

## 核データ部会・「シグマ」特別専門委員会合同企画セッション

### (3) 臨界安全からみた核データに対する要求

原子力機構 (現 文部科学省)

須山 賢也

#### 1. 核データと臨界安全の関係

核燃料サイクル施設の建設や運転が活発に行われていた1950年代から60年代に英米露で少なからぬ臨界事故が発生したこともあり、当時から事前の臨界安全性評価に資するための技術開発は積極的に行われてきた。例えば、核燃料サイクル施設の臨界安全評価では解析対象となる体系が複雑な形状を有している場合が多く、現在では原子力に留まらず様々な分野に適用されているモンテカルロ法の利用が第一に促進されてきたのは臨界安全評価の分野であった事はその一例である。同時にコードの入力となる核データの精度向上に対する要求も大きく、核データのコミュニティもそれに積極的に応えてきた。すなわち、臨界安全と核データは相思相愛とも言える関係を構築してきた。

核データと臨界安全の関係の深さを示す例は、米国INLが中心となって開始された国際臨界安全評価プロジェクト (ICSBEP) かもしれない。ICSBEPでは数多くの臨界実験データの評価が各国の専門家によって詳細に行われ、その結果がDVD (以前はCDに収まっていた) あるいはインターネットを通じて配布されている。これは自国において新たな実験データの取得は困難な状況に対応する米国の事情にもよるプロジェクトであったと私は思うが、折しも連続エネルギーモンテカルロコードを使用する事で核データに起因する計算誤差は以前より明確に認識されるようになってきたこと、活動に対して予算的措置が与えられプロジェクトの運営管理がなされていること、そしてOECD/NEAの枠組みを使った国際的な体制によって多くの国の協力を得る事が可能となった事など、さまざまな条件が重なって結果的に大成功を収めているプロジェクトである事は周知の事である。このICSBEPによって実験誤差の評価結果が含まれた詳細な実験データセットを誰でも容易に入手出来るようになったことは特筆すべき事である。現在核データの積分評価はICSBEPで評価をうけた実験の解析を通じて行われており、それ抜きでは評価が実施できないといっても過言ではなかろう。

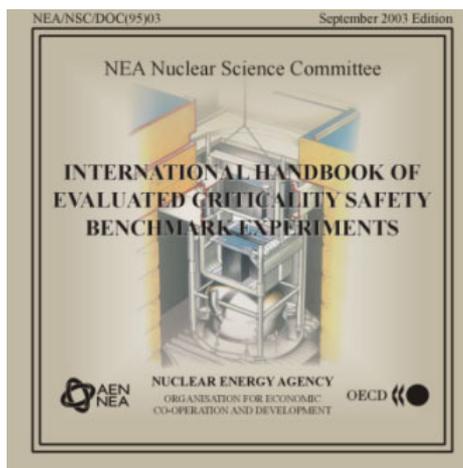


図1 ICSBEP

る側としても評価結果が対象によって極端に計算精度が良かったり悪かったりといった、大はずれがない方が使い勝手が良いのである。もちろん、古いデータを使わなければならない理由が無ければ、新しく精度の良い信頼性の向上したデータを使用したいという願いも廃れることはないのだが。このあたりの考え方は臨界安全評価者の考えにもよって異なる。

臨界計算コードシステムの精度評価の様子を説明するため、図2に臨界安全ハンドブック第2版に記載されている臨界安全評価を実施する際の各種中性子増倍率の関係を示した。計算コードの精度評価は臨界実験データの解析を通じて行われ「この中性子増倍率以下であれば未臨界であると判定される中性子増倍率」を得る。この値は推定臨界下限増倍率 $k_L$ と呼ばれ、コードとライブラリからなる解析システム毎、そして、低濃縮ウラン均質系、といったカテゴリーを指す解析対象毎に得られる値である。さらに、安全裕度を考慮して、それ以下の値に最大許容増倍率 $k_A$ が設定される。一方、安全評価モデルにおいて様々な条件の変化を考慮してもこの中性子増倍率以上にはならないという値 $k_P$ が求められ、 $k_A \geq k_P$ であれば未臨界と判定される。逆に言えば、 $k_A \geq k_P$  となるように設計をすることとなる。

ところで、臨界安全分野の特徴はその保守性にあると言える。上述のように相思相愛と言いつつ、核データが新しければ良いというものではない。利用者の立場からすれば新しい核データが出たからといってすぐにそれに乗り換えるということはなく、たとえ核データの評価誤差が大きくても、誤差の大きさと傾向がきちんと把握されていることがとても重要である。なぜなら臨界安全評価では保守的な中性子増倍率が得られるように作成された安全評価モデルによって解析評価が行われるため、利用す

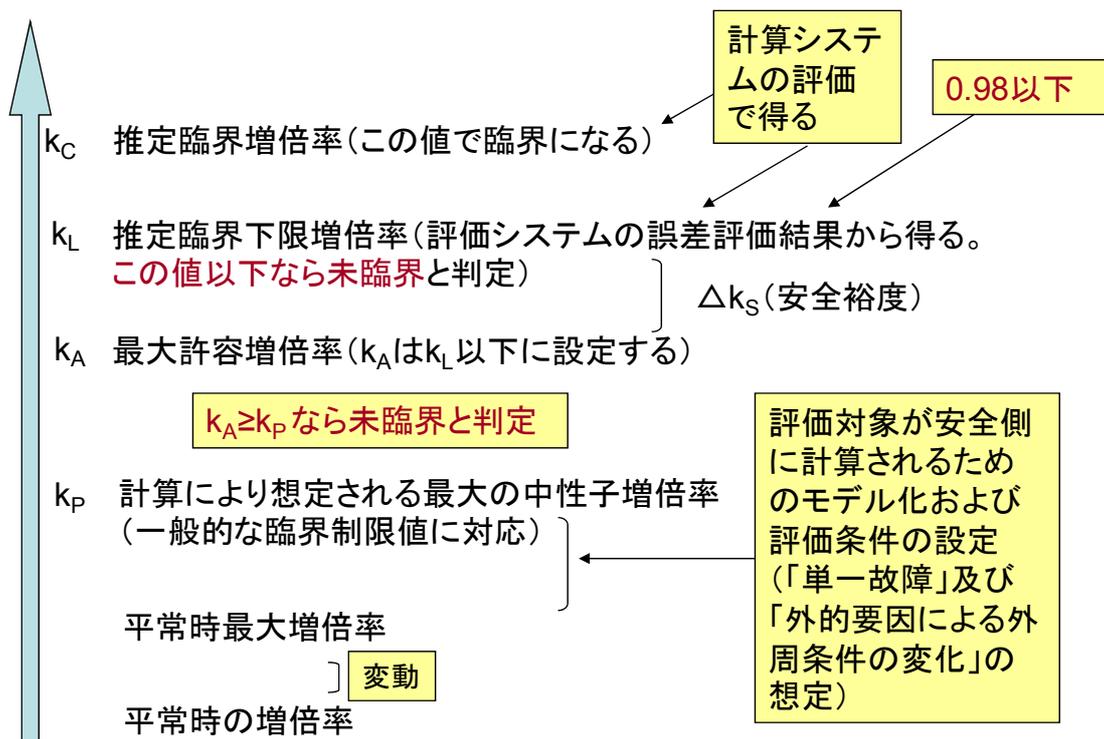


図2 臨界安全評価における各種増倍率の関係（各増倍率の大小関係のみを示した）

現在、ICSBEPのような品質保証された実験データを使用して最新の核データと連続エネルギーモンテカルロコードの組み合わせで臨界計算コードシステムの精度評価を行うと、非常に高い計算精度が得られる。たとえば、低濃縮ウラン均質系の場合などでは、最新の計算コードとライブラリの組み合わせによって推定臨界下限増倍率を求めると、1に非常に近い値を得ることが出来る。このような計算精度の向上は安全評価の信頼性の向上に資するもので、我々が目指しているものであるが、これをもって推定臨界下限増倍率を精度評価の結果得られた1に近い値にして良いということにはつながらない。なぜなら、臨界安全ハンドブックでの決まりにより、推定臨界下限増倍率が0.98以上になった場合には0.98に固定されることとなっているからである。すなわち、安全評価結果の適用方法の変更がなければ、今後どのように核データの精度が向上しても、臨界安全評価の結果が適用される核燃料施設の安全裕度の適切化などに直接結び付かないこととなる。

## 2. フロンティアはどこに

このように書けば、臨界安全には核データ分野のフロンティアは無いように思える。しかし将来の核燃料サイクルの開発に目を向けると、核データに対する大きな要求をもつテーマがある事はすぐに理解される。

### ① 燃焼度クレジット導入に関する核データ（特に核分裂生成物の核データ）

これは、原子個数密度が given であった従来の臨界安全評価の方法からの脱却であり、

言い換えると、case-by-case の原子個数密度を利用して効率的な安全評価を行おうという考え方である。このためには原子個数密度の計算精度の向上、すなわち、炉物理計算の精度の向上が必要とされる。世界的に見れば、燃焼度クレジットの導入に熱心な国ではアクチノイドの生成消滅だけを考慮した燃焼度クレジットの導入が一段落し、現在は核分裂生成物（FP）の蓄積による反応度減少を取り入れるフェーズに移ってきている。

そのため、具体的には FP の中でも安定で使用済燃料の中で中性子吸収割合が大きく、燃焼度クレジットの評価で考慮して良い核種として選定されている  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{150}\text{Sm}$  の生成量評価や反応率評価に関わる核データ（中性子捕獲断面積、核分裂収率、崩壊定数、分岐比）の精度と信頼性向上の必要がある。一例として、図 3 に以前 JENDL-3.2 と SRAC95 を使用して評価された、選択された FP の反応度効果の和を 100%としたときの変化を示した。燃焼度が增大するにつれ、多くの核種が反応度効果を有するようになり、それぞれの同位体の生成量と反応度効果を正確に評価する必要が出てくる事が理解される。

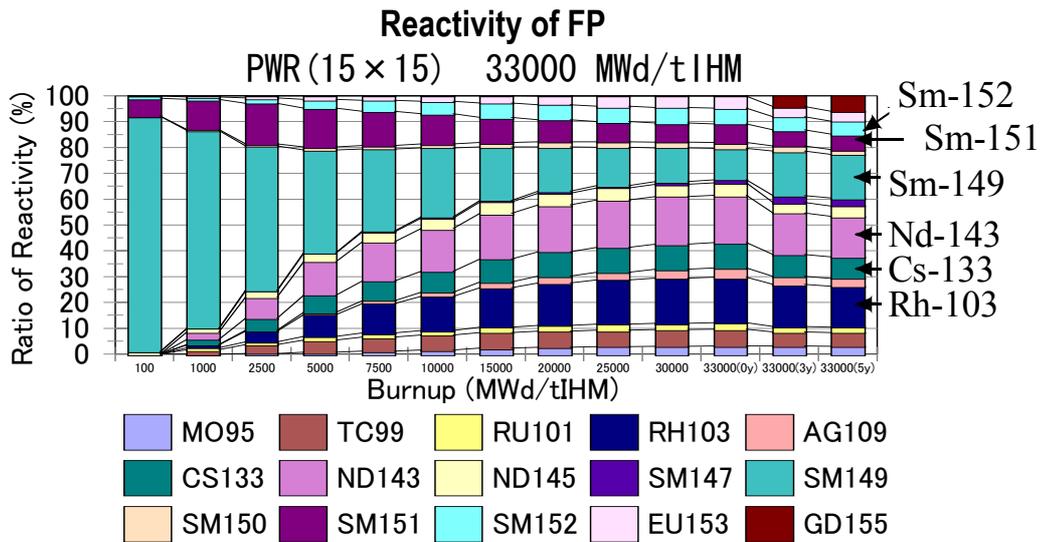


図 3 燃焼に伴う選択された FP の反応度効果

また、Sm, Eu, Gd の着目同位体の生成チェーンは複雑で、場合によってはその生成チェーンの上流側にまで注目する必要があることには注意を要する。たとえば、 $^{155}\text{Gd}$  は  $^{155}\text{Eu}$  の放射性崩壊を通じて生成されるので、 $^{155}\text{Gd}$  の生成量に注目する場合には、その親核である  $^{155}\text{Eu}$  を含むチェーンのデータに着目する必要がある。

もちろん、アクチニドのみを考慮する燃焼度クレジットで必要とされる核データも決して重要度は低くない。ウラン及びプルトニウムの核データでは、 $^{237}\text{Np}$  やその中性子捕獲反応の結果生成される  $^{238}\text{Pu}$  の生成に影響を与える反応である、 $^{235}\text{U}(n,\gamma)$ ,  $^{236}\text{U}(n,\gamma)$ ,  $^{237}\text{Np}(n,\gamma)$ ,  $^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$ ,  $^{238}\text{U}(n,2n)$  の各反応と、核分裂スペクトルを重要データとして指摘したい。JENDL では、従来  $^{238}\text{Pu}$  の生成量が過小評価となってきた。特に  $^{238}\text{U}(n,2n)$  反応を起因とするパスの  $^{237}\text{Np}$  や  $^{238}\text{Pu}$  生成への寄与も無視できない量があるため、それらのデータの確認は重要であろう。

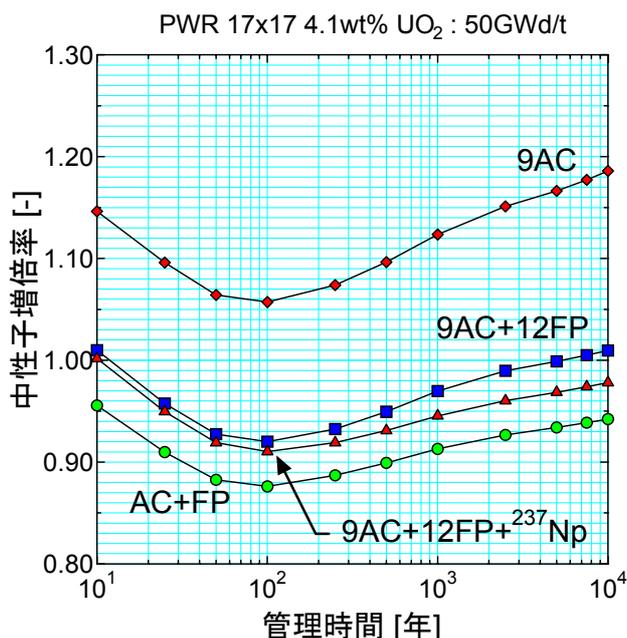


図4 PWR 単一ピンセル体系を対象にした使用済燃料中中性子増倍率の変化 (9AC はアクチニドのみの燃焼度クレジットで考慮される同位体、12FP は燃焼度クレジットで考慮して良い同位体として選定されている FP 同位体を示す)

また、 $^{237}\text{Np}$  はその生成量が多いが、燃焼計算の精度が良くないという理由で「燃焼度クレジット導入ガイド原案」(JAERI-Tech 2001-055)において、燃焼度クレジットで考慮して良いアクチニドのリストから外れている。図4には典型的なPWRを対象にした燃焼計算の後に崩壊計算を実施し、中性子増倍率の変化を示した。この図が示すように $^{237}\text{Np}$  の存在を考慮するかしないかで、使用済燃料の反応度低下は大きく異なるため、アクチニドのみの燃焼度クレジットであっても、その存在の考慮は今後議論がなされるかもしれない。また、 $^{237}\text{Np}$  は半減期が長くその娘核が $^{233}\text{U}$ の生成に寄与するために、長期間の冷却にともなう使用済燃料の中性子増倍率変化を評価する場合に非常に重要な役割を果たす。これらの事からその生成量評価と反応度効果評価に関わる断面積も重要になる。

## ② マイナーアクチニドの核データ

高燃焼度燃料の開発やプルトニウムの軽水炉での利用が検討されている。これらの燃料では生成される MA の量は既存の  $\text{UO}_2$  燃料よりも多く、その場合 MA の反応度効果の評価は重要である。

それらの燃料が再処理されれば、従来は問題とされなかった MA の臨界データが注目されることとなる可能性があるが、MA 単体をつかった臨界実験を実施することは困難であり、その臨界制限値は現在計算によって決定されるため、ライブラリの精度向上は重要であろう。

例えば表 1 に奥野等の論文に掲載されている Cm 同位体の使用するライブラリによる中性子増倍率の差を示したが、現在でもライブラリ間で 10%以上の差が存在しているのが現状である。したがって、それらの安全評価の信頼性のさらなる向上のために、MA 核種の核データの精度向上が望まれる。なお、JENDL で評価された MA 核データは ENDF や JEFF に取り入れられている実績があり、我が国の MA の核データは世界をリードしている分野であると認識している。今後ともその評価体制を保持・強化することをお願いしたい。

表 1 Cm 同位体の中性子増倍率の差 (H. Okuno, H. Kawasaki, "Critical and subcritical mass calculations of curium-243 to -247 based on JENDL-3.2 for revision of ANSI/ANS-8.15," Journal of Nuclear Science and Technology, 39[10], 1072-1085 (2002).より転載)

Table 4 Comparison of  $k_{\text{eff}}$ 's of a bare sphere for five curium isotopes,  $^{243}\text{Cm}$  to  $^{247}\text{Cm}$ , based on three evaluated nuclear data libraries: JENDL-3.2, ENDF/B-VI and JEF-2.2

Nuclide	Concentration (g/cm <sup>3</sup> )	Radius (cm)	$k_{\text{eff}}$			Relative to JENDL-3.2 $\Delta k_{\text{eff}}/k_{\text{eff}}$ (%)	
			JENDL-3.2	ENDF/B-VI	JEF-2.2	ENDF/B-VI	JEF-2.2
$^{243}\text{Cm}$	13.45	6	1.058	1.107	1.158	4.7	9.5
		$\infty$	3.553	3.577	3.653	0.7	2.8
$^{243}\text{Cm}$	0.03	15	1.029	1.163	0.895	12.9	-13.0
		$\infty$	2.118	2.335	1.863	10.2	-12.0
$^{244}\text{Cm}$	13.51	9	1.084	1.113	1.064	2.7	-1.9
		$\infty$	2.605	2.643	2.511	1.5	-3.6
$^{245}\text{Cm}$	13.57	6.002	0.998	1.086	1.197	8.8	19.9
		$\infty$	3.550	3.687	3.981	3.9	12.1
$^{245}\text{Cm}$	0.01	14.887	0.999	1.063	1.116	6.5	11.7
		$\infty$	2.115	2.251	2.343	6.4	10.8
$^{246}\text{Cm}$	13.62	10.713	0.999	1.150	1.150	15.1	15.1
		$\infty$	2.313	2.395	2.395	3.5	3.5
$^{247}\text{Cm}$	13.68	4.957	1.001	1.003	1.003	0.2	0.2
		$\infty$	3.924	3.793	3.793	-3.3	-3.3
$^{247}\text{Cm}$	0.20	17.062	1.001	1.004	1.004	0.3	0.4
		$\infty$	1.780	1.765	1.766	-0.9	-0.8

### ③ 廃棄物処分に関する核データ

廃棄物に関わる臨界安全性評価に必要な核データは、これまであまり注目されてこなかった分野であるが、Si など、土壌（地殻）を構成する元素の核データは今後重要になると思われる。図 5 には奥野等によって示された各種アクチニドの臨界濃度を示したが、

水減速よりも SiO<sub>2</sub> 減速の方が臨界濃度は小さくなっている。

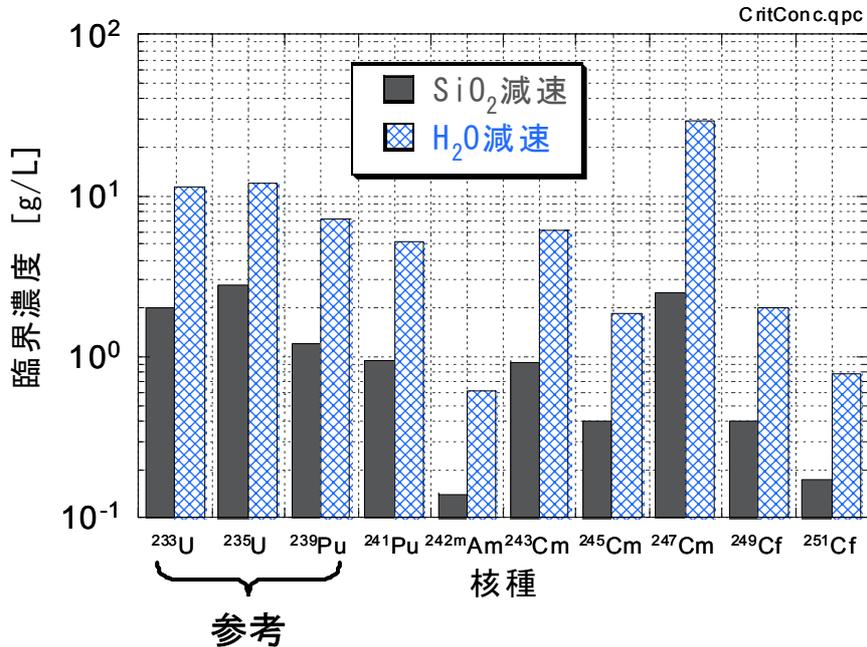


図5 減速材の違いによる各種アクチニドの臨界濃度（奥野、佐藤、川崎、“二酸化珪素または水を減速材とした臨界及び未臨界アクチニド濃度の計算,” 2006年原子力学会秋の大会, p.827より転載）

また、臨界安全とは直接関係ないが、<sup>135</sup>Csなどに代表される超長半減期のFPなど廃棄物安全評価で注目される同位体の生成量評価は、長期にわたる廃棄物の安全評価を進める上で必要とされる。しかし、使用済燃料の照射後試験によってその生成量を実測した例自体が世界的に見ても少なく、計算精度の向上が課題となる。これらは、燃焼度クレジットの場合と同様に、その生成に関わる核データ（中性子捕獲断面積、核分裂収率、崩壊定数、分岐比）の精度と信頼性向上が必須である。

### 3. 何が必要なのか

臨界安全評価の観点から核データへの要求を申し上げたが、そう特別な事を要求しているとは考えていない。ウランやプルトニウムといった既存の燃料サイクルへの適用という観点から必要とされた核種の同位体のデータの継続的な再評価もやはり必要であろう。これはそれらの核データの精度が要求以上に不足しているということではない。核データは様々な知見を合わせて評価されまとめられるものであり、常に新しい情報を含めた評価が為されるべきであるからである。その基礎的な認識の上で、他の応用分野で必要とされる核種へと着目される核種は移行し、中性子増倍率という積分値だけではな

く、その結果を与える要素（i.e.原子個数密度）の評価に必要なデータにも着目する必要性は確実に増大する、と言えようか。

最後に、現有実験施設の多くが老朽化等のために閉鎖されつつある状況を我々はもっとしっかりと認識する必要がある、という点は強く指摘しておきたい。このため核データと計算コードによる臨界安全評価の重要性はますます大きく、高精度な臨界安全評価システムにしっかりとその役割を果たしてもらい必要がある。現在の MCNP と MVP はすでにそのような立場にあると思うけども、それらへの入力となる核データの責任は重い。

さらに言えば、核データを評価提供する側の方には、是非サービスを提供するという視点を持っていただければ、と思う。これまでもそういう観点での作業が継続的に行われてきたと思うし、ユーザーは一般にワガママであるけども、それに付き合うことが核データへの理解者を増やし、また核データへのニーズの掘り起こしとか、研究テーマの発掘につながるはずである。もちろん、ユーザー側もただ単に核データを利用するのではなく評価側へのフィードバックをする事が可能な限り求められるであろう。「作りっぱなしにせず、また、使いっぱなしにしない」と。そういった循環をうまく回すことが、我が国の核データコミュニティのさらなる発展のために求められているのではないか。

最後にまとめると、臨界安全側から核データに対する要求が減じることは無く、これまで以上に関係者が協力をして、より高信頼度の核データを整備していく必要があると思う。従来のシグマ委員会がそのような役割を果たしていたと考えられるが、それに代わる枠組みが明確でない今こそ、関係者がしっかりと従来以上に協力関係を強化していく事が求められていると考えている。

(2009年1月 東海村にて)