

核分裂生成物の崩壊熱計算 PC コード

Simple PC code for calculating nuclear reactor decay heat

親 松 和 浩*

Kazuhiro OYAMATSU

要 旨

福島第一原子力発電所の事故後に原子炉崩壊熱の見積もりを行った。この見積もりのために開発した PC コードは福島第一の事故の解析だけでなく、一般の原子炉及び使用済み燃料の崩壊熱の見積もりにも利用できる一般性を持つ。本稿では、このコードの数学的モデルとその特徴、入出力ファイルの構成、ユーザーインターフェースについて報告する。

キーワード：原子力 原子炉 事故評価 崩壊熱

1 はじめに

2011年3月11日、東日本大震災の津波によって福島第一原子力発電所の原子炉で深刻な事故が起き、現在も収束していない。原子炉内の燃料の燃えかすは放射性物質であり、放射線を出し続け、それによる発熱（崩壊熱）が続き、千年万年にわたってその管理が必要になる。福島事故では、冷却が間に合わず燃料の過熱によって発生した水素によって爆発を起こし、原子炉格納容器を破損した。これによって大量の放射性物質を周囲の環境に放出し、深刻な汚染を引き起こした。

事故当時、当事者からの情報がほとんどない中で、著者は状況の掌握と、ボランティアで放射線量測定に向かった実験原子核物理研究者等の便宜のために原子炉崩壊熱の見積もりを事故直後から行った^[1]。

この見積もりでは、核分裂後に、どのような核種（核分裂生成物：FP）が生成され、それらかどのように崩壊していくかを解析的な方法で解く PC 用コード^[2] を改良して計算を行った。主な改良点は複数の原子炉燃料と使用済み燃料からの崩壊熱を評価するために、運転履歴と燃料交換を考慮したことにある。その結果、原子炉出力と過去の運転期間さえ分かれば原子炉燃料や使用済み燃料からの崩壊熱を簡単に計算できる PC コードとなった。原子炉燃焼計算や中性子捕獲反応を考慮していない単純化した近似計算ではあるが、2～3割のずれを許容すれば十分実用的な計算である。また、文献 [1] の報告の後、学部学生向けの授業での利用を目的として、多少の改訂を施した。

2 計算モデル

原子炉は定格出力で運転し、核分裂により生じる熱出力は定格電気出力の3倍とする。1回の核分裂で

* 愛知淑徳大学人間情報学部 oyak@asu.aasa.ac.jp

200(MeV)= 3.2^{-11} (J) エネルギーが生じるとする。したがって、定格出力での運転時の1秒あたりの核分裂数は以下ようになる。

$$3 \times [\text{定格電気出力 (W)}] / (3.2 \times 10^{-11} \text{J}) = 9.4 \times 10^{19} \times [\text{定格電気出力 (kW)}] \quad (1)$$

核分裂が起きると約千種類の核種が生成される。これらの核種を核分裂生成物 (FP: Fission Product) という。1回の核分裂でどの核種が生成するかは確率的に定まる。1回の核分裂で核種 X_i が生成される割合を独立核分裂収率といい y_i で表す。1回の核分裂で2つの核種が生成されるので、

$$\sum_i y_i = 2 \quad (2)$$

となる。

時刻 t における核種 X_i の生成量を $N_i(t)$ と書く。核分裂反応が続けば $N_i(t)$ は増加するが、ほとんどの核分裂生成物核種では β 崩壊による $N_i(t)$ の減少もある。核種 i が単位時間あたりに β 崩壊する割合 (崩壊定数) を λ_i 、一回の β 崩壊で放出される平均エネルギー (平均崩壊エネルギー) を E_i とする。核種 X_i が単位時間あたり崩壊する数は $\lambda_i N_i(t)$ であり、放出するエネルギーは $\lambda_i E_i N_i(t)$ である。これらを全ての核種について和をとったものが放射能 (activity) $A(t)$ と崩壊熱 (decay heat) $P(t)$ である。

$$A(t) = \sum_i \lambda_i N_i(t) \quad (3)$$

$$P(t) = \sum_i \lambda_i E_i N_i(t) \quad (4)$$

核種 X_i の生成量 $N_i(t)$ を計算するためには、核種 X_i を含む崩壊系列を考慮する必要がある。簡単のためまず時刻 $t=0$ で核分裂が1回あった (瞬時照射) 後の生成量を計算する。そのためには、次の初期値問題を解けばよい。

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\lambda_i N_i(t) + \sum_j b_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j(t) \quad (5)$$

$$N_i(0) = y_i \quad (6)$$

ここで、 $b_{j \rightarrow i}$ は核種 X_j の崩壊で核種 X_i が生成される確率 (分岐比) である。

初期値問題 (5)、(6) の解は形式的には文献 [3] で与えられる。しかし、実際の計算では、核種 X_i を含む崩壊系列を次のような分岐のない崩壊系列に分解してそれらの解の和をとればよい^[5]。

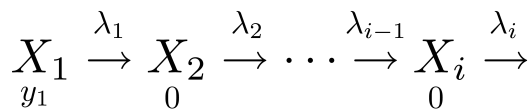


図1 核分裂で生成した核種 X_1 の崩壊によって、核種 X_2 、……を経て核種 X_i が生成する崩壊系列。核種生成量の初期値は X_1 のみ y_1 とし他は0とする。また、核種 X_1, X_2, \dots, X_i の (部分) 崩壊定数をそれぞれ、 $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_i$ とする。

核分裂で生成した核種 X_1 の崩壊によって、核種 X_2 、……を経て核種 X_i が生成する崩壊系列を考える。このときの核種 X_k ($1 \leq k \leq i$) の生成量 $n_k(t)$ は次の初期値問題の解である。

$$\frac{dn_1(t)}{dt} = -\lambda_1 n_1(t) \quad (7)$$

$$\frac{dn_k(t)}{dt} = -\lambda_k n_k(t) + \lambda_{k-1} n_{k-1}(t) \quad (2 \leq k \leq i) \quad (8)$$

$$n_1(0) = y_1, \quad n_k(0) = 0 \quad (2 \leq k \leq i) \quad (9)$$

これを解くと

$$n_i(t) = y_1 \sum_{j=1}^i d_j e^{-\lambda_j t} \quad (10)$$

ただし、

$$d_1=1 \quad (i=j=1) \quad (11)$$

$$d_j = \frac{\prod_{k=1}^{i-1} \lambda_k}{\prod_{k=1, k \neq j}^j (\lambda_k - \lambda_j)} \quad (2 \leq j \leq i) \quad (12)$$

である。

ここまでの議論では式 (12) を見れば分かる通り、全ての崩壊定数 λ_k の値が異なるとしている。現実の計算では崩壊定数の値が同じになることは、ほんの数例だけあるが、その他は全て異なっている。例えば、 l 番目と m 番目の核種の崩壊定数が等しい場合、計算式は以下のように少し煩雑になる^[5]。

$$n_i(t) = y_1 \left[\sum_{j=1, j \neq l, m}^i d_j e^{-\lambda_j t} - \left(\sum_{j=1, j \neq l, m}^i d_j \right) e^{-\lambda_l t} + \frac{\prod_{j=1}^{i-1} \lambda_j}{\prod_{j=1, j \neq l, m}^j (\lambda_j - \lambda_l)} t e^{-\lambda_l t} \right] \quad (13)$$

この場合開発したコードでは解析的な式 (13) を使って計算しているが、実用上は λ_m の値をたとえば 0.1% だけ変えて計算すれば、崩壊定数の評価値の精度から考えても、充分良い精度の計算となるはずである。

3 計算コード

計算に用いたコードとデータは文献 [2] のものを元にして、MacOS の変更に伴い、改行コードを LF に変更してから、新しいプログラムの開発を行った。

開発したコードの一覧を表 1 に示す。これらは全て Fortran で作成され、上の 3 つの瞬時照射と有限照射のコードは文献 [2] のものを多少の修正をしてコンパイルし直したものである。いずれのコードでも主要部分の崩壊系列の探索に関する部分は共通である。この探索部分がやや冗長になっていることもあって、各コードの長さは約 2 千行である。

表 1 の全てのコードでは、核分裂収率と崩壊データの整合性に関してもチェックしている。崩壊データはあるが核分裂収率がない核種の場合には核分裂収率の値を 0 として計算する。逆に、核分裂収率があるが崩壊データがない核種もある。これらの核種では核分裂収率が極めて小さいので、同じ質量数で崩壊データのある最も不安定（中性子過剰）な核種の独立核分裂収率を累積核分裂収率で置き換えて計算する。また、図 1 のように分解した崩壊系列の中で崩壊定数が等しくなる場合を調べ、3 つ以上の核種で等しくなることがないことも確認している。

表 2 に示すように、時間及び崩壊熱の単位は計算コードの目的にあうように変えることにした。原子炉及び使用済み核燃料の崩壊熱評価では、実用上の理由から、時間の単位を day、崩壊熱の単位を kW とした。一方で、崩壊熱評価研究に用いる瞬時照射と有限照射のコードでは時間の単位を s、崩壊熱の単位を MeV/s のままとした。

表 1 計算内容とコード名及び出力ファイル名

照射条件	計算内容	ソースコード名	出力ファイル名
瞬時照射	1 核分裂後の崩壊熱	decaypulse 2011.f	decaypulse.dat
有限照射	1 fission/s で照射後の崩壊熱	decayfinite 2011.f	decayfinite.dat
有限照射	1 fission/s で照射後の核種生成量	distelfinite 2011.f	distelfinite.dat
定常運転	原子炉崩壊熱	decay_operation 2012.f	decay_operation.dat
定常運転	原子炉核種生成量	distel_operation 2012.f	distel_operation.dat
定常運転	使用済み核燃料崩壊熱	decay_operation 2012 sfp.f	decay_operationsfp.dat

表2 時間と崩壊熱の単位

照射条件	利用目的	時間の単位	崩壊熱の単位
瞬時照射	崩壊熱評価の研究	s	MeV/s
有限照射	崩壊熱評価の研究	s	MeV/s
定常運転	原子炉と使用済み核燃料の崩壊熱評価	day	kW

4 入力データ

原子炉崩壊熱及び使用済み燃料からの崩壊熱の計算に必要な入力データは以下の4種類である。

1. 核分裂収率（核分裂によってどのような原子核がどの程度の割合でできるか）
2. 崩壊データ（核分裂によってできた原子核がどのように崩壊するか、半減期とエネルギー）
3. 元素名や核反応の対応表
4. 原子炉の運転出力と運転履歴
5. 計算を行う冷却時間（事故後の経過日数）

最初の2つは自然定数であり、米国^[6,7]、日本^[4]、ヨーロッパ^[8]等がそれぞれ整備している原子核データライブラリーから必要なデータを取り出しファイルにまとめた。崩壊データは文献[9]のTable C1とほぼ同じ形式でデータを格納している。3つめの表はコード化された核種の元素名や崩壊形式の対応表である。これらは文献[2]と同じものを用いる。

4つめの原子炉の運転出力と運転履歴は、東京電力のwebで公開されていた定期点検期間を元に運転期間を決定した。定期点検以外の期間では定格出力で運転していたと仮定する。現在から数えて*i*番目の運転期間を、その開始時刻 T_{is} と終了時刻 T_{ie} で指定する。福島事故の計算では、原子炉停止時刻を $t=0$ とし、原子

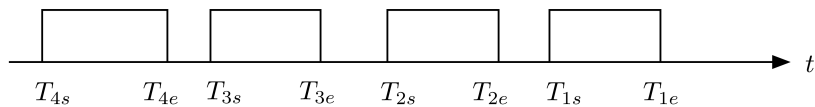


図2 運転期間の指定法

46e4			rated electric power in kW
1957	1535		start, end in day
1222	875		start, end in day
690	352		start, end in day
177	0		start, end in day

46e4			rated electric power in kW
4681	4267	0.23	start and end in day, fuel ratio
4149	3733	0.48	start and end in day, fuel ratio
3407	3034	0.73	start and end in day, fuel ratio
1957	1535	0.73	start and end in day, fuel ratio
1222	875	0.5	start and end in day, fuel ratio
690	352	0.25	start and end in day, fuel ratio
177	0	0	start and end in day, fuel ratio

図3 運転出力と運転履歴の指定。例として、1号機の原子炉内燃料の履歴（上）と使用済み核燃料の履歴（下）のファイルの中身を示す。

炉に関しては $T_{1e}=0$ 、使用済み燃料に関しては $T_{1e}<0$ とする。時刻はすべて負または0となるが簡単のためマイナス符号は省略する。また、使用済核燃料の履歴では交換する燃料の割合 (fuel ratio) も指定する。

最後の入力データの「5. 計算を行う冷却時間 (事故後の経過日数)」は、ユーザーが主体的に決めるものである。ファイルには1行に一つ計算する経過日数を記入する。

5 ユーザーインターフェースとプログラムの実行

入力データや計算量の種類が多岐にわたる場合は、入力データや計算プログラムを選択するスクリプトやユーザーインターフェースを別に作って、プログラム自体は簡単なフィルタープログラムにしておく開発が容易になる。

元にした文献 [2] では MacOS 用の Apple 社の HyperCard というカード形のスクリプトを用いた。HyperCard は現在利用できなくなったので、そのクローンの1つである RunRev 社の LiveCode というソフトを用いてユーザーインターフェースを作成した。このソフトでは MacOS 用だけでなく、Windows 用、Linux 用のコードも同時に生成できる。本報告執筆時に、表1の実行ファイルを全て準備できているのは MacOS 用のみである。ソースコードをコンパイルし実行ファイルを準備すれば Windows および Linux でも MacOS と全く同様の操作性で計算を行うことができる。

使用するユーザーインターフェースの画面を図4-10に示す。図4は計算コード選択のためのユーザーインターフェースのホーム画面である。各コードの入力ファイルの設定と実行は図5-10の画面で行う。

例えば、定常運転後の一号機の原子炉崩壊熱を計算するには以下のような操作をすれば良い。

1. 最初の画面で、下から2行目左の「operation」ボタンを押す (図4)。
2. 「Decay heat after steady operations」(定常運転後の崩壊熱) 画面が表示される (図8)。
3. 「select operation period」ボタンを押して operation_period フォルダから原子炉の運転出力と運転の履歴のファイル operation_unit1.dat を選択する。
4. 「select decay data」ボタンを押して崩壊データのファイル decaydatajndc2.dat を選択する。
5. 「select fission yield」ボタンを押して核分裂収率のフォルダからファイル yU235tjndc2.dat を選択する。
6. 「select cooling time」ボタンを押して計算を行う冷却時間 (事故後の経過日数) のファイル ctday.dat を選択する。
7. 「run decay_operation2012」ボタンを押すと入力データが設定され、崩壊熱計算コード decay_operation2012 を実行する。
8. 計算結果が出力ファイル decay_operation.dat に格納される (図11)。

どのコードで計算した場合にも図11のように入力ファイル名が、計算結果とともに出力される。出力ファイルはテキストファイルなので、計算結果を EXCEL や他のコードにですぐに利用できる。

6 まとめと考察

原子炉の定格出力と運転履歴を読み込んで崩壊熱を計算する簡単な PC コードを作成した。このコードは、原子炉崩壊熱の評価のため以前作成したプログラム^[2] を元に行っている。開発したコードでは核分裂後の崩壊を追うだけであるので、実際の原子炉を大胆に近似したものであるが、2~3割程度の誤差を許容すれば実用的

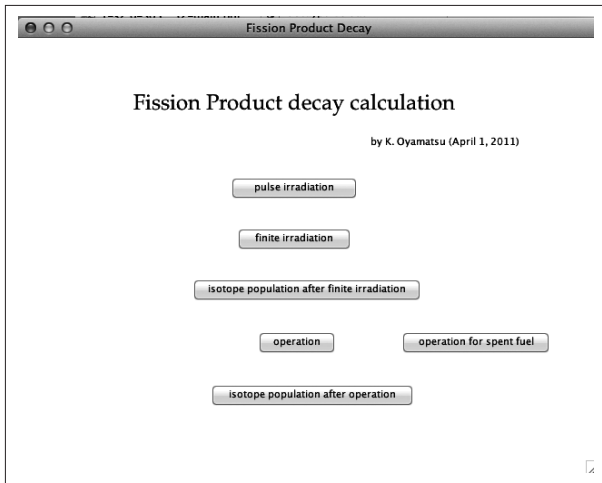


図4 ホームの画面

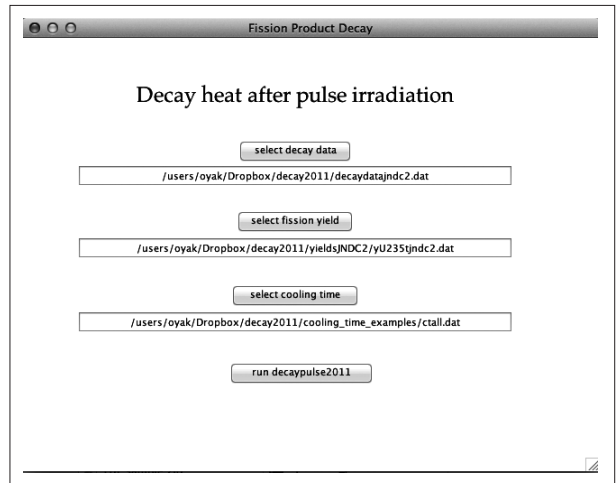


図5 瞬時照射後の崩壊熱

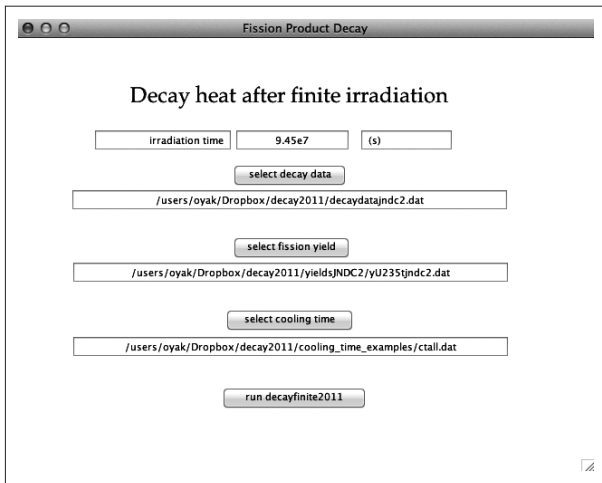


図6 有限照射後の崩壊熱

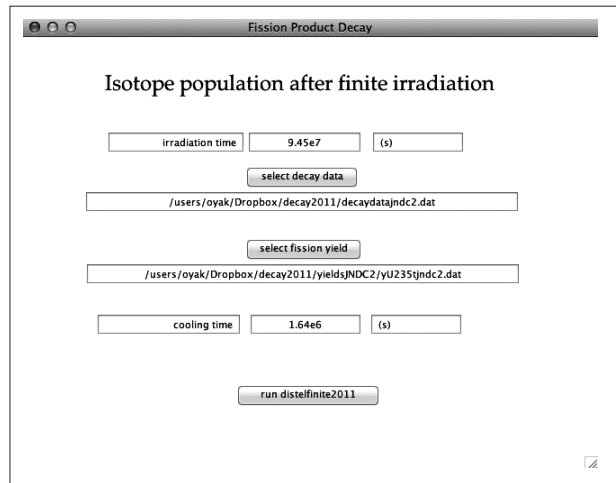


図7 有限照射後の核種生成量

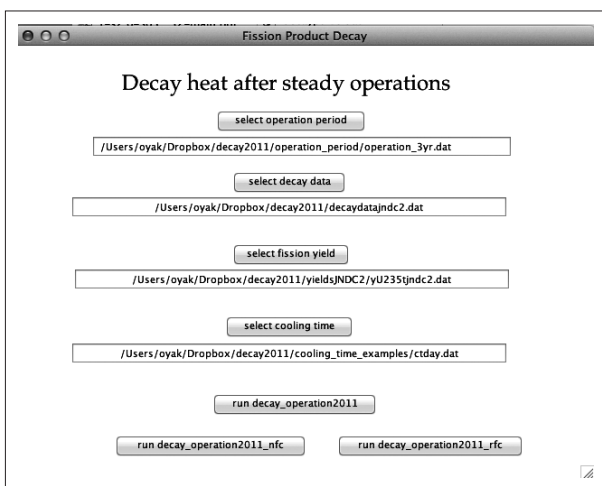


図8 定常運転後の崩壊熱

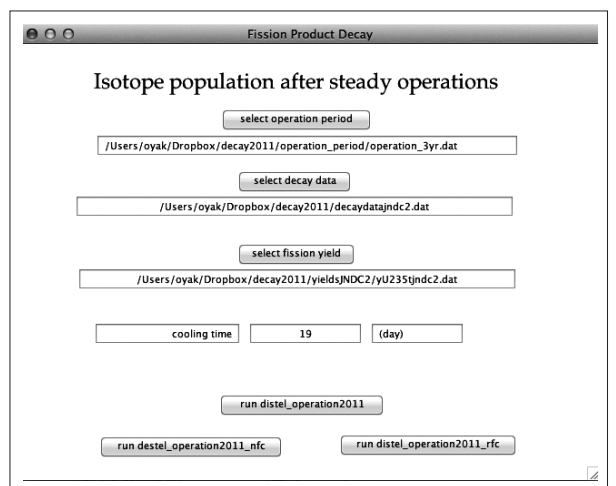


図9 定常運転後の核種生成量

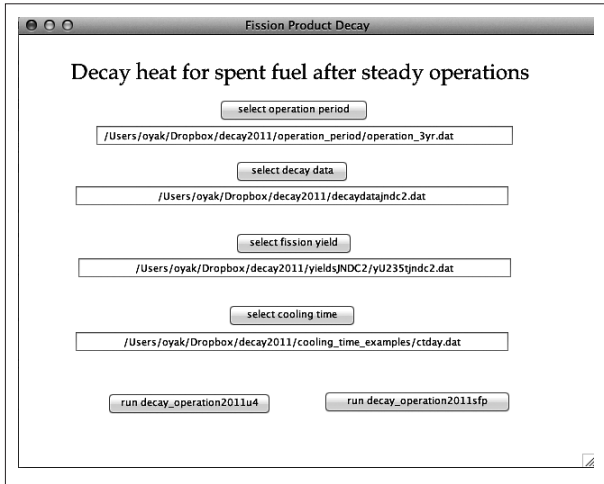


図 10 使用済み核燃料の崩壊熱

```
# /Users/oyak/Dropbox/decay2011/decaydatajndc2.dat
# /Users/oyak/Dropbox/decay2011/yieldsJNDC2/yU235jndc2.dat
# /Users/oyak/Dropbox/decay2011/operations/operation_unit1.dat
# JNDC2 Decay Data
# JNDC2 U235 thermal fission yields
# time (day) Pb (kW) Pg (kW) Pbg(kW) activ (Bq)
1.1574E-08 4.4050E+04 4.4031E+04 8.8081E+04 2.5145E+26
1.1574E-07 4.4003E+04 4.3994E+04 8.7997E+04 2.5132E+26
1.1574E-06 4.3549E+04 4.3639E+04 8.7188E+04 2.5007E+26
1.1574E-05 4.0237E+04 4.1067E+04 8.1305E+04 2.4055E+26
6.9444E-04 2.0546E+04 2.4971E+04 4.5517E+04 1.7018E+26
2.0833E-02 9.2685E+03 1.1995E+04 2.1264E+04 1.0597E+26
4.1667E-02 7.4620E+03 9.5798E+03 1.7042E+04 9.2810E+25
6.2500E-02 6.5944E+03 8.2719E+03 1.4866E+04 8.6065E+25
8.3333E-02 6.0566E+03 7.4181E+03 1.3475E+04 8.1671E+25
1.0417E-01 5.6709E+03 6.8074E+03 1.2478E+04 7.8409E+25
1.2500E-01 5.3697E+03 6.3472E+03 1.1717E+04 7.5803E+25
1.6667E-01 4.9110E+03 5.7007E+03 1.0612E+04 7.1756E+25
2.5000E-01 4.2877E+03 4.9586E+03 9.2463E+03 6.6109E+25
3.7500E-01 3.6891E+03 4.3716E+03 8.0606E+03 6.0430E+25
5.0000E-01 3.2886E+03 4.0109E+03 7.2995E+03 5.6367E+25
6.2500E-01 3.0014E+03 3.7517E+03 6.7531E+03 5.3238E+25
7.5000E-01 2.7866E+03 3.5513E+03 6.3379E+03 5.0725E+25
8.7500E-01 2.6206E+03 3.3893E+03 6.0099E+03 4.8650E+25
1.0000E+00 2.4885E+03 3.2545E+03 5.7430E+03 4.6898E+25
1.2500E+00 2.2905E+03 3.0407E+03 5.3312E+03 4.4079E+25
1.5000E+00 2.1479E+03 2.8768E+03 5.0248E+03 4.1893E+25
2.0000E+00 1.9537E+03 2.6375E+03 4.5912E+03 3.8679E+25
```

図 11 1号機の原子炉崩壊熱計算結果

であると考えている^{*1}

今後の改良が望まれる主な効果の1つは、核分裂生成物核種の中性子捕獲である。特に¹³⁴Csは、2年程度の冷却時間の崩壊熱に1~2割の寄与を与え、放射線防護の観点からも重要である。実用上は文献[1]の付録Aで行った¹³⁴Cs/¹³⁷Csの見積りの方法を利用すれば十分であろう。

改良が望まれる主な効果のもう1つは、燃焼に伴う核分裂する核種の割合の変化である。原子炉の中では²³⁸Uの中性子捕獲と2回のβ崩壊により²³⁹Puが生成する。新しい燃料では²³⁹Puは無視して良いが、燃料の燃焼とともに²³⁹Puが核分裂する割合が増える。使用済み燃料として取り出す直前では²³⁵Uよりも²³⁹Puの核分裂の方が多くなる。

これら2つの効果の改良を行えば、計算の不確かさは1割程度となるだろう。この不確かさは、原子炉崩壊熱評価値の不確かさが5-10%程度であること^[10]を考えると、十分な精度といえる。実は、燃焼計算については、このコードの元となった文献[2]の発表の時に立教大学原子炉研究所の小林久夫先生からコメントいただいた宿題であった。当時は、原子炉計算の必要性を感じておらずそのままにしていたが、JCOと福島事故を経験して、やはり取り組むべき課題であると感じている。今後は、燃焼計算と中性子捕獲計算を組み込むことによって十分な精度を持つコードに育てていきたい。

参考文献

- [1] 親松和浩：福島第1原子力発電所の原子炉崩壊熱の見積り，愛知淑徳大学論集—人間情報学部篇—2号，pp. 43-62, 2012.
- [2] K. Oyamatsu: Easy-to-use Application Programs to Calculate Aggregate Fission-Product Properties on Personal Computers, Proc. 1998 Symposium on Nuclear Data, Nov. 1998, JAERI, Tokai, Japan, JAERI-Conf 99-002, pp. 234-239, 1999.
- [3] 親松和浩：核分裂生成物の崩壊特性の解析解，愛知淑徳大学論集—人間情報学部篇—1号，pp. 21-30, 2011.
- [4] 「原子炉崩壊熱基準」研究専門委員会：「崩壊熱の推奨値とその使用法」，(社)日本原子力学会，1990年7月。
- [5] 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 1250，1977年3月。

^{*1}ただし、本コードの1号機の崩壊熱計算値は、東電の崩壊熱評価値（2011年5月26日資料）よりも4割近く小さい^[1]。その理由は不明である。より安全に考えるには誤差が5割程度だとすれば良いだろう。

- [6] T. R. England, J. Katakura, F. M. Mann, C. W. Reich, R. E. Schenter and W. B. Wilson: Decay Data Evaluation for ENDF/B-VI, Proc. International Symposium on Nuclear Data Evaluation Methodology, Upton, 1992, pp. 611-22, 1993.
- [7] T. R. England and B. F. Rider: Evaluation and Compilation of Fission Yields 1993, LA-UR-94-3106, ENDF-349, 1994.
- [8] OECD Nuclear Energy Agency: JEF-2.2 RADIOACTIVE DECAY DATA, JEF Report 13, 1994.
- [9] J. Katakura: Augmentation of ENDF/B fission product gamma-ray spectra by calculated spectra, LA-12125-MS, ENDF-352, 1991.
- [10] 吉田正: 軽水炉燃料崩壊熱のふるまい—福島第一発電所の崩壊熱挙動理解のために, 日本原子力学会誌, vol. 53, pp. 25-28, 2011.