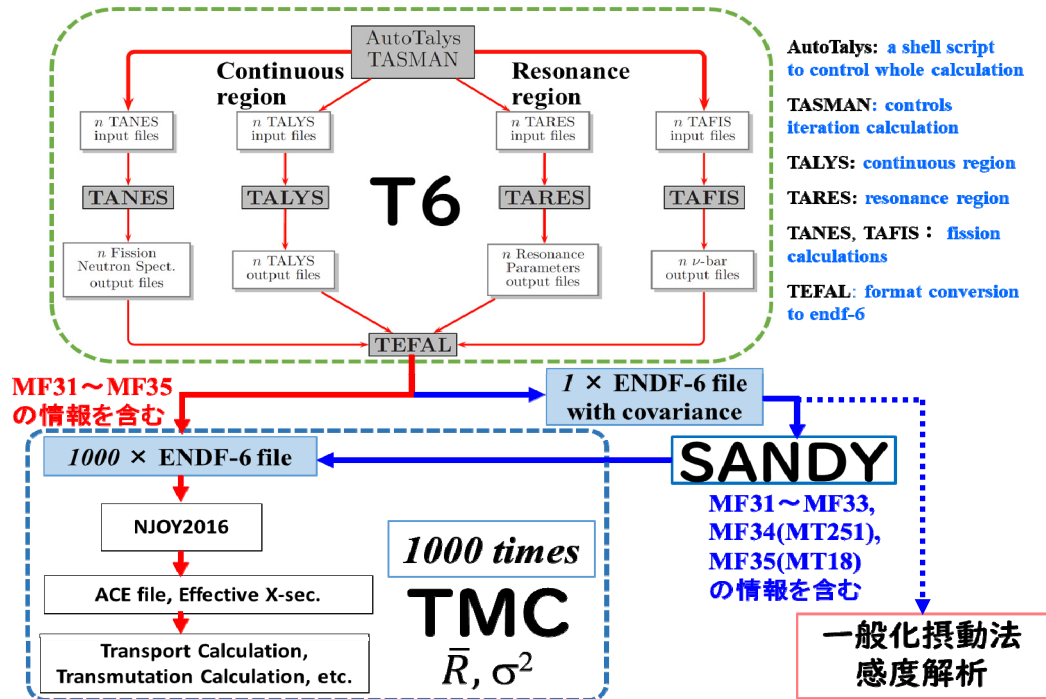


図 1 不確かさ解析手法の流れ

T6 は, NRG Petten で開発された核データファイルを生成するプログラム群の総称であり, アルファベット T から始まる 6 つのプログラム, TALYS, TEFAL, TASMAN, TARES, TAFIS, TANES から成っており, それぞれがスクリプト autotalys から呼び出され実行される。

- TALYS

TALYS は原子核反応を解析するコードで, 多様な反応を計算する。

- TASMAN

TASMAN は TALYS の結果を使って共分散 (covariance) データを生成するコードで, TALYS の結果と実験値を用いて自動的に最適化を行う。TASMAN は, TALYS の入力パラメータのランダム分布を生成し, 生成したそれぞれのランダムな入力ファイルについて TALYS を実行してその結果を収集して確率分布を生成する。

- TEFAL

TEFAL は計算結果を ENDF-6 型式に変換するコードである。

- TARES

TARES は ENDF-6 型式で共鳴と共分散情報を生成するコードである。ENDF などの評

価済み核データライブラリや EXFOR などに基づく共鳴パラメータを使用する。

- TANES

TANES は核分裂中性子スペクトルを Los Alamos モデルに基づいて計算する単純なプログラムである。

- TAFIS

TAFIS は、収率、即発中性子放出、その他核分裂の物理量を計算するのに用いられるコードである。

核データを評価して断面積を計算する際に、連続領域は TALYS が、共鳴領域は TARES が計算を担っている。これらの入力・出力を制御するシェルスクリプトが autotalys であり、基本的には autotalys にオプションを付けて実行する。

共分散（誤差）を計算する基本的な発想は、TALYS が計算に用いる入力パラメータと TARES が読み込む核データの共鳴パラメータのそれぞれが、不確かさ（uncertainty）を持っていると考えることである。入力パラメータと共鳴パラメータの値を各々、ある分布の中でランダムに変化させ、少しずつ違う断面積（ランダムファイル）を多数個計算する。これら多数個のランダムファイルを統計処理して、共分散を推定する。

筆者らはランダムファイルの総数を決めるために相関行列の収束性を検討した。図 2 に T6 による ^{99}Tc の全断面積の相関行列の収束性をサンプル数 10~1,000 について示す。分散の収束は相関行列の収束より早い。この図より 500 個のランダムファイルで相関行列の収束性はほぼ満足していると考えられるが、統計誤差を考慮して 1,000 個を標準とした。この相関行列の収束性は核種および反応毎に確認を行っている。

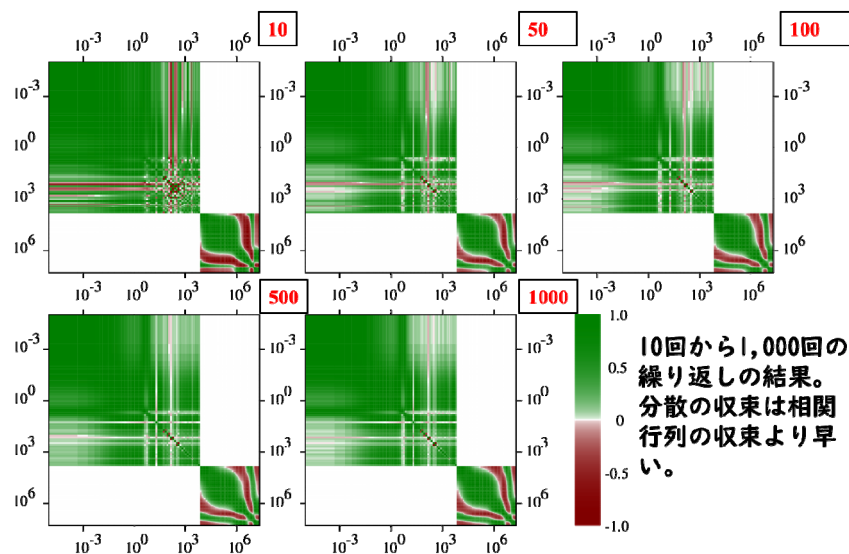


図 2 T6 による ^{99}Tc 全断面積の相関行列の収束性

4. 適用例

本節では、上記の TMC による不確かさ解析手法の実際の適用方法を理解して頂くために、下記の 3 つの具体的な例を述べる。

4.1 高速炉を用いた LLFP 核変換への適用 [5]

長寿命核分裂生成物 (LLFP) はその半減期の長さから、高レベル放射性廃棄物であるガラス固化体の深地層処分において数千年以上の長期にわたる放射能リスクとなる[6]。そのため、LLFP を効率良く短寿命核種に核変換することは、環境影響リスクを低減して社会受容性を高めることに貢献する。しかしながら、対象となる LLFP 核種の核データは測定値が少ない、あるいは全く測定されていないものがあり、断面積の不確かさを考慮した核変換率の評価が必要である。

LLFP 6 核種 (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs) を効率良く核変換できる「もんじゅ」相当の小型高速炉を用いた核変換システムが提案されている [7]。筆者らはこの小型高速炉核変換システムの LLFP 核変換率の不確かさを算出し、システムの成立性を検討する目的で、LLFP 断面積の不確かさによる LLFP 核変換率への誤差伝播を TMC 法による不確かさ解析手法で評価した。

提案されている小型高速炉核変換システムの核特性は JENDL-4 を用いて解析されている。JENDL-4 にはこれらの LLFP 核種の断面積は評価されているが、その共分散 (誤差) データは存在しない。筆者らは、先ず T6 を用いて JENDL-4 の LLFP 断面積を再現した後、各種モデルパラメータをランダムに振って 1,000 個の核データファイルを生成した。

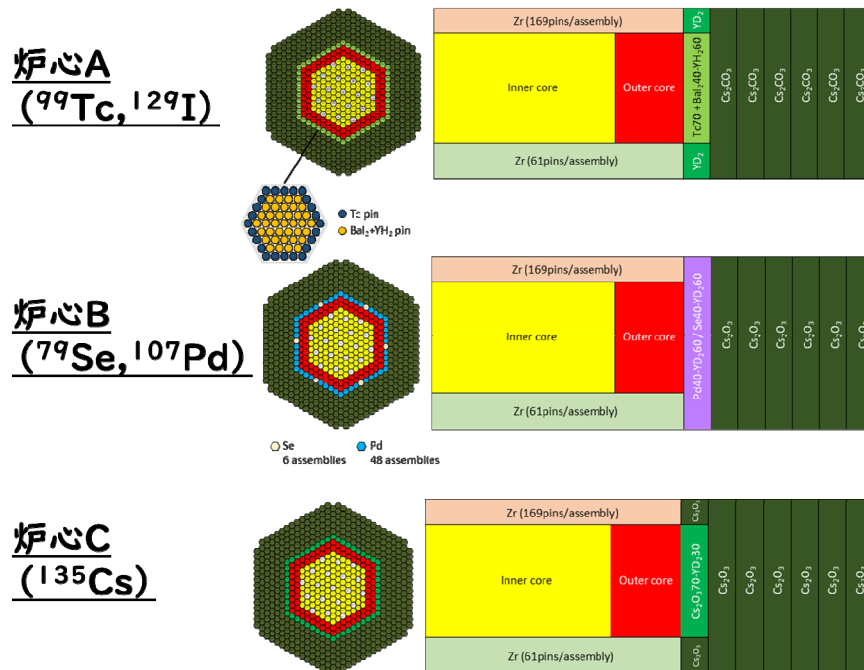


図3 小型高速炉核変換システム概念 (炉心 A, B, C) と LLFP 集合体の配置

次に, 図 3 に示すように LLFP 6 核種 (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs) を含む集合体をブランケット領域に配置した「もんじゅ」相当の 3 つの核変換炉の炉心計算 (MVP-II 及び MARBLE2) により得られた中性子スペクトルを用いて, この核データファイルから 1,000 セットの実効 1 群断面を作成し, 図 4 に示すように TMC 法による 1 年照射における核種生成消滅計算によって LLFP 核種の核変換率とその不確かさを算出した。

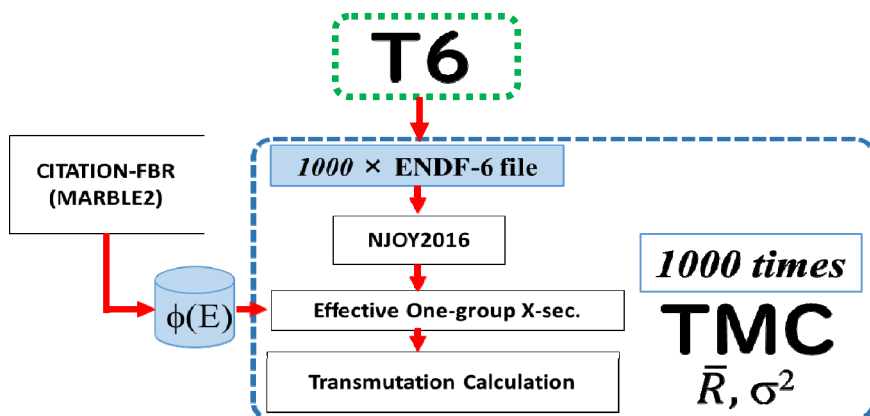


図 4 小型高速炉核変換システムに適用した TMC 法

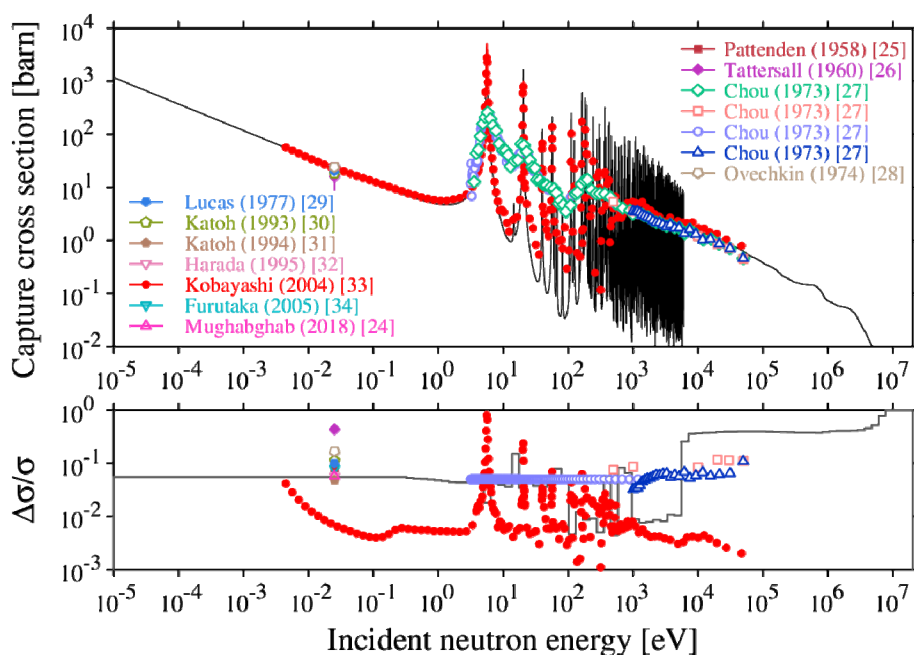


図 5 T6 のランダム計算で生成した ^{99}Tc 捕獲断面積と測定値の比較

図 5 に T6 のランダム計算で生成した ^{99}Tc 捕獲断面積と測定値の比較を示す。熱エネルギーでは Mughabghab の評価値 [8] とその誤差を再現するように調整し, 共鳴領域より上の連続領域では大きめの誤差を設定した。連続領域の各々の測定値の誤差は 10% 以下

であるが、測定値間のばらつきがそれよりも大きいため、ここで設定した誤差は妥当であると考えられる。他の核種についても測定値のあるものは同様に調整を行った。図 6 に T6 のランダム計算で生成した LLFP 6 核種の捕獲断面積の相対標準偏差と相関行列を示す。

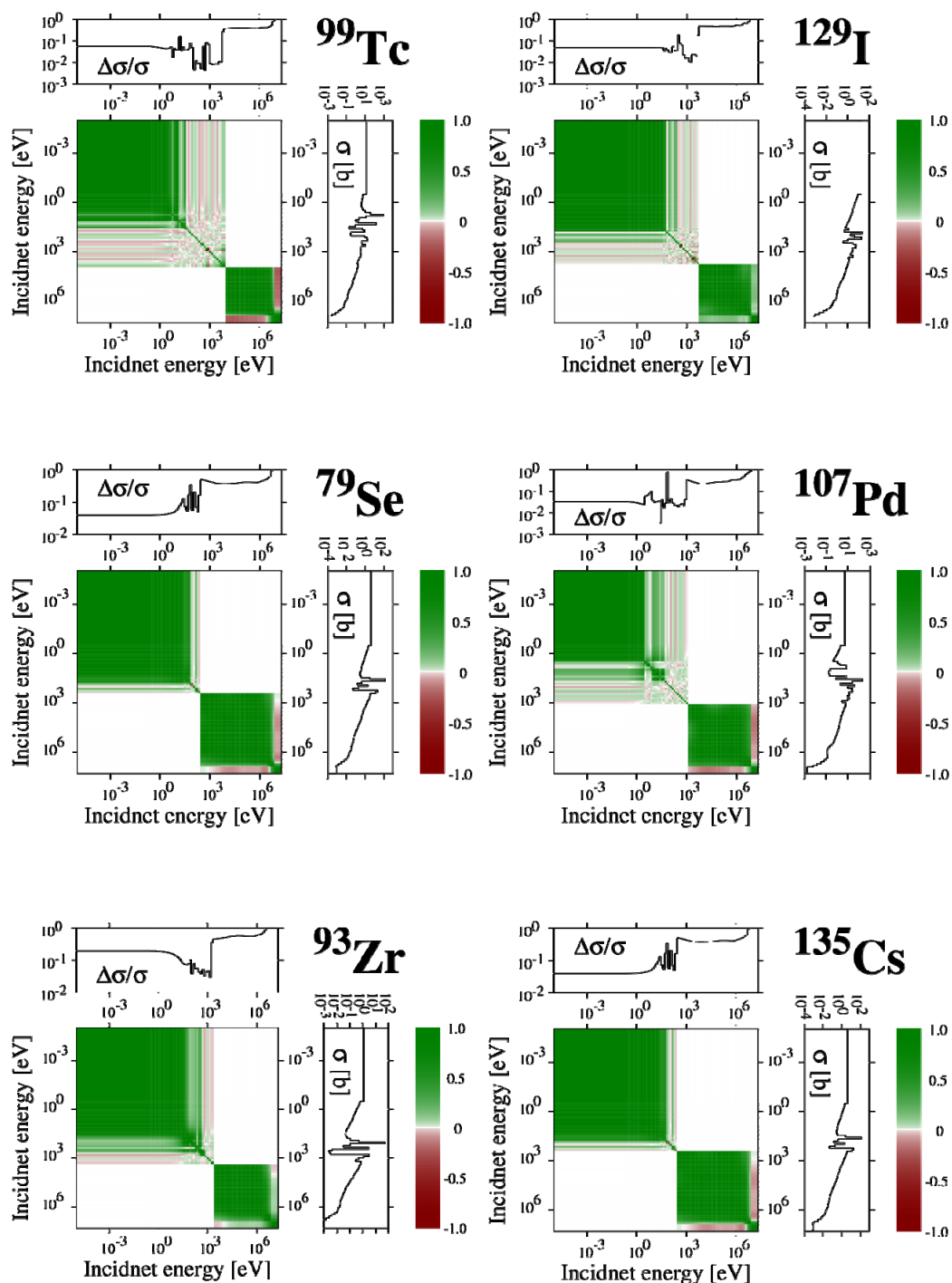


図 6 T6 のランダム計算で生成した LLFP 6 核種の捕獲断面積の相対標準偏差と相関行列

本手法で計算された, A, B, C の 3 つの炉心を同時運転した時の各 LLFP 核種の 1 年間の核変換量を炉心での生成量で除したサポート比 SR (=1 年間の核変換量/1 年間の炉心での生成量) を図 7 に示す。

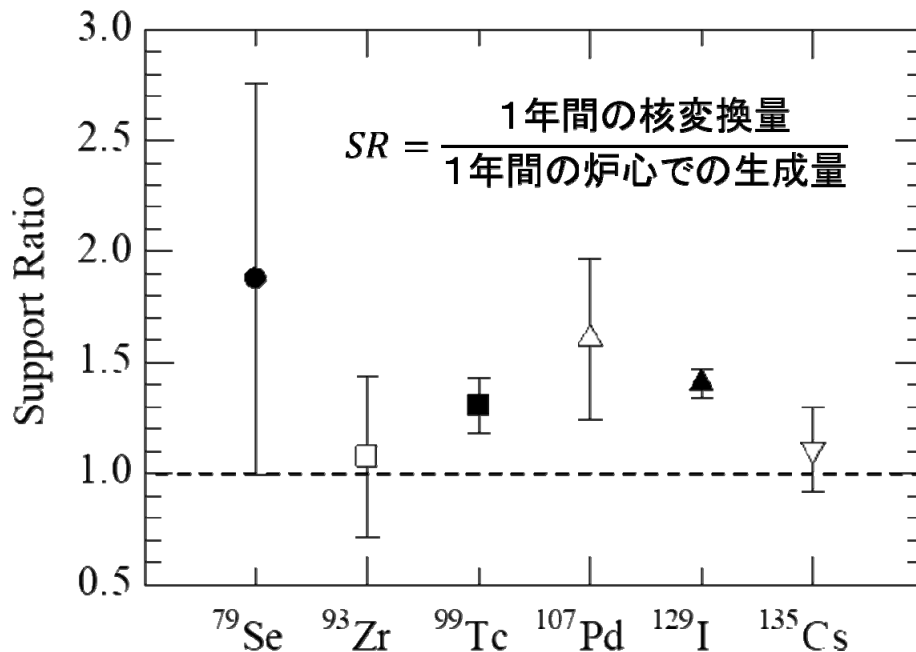


図 7 3 炉心同時運用時のサポート比 (SR) ±1σ

この結果より, 断面積の不確かさを考慮しなければ, いずれの核種も $SR > 1$ であり, 核変換量が炉心での生成量を上回っている。しかしながら, 断面積の不確かさ ($\pm 1\sigma$) を考慮すると ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{135}Cs は $SR \leq 1$ となる可能性があることが分かる。 ^{79}Se の不確かさが大きいのは断面積の測定値がなく, 不確かさが大きいことによる。このように, 核変換システムの成立性を検討するためには, 評価済み核データの最確値の解析だけではなく, 不確かさの誤差伝播を評価することが重要である。

4.2 コンクリート深層透過問題への適用 [9]

中性子透過問題における断面積の不確かさに起因する誤差評価は遮蔽安全解析や廃止措置の放射化放射能評価に重要である。ここでは, ^{28}Si 断面積の不確かさによるコンクリート深層透過の中性子線量への誤差伝播を, 図 8 に示すように T6 と SANDY の両者を用いた TMC 法による比較を行い, 散乱の角度依存性を含めた検討を行った。

JENDL-4 には ^{28}Si の共分散データは存在しない。そのため, 先ず T6 を用いて JENDL-4 の ^{28}Si 断面積を再現した後に, 各種モデルパラメータをランダムに振って 1,000 個のラン

ダムファイルを生成すると同時に、共分散ファイル (MF32, MF33, MF34 [MT251]) を作成し、SANDY を用いて 1,000 個のランダムファイルを生成した。

各々 1,000 セットの群定数を作成し、300 cm 厚のコンクリートに対する中性子透過問題を一次元 Sn 輸送計算コード ANISN で計算し、中性子線量の期待値と標準偏差を比較した。

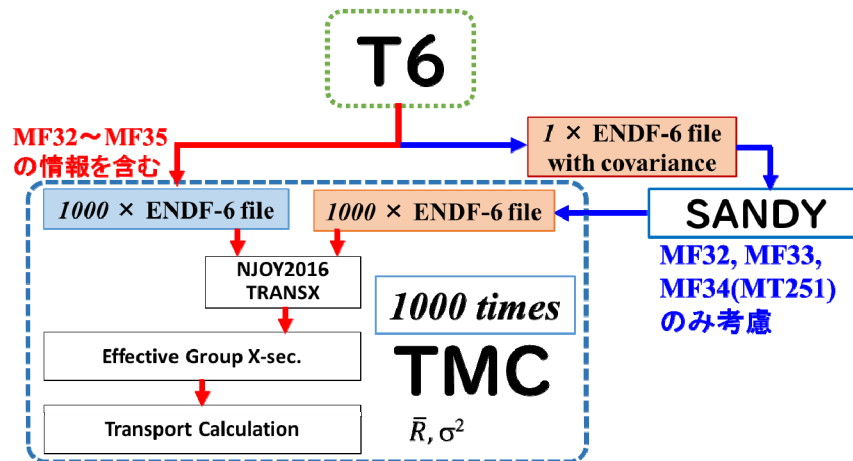


図 8 コンクリート深層透過問題に適用した TMC 法

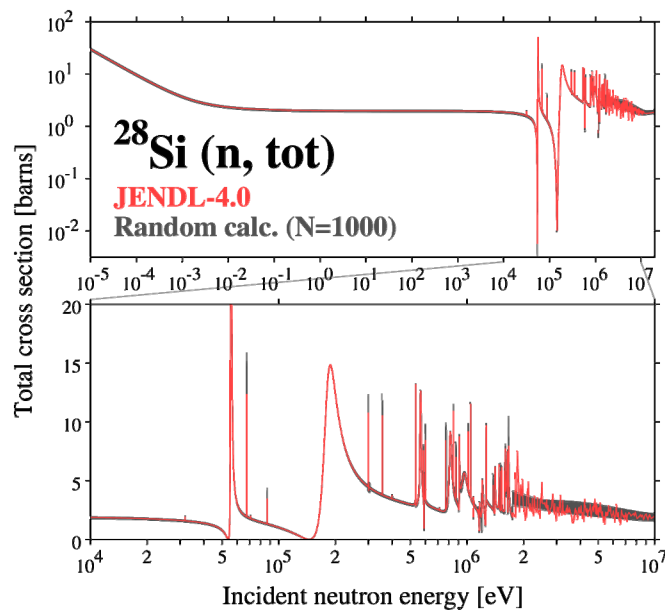


図 9 T6 のランダム計算で生成した ^{28}Si 全断面積と JENDL-4 の比較

図 9 に T6 のランダム計算で生成した 1,000 セットの ^{28}Si 全断面積 (灰色で表示) と JENDL-4 (赤線) の比較を示す。T6 は JENDL-4 の評価値を共鳴領域から連続領域までは再現していることが分かる。ANISN 計算体系は、図 10 に示す一次元球体系で、中心か

核データニュース, No.129 (2021)

ら 100cm までを空気層として, その後 300 cm 厚の輝緑岩コンクリートとした。左側境界は反射条件, 右側境界は真空条件とし, 線源は U-235 核分裂中性子スペクトルを最初の 100 cm 空気層中に一様に分布させた。

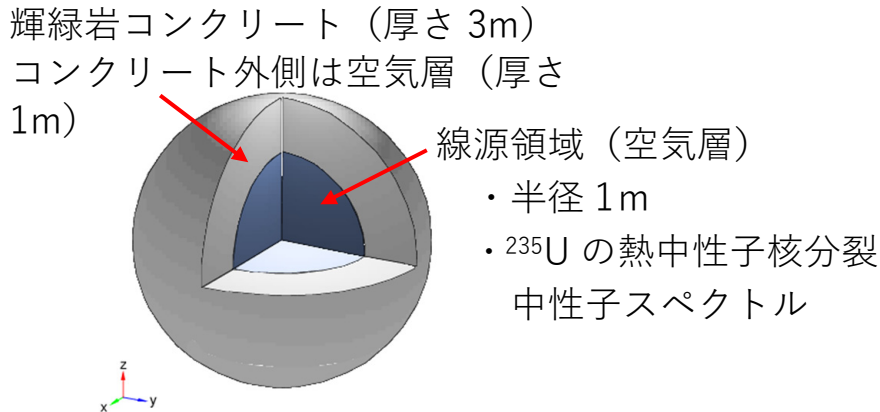


図 10 ANISN 中性子輸送計算体系

中性子 199 群 (VITAMIN-B6 群構造) の群定数は NJOY2016 および TRANSX を用いて作成した。ANISN の計算条件は P_5S_{16} である。

TMC 法で得られた T6 と SANDY による中性子線量分布の比較では, 線量の期待値は両者ではほぼ一致するが, その標準偏差が異なる結果となった。この原因を探るため, T6 で作成した 1,000 個のランダムファイルの二次中性子の角度分布の摂動を全て無視した計算を行うと, その結果は SANDY の結果と一致した。

SANDY は T6 で作成された共分散ファイル MF32, MF33, MF34 (MT251 のみ) の情報を用いる。他方, T6 で作成されたランダムファイルは二次中性子の全ての角度分布の摂動が考慮される。光学定理で明らかな通り, 全断面積と前方弾性散乱断面積には正の相関がある。パラメータの摂動による全断面積の変化による中性子透過率の変化を打ち消すように前方弾性散乱断面積が変化するため, 微分散乱断面積の摂動を全断面積の摂動と同時に考慮すると中性子線量の標準偏差が低減することが示された。このように, 透過問題のような中性子の流れの場の誤差評価には二次中性子の角度分布の不確かさを考慮しなければならない。

4.3 廃止措置のクリアランス検認への適用 [10]

廃止措置で発生するクリアランス対象廃棄物の処理処分の合理化ならびに信頼性向上のため, 不確かさの影響を定量的に評価することは, クリアランス対象物に対する過度の安全尤度を除くことを可能とする。ここでは生体遮蔽コンクリート中の主要な放射性

核データニュース, No.129 (2021)

核種である ^{60}Co , ^{152}Eu に着目して, それらを生成する ^{59}Co , ^{151}Eu の (n, γ) 断面積の不確かさによるクリアランス判定条件 D/C (放射能濃度/法定クリアランスレベル) に対する誤差伝播を検討した。対象は浜岡 1 号機を想定し, 評価位置は炉心中心高さ, 生体遮蔽コンクリート内側表面から深さ 30cm 位置である。JENDL-4 の ^{59}Co , ^{151}Eu 断面積を再現した後に, 各種モデルパラメータをランダムに振って 1,000 個のランダムファイルを生成し, 評価位置での中性子スペクトルで重みづけした実効 1 群断面積を用いて ORIGEN2 をソルバーとした TMC 法により, 定格負荷相当年数 16.2 年の連続照射後, 40 年までの冷却期間における D/C とその相対標準偏差を算出した。その結果, 断面積由来の D/C の不確かさは ^{60}Co , ^{152}Eu とともに 2 % 以下であることが分かった。

5. おわりに

新たに構築した不確かさ解析手法は, 既存の核データの共分散データが利用できると共に, 現在の ENDF-6 型式では取扱いが容易ではない MF34, MF35 の情報を直接与えることが可能な T6 と TMC 法の組み合わせを用いて, 核データの不確かさによる炉物理諸量への誤差伝播を評価できる。本報ではその応用として, 核変換, 深層透過, 廃止措置への適用例を示した。本手法は炉物理解析, 遮蔽解析や廃止措置に伴う放射化放射能の解析など多分野に適用することが可能である。

参考文献

- [1] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J. Katakura, “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” J. Nucl. Sci. Technol. 48(1) (2011) 1-30.
- [2] A.J. Koning, D. Rochman, Nuclear Data Sheets 113 (2012) 2841.
- [3] L. Fiorito, et al. Ann. Nucl. Energy 101 (2017) 359-366.
- [4] A.J. Koning, D. Rochman, Ann. Nucl. Energy 35 (2008) 2024-2030.
- [5] N. Yamano, T. Inakura, C. Ishizuka and S. Chiba, “Estimation of uncertainty in transmutation rates of LLFPs in a fast reactor transmutation system via an estimation of the cross-section covariances,” J. Nucl. Sci. Technol. 58(5) (2021) 567-578.
- [6] Nuclear Waste Management Organization of Japan. “Comprehensive technical report, realization of safe geological disposal in Japan -building a safety case for selecting an appropriate site-, review version.” Nuclear Waste Management Organization of Japan (Tokyo); 2018. (NUMO report NUMO-TR-18-02). Japanese.
- [7] T. Wakabayashi, M. Takahashi, S. Chiba, et al. “A fast reactor transmutation system for 6 LLFP nuclides.” Nucl Eng Des. 2020;363:110667.

核データニュース, No.129 (2021)

[8] S. Mughabghab, Atlas of neutron resonances. 6th ed. New York (NY): Elsevier Science; 2018.

ISBN-9780444637697.

[9] 山野直樹他, 日本原子力学会 2020 年秋の大会 1N06 (2020).

[10] 網谷達輝他, 日本原子力学会 2020 年秋の大会 1N05 (2020), 2021 年春の年会 2E10 (2021).