

ORIGEN2.2 コードの核分裂収率を取り扱う ルーチンの問題

日本原子力研究開発機構

須山 賢也

suyama.kenya@jaea.go.jp

1. 概要

2002年6月に ORIGEN2.2 がリリースされた¹⁾。ORIGEN2.1 では²⁴¹Am 等の ORIGEN2 のデータライブラリに核分裂収率が収納されていない核の核分裂割合が多い場合に、核分裂収率の補正が適切に行われなかったために燃焼前後で質量バランスが崩れてしまう、という問題点を修正したものであるとのことであった*。シグマ委員会核種生成量評価 WG では、以前より JENDL-3.2 に基づく ORIGEN2 用ライブラリ ORLIBJ32²⁾を作成し、さらに JENDL-3.3 のリリース後に JENDL-3.3 に基づくライブラリ ORLIBJ33³⁾も開発して ORIGEN2.1 に組み込んで配布していたが、ORIGEN2.2 と ORLIBJ32 及び ORLIBJ33 を組み合わせて使用したいという要求は大きく、2004年夏に、筆者は ORLIBJ32 と ORLIBJ33 を ORIGEN2.2 に組み込む作業を行い、所属研究室内で使用しつつパッケージング作業なども行ってきた。この作業の中で、上述の ORIGEN2.2 での核分裂収率の扱いを調査したが、その結果、現在配布中の ORIGEN2.2 のパッケージに含まれるソースコードにはバグがある事が判明した。本稿では、その点について着目して ORIGEN2.2 と従来のバージョンとの差を調べたので以下に報告する。

2. ORIGEN2.2 と ORIGEN2.1 の差について

最初に、ORIGEN2.2 と従来の ORIGEN2.1 の計算値の比較を行った。ORNL のアナウンスによると核分裂収率がライブラリに含まれていない同位体の核分裂割合が大きい場合に影響が大きいと考えられるため、計算対象に MOX 燃料を選び、ORLIBJ33 に内蔵されている PWRM0210J33 ライブラリを作成した時の初期組成条件 (Pu 富化度 10%、Pu 組成 2 [標準組成といわれているもの]) を選択して計算を行った。使用ライブラリは、ORIGEN2 標準の PWR MOX 燃料用ライブラリ PWRPUPU⁴⁾と、上述の PWRM0210J33 の二つである。

燃焼度が 60 GWd/t の時のアクチニドと核分裂生成物の質量の和を表 1 に示した。アクチニドの質量の総和は、ライブラリと使用したコードのバージョンによらず殆ど一致をしているが、核分裂生成物の質量の和は ORIGEN2.1 と ORIGEN2.2 で 10%の差を示している。ま

* この点については、数年前に旧原研の西原氏からも筆者宛に問い合わせがあったが、後述する ORIGEN2 それ自身の問題もあり特に対応が出来ずにいた。西原氏は独自に対応策をとられたようである。また、旧サイクル機構の大木氏の部署でも本報告と同様の事に着目されて、修正をされていたようである。

た、表 2 に主要な FP 同位体の質量を示したが、その総和が 10% 近く増加をしていることから当然ではあるが、個々の同位体量も 10% 近く増加をしていることがわかる。

この結果が妥当であるかどうかには議論の余地がある。統合化燃焼計算コード SWAT⁵⁾によって PWRM0210J33 ライブラリを作成した時と同様の計算をした場合の個々のアクチニド核種の核分裂率を評価すると、主要核分裂核種であり ORIGEN2 のライブラリに核分裂収率データが含まれている ²³⁵U、²³⁸U、²³⁹Pu、²⁴¹Pu の核分裂率の和が全核分裂率に占める割合は、燃焼初期で 98%、燃焼後期で 96% であった。よって、ORIGEN2.2 において ORIGEN2.1 では考慮されない核分裂率を正しく考慮するとしても、10% という FP 同位体の増加は過大であろう。さらに問題は、表 1 からわかるように ORIGEN2.1 による計算では、燃焼後のアクチニドと核分裂生成物の質量の和が初期重元素量 1.0×10^6 [g] に比較して若干小さいが（これが問題になって ORIGEN2.2 をリリースしたのだが）、ORIGEN2.2 によって計算をした場合は、その値は燃焼前よりも増加してしまっていることである。核分裂による質量欠損は小さく、ここで示した有効桁では、燃焼前後でアクチニドと核分裂生成物の質量の総和は変化しないであろうし、まして増加というのは明らかにおかしい。

比較のために、初期濃縮度 4.1 wt% の UO₂ 燃料の初期組成を対象に PWR41J33 ライブラリを使用した燃焼計算も行い（高浜 3 号炉で照射された燃料を対象とした PIE で得られた SF97-4 サンプル解析と同等の計算）、得られた主要 FP 同位体の結果を表 3 に示した。ORIGEN2.1 と ORIGEN2.2 の計算値の差は約 1% の差である。この場合、SWAT によって評価された ²³⁵U、²³⁸U、²³⁹Pu、²⁴¹Pu の核分裂率の和の全核分裂率に対する寄与率は 99% 以上であり、核分裂率の補正による核分裂生成物の質量の和は 1% も変化をしないと考えられ、さらに燃焼度の基準となる ¹⁴⁸Nd の量で 1% の差を生じているのは許容できない差と言える。そこで、ORIGEN2.2 のソースプログラムに戻り、修正されたルーチン FLUXO をチェックすることとした。

表 1 質量の和[g/TIHM]の比較：燃焼度 61.7 GWd/t

Codes	ORIGEN2.1		ORIGEN2.2	
	PWRPUPU	PWRM0210J33	PWRPUPU	PWRM0210J33
Actinides	9.376E5*	9.375E5	9.376E5	9.375E5
Fission Products	6.178E4	6.183E4	6.670E4	6.950E4
Total weight	9.994E5	9.994E5	1.004E6	1.007E6

* Read as 9.376×10^5

表 2 PWRM0210J33 を使用した場合の計算値[g/TIHM]の比較：
61.7 GWd/t（初期組成 MOX）

	ORIGEN2.1	ORIGEN2.2	ORIGEN2.2/ORIGEN2.1
¹⁴⁹ Sm	1.354E+01*	1.546E+01	1.14
¹⁰³ Rh	1.231E+03	1.395E+03	1.13
¹⁴³ Nd	1.444E+03	1.621E+03	1.12
¹³³ Cs	1.930E+03	2.178E+03	1.13
¹⁵² Sm	1.946E+02	2.192E+02	1.13
¹⁵⁵ Gd	1.110E+00	1.231E+00	1.11
¹⁴⁵ Nd	1.042E+03	1.167E+03	1.12
¹⁴⁷ Sm	1.367E+02	1.522E+02	1.11
¹⁵³ Eu	2.915E+02	3.250E+02	1.11
¹⁵⁰ Sm	5.376E+02	5.993E+02	1.11
¹³⁷ Cs	2.269E+03	2.553E+03	1.13
¹⁴⁸ Nd	6.749E+02	7.532E+02	1.12

* Read as 1.354×10^1

表 3 PWR41J33 を使用した場合の計算値[g/TIHM]の比較：高浜 3 号 SF97-4 47.03 GWd/t

	ORIGEN2.1	ORIGEN2.2	ORIGEN2.2/ORIGEN2.1
¹⁴⁹ Sm	2.211E+00*	2.268E+00	1.03
¹⁰³ Rh	5.329E+02	5.380E+02	1.01
¹⁴³ Nd	1.004E+03	1.018E+03	1.01
¹³³ Cs	1.527E+03	1.546E+03	1.01
¹⁵² Sm	1.368E+02	1.384E+02	1.01
¹⁵⁵ Gd	8.517E-02	8.584E-02	1.01
¹⁴⁵ Nd	9.178E+02	9.297E+02	1.01
¹⁴⁷ Sm	1.023E+02	1.033E+02	1.01
¹⁵³ Eu	1.738E+02	1.751E+02	1.01
¹⁵⁰ Sm	4.429E+02	4.476E+02	1.01
¹³⁷ Cs	1.735E+03	1.755E+03	1.01
¹⁴⁸ Nd	5.258E+02	5.318E+02	1.01

* Read as 2.211×10^0

3. ORIGEN2 に於ける核分裂収率の補正方法

ORIGEN2 では核分裂収率の修正が FLUXO ルーチンで行われている。この補正は FP 核種の生成源として考慮されない（つまり核分裂収率がライブラリに無い）核分裂の寄与を評価し、その寄与を、FP 核種生成源として考慮される核分裂性核種の FP 核種生成率に足しあわせることで行われる。その補正は、以下のような手続きで行われる。

1. 核分裂収率データがライブラリに無い核（unconnected actinide と呼ばれる）の核分裂率の総和を求める。この値を XTOT とする。
2. 上記の unconnected actinide の中で、その核分裂率が最も大きな同位体を決定し、その核と ZA 番号が最も近い核分裂収率が考慮される核（connected actinide と呼ばれる）を探して、その核分裂率を求める。その値を PRCON とする。
3. $(XTOT+PRCON)/PRCON = (1+XTOT/PRCON) = FPRATN$ を評価する。
4. 2 で求めた connected actinide による FP 生成率に FPRATN を掛け合わせて、補正を行う。

ORIGEN2.2 での修正は、ORIGEN2.1 では 1 の処理が正常に行われなかったために核分裂率の総和を正確に求めない場合があるので修正のための対応を行った、というものである。さらに、ORIGEN2.2 では、核分裂率の評価値として[核種の量]×[断面積]ではなく、[核種量]×[断面積]×[核分裂あたりの放出エネルギー]で求めるように変更が加えられた。なお、この[核分裂あたりの放出エネルギー]は、対象同位体の Z と A を変数とする文関数文で与えられている。

この調査の過程で、VACS を使用する場合には 2 の処理でもとめた connected actinide の Z と A を得る文を通過しない場合があり、そのために、核分裂率を意図したようにもとめないバグがある事が判明した（参考プログラムリスト*参照）。そこで、プログラムを修正し、ORIGEN2.1 との差を評価した。また、バグを修正すると同時に、核分裂率の評価値に従来の[核種の量]×[断面積]を採用した結果も得ることとした。

表 4 に見つかったバグを取った場合の結果を示したが、修正によって燃焼全後でアクチノイドと FP の質量和が保存されるようになり妥当な結果を得ることが出来る事がわかる。表 5 には、表 1 及び表 2 と同じ MOX 燃料に対する燃焼計算を行った場合の個々の FP 同位体の量を比較したが、各同位体とも ORIGEN2.1 の結果に比較して 1%程度の増加となっている。さらに、表 6 には、同じく表 3 を作成した時と同じウラン燃料に対する燃焼計算の結果を示しているが、この場合は ORIGEN2.1 と ORIGEN2.2 ではほとんど差を生じないという結果を得た。また、核分裂率の評価値に従来の[核種の量]×[断面積]を採用しても、ORIGEN2.2 で導入された核分裂率評価方法と比べて、ほとんど差が無い事も判明した。

本手法による核分裂収率の補正方法は、connected actinide の核分裂割合がゼロに近づく場

* 参考プログラムリスト <https://typhoon.tokai-sc.jaea.go.jp/origen22/fluxo.pdf>

合には、そのままでは適用できなくなる。これは、U や Pu が微量あるいはまったく含まれない、MA だけからなる燃料などの場合である。しかし、ORIGEN2 コードの大多数のユーザーの通常の解析対象は UO₂ や MOX 燃料である事を考えると、ORIGEN2 で採用されている補正方法は、まず適切であると言えよう。

表 4 質量の和[g/TIHM]の比較：燃焼度 61.7 GWd/t

Codes	ORIGEN2.2(PWRM0210J33)		
	プログラム修正前	プログラム修正	プログラム修正 2
Actinides	9.375E5*	9.375E5	9.375E5
Fission Products	6.950E4	6.249E4	6.247E4
Total	1.007E6	1.000E6	1.000E6

プログラム修正 2 は、バグを修正し、核分裂率を[核種の量]×[断面積]として評価
Read as 9.375×10^5

表 5 PWRM0210J33 を使用した場合の計算値[g/TIHM]の比較：61.7 GWd/t (初期組成 MOX)

	ORIGEN2.1 計算値	ORIGEN2.2 (修正前) / ORIGEN2.1	ORIGEN2.2 (修正) / ORIGEN2.1	ORIGEN2.2 (修正 2) / ORIGEN2.1
¹⁴⁹ Sm	1.354E+01*	1.14	1.01	1.01
¹⁰³ Rh	1.231E+03	1.13	1.01	1.01
¹⁴³ Nd	1.444E+03	1.12	1.01	1.01
¹³³ Cs	1.930E+03	1.13	1.01	1.01
¹⁵² Sm	1.946E+02	1.13	1.01	1.01
¹⁵⁵ Gd	1.110E+00	1.11	1.01	1.01
¹⁴⁵ Nd	1.042E+03	1.12	1.01	1.01
¹⁴⁷ Sm	1.367E+02	1.11	1.01	1.01
¹⁵³ Eu	2.915E+02	1.11	1.01	1.01
¹⁵⁰ Sm	5.376E+02	1.11	1.01	1.01
¹³⁷ Cs	2.269E+03	1.13	1.01	1.01
¹⁴⁸ Nd	6.749E+02	1.12	1.01	1.01

ORIGEN2.2 (修正 2) はバグを修正し、さらに核分裂率を[核種の量]×[断面積]として評価
Read as 1.354×10^1

表 6 PWR41J33 を使用した場合の計算値[g/TIHM]の比較：高浜 3 号 SF97-4 47.03 GWd/t

	ORIGEN2.1 計算値	ORIGEN2.2 (修正前) / ORIGEN2.1	ORIGEN2.2 (修正) / ORIGEN2.1	ORIGEN2.2 (修正 2) / ORIGEN2.1
¹⁴⁹ Sm	2.211E+00*	1.03	1.00	1.00
¹⁰³ Rh	5.329E+02	1.01	1.00	1.00
¹⁴³ Nd	1.004E+03	1.01	1.00	1.00
¹³³ Cs	1.527E+03	1.01	1.00	1.00
¹⁵² Sm	1.368E+02	1.01	1.00	1.00
¹⁵⁵ Gd	8.517E-02	1.01	1.00	1.00
¹⁴⁵ Nd	9.178E+02	1.01	1.00	1.00
¹⁴⁷ Sm	1.023E+02	1.01	1.00	1.00
¹⁵³ Eu	1.738E+02	1.01	1.00	1.00
¹⁵⁰ Sm	4.429E+02	1.01	1.00	1.00
¹³⁷ Cs	1.735E+03	1.01	1.00	1.00
¹⁴⁸ Nd	5.258E+02	1.01	1.00	1.00

ORIGEN2.2 (修正 2) はバグを修正し、さらに核分裂率を[核種の量]×[断面積]として評価
Read as 2.211×10⁰

4. 結論

以上のことから、現在配布されている ORIGEN2.2 にはバグがあり、ORIGEN2 ライブラリに核分裂収率が含まれていない同位体の核分裂率の寄与が増大する MOX 燃料の場合に、その影響が顕著に現れる事が分かった。また、そのバグを修正した所、作者達が試みた補正が適切に行われている事を確認し、MOX 燃料では FP 計算値の補正量が 1%程度となる事がわかった。また、修正した ORIGEN2.2 を使用しても、UO₂ 燃料の解析においては、これまでの解析結果が変わることはない事も確認した。

この作業を通じて、ここに示したバグはあったものの、核分裂率の補正方法などに ORIGEN2 コードの見通しの良さを再認識させられた。ただし、ORIGEN2 の断面積フォーマットでは核分裂収率の有効桁数は 3 桁しかとれないことと、その読み込みルーチンの制限から、ライブラリの一行あたりの桁数が 80 に制限されている事が気になった。²⁴¹Am や ²³⁷Np の核分裂収率データが評価済されて利用可能であっても、現在の ORIGEN2 の計算方法やデータファイルのフォーマットでは利用出来ない。実用上は問題が無いとしても、「新しい評価値を生かしたい」という立場からすれば残念なことである。

この問題を根本的に解決するにはまずは 80 桁で制限されている ORIGEN2 のライブラリフォーマットを見直すことが必要と思われる。しかし、コード内で配列を決め打ちしている部

分もあり、根本的に解決をするにはソースコードの小修正するだけでは済まないようである。また、これだけ普及しているライブラリのフォーマットを変更することに対する議論も必要であろう。

なお、本作業の結果は ORNL にも連絡したが、今のところ返答はない。しかし、今後のリリースでアナウンス無しで修正される可能性はあるかもしれないので注目したい。また、NEA Data Bank にも連絡をし「関係者への連絡を行う」との返答を得ている。

修正前後の fluxo ルーチンと、変更の詳細は web page

<https://typhoon.tokai-sc.jaea.go.jp/origen22/>

にある。ORIGEN2.2 ユーザーの方は、ダウンロードをしてサブルーチンを入れ替える事で利用可能である。また、ORLIBJ32 と ORLIBJ33 を ORIGEN2.2 に組み込んだパッケージを現在作成中であるが、そこに含まれる当該ルーチンは修正を行ったものとする予定である。

参考文献

- 1) S.B. Ludwig, A.G. Croff, "Revision to ORIGEN2 – Version 2.2," Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National, Laboratory (2002).
- 2) 須山賢也、片倉純一、大河内靖、石川眞, "JENDL-3.2 に基づく ORIGEN2 用ライブラリ : ORLIBJ32," JAERI-Data/Code 99-003, 日本原子力研究所(1999).
- 3) 片倉純一、片岡理治、須山賢也、神智之、大木繁夫, "JENDL-3.3 に基づく ORIGEN2 用断面積ライブラリセット:ORLIBJ33," JAERI-Data/Code 2004-015, 日本原子力研究所(2004).
- 4) A.G. Croff, M.A. Bjerke, G.W. Morrison, L.M. Petrie, "Revised Uranium-Plutonium Cycle PWR and BWR Models for the ORIGEN Computer Code," ORNL/TM-6051, Oak Ridge National, Laboratory (1978).
- 5) Kenya Suyama, Hiroki Mocizuki and Takehide Kiyosumi, "Revised Burnup Code System SWAT: Description and Validation Using Postirradiation Examination Data," *Nuclear Technology*, **138**[2], pp.97-110 (2002).

[注意]

URL 「<https://typhoon.tokai-sc.jaea.go.jp/origen22/>」は、以下のように変更になりました。

<https://typhoon.jaea.go.jp/origen22/>