

1 はじめに

ある出力パラメータが入力パラメータから受ける影響の定量的な情報が感度係数である。感度係数の計算の方法としては、入力パラメータに変動を与えて出力の変動を観察する方法と（一般化）摂動論を用いる方法とがあり、出力パラメータの数が入力パラメータの数よりも小さい場合には後者を活用する方が効率的である。

出力パラメータが原子炉の燃焼に関係する場合の感度は燃焼感度と呼ばれることがあり、また、燃焼感度を計算するための摂動論を（燃焼感度のための）一般化摂動論と呼ぶことがある。本稿では、この燃焼感度のための一般化摂動論を概説するとともに、その適用例をいくつか示す。なお、着目する出力パラメータとしては燃焼後の核種数密度とするが、核種数密度に依存して決まる炉物理パラメータに対しても応用が可能である。

2 燃焼感度計算理論の基礎

2.1 燃焼計算の概要

まずは前提となる燃焼計算について、簡単に触れておくこととする。

時間に依存する核種数密度ベクトルを $N(t)$ と記述する。燃焼計算では通常、燃焼期間をいくつかのステップに分け、ステップ中では燃焼挙動を支配する反応断面積、中性子束等のパラメータが不変であるとする。このような場合、燃焼ステップ中の $N(t)$ は以下の燃焼方程式に従うことになる。

$$\frac{dN(t)}{dt} = MN(t) \quad (1)$$

ここで行列 M は燃焼行列と呼ばれ、反応断面積や核種の崩壊情報といった核データと中性子束に依存して決まる。この方程式の数値解法については、ここでは触れないこととする。なお、熱出力で中性子束を規格化する場合には、燃焼ステップ中の中性子束レベルの変動を考慮するために、ステップをさらに細かいステップ（サブステップ）に分割する場合もある。

核データが変動した場合、それは燃焼行列 M を介して、燃焼中の数密度 $N(t)$ に変動を与えることになる。それを考慮するのが燃焼感度計算である。

なお、燃焼行列 M が中性子束に依存することは述べたが、中性子束 ϕ は燃焼ステップ毎に着目体系の中性子輸送方程式を解くことによって得られる。中性子輸送方程式は以下で記述される。

$$B\phi = \left(A - \frac{1}{k}F \right) \phi = 0 \quad (2)$$

核データが変動した場合、中性子輸送方程式の演算子 A や F を介して、中性子束 ϕ に影響を与えることになる。その結果、燃焼行列 M も影響を受け、 $N(t)$ に変動を与えることになる。また、熱出力で中性子束を規格化する場合には、核分裂断面積の変動が規格化後の中性子束に影響を与え、最終的に $N(t)$ に変動を与えることになる。このように、中性子束場の計算や出力による中性子束の規格化の計算を介した影響も燃焼感度計算では考慮する必要がある。ただし、これらの効果を考慮する場合には定式化が若干複雑となるので、本稿では無視することとする。その詳細は文献 [1] にまとめられている。

2.2 燃焼感度の計算

時間 t について $[0, T]$ の燃焼ステップに着目するとし、このステップ中で核データに変動が与えられて燃焼行列が $M + \Delta M$ になったとする。このときの燃焼方程式は以下のように記述される。

$$\frac{d(N(t) + \Delta N(t))}{dt} = (M + \Delta M)(N(t) + \Delta N(t)) \quad (3)$$

¹Document/Education/BurnSensFundamental

これに式 (1) を代入し、かつ $\Delta M \Delta N(t) = 0$ と近似すると以下の式を得る。

$$\frac{d\Delta N(t)}{dt} = \Delta M N(t) + M \Delta N(t) \quad (4)$$

さて、ここで、核データの変動による $t = T$ における数密度ベクトル N の i 番目の核種の数密度の変動 $\Delta N_i(T)$ に関心があり、核データが変動したときの $\Delta N_i(T)$ を直接計算せずに求めることを考える。このため、まず式 (4) の両辺に $w(T) = e_i$ を満足する $w(t)$ の転置ベクトルを左から乗じて $[0, T]$ で積分する。ここで e_i は i 番目の要素のみ 1 で、その他の要素はゼロとなるベクトルを示す。まず式 (4) の両辺に左から $w^T(t)$ を乗じ $[0, T]$ で積分すると以下の式が得られる。

$$\int_0^T w^T(t) \frac{d\Delta N(t)}{dt} dt = \int_0^T w^T(t) \Delta M N(t) dt + \int_0^T w^T(t) M \Delta N(t) dt \quad (5)$$

式 (5) の左辺は以下のように書ける。

$$\int_0^T w^T(t) \frac{d\Delta N(t)}{dt} dt = [w^T(t) \Delta N(t)]_0^T - \int_0^T \frac{dw^T(t)}{dt} \Delta N(t) dt \quad (6)$$

さらに式 (6) の右辺第一項は以下のように書ける。

$$[w^T(t) \Delta N(t)]_0^T = w^T(T) \Delta N(T) - w^T(0) \Delta N(0) = \Delta N_i(T) \quad (7)$$

ここで、 $t = 0$ では数密度の変動はゼロであることに注意されたい。これより、式 (5) は以下のように書ける。

$$\Delta N_i(T) = \int_0^T w^T(t) \Delta M N(t) dt + \int_0^T w^T(t) M \Delta N(t) dt + \int_0^T \frac{dw^T(t)}{dt} \Delta N(t) dt \quad (8)$$

さて、要素数が J のベクトル a 、 b と $(J \times J)$ 行列 C の演算で

$$d = a^T C b = (a^T C b)^T = b^T C^T a \quad (9)$$

の関係があることを利用すると、式 (8) は以下のように書き直せる。

$$\begin{aligned} \Delta N_i(T) &= \int_0^T w^T(t) \Delta M N(t) dt + \int_0^T \Delta N^T(t) M^T w(t) dt + \int_0^T \Delta N^T(t) \frac{dw(t)}{dt} dt \\ &= \int_0^T w^T(t) \Delta M N(t) dt + \int_0^T \Delta N^T(t) \left(M^T w(t) + \frac{dw(t)}{dt} \right) dt \end{aligned} \quad (10)$$

この式より、 $\Delta N_i(T)$ が ΔM と $\Delta N(t)$ から計算出来ることが分かるが、核データの変動に伴う $\Delta N(t)$ を計算しないことがそもそもの目的であるので、 $\Delta N(t)$ が現れない定式化を行う必要がある。そこで、 $w(t)$ を以下の微分方程式を満足するものとして定義する。

$$\frac{dw(t)}{dt} = -M^T w(t) \quad (11)$$

これにより、式 (10) は以下のように簡略化される。

$$\Delta N_i(T) = \int_0^T w^T(t) \Delta M N(t) dt \quad (12)$$

この式より、 $\Delta N_i(T)$ を直接 ΔN を計算することなく求められることが分かる。また、同様に、核データ σ に対する $N_i(T)$ の感度は以下の式で計算できる。

$$\frac{\partial N_i(T)}{\partial \sigma} = \int_0^T w^T(t) \frac{\partial M}{\partial \sigma} N(t) dt \quad (13)$$

以上をまとめると、ある核種の燃焼後数密度に着目した場合、それに応じて決まる $t = T$ における条件 $w(T)$ のもとで微分方程式 (11) を解き $w(t)$ を予め計算しておけば、任意の核データに対する感度を式 (13) に基づいて計算できることになる。 $w(t)$ は $[0, T]$ で定義されるが、 $t = T$ で条件が与えられるため、時間的には逆方向に解かれることになる。

2.3 随伴数密度の物理的意味

前節で導入された $\mathbf{w}(t)$ は随伴数密度と呼ばれるが、ここではその物理的意味について記述する。燃焼方程式と随伴数密度が従う方程式を以下に再掲する。

$$\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt} = \mathbf{M}\mathbf{N}(t) \quad (14)$$

$$\frac{d\mathbf{w}(t)}{dt} = -\mathbf{M}^T \mathbf{w}(t) \quad (15)$$

式 (14) の両辺に \mathbf{w}^T 、式 (15) の両辺に \mathbf{N}^T を左から乗じ時間 $[0, T]$ で積分し、辺々を足し合わせることで以下の式を得る。ここで、 \mathbf{w} と \mathbf{N} の t に対する依存性は省略して記述する。

$$\begin{aligned} \int_0^T \mathbf{w}^T \frac{d\mathbf{N}}{dt} dt + \int_0^T \mathbf{N}^T \frac{d\mathbf{w}}{dt} dt &= \int_0^T \mathbf{w}^T \mathbf{M}\mathbf{N} dt - \int_0^T \mathbf{N}^T \mathbf{M}^T \mathbf{w} dt \\ [\mathbf{w}^T \mathbf{N}]_0^T &= \int_0^T \mathbf{w}^T \mathbf{M}\mathbf{N} dt - \int_0^T \mathbf{w}^T \mathbf{M}\mathbf{N} dt \\ \mathbf{w}^T(T)\mathbf{N}(T) - \mathbf{w}^T(0)\mathbf{N}(0) &= 0 \end{aligned} \quad (16)$$

$\mathbf{w}(T) = \mathbf{e}_i$ とした場合、式 (16) は以下のように書ける。

$$N_i(T) = \mathbf{w}^T(0)\mathbf{N}(0) = \sum_j w_j(0)N_j(0) \quad (17)$$

これより、積 $w_j(0)N_j(0)$ は、燃焼後 $t = T$ における核種 i の数密度に対して、時刻 $t = 0$ において核種 j がどの程度寄与しているかを示していることが分かる。従って、 $w_j(t)N_j(t)/N_i(T)$ を考えた場合、これは $N_i(T)$ に対する時刻 t における核種 j の相対寄与割合を示すことになる。これは寄与関数とも呼ばれ、燃焼チェーンの簡略化アルゴリズムに活用された例がある [2]。また、仮に $\mathbf{N}(0) = \mathbf{e}_k$ とするならば、 $N_i(T) = w_k(0)$ となるので、 $w_k(0)$ は $t = 0$ において系に単位個数密度の核種 k が投入されたときの $t = T$ で生成される核種 i の数密度に対応するとも言える。以上より、随伴数密度 \mathbf{w} は、燃焼終了時点での着目核種の数密度に対する重要度関数と考えることもできる。

随伴数密度を理解するために、例えばある核種の崩壊による減衰、すなわち

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1(t) \quad (18)$$

を考え、これに対する随伴数密度を計算してみるとよいであろう。さらに、以下の 2 種類の原子核からなる燃焼の問題、

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1(t), \quad (19)$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_1 N_1(t) \quad (20)$$

を考え、これらに対する随伴数密度を計算してみるとさらによいであろう。また、 N_2 が崩壊で減衰していく問題も考えるとよいであろう。

以上で述べた随伴数密度の物理的意味に基づいて、式 (12) に示されている、核データが変化したことによる燃焼行列の変化 $\Delta\mathbf{M}$ に伴う燃焼後数密度 $N_i(T)$ の変化 $\Delta N_i(T)$ について考えよう。区間 $[0, T]$ を細かく等分割し、幅が Δt である各分割ステップ内で \mathbf{w} 、 \mathbf{N} が一定であると仮定するならば、式 (12) は以下のように書き直せる。

$$\Delta N_i(T) \approx \sum_i \mathbf{w}^T(t_i) \Delta\mathbf{M}\mathbf{N}(t_i) \Delta t \quad (21)$$

この式で現れる $\Delta\mathbf{M}\mathbf{N}(t_i) \Delta t$ は、区間 $[t_i, t_i + \Delta t]$ において、燃焼行列に $\Delta\mathbf{M}$ の変動が与えられたときに、その変動によって生じる核種数密度の変動を示すベクトルとなっている。そのベクトルが随伴数密度ベクトルに乗ぜられることから、この式では、 $[t_i, t_i + \Delta t]$ における各々の核種の数密度の変動が、着目している核種の数密度（ここでは $N_i(T)$ ）に最終的にどの程度影響しているか、が計算されていることになる。

前掲の 2 種類の原子核からなる燃焼の問題について、感度 $\frac{dN_2(T)}{dt}$ を \mathbf{N} と \mathbf{w} から計算し、解析解と比較してみるとよいであろう。

3 燃焼感度の適用例

燃焼感度の適用例として、PWR ピンセルを模擬した体系における、45GWD/t 燃焼度時点での Gd-155 核種数密度に着目した計算を行った。燃料としては、U-235 濃縮度 4.1wt% の UO₂ 燃料と、Pu 富化度 10% の MOX 燃料の 2 種類を考えた。

Gd-155 の生成に関連する燃焼チェーンを Fig. 1 に示す。この図のみからは、燃焼を通した Gd-155 の生成メカニズムを理解することは容易ではないことが分かるだろう。

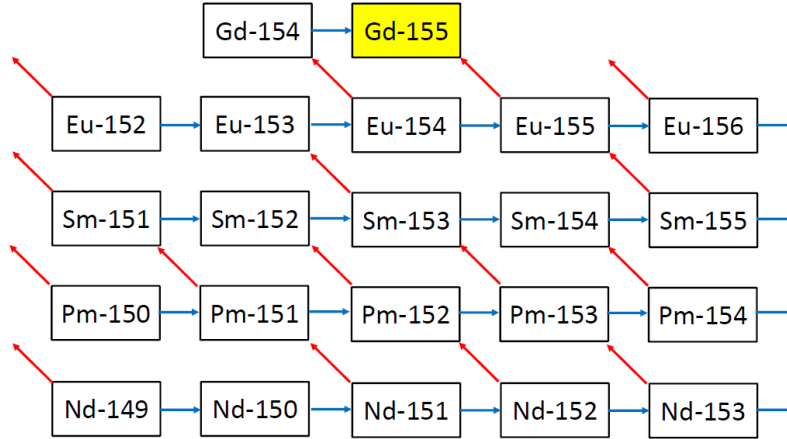


Fig. 1: Burnup chain for gadolinium-155

そこで、まずは Gd-155 の燃焼後数密度の核分裂収率に対する感度を計算した。結果を Fig. 2 に示す。この結果より、Gd-155 自身の核分裂収率に対する感度は小さく核分裂による直接的な Gd-155 の生成は無視できること、Gd-155 の生成元となる主な核種が Nd-151、-152、Sm-153、-155 の 4 核種であることが分かる。

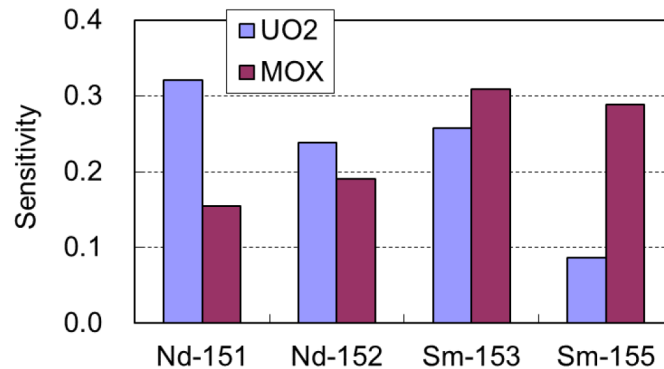


Fig. 2: Sensitivities of Gd-155 number density after burnup to fission yield data

続いて、Gd-155 の燃焼後数密度の中性子捕獲断面積に対する感度を計算した。結果を Fig. 3 に示す。この結果より、Gd-155 の生成に重要となる中性子捕獲反応を特定することが可能となったことが分かる。

以上の結果を踏まえ、Fig. 1 に示した燃焼チェーンから、Gd-155 の生成に関わるパスを残した簡略化燃焼チェーンを作成することができる。このようにして作成した簡略化燃焼チェーンを Fig. 4 に示す。この図より、燃焼を通した Gd-155 の生成メカニズムを容易に理解することが可能となるであろう。

また、Gd-155 の燃焼後数密度に対する随伴数密度を、いくつかの核種について Fig. 5 に示す。Eu-155 の崩壊が Gd-155 生成の主要な経路であるため、Eu-155 の随伴数密度が 45GWD/t から燃焼度が小さくなるにつれて急激に増加している。燃焼度が 45GWD/t からある程度離れるとそれは逆に減少傾向となるが、これは Eu-155 の崩壊によって Gd-155 が生成されても、それが熱中性子捕獲反応によって Gd-156 になってしまうことに由来する。MOX 燃料には熱中性子を吸収するプルトニウム同位体が含まれているため、熱中性子束レベルが UO₂ 燃料のものに比べて低下する。従って、Gd-155 の熱中性子捕獲反応が MOX 燃料では UO₂ 燃料と比べて小さくなるため、MOX 燃料における Eu-155 の随伴中性子束のピークは、UO₂ 燃料と比べて 45GWD/t からより離れた位置で観察されることになる。

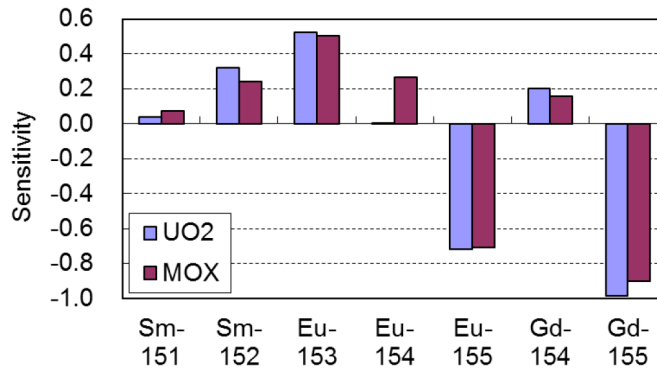


Fig. 3: Sensitivities of Gd-155 number density after burnup to cross sections

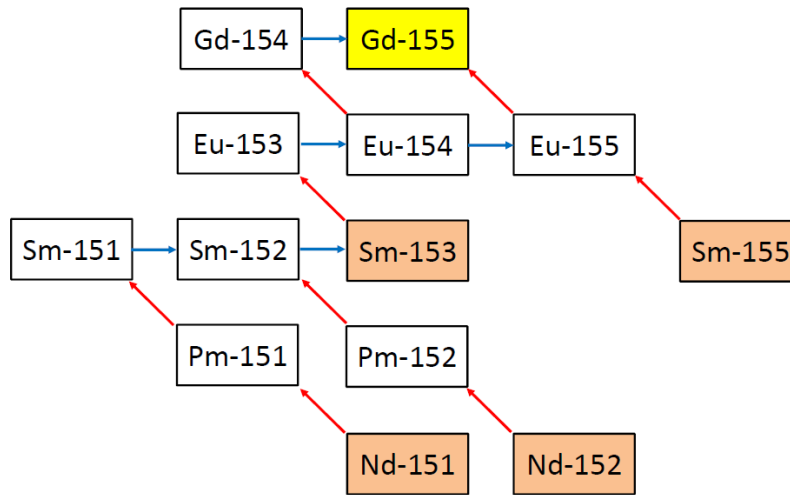


Fig. 4: Simplified burnup chain for gadolinium-155

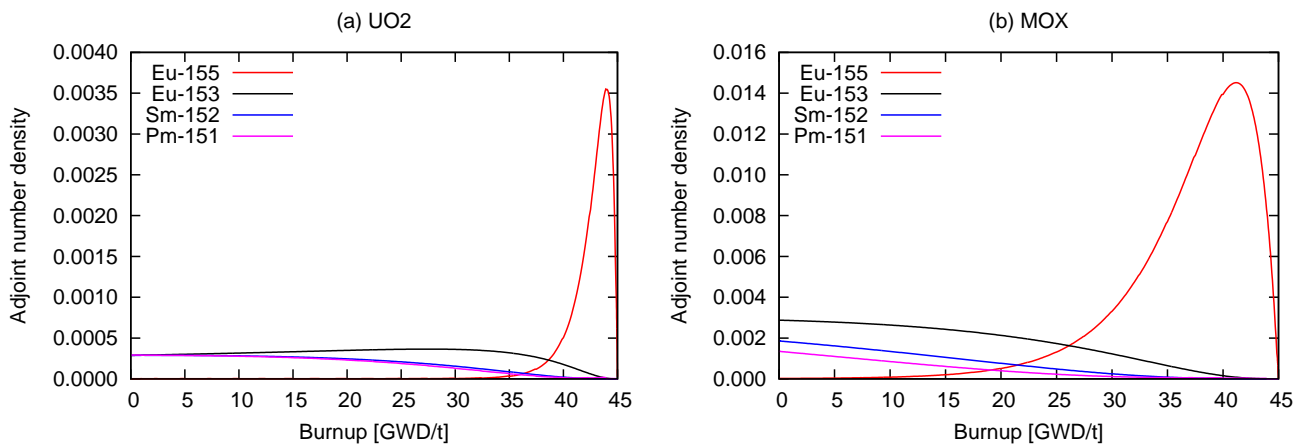


Fig. 5: Adjoint number densities to Gd-155 number density at 45 GWd/t

さらに、Gd-155 の燃焼後数密度に対する相対寄与割合を、いくつかの核種について Fig. 6 に示す。UO₂ 燃料と MOX 燃料の Sm-155 の核分裂収率の違いから、Sm-155 の娘核種である Eu-155 の寄与割合の振る舞いに大きな差異が見られる。

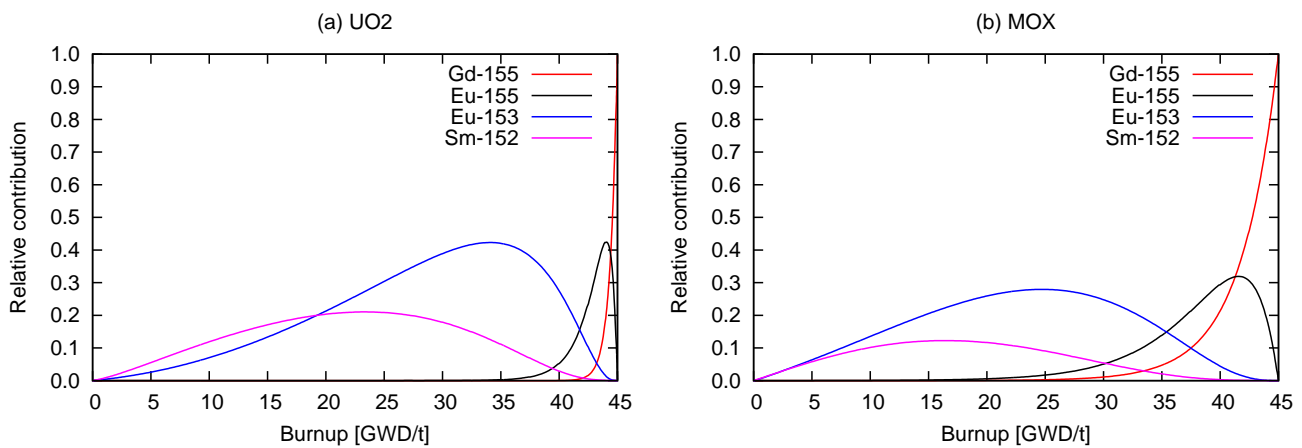


Fig. 6: Relative contributions to Gd-155 number density at 45 GWd/t

4 おわりに

本稿では燃焼感度理論の概要と適用例について述べた。

燃焼感度理論が完成したのはもうだいぶ前であり、多くの文献が存在する [3, 4, 5]。ここで例として挙げた文献の発行年からも、その歴史の古さが理解できるであろう。例として挙げたもの以外でも、これまでに多くの燃焼感度理論の適用例があるようだが、関連するコードが開発されてもそれが維持されることはなく、現在、広く使われているコードシステムにこのような機能が実装されているものはおそらく皆無と言えるだろう。そのような状況で、筆者らが開発している CBZ コードシステムには、関連する機能が実装され [1, 6]、崩壊熱の不確かさの低減等に活用されている [7]。昨今はランダムサンプリング法による不確かさ評価が主流となりつつあるが、計算コストが小さい便利な方法として、燃焼感度理論は（細々とかもしれないが）利用されていくものと考えられる。

参考文献

- [1] G. Chiba, Y. Kawamoto, *et al.*, “Development of a fuel depletion sensitivity calculation module for multi-cell problem in a deterministic reactor physics code system CBZ,” *Ann. Nucl. Energy*, **96**, pp.313-323 (2016).
- [2] G. Chiba, M. Tsuji, *et al.*, “Important fission product nuclides identification method for simplified burnup chain construction,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **52**, pp.953-960 (2015).
- [3] 三谷浩、小山謹二、黒井英雄、「アクチノイド核種の生成崩壊に関する感度解析の方法」、JAERI-M 7153 (1977).
- [4] M.L. Williams, Development of depletion perturbation theory for coupled neutron/nuclide fields, *Nucl. Sci. Eng.*, **70**(1979), pp. 20-36.
- [5] T. Takeda, T. Umamo, Burnup sensitivity analysis in a fast breeder reactor - Part I: Sensitivity calculation method with generalized perturbation theory, *Nucl. Sci. Eng.*, **91**(1985), pp. 1-10.
- [6] G. Chiba, M. Tsuji, *et al.*, “Uncertainty quantification of neutronic parameters of light water reactor fuel cells with JENDL-4.0 covariance data,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, pp.751-760 (2013).
- [7] Y. Kawamoto, G. Chiba, “Feasibility study of decay heat uncertainty reduction using nuclear data adjustment method with experimental data,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **54**, pp.213-222 (2017).