

教育用核種生成・崩壊計算コード S-Decay の開発

松村 哲夫*¹ 亀山 高範*²

Development of Educational Code "S-Decay" on Nuclides Generation and Depletion

by

Tetsuo MATSUMURA*¹ and Takanori KAMEYAMA*²

(Received on April 14, 2021 and accepted on May 27, 2021)

Abstract

We developed the educational code "S-Decay" on nuclides generation and depletion. We used Microsoft Excel and VBA to fulfill an intuitive and user-friendly interface in the compact code. The neutron cross section library ORLIBJ40 based on JENDL-4.0 is used for reaction calculations in the code. Verification calculations with the S-Decay code were performed for changes of nuclide mass, radioactivity, decay heat, and emission rates of neutron or gamma rays in light water reactor fuel, and the calculation results were validated with those of the ORIGEN2.2 code and the ORLIBJ40 library. In the S-Decay code, discrete gamma ray emission data are also extracted from JENDL/DDF-2015, and the data table is also available. Since the code has compact calculation functions and visualizes the data of calculation inputs and outputs on Excel, it is easy for beginners to learn and handle the code properly. The S-Decay code is open for the public, and is useful for both students and trainees.

Keywords: Generation and depletion, Nuclide, Neutron, Gamma ray, Decay heat, Excel + VBA, Bateman method

1. まえがき

使用済燃料内の放射性核種の質量、放射能、発熱量、中性子照射による放射化量などの評価は原子力施設での被ばく線量などの安全評価の基礎となる数値である。放射性核種の生成と崩壊を計算する計算コードとしてはORIGEN2¹⁻³⁾、DCHAIN⁴⁾などが既に開発され、実務でも広く使われている。

学生などの初学者がコードのインストール作業なく簡便に利用するため、Microsoft 社 Excel + VBA を用いた核種の生成・崩壊計算コード S-Decay を開発した。

放射性核種の生成と崩壊の計算には Bateman 法、Matrix Exponential 法、これを改良した Krylov Subspace 法⁵⁾など幾つかの計算手法が開発されているが、それぞれの手法には一長一短がある。Bateman 法は、放射性核種の生成・崩壊方程式を解析的に解く手法であり、簡便で計算精度は高いが、後述する循環問題を解けないなどの欠点がある。

S-Decay では簡便な Bateman 法を採用し、循環・重根問題などについては近似法を採用することで、それらの問題を回避している。

米国オークリッジ国立研究所 ORNL で開発された核種崩壊生成計算コード ORIGEN2 は日本国内でも広く利用されているが、ORIGEN2 に付属するライブラリセットが

更新されない課題があった。このため、国立研究開発法人原子力研究開発機構 JAEA で最新の評価済み核データライブラリ JENDL-4.0 をもとにした ORIGEN2.2 用の断面積ライブラリセット ORLIBJ40 が開発された⁶⁾。S-Decay では ORLIBJ40 を変換処理した計算ライブラリを使用し、その計算結果を、ORIGEN2.2 と ORLIBJ40 の組み合わせによる計算結果と比較し、検証した。また、任意のエネルギー群の γ 線放出量を計算するため、JENDL 崩壊データファイル JENDL/DDF-2015⁷⁾から抽出した個別 γ 線放出テーブルの利用も可能である。

2. 放射性核種の崩壊と中性子との核反応

放射性核種は半減期 $T_{1/2}$ で種々の崩壊を起こし、その際に γ 線を放出する。原子力施設での主要な γ 線源である ^{60}Co と福島第一原子力発電所事故後の主要な環境放射線源である ^{137}Cs の核崩壊を Fig. 1 に示す。 ^{60}Co は β^- 崩壊を起こし、 ^{60}Ni の 2 段の高エネルギー励起準位に移るが、この 2 段の励起準位から直ちに 1.173MeV と 1.332MeV の 2 本の γ 線を放出して基底状態に移行するため、 ^{60}Co は ^{60}Ni の基底状態に直接崩壊すると見なされる。一方、 ^{137}Cs は 94.6% の割合で ^{137}Ba の励起準位 ($^{137\text{m}}\text{Ba}$: 核異性体) に崩壊し、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ は半減期 2.552 分で 0.662MeV の γ 線を放出して基底状態 ^{137}Ba に移る。 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の半減期は長いので、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ と ^{137}Ba を区別して取り扱う。 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ が ^{137}Ba に移る際に γ 線を放出せず、エネルギーを核外

*1 工学部原子力工学科非常勤講師

*2 工学部原子力工学科教授

電子に移す内部転換(internal conversion)を起こす場合もあり (発生率 9.9%), ^{137}Cs の崩壊毎の γ 線の放出率は 85.1%となる。

S-Decay では, ORIGEN2.2 を参考に Table 1 に示す核崩壊を考慮する. β^- 崩壊, β^+ 崩壊については, 基底状態と励起状態の核 (^{137}Ba と $^{137\text{m}}\text{Ba}$ など) を区別する. また, ^{89}Br から ^{88}Kr への変化など β^- 崩壊と中性子放出が連続して起こる核崩壊も考慮する。

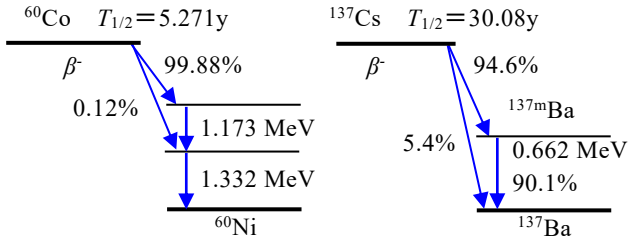


Fig. 1 Decay scheme of ^{60}Co and ^{137}Cs .

中性子と核種の反応のうち(n, γ)と(n, 2n)反応については基底状態と励起状態への変化を区別し, その他には(n, 3n), (n, p), (n, α), (n, f)反応を考慮する. Table 1 には親核種の原子番号 Z , 質量数 A として, 核崩壊および中性子反応による原子番号, 質量数の変化も示す。

Table 1 Types of decays and neutron reactions in S-Decay.

Decay type of Nuclide (Z, A)		
β^- decay (ground / excited level)	$Z+1$	A
β^+ decay (ground / excited level)	$Z-1$	A
α decay	$Z-2$	$A-4$
γ decay i.e. IT (isomeric transition)	Z	A
β^- decay + neutron	$Z+1$	$A-1$
Spontaneous Fission	-	-
Neutron reaction type of Nuclide (Z, A)		
(n, γ) (ground / excited level)	Z	$A+1$
(n, 2n) (ground / excited level)	Z	$A-1$
(n, 3n)	Z	$A-2$
(n, p)	$Z-1$	A
(n, α)	$Z-2$	$A-3$
(n, f)	-	-

3. 計算方法

3.1 生成・崩壊方程式

放射性核種 i の崩壊定数 λ_i ($\lambda_i = \ln 2 / T_{1/2i}$, 1/s), 原子数 $N_i(t)$ とすると N_i の時間変化は式(1)の崩壊方程式に従う。

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i N_i. \quad (1)$$

初期の原子数 $N_i(0)$ とすると $N_i(t)$ は式(2)となる。

$$N_i(t) = N_i(0) \exp(-\lambda_i t). \quad (2)$$

原子炉内などで中性子により照射される ^{56}Fe の核変化を例として説明する. ^{56}Fe は安定核種であり, ^{56}Fe の核変化は中性子との核反応に限られる. 中性子との核反応を考慮した核種 i の実効崩壊定数 λ_i^* を式(3)で定義する。

$$\lambda_i^* = \lambda_i + \sigma_{a,i} \phi(t). \quad (3)$$

核種 i の 1 群の吸収断面積 $\sigma_{a,i}$ (barn= 10^{-24}cm^2), 時刻 t での中性子束 $\phi(t)$ ($1/\text{cm}^2/\text{s}$) である. ORLIBJ40 のうち, ^{235}U 濃縮度 4.7% の PWR 燃料用ライブラリ PWR47J40 に収められている ^{56}Fe , ^{57}Fe , ^{58}Fe の 1 群の断面積を Table 2 に示す. ここで, ^{56}Fe , ^{57}Fe , ^{58}Fe の核種名 $i=1, 2, 3$ とする. ^{56}Fe は(n, γ), (n, 2n)反応などを起こし, ^{56}Fe の核反応断面積を合計した 1 群の吸収断面積 $\sigma_{a,1} = 0.1837$ (barn) である. ^{56}Fe の $\lambda_1=0$ より中性子束 $\phi=10^{14}$ ($1/\text{cm}^2/\text{s}$) の場合には $\lambda_1^*=1.837 \times 10^{-11}$ (1/s) となる。

Table 2 One-group neutron cross sections.

Nuclide	Abundance	(n, γ) [barn]	(n, 2n) [barn]	(n, α) [barn]	(n, p) [barn]
^{56}Fe	9.18E-1	1.83E-1	5.62E-5	1.20E-4	3.83E-4
^{57}Fe	2.12E-2	1.79E-1	6.63E-4	1.84E-4	1.69E-4
^{58}Fe	2.82E-3	1.16E-1	1.92E-4	9.57E-6	5.09E-6

中性子束 $\phi=10^{14}$ ($1/\text{cm}^2/\text{s}$), 100 日間(8.64×10^6 s)にて照射した 10g の ^{56}Fe の原子数は照射前の $N_1(0) = 1.07663 \times 10^{23}$ から, 式(2)により照射後の $N_1(t) = 1.07646 \times 10^{23}$ となる。

^{56}Fe は(n, γ)反応を起こして ^{57}Fe へ変化する. ^{57}Fe の原子数 N_2 , 実効崩壊定数 λ_2^* , $^{56}\text{Fe} \rightarrow ^{57}\text{Fe}$ の分岐率 $f_{1 \rightarrow 2}$ とすると生成・崩壊方程式は式(4)になる。

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2^* N_2 + f_{1 \rightarrow 2} \lambda_1^* N_1. \quad (4)$$

式(4)の解析解は式(5)となる。

$$N_2(t) = N_2(0) \exp(-\lambda_2^* t) + N_1(0) \frac{f_{1 \rightarrow 2} \lambda_1^*}{(\lambda_2^* - \lambda_1^*)} [\exp(-\lambda_1^* t) - \exp(-\lambda_2^* t)]. \quad (5)$$

^{57}Fe の実効減衰係数 $\lambda_2^*=1.799 \times 10^{-11}$ (1/s), 分岐率 $f_{1 \rightarrow 2}=0.9970$ となるため, 100 日間の照射後に ^{57}Fe の原子数 $N_2=1.703 \times 10^{19}$ となる。

さらに, ^{57}Fe は(n, γ)反応により ^{58}Fe へ変化する. ^{58}Fe の原子数 N_3 , 実効減衰係数を λ_3^* , $^{57}\text{Fe} \rightarrow ^{58}\text{Fe}$ の分岐率 $f_{2 \rightarrow 3}$ とすると生成・崩壊方程式は式(6)になる。

$$\frac{dN_3}{dt} = -\lambda_3^* N_3 + f_{2 \rightarrow 3} \lambda_2^* N_2. \quad (6)$$

N_2 は式(5)に従うため, $^{56}\text{Fe} \rightarrow ^{57}\text{Fe} \rightarrow ^{58}\text{Fe}$ に対応する $N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow N_3$ を求めるには式(5)と式(6)を連立して解く必要がある. この解析解は式(7)となる。

$$N_3(t) = N_3(0) \exp(-\lambda_3^* t) + N_1(0) A + N_2(0) B,$$

$$A = f_{1 \rightarrow 2} f_{2 \rightarrow 3} \lambda_1^* \lambda_2^* \left[\frac{\exp(-\lambda_1^* t)}{(\lambda_2^* - \lambda_1^*)(\lambda_3^* - \lambda_1^*)} + \frac{\exp(-\lambda_2^* t)}{(\lambda_3^* - \lambda_2^*)(\lambda_1^* - \lambda_2^*)} + \frac{\exp(-\lambda_3^* t)}{(\lambda_1^* - \lambda_3^*)(\lambda_2^* - \lambda_3^*)} \right],$$

$$B = \frac{f_{2 \rightarrow 3} \lambda_2^*}{(\lambda_3^* - \lambda_2^*)} [\exp(-\lambda_2^* t) - \exp(-\lambda_3^* t)]. \quad (7)$$

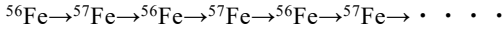
一方, ^{57}Fe は(n, 2n)反応も起こし ^{56}Fe に戻る. この場合の ^{56}Fe の生成・崩壊方程式の解析解は式(8)となる. ここで, (n, 2n)反応で生成される ^{56}Fe の実効減衰係数を $\bar{\lambda}_1^*$ とする.

$$N_1(t) = N_1(0) \exp(-\lambda_1^* t) + N_1(0) C + N_2(0) D,$$

$$C = f_{1 \rightarrow 2} f_{2 \rightarrow 1} \lambda_1^* \lambda_2^* \left[\frac{\exp(-\lambda_1^* t)}{(\lambda_2^* - \lambda_1^*)(\bar{\lambda}_1^* - \lambda_1^*)} + \frac{\exp(-\lambda_2^* t)}{(\lambda_1^* - \lambda_2^*)(\bar{\lambda}_1^* - \lambda_2^*)} + \frac{\exp(-\bar{\lambda}_1^* t)}{(\lambda_2^* - \bar{\lambda}_1^*)(\lambda_1^* - \bar{\lambda}_1^*)} \right],$$

$$D = \frac{f_{2 \rightarrow 1} \lambda_2^*}{(\bar{\lambda}_1^* - \lambda_2^*)} [\exp(-\lambda_2^* t) - \exp(-\bar{\lambda}_1^* t)]. \quad (8)$$

しかし, C項の中では $(\bar{\lambda}_1^* - \lambda_1^*) = 0$ になるため, 数値を計算することができない. これは重根問題と呼ばれる. また, ^{56}Fe から ^{57}Fe 経由で ^{56}Fe に戻る反応は以下のように無限に続くことになる. これは循環問題と呼ばれ, 解析解は得られない.



重根問題については, これを回避した解析解を求めることができるが, 循環問題の場合, 二重根, 三重根などが発生し, 解析解を求めることが極めて複雑になる.

S-Decay では $\bar{\lambda}_1^*$ を僅かに補正し (補正值=1.0001 など) を掛算する. 補正值を入力で指定できる), 重根, 二重根, 三重根問題などを回避している.

循環問題については, 計算系列の段数で考えると, 計算段数 1 では式(2)で, 段数 3 では $^{56}\text{Fe} \rightarrow ^{57}\text{Fe} \rightarrow ^{56}\text{Fe}$ となり, $\bar{\lambda}_1^*$ を補正した式(8)で, それぞれ計算できる. 段数 5 では $^{56}\text{Fe} \rightarrow ^{57}\text{Fe} \rightarrow ^{56}\text{Fe} \rightarrow ^{57}\text{Fe} \rightarrow ^{56}\text{Fe}$ となる.

Table 3 に示すように計算段数毎の ^{56}Fe の質量変化は, 考慮する段数が増加すると大幅に低減する. このため, 計算段数を指定し, その影響を確認すれば循環問題についても実務的に核種 i の原子数 N_i を得ることができる.

核種 $i=1 \sim j$ の計算チェーンで, それらの核種の原子数は $N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow \dots \rightarrow N_n \rightarrow \dots \rightarrow N_j$ となる場合, 計算チェーンの 1 番目の核種の原子数 N_1 から j 番目の核種の原子数 N_j への寄与は式(9)の Bateman の一般式で計算される.

$$N_j(t) = N_1(0) \sum_{n=1}^j d_n \exp(-\lambda_n^* t),$$

$$d_n = 1, \quad f_{0 \rightarrow 1} = 1 \quad (n = 1),$$

$$d_n = \prod_{k=1}^{j-1} \lambda_k^* f_{k-1 \rightarrow k} / \prod_{k=1}^j (\lambda_k^* - \lambda_n^*) \quad (k \neq n, n \geq 2). \quad (9)$$

計算チェーン n 番目の核種の原子数 N_n から N_j への寄与も, 同様に N_n から N_j へ計算チェーンを設定し, 式(9)をもとに計算できる.

初期 10g の ^{56}Fe 試料が 100 日間, 中性子束 $\phi = 10^{14}$ ($1/\text{cm}^2/\text{s}$)にて照射された際に生成される主要な核種の質量を計算段数毎に Table 4 に示す. 表には ORIGEN2.2 の計算結果 O も示す. 計算段数 3 と 4 の間で質量変化がなかったため, 計算段数 3 以上で計算すれば, ^{56}Fe の照射後の実務的な核種の質量・原子数が得られる.

Table 3 Mass changes of initial ^{56}Fe 10(g) by decay step.

Step	1	3	5
Mass change [g]	1.59E-3	4.54E-10	0.0

Table 4 Nuclide mass in sample of initial ^{56}Fe 10(g) by decay step after neutron flux 10^{14} ($1/\text{cm}^2/\text{s}$) $\times$ time 100(d) irradiation.

Step	1	2	3	4	O
Mass [g]					
^{55}Mn			1.61E-8	1.61E-8	1.61E-8
^{56}Mn		5.12E-9	5.12E-9	5.12E-9	5.12E-9
^{55}Fe		4.61E-7	4.61E-7	4.61E-7	4.61E-7
^{56}Fe	9.99841	9.99841	9.99841	9.99842	9.99842
^{57}Fe		1.61E-3	1.61E-3	1.61E-3	1.61E-3
^{58}Fe			1.27E-7	1.27E-7	1.27E-7

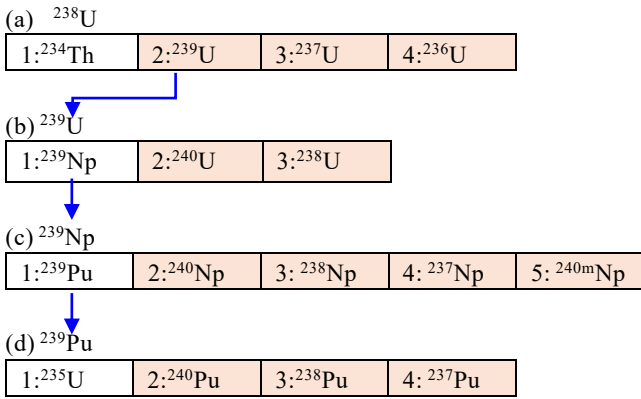
O: ORIGEN2.2.

3.2 計算チェーンの設定

核種 i から核種 j への変化を計算する際には, 計算チェーンを設定する必要がある. Table 1 に示したように核種の崩壊, 中性子反応には種々なものがある. ^{238}U から ^{239}Pu へ変化する例によって計算チェーンの設定方法を説明する.

^{238}U について Fig. 2(a)に示すような崩壊と中性子反応を取り扱う. Fig. 2(a)-1 では ^{238}U が α 崩壊で ^{234}Th に変化し, Fig. 2(a)-2 では ^{238}U が (n, γ) 反応で ^{239}U に変化する反応を示す. ■ の色は中性子との反応を示す. なお, 核分裂反応は別途取り扱う. ^{238}U (n, γ) 反応で生成される ^{239}U についても Fig. 2(b)に示すように 3 種類の娘核種への変化がある. ^{239}U の β 崩壊で ^{239}Np , さらに ^{239}Np の β 崩壊で ^{239}Pu へ変化する. ^{239}Pu の原子数は, ^{238}U を起点とする 4 段の計算チェーンで計算される.

S-Decay では核種 i を起点として, 計算段数毎に計算チェーンを設定する. 計算段数 1 の場合, 式(2)で核種 i (Fig. 2 では ^{238}U) の原子数 N_i を計算する. 計算段数 2 では Fig. 2(a)の娘核種 (4 核種) について計算チェーンを設定し, N_j をそれぞれ式(9)で計算する. 計算段数 3 では Fig. 2(a)の 4 つの核種について Fig. 2(b)のような娘核種への変化を考慮し, 計算チェーン数は ^{234}Th の娘核種数, ^{239}U の娘核種数, ^{237}U の娘核種数, ^{236}U の娘核種数の合計となる. この合計数の核種について N_j をそれぞれ式(9)で計算する. 計算段数が増える毎に, 計算チェーン数は等比級数的に増加する. S-Decay では計算段数の最大値を入力し, その範囲で計算チェーンを設定する.

Fig. 2 Examples of calculation chains from ^{238}U to ^{239}Pu .

S-Decay では後述する Excel の DECDATA シートに Fig. 3 のような娘核種データのテーブルを予め用意し、計算の効率化と可視化を図っている。核種番号 327: ^{238}U , 312: ^{234}Th , 328: ^{239}U , 326: ^{237}U , 325: ^{236}U とし、黄色欄の右側に娘核種 (4 核種) の情報が与えられる。正の核種番号には崩壊の、負の核種番号には中性子反応の分岐率 f がそれぞれの下段に示される。その他, ^{238}U の核種 ID: 922380, 崩壊定数 $\lambda=4.92\text{E-}18$, 吸収断面積 $\sigma_a=0.995$ (barn)である。

327	922380	312	-328	-326	-325
4.92E-18	0.995	1.00	8.87E-01	5.38E-03	3.12E-05

Fig. 3 Chain data of ^{238}U in DECDATA sheet.

3.3 核分裂による生成項の取扱

原子炉内の核燃料の燃焼計算には、核分裂性核種と核分裂生成(FP)核種を取り扱う必要がある。核分裂性核種 m から FP 核種 i の生成を含む生成・崩壊方程式は式(10)となる。

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i^* N_i + \gamma_{m \rightarrow i} F_m. \quad (10)$$

F_m は核分裂性核種 m の核分裂反応率, $\gamma_{m \rightarrow i}$ は核種 m による FP 核種 i の核分裂収率である。核分裂反応とともに FP 核種の原子数 N_i に時間 Δt 毎に $\gamma_{m \rightarrow i} F_m \Delta t$ が加えられ、続く崩壊によって減少するため, $N_i(t)$ は式(2)を時間 t までの経過時間 s で積分した式(11)となる。

$$\begin{aligned} N_i(t) &= \gamma_{m \rightarrow i} F_m \int_0^t ds \exp(-\lambda_i^* s) \\ &= \gamma_{m \rightarrow i} F_m \frac{\{1 - \exp(-\lambda_i^* t)\}}{\lambda_i^*}. \end{aligned} \quad (11)$$

FP 核種 $i=1 \sim j$ の計算チェーンに対応して、原子数 $N_1 \rightarrow \dots \rightarrow N_j$ と変化する場合、崩壊および中性子核反応による N_1 から N_j への寄与は式(9)の各 $\exp$ 項を時間で積分した式(12)となる。

$$\begin{aligned} N_j(t) &= \gamma_{m \rightarrow 1} F_m \sum_{n=1}^j d_n \frac{\{1 - \exp(-\lambda_n^* t)\}}{\lambda_n^*}, \\ d_n &= 1, \quad f_{0 \rightarrow 1} = 1 \quad (n=1), \\ d_n &= \prod_{k=1}^{j-1} \lambda_k^* f_{k-1 \rightarrow k} / \prod_{k=1}^j (\lambda_k^* - \lambda_n^*) \quad (k \neq n, n \geq 2). \end{aligned} \quad (12)$$

初期 10g の ^{235}U 試料が 100 日間、中性子束 $\phi=10^{14}$ ($1/\text{cm}^2/\text{s}$)にて照射された際に生成される主要なアクチニド核種と FP 核種の質量を、S-Decay の計算段数毎に Table 5 に示す。この表には ORIGEN2.2 の結果(O)も示す。ただし、ORIGEN2.2 では ^{235}U などの主要なアクチニド核種の断面積を燃焼度で補正する機能があり、この表ではその機能を働かせていない計算結果を示す。計算段数 5 と 6 の間で質量に変化がなく、ORIGEN2.2 の計算結果にも一致したため、計算段数を 5 段以上とすれば、実務的な核種の生成・崩壊量が得られる。

^{90}Sr などの FP 核種の質量には ORIGEN2.2 と比較して 2%程度の差異があった。S-Decay では燃焼期間中に $\gamma_{m \rightarrow i} F_m = (\text{一定})$ としている近似が、この差異の一因と考えられる。

Table 5 Nuclide mass in sample of initial ^{235}U 10(g) by decay step after neutron flux $10^{14}(1/\text{cm}^2/\text{s}) \times \text{time } 100(\text{d})$ irradiation.

Step	3	4	5	6	O
Mass [g]					
^{234}U	3.90E-5	3.90E-5	3.90E-5	3.90E-5	3.90E-5
^{235}U	9.65E+0	9.65E+0	9.65E+0	9.65E+0	9.65E+0
^{236}U	6.87E-2	6.87E-2	6.87E-2	6.87E-2	6.87E-2
^{90}Sr	5.87E-3	6.39E-3	6.40E-3	6.40E-3	6.30E-3
^{90}Y	2.44E-7	1.43E-6	1.57E-6	1.57E-6	1.60E-6
^{137}Cs	9.73E-3	1.05E-2	1.05E-2	1.05E-2	1.03E-2

O: ORIGEN2.2.

3.4 燃焼計算

^{235}U 濃縮度 4.7% の PWR 燃料中の U 10g (^{235}U 0.47g + ^{238}U 9.53g)を 2000 日間 300W の熱出力で燃焼し、その後 2000 日間冷却(cooling)した場合を S-Decay により計算し、ORIGEN2.2 による計算結果と比較する。熱出力を規定する場合、 ^{235}U などの核分裂性核種 m の核分裂時の発生エネルギーが必要である。核種 m の核分裂発生エネルギー K_m は、原子量 Z , 質量数 A から、ORIGEN2.2 で使用されている以下のフィッティング式により計算される。

$$K_m = 1.29927 \times 10^{-3} (Z^2 A^{0.5}) + 33.12 (\text{MeV/fission}). \quad (13)$$

燃焼度(MWd/t)は核分裂反応とともに発生する熱出力と ^{235}U 核種などのアクチニド核種の初期の合計質量から、熱出力(MW) $\times$ 燃焼日数(d) / 質量(t)で計算されることが通例である。2,000 日間の燃焼後に燃焼度は $60(\text{GWd/t}) = 0.0003(\text{MW}) \times 2000(\text{d}) / 0.0001(\text{t})$ となる。

S-Decay では、ORIGEN2.2 と同様に ^{235}U などの主要なアクチニド核種の断面積を燃焼度で補正する機能を装備

している。ORLIBJ40 では ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm の 13 核種の (n, γ) 反応および ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu の 4 核種の (n, f) 反応について、燃焼度で補正する断面積データセットを用意し、軽水炉 LWR 用 24 種類、高速炉 FR 用 36 種類のセットをプログラムに組み込んでいる。S-Decay では任意の核種の (n, γ) 反応と (n, f) 反応について、燃焼度補正の断面積データセットがあればこれを入力し、利用する機能を装備している。

^{235}U 濃縮度 4.7% の PWR 燃料の (n, γ) 反応と (n, f) 反応の燃焼度補正の断面積データセットを用いて、その効果を確認した。 ^{235}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu について、ORIGEN2.2 の計算結果(O), ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu の 3 核種の断面積を燃焼度で補正した S-Decay の計算結果(S)と S/O 比(R), 断面積を燃焼度補正しなかった S-Decay の計算結果($\underline{\text{S}}$)と $\underline{\text{S}}$ /O 比($\underline{\text{R}}$)をそれぞれ Table 6 に示す。 ^{235}U および ^{239}Pu の質量に、断面積を燃焼度で補正した効果が見られたが、 ^{240}Pu の質量には、断面積の燃焼度補正の有無に関わらず最大 20% の差異があった。燃焼にともなう ^{235}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu の質量変化の比較を Fig. 4 に示す。S-Decay の計算では ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu のみに燃焼度補正の断面積データセットを用いたが、 ^{240}Pu の計算結果の差異から ^{240}Pu などの断面積の燃焼度補正も必要になると考えられる。

重要な FP 核種 ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{137}Cs の質量について 60GWd/t の燃焼後の冷却期間 2000 日までの比較を Table 7 に示す。S-Decay と ORIGEN2.2 の計算結果は 4%未満の差で一致した。これらの FP 核種の計算結果には、 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu の断面積を燃焼度で補正した効果は小さかった。

Table 6 Mass of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{240}Pu in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) during PWR irradiation to 60(GWd/t).

Burnup [GWd/t]					
	12	24	36	48	60
^{235}U [g]					
O	3.43E-1	2.44E-1	1.67E-1	1.08E-1	6.65E-2
S	3.44E-1	2.46E-1	1.70E-1	1.13E-1	7.07E-2
$\underline{\text{S}}$	3.34E-1	2.47E-1	1.71E-1	1.14E-1	7.26E-2
R	1.00	1.01	1.02	1.04	1.06
$\underline{\text{R}}$	1.00	1.01	1.03	1.05	1.09
^{239}Pu [g]					
O	3.70E-2	5.42E-2	6.13E-2	6.35E-2	6.32E-2
S	3.78E-2	5.46E-2	6.16E-2	6.37E-2	6.35E-2
$\underline{\text{S}}$	4.03E-2	5.63E-2	6.21E-2	6.38E-2	6.40E-2
R	1.02	1.01	1.00	1.00	1.00
$\underline{\text{R}}$	1.09	1.04	1.01	1.01	1.01
^{240}Pu [g]					
O	5.16E-3	1.29E-2	2.01E-2	2.59E-2	3.04E-2
S	6.21E-3	1.47E-2	2.07E-2	2.42E-2	2.59E-2
$\underline{\text{S}}$	6.05E-3	1.47E-2	2.09E-2	2.42E-2	2.56E-2
R	1.20	1.14	1.03	0.93	0.85
$\underline{\text{R}}$	1.17	1.15	1.04	0.94	0.84

O: ORIGEN2.2, S: S-Decay, R=S/O,

$\underline{\text{S}}$: S-Decay without burnup correlation, $\underline{\text{R}}=\underline{\text{S}}/\text{O}$.

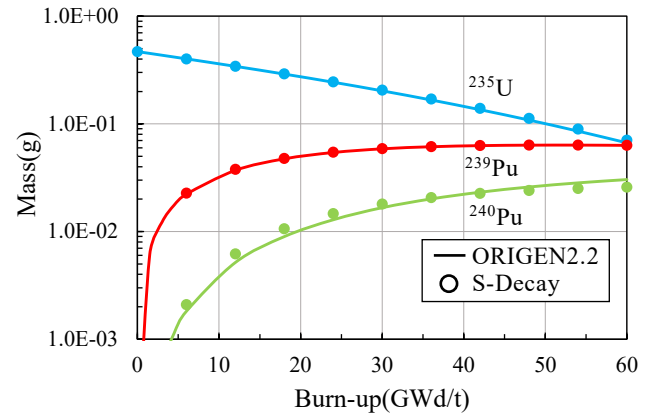


Fig. 4 Comparison of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{240}Pu mass between S-Decay and ORIGEN2.2 in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) during PWR irradiation to 60(GWd/t).

Table 7 Mass of ^{90}Sr , ^{90}Y and ^{137}Cs in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) during cooling time 2000(d) after PWR irradiation to 60(GWd/t).

Cooling time [d]					
	0	200	500	1000	2000
^{90}Sr [g]					
O	8.97E-3	8.84E-3	8.68E-3	8.39E-3	7.86E-3
S	9.31E-3	9.19E-3	9.01E-3	8.72E-3	8.16E-3
R	1.04	1.04	1.04	1.04	1.04
^{90}Y [g]					
O	2.35E-6	2.24E-6	2.20E-6	2.13E-6	1.99E-6
S	2.44E-6	2.33E-6	2.28E-6	2.21E-6	2.07E-6
R	1.04	1.04	1.04	1.04	1.04
^{137}Cs [g]					
O	2.14E-2	2.11E-2	2.07E-2	2.01E-2	1.89E-2
S	2.13E-2	2.11E-2	2.07E-2	2.00E-2	1.88E-2
R	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00

O: ORIGEN2.2, S: S-Decay, R=S/O.

3.5 放射能および崩壊熱

放射化材料、使用済燃料内の放射能 R (Bq)は核種 i の原子数 N_i と崩壊定数 λ_i から式(14)で計算される。

$$R = \sum_i \lambda_i N_i. \quad (14)$$

崩壊熱 Q (W)は核種 i の崩壊毎の発熱量 Q_i を用いて式(15)で計算される。

$$Q = \sum_i \lambda_i N_i Q_i. \quad (15)$$

3.4 節と同様に 60GWd/t の燃焼後の冷却期間 2000 日までの U 10g 中の放射能と崩壊熱を Table 8 および Fig. 5 に示す。S-Decay と ORIGEN2.2 の計算結果は 3%未満の差で一致した。

Table 8 Radio activity and decay heat in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) during cooling time after PWR irradiation to 60(GWd/t).

Cooling time [d]					
	0	200	500	1000	2000
Radio Activity [10^{10}Bq]					
O	6.69E+3	1.62E+2	9.13E+1	5.46E+1	3.35E+1
S	6.72E+3	1.60E+2	9.01E+1	5.41E+1	3.38E+1
R	1.01	0.99	0.99	0.99	1.01
Decay Heat [W]					
O	1.81E+1	2.05E-1	1.10E-1	5.98E-2	3.24E-2
S	1.86E+1	2.01E-1	1.06E-1	5.78E-2	3.15E-2
R	1.03	0.98	0.97	0.96	0.97

O: ORIGEN2.2, S: S-Decay, R=S/O.

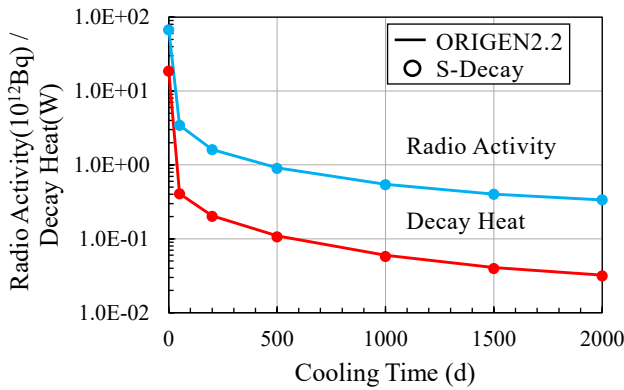


Fig. 5 Comparison of radio activity and decay heat between S-Decay and ORIGEN2.2 in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) during cooling time after PWR irradiation to 60(GWd/t).

3.6 中性子発生量

使用済燃料内では、アクチニド核種の自発核分裂 SF 反応にともなう中性子、アクチニド核種から発生する α 線と燃料中の ^{17}O , ^{18}O による (α, n) 反応にともなう中性子がそれぞれ発生する。SF 反応による中性子発生量 F^{SF} (1/s) は式(16)で計算される。

$$F^{SF} = \sum_i \lambda_i N_i R_i^{SF} \nu_i^{SF} \quad (16)$$

R_i^{SF} は核種 i の崩壊時の SF 反応割合、 ν_i^{SF} は核種 i の SF 反応毎の中性子発生数である。 (α, n) 反応にともなう中性子発生量 $F^{(\alpha, n)}$ (1/s) は式(17)で計算される。

$$F^{(\alpha, n)} = \sum_i N_i R_i^{(\alpha, n)} \quad (17)$$

$R_i^{(\alpha, n)}$ は実験的に得られた α 崩壊核種 i からの (α, n) 反応の中性子発生数である。ORIGEN2.2 で使用されている ν_i^{SF} , $R_i^{(\alpha, n)}$ の値を S-Decay でも使用した。3.4 節と同様に 60GWd/t の燃焼後の冷却期間 2000 日までの U 10g 中の

中性子発生量を Table 9 に示す。S-Decay と ORIGEN2.2 の計算結果を比較して 10%未満の差異があった。中性子発生に大きく寄与する高次のアクチニド核種 ^{241}Am , ^{244}Cm などの原子数 N_i の計算結果の差が主要因であり、それらの核種の断面積の燃焼度補正の有無によると考えられる。

Table 9 Neutron emission rates in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) during cooling time 2000(d) after PWR irradiation to 60(GWd/t).

Cooling time [d]					
	0	200	500	1000	2000
Spontaneous fission [1/s]					
O	2.85E+4	2.30E+4	1.96E+4	1.77E+4	1.58E+4
S	2.57E+4	2.09E+4	1.80E+4	1.63E+4	1.46E+4
R	0.90	0.91	0.92	0.92	0.92
(α, n) reaction [1/s]					
O	1.77E+3	9.08E+2	4.39E+2	2.75E+2	2.45E+2
S	1.83E+3	9.25E+2	4.33E+2	2.63E+2	2.34E+2
R	1.03	1.02	0.99	0.96	0.96

O: ORIGEN2.2, S: S-Decay, R=S/O.

3.7 γ 線放出量

γ 線放出量 G (1/s) は、核種 i の原子数 N_i 、崩壊定数 λ_i および γ 線放出率 R_i^γ から式(18)で計算される。

$$G = \sum_i \lambda_i N_i R_i^\gamma \quad (18)$$

ORIGEN2.2 では、核種崩壊により放出される γ 線のエネルギーを Table 10 に示すように 18 群に分け、各群への γ 線の放出割合をデータとして与えている。Table 10 には ^{60}Co ならびに ^{137}Cs の娘核種の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の各群への γ 線の放出割合を併せて示す。 ^{60}Co の崩壊毎に主に 1.173MeV と 1.332MeV の γ 線 2 本が放出されるため、 ^{60}Co の γ 線放出割合は 11 群(1.0-1.5MeV)で 2.00 となり、その他の群では γ 線の放出割合は相対的に小さい。Fig. 1 に示したように ^{137}Cs は、基底状態 ^{137}Ba に直接崩壊する場合と励起状態 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ に崩壊する場合があり、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ から ^{137}Ba に移る際に、主に 0.662MeV の γ 線が放出される。 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の γ 線放出割合は 9 群(0.45-0.7MeV)で 0.901 となり、その他の群では相対的に小さい。 ^{137}Cs が $^{137\text{m}}\text{Ba}$ へ崩壊する割合 0.946 と $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の γ 線の放出割合 0.901 から、実際には、 ^{137}Cs の崩壊毎に 0.662MeV の γ 線 0.851 本が放出されるように認識される。

S-Decay では JENDL 崩壊データファイル 2015 (JENDL / DDF-2015) から γ 線のエネルギーと放出割合を抜き出し、個別 γ 線放出テーブル (Discrete gamma ray table) を用意している。このテーブルを用いる場合、例えば、 ^{60}Co の γ 線の 1.173MeV と 1.332MeV の γ 線エネルギーのデータはそのままテーブルに収納されているため、放出される γ 線のエネルギー群構造を任意に指定できる。ここでは、ORIGEN2.2 と同じエネルギー群構造を用いた。

Table 10 Energy groups, ranges and intensities of gamma ray.

Group	Energy range [MeV]	Intensity ^{60}Co	Intensity $^{137\text{m}}\text{Ba}$
1	0.00 - 0.02	5.30E-2	1.00E-2
2	0.02 - 0.03	9.16E-3	0.0
3	0.03 - 0.045	5.23E-3	7.32E-2
4	0.045 - 0.07	5.90E-3	0.0
5	0.07 - 0.10	2.32E-3	0.0
6	0.10 - 0.15	8.91E-4	0.0
7	0.15 - 0.30	2.93E-4	0.0
8	0.30 - 0.45	8.22E-5	0.0
9	0.45 - 0.70	4.72E-6	9.01E-1
10	0.70 - 1.0	7.47E-5	0.0
11	1.0 - 1.5	2.00	0.0
12	1.5 - 2.0	0.0	0.0
13	2.0 - 2.5	1.06E-5	0.0
14	2.5 - 3.0	3.28E-8	0.0
15	3.0 - 4.0	0.0	0.0
16	4.0 - 6.0	0.0	0.0
17	6.0 - 8.0	0.0	0.0
18	8.0 - 11.0	0.0	0.0

3.4 節と同様に 60GWd/t の燃焼後の冷却期間 2000 日時点で U 10g 中の各エネルギー群の γ 線放出量を Fig. 6 に示す. 8 群以下の低エネルギー群では ORIGEN 型 γ 線データよりも個別 γ 線データを用いた計算結果 S-Decay (Dis.) が ORIGEN2.2 の計算結果とよく一致した.

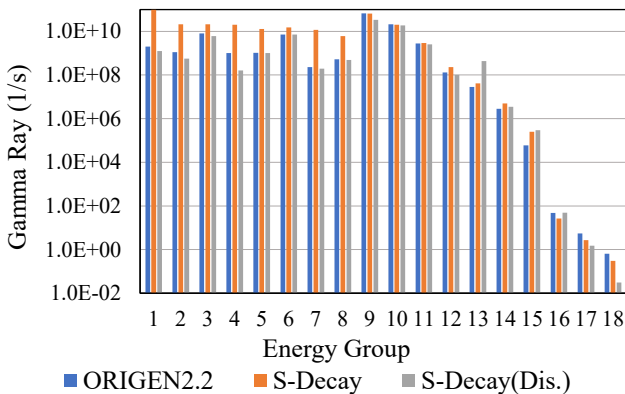


Fig. 6 Comparison of gamma ray emission rates between S-Decay and ORIGEN2.2 in fuel of initial ^{235}U 0.47(g) and ^{238}U 9.53(g) on 2000(d) cooling time after PWR irradiation to 60(GWd/t).

4. 計算の流れと可視化

S-Decay の計算には, 半減期などの崩壊データと中性子反応断面積データを DECDATA, FP 核種収率データを FPDATA, ORIGEN 型 18 群 γ 線放出データを G18DATA, 個別 γ 線放出データを GDATA から, それぞれを Excel のシート毎に収納する必要がある(Fig. 7).

ORIGEN2.2 用の断面積ライブラリセット ORLIBJ40 には, 半減期などの崩壊データを収めた DECCAYJ40, ^{235}U 濃縮度 4.7% の PWR 燃料の断面積ライブラリセット PWR47J40, 18 群 γ 線放出データ JNUO2BREM などがあり, これらはテキスト形式ファイルで提供される.

ORLIBJ40 には, PWR47J40 などの LWR 用 24 種類, FR 用 36 種類の断面積ライブラリセットが格納されている.

Pre-process では, ORLIBJ40 などから, S-Decay に装備されている変換処理プログラム LIBtoSheet を用いて DECDATA, FPDATA, G18DATA の各シートを作成する(Fig. 7(a)). ORLIBJ40 内の崩壊データ DECCAYJ40 には, ^5Li , ^9B など娘核種データの不足している部分があり, 補足の娘核種データ, 核種質量データを XSCOR シートから読み, DECDATA シートへ書き出す. また, JENDL/DDF-2015 から個別 γ 線変換計算プログラム Gamma Ray Process を用いて GDATA のシートを作成する.

DECDATA には, 燃焼計算に必要な核種の崩壊データ, 中性子反応データ, 燃焼チェインデータを収納する. Fig. 3 に示した ^{238}U の例のように崩壊定数 λ , 吸収断面積 σ_a , 分岐率 f , 娘核種などの各データセットが含まれる. このため, DECDATA を参照すれば核種毎の崩壊・中性子反応・分岐のデータが容易に理解され, 初学者の教育に活用できる. FPDATA には FP 核種データを収納し, その例として ^{90}Sr (380900)および ^{90}Y (390900)に対する ^{232}Th , ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{245}Cm , ^{249}Cf の核分裂収率データを Table 11 に示す.

核種の崩壊・生成計算 Main calculation では DECDATA, FPDATA を使用する(Fig. 7(b)). ^{235}U などの主要なアクチノイド核種の燃焼度補正した 1 群断面積データセットを使用する場合, それらのデータを用意し, XSCOR シートに入力する必要がある. 核種の崩壊・生成計算では 3.2 節に記した計算チェインの設定, 式(9)による核種の崩壊計算, 式(12)による FP 核種の計算を順に実施し, 燃焼ステップ毎に各核種の質量を Burnup Data シートに書き出す.

Post-process では Burnup Data シートに書き出された核種質量を用いて次のデータを出力する(Fig. 7(c)): ①放射能(Bq), ②崩壊熱(W), ③中性子発生量(SF 反応および (α, n) 反応), ④Hazard (大気中の摂取限度), ⑤Hazard (水中の摂取限度), ⑥ α 崩壊(Bq), ⑦ORIGEN 型 18 群 γ 線放出量, ⑧個別 γ 線放出テーブル利用 γ 線放出量である. ⑦の計算には G18DATA シートが, ⑧の計算には GDATA シートがそれぞれ必要である. ③の計算には核種毎の中性子発生率データを XSCOR シートから読み込む必要がある.

S-Decay では上記の計算に用いられるデータセットおよび計算結果が全て Excel のシートに収納されるため, Excel の機能により, それらを直接利用した図表の作成(可視化)も容易である.

Table 11 Fission yield data of ^{90}Sr and ^{90}Y in FPDATA sheet.

	^{232}Th	^{233}U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu	^{245}Cm	^{249}Cf
380900	1.76E-03	3.35E-01	7.36E-02	1.12E-03	9.69E-02	8.51E-03	6.26E-03	2.76E-02
390900	5.35E-08	5.82E-05	3.70E-06	9.09E-08	7.97E-05	2.88E-06	3.50E-06	2.01E-04

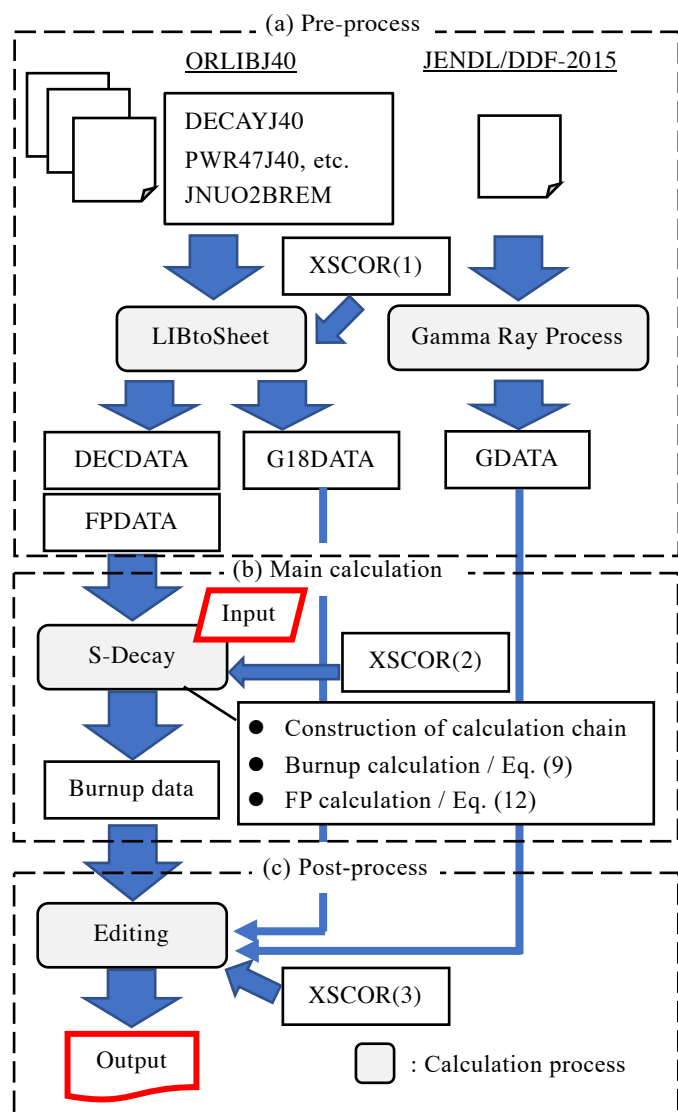


Fig. 7 Calculation flow of S-Decay.

5. まとめ

学生などの初学者がコードのインストール作業なく、簡便に利用することを目的に、放射性核種の生成・崩壊計算コード S-Decay を Microsoft 社 Excel+VBA を用いて開発した。

S-Decay では放射性核種の生成・崩壊方程式の解法には簡便な Bateman 法を採用し、独自の近似法の採用により循環・重根問題を回避している。最新の評価済み核データライブラリ JENDL-4.0 をもとに JAEA で開発された ORIGEN2.2 用の断面積ライブラリセット ORLIBJ40 を、S-Decay 内の Excel シートに変換し、使用する。また、任意のエネルギー群の γ 線放出量を計算するため、JENDL/DDF-2015 から抽出した個別 γ 線放出テーブルの利用も可能である。計算に用いられるデータセットと計

算結果は Excel シートに収納され、Excel の機能により容易に可視化される。

燃焼・冷却時の核種の質量、放射能、崩壊熱、中性子発生量、 γ 線放出量について、S-Decay と ORIGEN2.2 の計算結果を比較し、S-Decay は教育用として十分な計算精度を持つことを検証した。本文で利用した ^{235}U 濃縮度 4.7% の PWR 燃料の断面積ライブラリ PWR47J40 に加え、ORLIBJ40 から BWR 用燃料、PWR 用 MOX 燃料、高速炉 FR 用燃料などの断面積ライブラリセットをそれぞれ Excel のシートに変換・収納することによって、炉型毎の燃料の燃焼特性を確認することも可能である。

今後、S-Decay を本学の授業に活用するとともに、幅広く公開して初学者の教育訓練に役立てる計画である。

また、S-Decay と同様に Excel+VBA 上で動作するコンパクトで簡便な次の 2 コードを既に開発、検証している・中性子拡散計算コード S-Dif⁸⁾

・モンテカルロ法光子中性子輸送計算コード S-Monte⁹⁾。原子炉・核燃料・放射線を対象とする S-Decay, S-Dif, S-Monte の 3 コードを組み合わせ、教育訓練から実践現場へも展開していきたい。

参考文献

- 1) A. G. Croff: A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code, ORNL/TM-7175 (1980).
- 2) A. G. Croff: A Versatile Computer Code for calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials, Nuclear Technology, Vol. 62, pp. 335-352 (1982).
- 3) RSICC COMPUTER CODE COLLECTION: ORIGEN 2.2 Isotope Generation and Depletion Code, Matrix Exponential Method, CCC-371 (2002).
- 4) 田坂完二: DCHAIN 放射性ならびに安定核種の生成崩壊解析コード, JAERI 1250 (1976).
- 5) A. Yamamoto, M. Tatsumi and N. Sugimura: Numerical Solution of Stiff Burnup Equation with Short Half Lived Nuclides by the Krylov Subspace Method, J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 44, No. 2, pp. 147-154 (2012).
- 6) 奥村啓介, 杉野和輝, 小嶋健介, 神智之, 岡本力, 片倉純一: JENDL-4.0 に基づく ORIGEN2 用断面積ライブラリセット: ORLIBJ40, JAEA-Data/Code2012-032 (2013).
- 7) J. Katakura and F. Minato: JENDL Decay Data File 2015, JAEA-Data/Code 2015-030 (2016).
- 8) 松村哲夫, 亀山高範: コンパクトかつ便利な教育・訓練用の中性子拡散計算コード S-Dif の開発, 東海大学紀要工学部 Vol. 60, No. 1, pp. 17-24 (2020).
- 9) 松村哲夫, 亀山高範: 教育用のモンテカルロ法光子中性子輸送計算コード S-Monte の開発, 東海大学紀要工学部 Vol. 60, No. 1, pp. 25-32 (2020).