JAERI-M
7153

アクチノイド核種の生成崩壊に関する感度解析の方法

１９７７年７月

三谷　浩・小山　謹二・黒井　英雄

日 本 原 子 力 研 究 所
Japan Atomic Energy Research Institute

アクチノイド核種の生成崩壊に関する感度解析の方法

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部
三谷 浩・小山謹二・黒井英雄

（1977年6月16日受理）

アクチノイド核種の生成崩壊について感度解析を行うために，その数学的方法について詳しく検討した。特に，時間依存の摂動法とBateman 法を応用するため，アクチノイド核種の生成崩壊の基本方程式および随伴方程式の解法に，ラプラス変換および変型ラプラス変換とそれらの相乗定理を用いて，統一的に取扱うことを可能にした。この方法を用いて感度解析に必要な基礎的定式化を行い，その物理的内容についても考察した。さらに，固有値法を応用することを検討し，感度係数の直接的導出法を示した。

A Method of the Sensitivity Analysis of Build-up and Decay of Actinides

Hiroshi MITANI, Kinji KOYAMA and Hideo KUROI

Division of Reactor Engineering,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received June 16, 1977)

To make sensitivity analysis of build-up and decay of actinides, mathematical methods related to this problem have been investigated in detail. Application of time-dependent perturbation technique and Bateman method to sensitivity analysis is mainly studied. For the purpose, a basic equation and its adjoint equation for build-up and decay of actinides are systematically solved by introducing Laplace and modified Laplace transforms and their convolution theorems. Then, the mathematical method of sensitivity analyses is formulated by the above technique; its physical significance is also discussed. Finally, application of eigenvalue-method is investigated. Sensitivity coefficients can be directly calculated by this method.

Keywords : Sensitivity Analysis, Actinide, Time-Dependent Perturbation Method, Bateman Method, Laplace Transform, Eigenvalue-Method, Radioactive Decay, Buildup

目　　次

1. 序　　論

アクチノイド核種には長寿命のα放射性核種が多く，通常の核分裂生成物に比較して，長時間冷却しても高い放射能を保っている。したがって，燃料再処理，放射性廃棄物処理および環境保護の観点からアクチノイド核種の核変換が重要な問題となっている[1][2]。その解決方法として種々の方式が提案され検討されているが，炉物理的に最も有望視されているのは，(i)アクチノイド核種を高速炉にリサイクルする方法，(ii)燃料再処理から回収されたアクチノイド核種のみを燃料とした専焼炉による核種消滅の方法である[1]。この両者の方法は，アクチノイド核種の核変換による消滅において，中性子による核分裂が最も効果的であることに基づいている。

しかし，アクチノイド核種の高エネルギー領域の断面積は現状では充分に整備されていない。したがって，感度解析により最も重要な断面積および基礎データを明らかにし，今後の微分測定および積分測定にたいして指針を与えると共に，アクチノイド核種の消滅処理方法の計算結果の信頼性を調べる必要がある。これには，種々の炉型でのアクチノイド核種の生成量，その放射性有害の相対的な危険度，種々の原子炉および専焼炉での核変換の効率，等の解析が基礎となる[2]。

これらの感度解析については，Küster and Lalvoic[3]，Hage and Schmidt[2]，Tondinelli[4]，Gandini[5]らの研究があり，種々の炉型でのアクチノイド核種の生成量の推定に重点が置かれている。しかし，感度解析の方法は必ずしも明確ではなく，個々の研究者により異なった手法が用いられており，系統的な計算が充分に行われていない。これは個々の炉型で生成崩壊するアクチノイド核種は複雑な系列と種々の反応に関連していることによる。

最近，Gandini は時間依存の一般化摂動法を原子炉の燃焼解析に応用し[6]，さらに，高速炉で生成されるアクチノイド核種の感度解析についても計算している[5]。一方，Tasakaは従来の放射性核種の生成崩壊で広く用いられていたBateman 法を改良し，崩壊系列で同じ崩壊定数をもつ核種が含まれている場合の解を与え，さらに循環系列についても近似的に取扱えるようにした[7]。

本報告書では，アクチノイド核種の生成消滅の感度解析の一般的手法を確立するために，時間依存の摂動法とTasakaにより拡張されたBateman 法を応用することを試みた。このため，アクチノイド核種の生成消滅の基本方程式およびその随伴方程式の解法にBateman 法を用いることについて特に詳しく検討した。この際，循環系列の取扱いについてTasaka の方法[7]よりさらに高い近似解を求めることが出来る一般的な方法を明らかにした。さらに，随伴方程式を解くためには終端条件，即ち，我々が放射性核種を検出する時刻での条件を与えねばならない。したがって通常のラプラス変換を用いることは出来ない。このため新しく変型ラプラス変換を提案し，統一的に時間依存の随伴方程式の解を求め得るようにした。尚，最後に基本方程式および随伴方程式の解法に固有値法[8]を用いることを検討し，さらに基本方程式の変分から直接感度係数を求める方法についても具体的に定式化した。

2. 感度解析と時間依存の摂動法

感度解析はシステムの特性を知る有力な方法として種々の分野で広く用いられている。ここではアクチノイド核種の原子炉内での生成消滅が崩壊定数や中性子との反応断面積を変化させた時にどのように変化するかを調べ，アクチノイド核種の生成消滅に重要な因子を明らかにする。この感度解析には中性子との反応断面積を通して部分的にアクチノイド核種を焼却する炉型のスペクトラムを変化させる影響が取り入れられる。しかし，アクチノイド核種の核変換を最も効率良く推進するための炉型の選定に必要な感度解析にはさらに複雑な要因が絡み合ってくる。これについては別に考慮する必要がある。

従来，炉物理の分野でおもに行なわれていた感度解析は，種々の積分量が体系の組成や断面積或は積分量自身に含まれる断面積を変化させた時にどのように変化するかを計算することに主眼がおかれていた。これは時間に依存しない感度解析ではあったが，任意の炉物理量に対して中性子のインポータンスが定義できることを明きらかにし，一般化摂動法と呼ばれる手法にまで発展し，新しい世代別のインポータンスなる概念を生み出した。これはUsachev[9]らによって展開されたものであるが，その後，Gandiniはこの手法を時間依存も含めるように拡張した。更に，これを原子炉内での燃焼解析に応用するために，体系の燃焼状態で生成崩壊する核種の検出にその核種も含めて炉内に存在する核種がどの程度寄与するかを表わすインポータンスを定義した。[11] これに基づいて，体系のパラメータや崩壊定数が変化した時の検出核種の変化量を求める時間依存の摂動論を展開した[5]。従来は中性子に対するインポータンスが定義されていたが，炉内で生成崩壊する核種にもインポータンスなる概念を与え，このインポータンスが従う方程式が基本方程式の随伴方程式であることを明確にした。ここではこの時間依存の摂動論を応用し，アクチノイド核種の生成消滅に対する感度解析を行う。

アクチノイド核種の生成崩壊についての基本方程式は次式で与えられる。

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{n} a_{ij} N_j(t) \qquad (i=1,2,\cdots,n) \qquad (2.1)$$

ここで，a_{ij} は核種 j が崩壊し核種 i が生成される割合を表わし，a_{ij} は核種 i の崩壊を表わす。上式はベクトルおよびマトリックスを用いると次のように記述される。

$$\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt} = \mathbf{AN}(t) \qquad (2.2)$$

ここで，

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} a_{11}, a_{12}, \cdots, a_{1n} \\ a_{21}, a_{22}, \cdots, a_{2n} \\ \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \\ a_{n1}, a_{n2}, \cdots, a_{nn} \end{bmatrix} \qquad (2.3)$$

である。この**A**は壊変マトリックスと呼ばれている。(2.2) 式の解法については次章で詳し

く検討するが，初期条件として時刻 $t=t_0$ での核種の原子数 $\mathbf{N}(t_0)$ が与えられると（2.2）の解は形式的に

$$\mathbf{N}(t) = e^{\mathbf{A}(t-t_0)}\mathbf{N}(t_0) \tag{2.4}$$

となる。

次に(1)式の係数 a_{ij} が $a_{ij}+\delta a_{ij}$ に変化したとき，或は（2.2） 式でマトリックス $\mathbf{A}$ が $\mathbf{A}+\delta\mathbf{A}$ に変化したときに，時刻 t_f でのアクチノイド核種の生成消滅量（原子数）の変化を求める。ここで次の検出量或は積分量を考える。

$$Q = \mathbf{h}^T\mathbf{N}(t_f) \qquad t_f > t_o \tag{2.5}$$

ただし，$\mathbf{h}^T$ はベクトルであり

$$\mathbf{h}^T = [h_1, h_2, \cdots, h_n] \tag{2.6}$$

で表わされる。このベクトルの要素 h_i は1か0の値であり，i番目の核種の変化を検出するか否かに依存する。（2.5）式の変化量を求めるために核種のインポータンスが従う方程式，即ち，（2.2） の随伴方程式を考える。これは

$$-\frac{d\mathbf{N}^*(t)}{dt} = \mathbf{A}^T\mathbf{N}^*(t) \tag{2.7}$$

で与えられる。ここで $\mathbf{A}^T$ は $\mathbf{A}$ の転置行列ある。一般にインポータンスを求めるためには終端条件を与える必要がある。（2.5）式から明らかなように時刻 t_f で核種の原子数を検出するので終端条件は

$$\mathbf{N}^*(t_f) = \mathbf{h} \tag{2.8}$$

となる。この条件のもとで（2.7）式の解は形式的に

$$\mathbf{N}^{*T}(t) = \mathbf{h}^T e^{-\mathbf{A}^T(t-t_f)} \tag{2.9}$$

で与えられる。

今，時刻 t_0 に崩壊定数或は中性子との反応断面積が変化したとする。即ち，$\mathbf{A}$ が $\mathbf{A}+\delta\mathbf{A}$ に変化したとすれば，基本方程式は次のようになる。

$$\frac{d\mathbf{N}'(t)}{dt} = (\mathbf{A}+\delta\mathbf{A})\mathbf{N}'(t) \qquad (t_f > t > t_o) \tag{2.10}$$

一方，（2.7） 式は次のように記述することもできる。

$$\frac{d\mathbf{N}^{*T}(t)}{dt} = -\mathbf{N}^{*T}(t)\mathbf{A} \tag{2.11}$$

（2.10）式の左側から $N^{*T}(t)$ をかけ，（2.11）式の右側から $\mathbf{N}'(t)$ をかけ，両式を加えると次

式が得られる。

$$N^{*T}(t)\frac{dN'(t)}{dt}+\frac{dN^{*T}(t)}{dt}N'(t)=N^{*T}(t)\,\delta A N'(t) \tag{2.12}$$

上式の左辺は次のように変形できる。

$$\frac{d(N^{*T}(t)N'(t))}{dt}=\frac{d(N^{*T}(t)N(t))}{dt}+\frac{d(N^{*T}(t)\delta N(t))}{dt} \tag{2.13}$$

ここで右辺第1項はインポータンスの保存則により消える。したがって，(2.12)式は

$$\frac{d(N^{*T}(t)\ \delta N(t))}{dt}=N^{*T}(t)\,\delta A N(t) \tag{2.14}$$

となる。上式を t_0 から t_f まで積分する。この時，$t=t_0$ で $\delta N(t_0)=0$ および(2.8)式のインポータンスの終端条件を用いると次の摂動公式が得られる。

$$\delta Q=h^T\delta N(t_f)=\int_{t_0}^{t_f}N^{*T}(t)\,\delta A N'(t)\,dt \tag{2.15}$$

上式で $N'(t)$ は摂動を受けた後でのアクチノイド核種の密度であるためこれを摂動を受ける前の値に置き換える。この時，1次のオーダの摂動公式として次式が得られる。

$$\delta Q=\int_{t_0}^{t_f}N^{*T}(t)\,\delta A\,N(t)\,dt \tag{2.16}$$

通常の感度解析では1次のオーダの摂動公式で充分である。さらに高次のオーダの摂動公式が必要であれば感度解析の計算は非常に複雑なものとなり，直接計算と同様の労力が要求される。しかし，(2.15)式の摂動公式は感度解析ばかりでなく他の問題にも適用できる可能性がある。したがって，一般的な取扱いとして任意の高次項まで計算できる摂動公式を導出しておく。(2.10)式で $N'(t)$ を次のように展開し

$$N'(t)=\sum_{n=0}^{\infty}\varepsilon^n N^{(n)}(t) \tag{2.17}$$

さらに，

$$A'=A+\varepsilon\,\delta A \tag{2.18}$$

とし，これらを(2.10)式に代入すると次式が得られる。

$$\sum_{n=0}^{\infty}\varepsilon^n\frac{dN^{(n)}(t)}{dt}=\sum_{n=0}^{\infty}\varepsilon^n\left(AN^{(n)}(t)+\delta AN^{(n-1)}(t)\right) \tag{2.19}$$

ここで，$N^{(-1)}(t)=0$ に注意し，ε の同じベキ乗の係数を比較すると次の逐次方程式が得られる。

$$\frac{dN^{(0)}(t)}{dt}=AN^{(0)}(t) \tag{2.20}$$

$$\frac{dN^{(n)}(t)}{dt} = AN^{(n)}(t) + \delta AN^{(n-1)}(t) \qquad (n \geq 1) \tag{2.21}$$

上式の左側から$N^{*\tau}(t)$をかけ，（2.1 1）式の右側から$N^{(n)}(t)$をかけ両式を加えると次式が得られる。

$$\frac{d\,(N^{*\tau}(t)N^{(n)}(t))}{dt} = N^{*\tau}(t)\,\delta A\, N^{(n-1)}(t) \tag{2.22}$$

この式を t_0 から t_f まで積分するとn次のオーダの摂動公式が次式で表わされる。

$$\delta Q^{(n)} = h^{\tau} N^{(n)}(t_f) = \int_{t_0}^{t_f} N^{*\tau}(t)\,\delta A\, N^{(n-1)}(t)\,dt \qquad (n \geq 1) \tag{2.23}$$

したがって一般的にm次のオーダまでの摂動公式は

$$\delta \hat{Q}^{(m)} = \sum_{n=1}^{m} h^{\tau} N^{(n)}(t_f) = \sum_{n=1}^{m} \int_{t_0}^{t_f} N^{*\tau}(t)\,\delta A\, N^{(n-1)}(t)\,dt \tag{2.24}$$

となる。以上により（2.20），（2.2 1）式および（2.7）式が解ければ任意の高次項までが求められる。上式と同じ公式はインポータンスの高次項を用いても表わすことができる。これを簡単に要約すると

$$\delta \hat{Q}^{(m)} = \sum_{n=1}^{m} h^{\tau} N^{(n)}(t) = \sum_{n=1}^{m} \int_{t_0}^{t_f} N^{*(n-1)\tau}(t)\,\delta A\, N(t)\,dt \tag{2.25}$$

となる。ただし，$N^{*(n)}(t)$ は次の遂次方程式から求められる。

$$-\frac{dN^{*(0)}(t)}{dt} = A^{\tau} N^{*(0)}(t) \tag{2.26}$$

$$-\frac{dN^{*(n)}(t)}{dt} = A^{\tau} N^{*(0)}(t) + \delta A^{\tau} N^{*(n-1)}(t) \qquad (n \geq 1)$$

以上の摂動法で感度係数を計算するとき随伴方程式の解はどの核種を検出するかによって異なるので，即ち終端条件の与え方が異なるので，その検出核種の数に等しい組のインポータンスを求めておく必要がある。これは一般化摂動法を用いた従来の時間に依存しない感度解析でも，積分測定量の数に等しいだけの異なった世代別のインポータンスを求める必要があったのと全く同じ事情にある。[9][10][12]

3. 基本方程式とその解法

アクチノイド核種の生成消滅に関する感度解析を行うためには核種の原子個数の時間変化を記述する基本方程式とその随伴方程式の解を求める必要がある。基本方程式の解法には種々の方法があり計算コードが作成され，原子炉内での放射性核種或は安定核種の生成崩壊の解析に利用されている。しかし，随伴方程式の解を求めることは基本方程式の解を求めることと表裏一体の関係にあるため，この章では基本方程式の解法について詳しく検討する。特にBateman法について述べ，他の方法については簡単に説明する。

3.1 基本方程式

原子炉系でのアクチノイド核種の生成崩壊は一般的に次の方程式で表わされる。

$$\frac{dN_i}{dt} = -(\lambda_i + \sigma_i \phi(t)) N_i(t) + \sum_j f_{j\to i} \lambda_j N_j(t) + \sum_k g_{k\to i} \sigma_k \phi(t) N_k(t) \qquad (3.1)$$

ここで，λ_j ：核種 j の崩壊定数

$f_{j\to i}$ ：核種 j の単位崩壊あたりの核種 i の生成量

$g_{k\to i}$ ：核種 k が中性子と反応することにより生成される核種 i の量

σ_k ：核種 k の平均のミクロ中性子反応断面積

$\phi(t)$ ：時刻 t における中性子束

（3.1）式で $g_{k\to i}$，σ_k，$\phi(t)$ は時間依存の量であるが，その時間変化はゆるやかであり，ある一定の時間間隔では定数として取扱うことが可能である。これから，（3.1）式は定数係数の連立一次常微分方程式となる。

さらに，（3.1）式から明らかなように，中性子反応における反応率 $\sigma_k \phi(t)$ は崩壊定数 λ_k とみなすと，$g_{k\to i}$ は $f_{k\to i}$ と同等となる。したがって，（3.1）式で

$$\left.\begin{aligned} &\lambda_i + \sigma_i \phi(t) = \lambda_i^* \\ &f_{j\to i} \frac{\lambda_j}{\lambda_j^*} + g_{j\to i} \frac{\sigma_j \phi(t)}{\lambda_j^*} = f_{j\to i}^* \end{aligned}\right\} \qquad (3.2)$$

と置き換えると次の方程式となる。

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\lambda_i^* N_i(t) + \sum_{\substack{j=1 \\ j\neq i}}^{n} f_{j\to i}^* \lambda_j^* N_j(t) \qquad (3.3)$$

或は，

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{n} f_{j\to i}^* \lambda_j^* N_j(t) \qquad (i=1, 2, \cdots, n) \qquad (3.4)$$

$$f^{*}_{j\to i}=-1 \qquad (j=i) \tag{3.5}$$

と書き直すことができ，中性子反応が含まれる時でも崩壊のみの場合と同じ取扱いをすればよい。ただし，ここで注意すべきことは，等価崩壊定数 λ^{*}_{j} および等価分岐比 $f^{*}_{j\to i}$ は σ_j，$\phi(t)$ に直接関係しているため，単なる定数とは異なることである。

（3.3）或は（3.4）の定数係数の連立一次方程式の解法にはBateman法と[13,14] Matrix Exponential法[15,16]の二つの方法がおもに用いられている。従来の放射性核種の生成崩壊の計算では，ほとんどがBateman 法を用いていた。しかし，従来のBateman 法では，同じ崩壊定数を含む崩壊系列および循環形式の崩壊系列を取扱えない欠点があった。最近，Tasakaにより上記の難点を取り除き，循環形式の崩壊系列も近似的に取扱えるように改良され，コードDCHAIN[7]を作成して種々の炉型でのアクチノイド核種の生成量が計算されている。[17]

一方，Matrix Exponential法では，（3.3）或は（3.4）式をマトリックスを用いて次のように表示する。

$$\dot{\mathbf{N}}=\mathbf{A}\mathbf{N} \tag{3.6}$$

ただし，**N**は核種の原子数のベクトルであり，**A**は崩壊定数と分岐比を含むマトリックスである。（3.6）式は各核種の初期の原子個数**N**(0) を与えると次のように解ける。[8]

$$\mathbf{N}(t)=\exp(\mathbf{A}t)\mathbf{N}(0) \tag{3.7}$$

ここで，

$$\exp(\mathbf{A}t)=\mathbf{I}+\mathbf{A}t+\frac{(\mathbf{A}t)^2}{2!}+\cdots\cdots=\sum_{m=0}^{\infty}\frac{(\mathbf{A}t)^m}{m!} \tag{3.8}$$

この方法では，Matrix Exponentialを計算するために必要な計算機の容量が非常に多くなること，短寿命核種が存在すると壊変マトリックスの固有値に非常に大きな値が表われ，計算精度が悪くなることが問題となる。さらに（3.8）式の無限級数を打ち切る項数によっても計算精度が異なる。この方法を用いている計算コードとしてORIGENがあり広く利用されている。[18] しかし,このコードでも短寿命の核種の生成崩壊はBateman 法で計算している。

上記のBateman法およびMatrix Exponential 法とは別の方法として各核種の生成量を

$$N_i(t)=\sum_{j=1}^{i}C_{ij}\,e^{-\lambda_j t} \qquad (i=1,\cdots,n) \tag{3.9}$$

と表示しその係数を順次求めて行く手法がある。[19,20] この方法も現時点で利用可能な崩壊系列は壊変マトリックスが三角行列となるものに制限されている。即ち，核種の原子個数の生成崩壊が

$$\frac{dN_i}{dt}=-\lambda_i N_i+\sum_{j<i}f_{j\to i}\lambda_j N_j \tag{3.10}$$

で記述されるもののみが取扱われている。（3.9）式の係数C_{ij}は

$$\left.\begin{aligned} C_{ii} &= n_i(o) - \sum_{j=1}^{i-1} C_{ij} \\ C_{ij} &= \frac{1}{\lambda_i - \lambda_j} \sum_{m=j}^{j-1} C_{mj}\,\lambda_m f_{mi} \qquad j < i \end{aligned}\right\} \quad (3.11)$$

で与えられる。この方法は核分裂生成物の生成崩壊に関連した解析に広く用いられている。[20]
第5章ではこの方法をさらに一般化した固有値法について詳しく検討する。

3.2 一般化されたBatemanの解

Bateman 法は複雑な崩壊系列を線型の崩壊系列に分解し，それらの解析解を重ね合わせることにより一般解を求めている。したがって，線型の崩壊系列に分解する一般原則が明確であれば複雑な崩壊系列で生成消滅する核種の生成量の物理的内容の理解が容易になる。ここではラプラス変換およびその逆変換[21]

$$N(s) = \int_0^{\infty} e^{-st} N(t)\,dt \qquad (3.12)$$

$$N(t) = L^{-1}\{N(s)\} = \lim_{T \to \infty} \frac{1}{2\pi i} \int_{C-iT}^{C+iT} e^{st} N(s)\,ds \qquad (3.13)$$

を用いてBatemanの一般解を求める。

3.2.1 線型崩壊系列

次の崩壊系列を考える。

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} \cdots\cdots X_i \xrightarrow{\lambda_i} \cdots\cdots X_n \xrightarrow{\lambda_n}$$

ここでX_iは放射性核種を表わし，λ_iはその崩壊定数である。この崩壊系列の基本方程式は次のようになる。

$$\dot{N}_1 = -\lambda_1 N_1 \qquad (3.14)$$

$$\dot{N}_2 = -\lambda_2 N_2 + \lambda_1 N_1 \qquad (3.15)$$

$$\vdots$$

$$\dot{N}_i = -\lambda_i N_i + \lambda_{i-1} N_{i-1} \qquad (3.16)$$

$$\vdots$$

この連立一次常微分方程式をラプラス変換する。

$$s N_1(s) - N_1(o) = -\lambda_1 N_1(s) \qquad (3.17)$$

$$s N_2(s) - N_2(o) = -\lambda_2 N_2(s) + \lambda_1 N_1(s) \qquad (3.18)$$

$$\vdots$$

$$sN_i(s) - N_i(o) = -\lambda_i N_i(s) + \lambda_{i-1} N_{i-1}(s) \tag{3.19}$$

⋮

(3.17)式から順次(3.18)式と代入して行くと次の式が得られる。

$$N_1(s) = \frac{1}{s+\lambda_1} N_1(o) \tag{3.20}$$

$$N_2(s) = \frac{\lambda_1}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_1)} N_1(o) + \frac{1}{s+\lambda_2} N_2(o) \tag{3.21}$$

⋮

$$\begin{aligned} N_i(s) = & \frac{\lambda_{i-1} \cdots\cdots \lambda_2 \lambda_1}{(s+\lambda_i)(s+\lambda_{i-1}) \cdots (s+\lambda_2)(s+\lambda_1)} N_1(o) \\ & + \frac{\lambda_{i-1} \cdots\cdots \lambda_3 \lambda_2}{(s+\lambda_i)(s+\lambda_{i-1}) \cdots (s+\lambda_3)(s+\lambda_2)} N_2(o) \\ & \vdots \\ & + \frac{1}{s+\lambda_i} N_i(o) \end{aligned} \tag{3.22}$$

上式にラプラス逆変換を行うと次の一般解が得られる。

$$N_1(t) = N_1(o)\, e^{-\lambda_1 t} \tag{3.23}$$

$$N_2(t) = N_1(o) \left[\frac{\lambda_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{(\lambda_1 - \lambda_2)} e^{-\lambda_2 t} \right] + N_2(o)\, e^{-\lambda_2 t} \tag{3.24}$$

⋮

$$\begin{aligned} N_i(t) = & N_1(o) \sum_{j=1}^{i} \frac{\prod_{\ell=1}^{i-1} \lambda_\ell}{\prod_{\substack{\ell=1 \\ \ell \neq j}}^{i} (\lambda_\ell - \lambda_j)} e^{-\lambda_j t} \\ & + N_2(o) \sum_{j=2}^{i} \frac{\prod_{\ell=2}^{i-1} \lambda_\ell}{\prod_{\substack{\ell=2 \\ \ell \neq j}}^{i} (\lambda_\ell - \lambda_j)} e^{-\lambda_j t} \\ & \vdots \\ & + N_i(o)\, e^{-\lambda_i t} \end{aligned} \tag{3.25}$$

上記の解は次のように整理して表わすことができる。即ち,

$$d^{i}_{k,j} = 1^{*} \qquad (k = i) \tag{3.26}$$

＊ $d^i_{k,j}$ は $d_{k,j}$ の i 乗ではなく単なる記号であり，d の 2 乗は $(d)^2$ で示す。

$$d^{i}_{k,j} = \frac{\prod_{\ell=k}^{i-1} \lambda_\ell}{\prod_{\substack{\ell=k \\ \ell \neq j}}^{i} (\lambda_\ell - \lambda_j)} \qquad (k < i) \tag{3.27}$$

$$b_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i) = \sum_{j=k}^{i} d^{i}_{k,j}\, e^{-\lambda_j t} \qquad (k=1, \cdots, i) \tag{3.28}$$

を定義すると，Bateman の解が次のように表わされる。

$$N_1(t) = N_1(o)\, e^{-\lambda_1 t} \tag{3.29}$$

$$N_2(t) = \sum_{k=1}^{2} N_k(o) \sum_{j=k}^{2} d^{2}_{k,j}\, e^{-\lambda_j t} \tag{3.30}$$

$\vdots$

$$N_i(t) = \sum_{k=1}^{i} N_k(o) \sum_{j=k}^{i} d^{i}_{k,j}\, e^{-\lambda_j t} = \sum_{k=1}^{i} N_k(o)\, b_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i) \tag{3.31}$$

3.2.2 分峡，合流の崩壊系列

一般にアクチノイド核種の生成崩壊では複雑な分岐と合流がある。この場合には線型の崩壊系列に分解してそれぞれの解を求め，それらを加え合せて一般解を求める。これらは次の崩壊系列の解法が基本となる。

$$\overset{\lambda_1}{X_1} \xrightarrow{f_{1\to2}} \overset{\lambda_2}{X_2} \xrightarrow{f_{2\to3}} \overset{\lambda_3}{X_3} \xrightarrow{f_{3\to4}} \cdots\cdots \overset{\lambda_k}{X_k} \xrightarrow{f_{k\to k+1}} \cdots\cdots \overset{\lambda_n}{X_n} \longrightarrow$$

$$\downarrow \qquad \downarrow \qquad \downarrow \qquad \qquad \downarrow$$

即ち，線型崩壊系列に属するすべての核種が $f_{k\to k+1}$ なる分岐比をもつ場合であり，この時には崩壊の基本方程式は次のようになる。

$$\dot{N}_1 = -\lambda_1 N_1 \tag{3.32}$$

$$\dot{N}_2 = -\lambda_2 N_2 + f_{1\to2}\, \lambda_1 N_1 \tag{3.33}$$

$\vdots$

$$\dot{N}_i = -\lambda_i N_i + f_{i-1\to i}\, \lambda_{i-1} N_{i-1} \tag{3.34}$$

$\vdots$

上記の方程式のラプラス変換を行うと，

$$s N_1(s) - N_1(o) = -\lambda_1 N_1(s) \tag{3.35}$$

$$s N_2(s) - N_2(o) = -\lambda_2 N_2(s) + f_{1\to2}\, \lambda_1 N_1(s) \tag{3.36}$$

$\vdots$

$$s N_i(s) - N_i(o) = -\lambda_i N_i(s) + f_{i-1\to i}\, \lambda_{i-1} N_{i-1}(s) \tag{3.37}$$

$\vdots$

となる。前と同様に$N_1(s)$, $N_2(s)$, …と順次計算すると

$$N_1(s) = \frac{1}{s+\lambda_1} N_1(o) \tag{3.38}$$

$$N_2(s) = \frac{f_{1\to2}\ \lambda_1}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_1)} N_2(o) + \frac{1}{s+\lambda_2} N_2(o) \tag{3.39}$$

$\vdots$

$$\begin{aligned} N_i(s) = & \frac{\lambda_{i-1}\cdots\lambda_2\lambda_1 \cdot f_{i-1\to i}\cdots f_{2\to3}\cdot f_{1\to2}}{(s+\lambda_i)\cdots(s+\lambda_2)(s+\lambda_1)} N_1(o) \\ & + \frac{\lambda_{i-1}\cdots\lambda_2\lambda_1 \cdot f_{i-1\to i}\cdots f_{2\to3}\cdot f_{1\to2}}{(s+\lambda_i)\cdots\cdots(s+\lambda_3)(s+\lambda_2)} N_2(o) \\ & \vdots \\ & + \frac{1}{s+\lambda_i} N_i(o) \end{aligned} \tag{3.40}$$

となる。この結果を分岐点のない線型崩壊系列の結果(3.20)〜(3.22)と比較すると,

$$N_k(o) \to N_k(o) \qquad (k=i)$$

$$N_k(o) \to \left(\prod_{j=k}^{i-1} f_{j\to j+1}\right) N_k(o) \qquad (k<i)$$

なる置き換えをすれば良いことが解る。したがって，Bateman の解は次のように表わされる。

$$N_1(t) = N_1(o)\, e^{-\lambda_1 t} \tag{3.41}$$

$$N_2(t) = \sum_{k=1}^{2} \left(\prod_{j=k}^{1} f_{j\to j+1}\right) N_k(o) \sum_{j=k}^{2} d_{k,j}^{2}\, e^{-\lambda_j t} \tag{3.42}$$

$\vdots$

$$N_i(t) = \sum_{k=1}^{i} \left(\prod_{j=k}^{i-1} f_{j\to j+1}\right) N_k(o) \sum_{j=k}^{i} d_{k,j}^{i}\, e^{-\lambda_j t} \tag{3.43}$$

$\vdots$

3.2.3 同じ崩壊定数を含む崩壊系列

崩壊系列に同じ崩壊定数をもつ核種が含まれている時には，Bateman の解で$d_{k,j}^{i}$ が定義できなくなりこの方法が用いられない。最近，Tasaka はこの難点を取り除いた解の導出を行った。[7] いま線型崩壊系列でℓ番目の核種とm番目の核種が同じ崩壊定数であると仮定する。ここで(3.22)式について考える。この式の右辺第1項は1番目の核種のみが初期原子数を持つ場合のi番目の核種の生成量を与える項である。この項を$g_i^{\ell}(s, \lambda_1, \lambda_2, \cdots, \lambda_i)$とすると

$$g_i^{\ell}(s, \lambda_1 \cdots \lambda_i) = g_{i(\ell)}(s) \cdot g_{\ell}(s) \tag{3.44}$$

と二つの函数の積に分解することができる。ここで，

$$g_{i(\ell)}(s)=\frac{\prod_{j=1}^{i-1}\lambda_j}{\prod_{\substack{j=1\\(j\neq\ell)}}^{i}(s+\lambda_j)} \tag{3.45}$$

$$g_{\ell}(s)=\frac{1}{(s+\lambda_{\ell})} \tag{3.46}$$

である。この各々の函数のラプラス逆変換を行うと次のようになる。

$$g_{i(\ell)}(t)=\sum_{\substack{j=1\\(j\neq\ell)}}^{i}\frac{\prod_{k=1}^{i-1}\lambda_j}{\prod_{\substack{k=1\\(k\neq j,\ell)}}^{i}(\lambda_k-\lambda_j)}e^{-\lambda_j t} \tag{3.47}$$

$$g_{\ell}(t)=e^{-\lambda_{\ell} t} \tag{3.48}$$

これから $g_i^{\ell}(s,\lambda_1\cdots,\lambda_i)$ の Laplace 逆変換は相乗定理により，

$$g_i^{\ell}(t,\lambda_1,\cdots,\lambda_i)=\int_0^t g_{i(\ell)}(s)\,g_{\ell}(t-s)\,ds$$

$$=\sum_{\substack{j=11\\(j\neq\ell,m)}}^{i}\frac{\prod_{k=1}^{i-1}\lambda_k}{\prod_{\substack{k=1\\(k\neq j,\ell)}}^{i}(\lambda_k-\lambda_j)}e^{-\lambda_{\ell} t}\int_0^t e^{(\lambda_{\ell}-\lambda_j)s}\,ds$$

$$+\frac{\prod_{k=1}^{i-1}\lambda_k}{\prod_{\substack{k=1\\(k\neq\ell,m)}}^{i}(\lambda_k-\lambda_{\ell})}e^{-\lambda_{\ell} t}\int_0^t ds$$

となる。この式を整理すると Tasaka によって示された解が得られる。即ち，

$$g_i^{\ell}(t,\lambda_1,\cdots,\lambda_i)=\sum_{\substack{j=1\\(j\neq\ell,m)}}^{i}d_{1,j}^{i}\,e^{-\lambda_j t}-\sum_{\substack{j=1\\(j\neq\ell,m)}}^{i}d_{1j}^{i}\,e^{-\lambda_{\ell} t}$$

$$+\frac{\prod_{j=1}^{j-1}\lambda_j}{\prod_{\substack{j=1\\(j\neq\ell,m)}}(\lambda_j-\lambda_{\ell})}\,te^{-\lambda_{\ell} t} \tag{3.49}$$

となる。同様の方法で（3.2 2）式の右辺第2項，第3項と順次ラプラス逆変換の値を求めることができる。これから Bateman の解は一般的に

$$N_i(t) = \sum_{k=1}^{m} N_k(o)\, g^{\ell}_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i) + \sum_{k=m+1}^{i} N_k(o)\, b_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i) \tag{3.50}$$

で表わされる。ただし，$i \geq \ell > m \geq 1$ と仮定した。また，$b_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i)$ は（3.2 8）式で与えられ，$g^{\ell}_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i)$ は（3.4 9）式の函数を一般化したもので

$$g^{\ell}_{i-k+1}(t, \lambda_k, \cdots, \lambda_i) = \sum_{\substack{j=k \\ (j \neq \ell, m)}}^{i} d^{i}_{k,j}\, e^{-\lambda_i t} - \sum_{\substack{j=k \\ (j \neq \ell, m)}}^{i} d^{i}_{k,j}\, e^{-\lambda_\ell t} + \frac{\prod_{j=k}^{i-1} \lambda_j}{\prod_{\substack{j=k \\ (j \neq \ell, m)}}^{i} (\lambda_j - \lambda_\ell)}\, t\, e^{-\lambda_\ell t} \tag{3.51}$$

で与えられる。崩壊系列に同じ崩壊定数が3個以上存在する場合，或は2個の同じ崩壊定数が何組も存在する場合も同様に求めることが可能である。

3.2.4　循環形式の崩壊系列

アクチノイド核種の崩壊系列は複雑であり，中性子吸収による（n，γ）とβ^- 崩壊およびα崩壊が含まれているため，循環形式の崩壊系列がいくつも含まれている。例えば${}^{240}_{94}$Pu は次の循環崩壊系列を作る。

$$\begin{tikzcd}
{}^{240}_{94}\mathrm{Pu} \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{241}_{94}\mathrm{Pu} \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{242}_{94}\mathrm{Pu} \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{243}_{94}\mathrm{Pu} \arrow[d, "\beta^-"] & \\
 & & & {}^{243}_{95}\mathrm{Am} \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{244}_{95}\mathrm{Am} \arrow[d, "\beta^-"] \\
 & & & & {}^{244}_{96}\mathrm{Cm} \arrow[uullll, "\alpha"]
\end{tikzcd}$$

このような循環系列を作る核種は非常に多く，一般には何回かの（n，γ）反応と2回のβ^- 崩壊および1回のα崩壊でもとの核種が生成される。これは一般的に

$$\begin{tikzcd}
{}^{A}_{Z}X \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{A+1}_{Z}X \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{A+2}_{Z}X \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{A+3}_{Z}X \arrow[r, "{(n,\gamma)}"] & {}^{A+4}_{Z}X \arrow[d, "\beta^-"] \\
 & & & & {}^{A+4}_{Z+1}X \arrow[d, "\beta^-"] \\
 & & & & {}^{A+4}_{Z+2}X \arrow[uullll, "\alpha"]
\end{tikzcd}$$

のように表わすことができる。この場合には，線型の崩壊系列を取扱うBateman法を用いることができない。

Tasakaは各核種の崩壊系列を組立て，それを線型の崩壊系列に分解して行く時，各線型の崩壊系列を構成する核種と同じ核種が親核種として現われた場合にはそこでその線型崩壊系列を打ち切るという一般原則を用いた。この原則によれば上図の例で${}^{A}_{z}X$ に対する崩壊系列は次のようになる。[7]

$$ {}^{A}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} {}^{A+1}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} {}^{A+2}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} {}^{A+3}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} {}^{A+4}_{z}X \xrightarrow{\beta^-} {}^{A+4}_{z-1}X \xrightarrow{\beta^-} {}^{A+4}_{z+2}X $$
$$ \xrightarrow{\alpha} {}^{A}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} $$

循環系列に属するどの核種に対しても上と同様な線型崩壊系列を作ることができる。

ここではまず循環系列の正確な連立方程式から出発して，上記のような線型崩壊系列は如何なる近似に対応するかを明確し，さらに高い近似解を求める一般的方法を与える。循環系列の基本方程式は，

$$ \dot{N}_1(t) = -\lambda_1 N_1(t) + \lambda_n N_n(t) \qquad (3.52) $$

$$ \dot{N}_2(t) = -\lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t) \qquad (3.53) $$

$$ \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots $$

$$ \dot{N}_n(t) = -\lambda_n N_n(t) + \lambda_{n-1} N_{n-1}\ t \qquad (3.54) $$

となる。問題の理解を容易にするため1番目の核種のみが初期原子数を持つ場合について考える。(3.52)～(3.54)のラプラス変換を行ないこれを整理すると次の一連の式が得られる。

$$ N_1(s) = \frac{1}{s+\lambda_1} N_1(o) + \frac{\lambda_n}{s+\lambda_1} N_n(s) \qquad (3.55) $$

$$ N_2(s) = \frac{\lambda_1}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_1)} N_1(o) + \frac{\lambda_1 \lambda_n}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_1)} N_n(s) \qquad (3.56) $$

$$ \vdots $$

$$ N_n(s) = \frac{\prod_{j=1}^{n-1} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{n} (s+\lambda_j)} N_1(o) + \frac{\prod_{j=1}^{n} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{n} (s+\lambda_j)} N_n(s) \qquad (3.57) $$

(3.57)式より $N_n(s)$ の正確な値は

$$N_n(s)=\frac{\prod_{j=1}^{n-1}\lambda_j}{\prod_{j=1}^{n}(s+\lambda_j)}N_1(o)\left[1+\frac{\prod_{j=1}^{n}\lambda_j}{\prod_{j=1}^{n}(s+\lambda_j)-\prod_{j=1}^{n}\lambda_j}\right] \tag{3.58}$$

となる。これから次の函数を定義する。

$$\varphi(s,\lambda_1\cdots\lambda_n)=\prod_{j=1}^{n}(s+\lambda_j)-\prod_{j=1}^{n}\lambda_j \tag{3.59}$$

このn次方程式の解

$$\varphi(s,\lambda_1\lambda_2\cdots\lambda_n)=0 \tag{3.60}$$

が求まれば正確な核種の生成量が計算できる。上式の解を求めることは(3.52)〜(3.54)の基本方程式の壊変マトリックスの固有値を求めることと等価になる。

ここで1番目の核種を親核種とし，この核種の生成量を求めることを考える。このためには(3.58)を次の様に展開した方が理解が容易になる。

$$N_n(s)=\frac{\prod_{j=1}^{n-1}\lambda_j}{\prod_{j=1}^{n}(s+\lambda_j)}N_1(o)\left[1+D(s)+D^2(s)+\cdots\right] \tag{3.61}$$

ここで

$$D(s)=\frac{\prod_{j=1}^{n}\lambda_j}{\prod_{j=1}^{n}(s+\lambda_j)} \tag{3.62}$$

である。(3.61)式を(3.55)式に代入すると次式が得られる。

$$N_1(s)=\frac{N_1(o)}{s+\lambda_1}\left[1+D(s)+D^2(s)+\cdots\cdots\right] \tag{3.63}$$

上式で右辺第2項まで取るとTasakaによって示された線型崩壊系列で近似することに対応する。一方，さらに近似を高めるために(3.63)式で第3項まで取ると次の線型崩壊系列を考えることに対応する。

$${}^{A}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} \cdots\cdots\cdots {}^{A+n-3}_{z+2}X \xrightarrow{\alpha} {}^{A}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)} \cdots {}^{A+n-3}_{z+2}X \xrightarrow{\alpha} {}^{A}_{z}X \xrightarrow{(n,\gamma)}$$

即ち，循環系列を2回まわってもとの親核種が現れたときに線型崩壊系列を打ち切ることに対応する。

次に第1番目の核種の原子数を求めるため(3.63)から

$$N_1(t)=N_1(o)\,[\,n_{1,0}(t)+n_{1,1}(t)+n_{1,2}(t)+\cdots\cdots\,] \tag{3.64}$$

のように展開する。ここでD(s)のラプラス逆変換は

$$D(t)=\sum_{j=1}^{n}\lambda_n\, d^n_{1,j}\, e^{-\lambda_j t} \tag{3.65}$$

らなる。上式で $d^n_{1,j}$ は(3.27)式で与えられる。このD(t)を用いると(3.64)式の各項はラプラス変換の相乗定理を用いて簡潔に表示できる。即ち，

$$n_{1,0}(t)=e^{-\lambda_1 t} \tag{3.66}$$

$$n_{1,m}(t)=\int_0^t n_{1,m-1}(t-\tau)\,D(\tau)\,d\tau \qquad m\geq 1 \tag{3.67}$$

で(3.64)式の各項を求めることができる。したがって，

$$n_{1,1}(t)=\sum_{j=1}^{n}\lambda_n\, d^n_{1,j}\, e^{-\lambda_j t}\int_0^t e^{(\lambda_j-\lambda_1)\tau}\,d\tau$$

となる。ここで $\lambda_j \neq \lambda_1$ の場合と $\lambda_j=\lambda_1$ の場合に分けて考える必要がある。この $n_{1,1}(t)$ は $n+1$ 個の核種よりなる線型崩壊係列で最初と最後の核種が同じ崩壊定数をもつ場合に対応する。これに注意すると

$$n_{1,1}(t)=\sum_{\substack{j=1\\(j\neq 1)}}^{n} d^n_{1,j}\,\frac{\lambda_n}{\lambda_1-\lambda_j}\left(e^{-\lambda_j t}-e^{-\lambda_1 t}\right)+\lambda_n\, d^n_{1,1}\, t\, e^{-\lambda_1 t} \tag{3.69}$$

となる。一方，$n_{1,2}(t)$ は $2n+1$ 個の核種よりなる線型崩壊系列で $n-1$ 個の核種が同じ崩壊定数をもち，さらに，1，n+1，2n+1の3個の核種が同じ崩壊定数をもつ場合に対応し，線型崩壊系列でも極めて複雑な系列から構成されている。(3.68)式より $n_{1,2}(t)$ は次式で計算される。

$$n_{1,2}(t)=\int_0^t n_{1,1}(\tau)\,D(t-\tau)\,d\tau$$

$$=\sum_{\substack{j=1\\(j\neq 1)}}^{n} d^n_{1,j}\,\frac{\lambda_n}{\lambda_1-\lambda_j}\sum_{\ell=1}^{n}\lambda_n\, d^n_{1,j}\, e^{-\lambda_\ell t}\int_0^t\left(e^{(\lambda_\ell-\lambda_j)\tau}-e^{(\lambda_\ell-\lambda_1)\tau}\right)d\tau$$

$$+\lambda_n\, d^n_{1,1}\sum_{\ell=1}^{n}\lambda_n\, d^n_{1,\ell}\, e^{-\lambda_\ell t}\int_0^t \tau\, e^{(\lambda_\ell-\lambda_1)\tau}\,d\tau$$

上式の積分をおこなうと $n_{1,2}(t)$ は次のようになる。

$$n_{1,2}(t)=\sum_{\substack{j=1\\(j\neq 1)}}^{n}\ \sum_{\substack{\ell=1\\(\ell\neq 1,j)}}^{n}\frac{\lambda_n^2}{\lambda_1-\lambda_j}\, d^n_{1j}\, d^n_{1\ell}\left[\frac{e^{-\lambda_j t}-e^{-\lambda_\ell t}}{\lambda_\ell-\lambda_j}-\frac{e^{-\lambda_1 t}-e^{-\lambda_\ell t}}{\lambda_\ell-\lambda_1}\right]$$

$$+\sum_{\substack{j=1\\(j\neq 1)}}^{n} \frac{\lambda_n^2}{\lambda_1-\lambda_j}(d_{1,j}^n)^2\left[te^{-\lambda_j t}-\frac{e^{-\lambda_1 t}-e^{-\lambda_j t}}{\lambda_j-\lambda_1}\right]+\sum_{\substack{j=1\\(j\neq 1)}}^{n} 2\frac{\lambda_n^2}{\lambda_1-\lambda_j}d_{1,1}^n\ d_{1,j}^n$$

$$\left[\frac{e^{-\lambda_j t}-e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1-\lambda_j}-te^{-\lambda_1 t}\right]+\frac{1}{2}\lambda_n^2(d_{1,1}^n)^2\ t^2e^{-\lambda_1 t} \qquad (3.69)$$

循環系列について(3.68)式を用いてさらに近似を高めることが出来るが，(3.70)式よりもさらに複雑な函数を取扱うことになる。したがって，実際にアクチノイド核種の循環系列について数値計算を行い，その精度を調べる必要がある。尚，すべての核種が初期原子数を持つ場合にも上と同様の方法で容易に解を求めることが出来る。

4. 随伴方程式とその解法

アクチノイド核種の生成消滅についての基本方程式の解法については前章で詳しく検討したが，その随伴方程式は原子炉内での中性子に対するインポータンス方程式と同じように物理的考察から導くことができる。一方，基本方程式は連立一次常微分方程式なのでその随伴方程式は作用素の理論からも形式的に導出できる。ここでは物理的考察から導くことにする。一方，基本方程式のBateman の解を求める時にはラプラス変換を用いたが，これは基本方程式を解く時には初期条件を与えれば良く，この点でラプラス変換は非常に有効な方法であった。しかし，随伴方程式の解を求める時には終端条件，即ち我々が核種の原子数を検出する時刻での条件を与えねばならない。ここでは変型ラプラス変換を用いることを提案し，基本方程式のBateman の 解を求めたと同じ手法で随伴方程式のBateman の解を求められることを示す。

4.1 随伴方程式（インポータンス方程式）

ここでは随伴方程式を物理的考察から導出する。今，時刻 t に核種 i を n 個だけ体系に導入したとし，このインポータンスを $N_i^*(t)$ で表わすことにする。時間 δt の間に n 個の核種 i は崩壊し $n〔1-(\lambda_i+\sigma_i\phi(t)\delta t〕$ 個となり，そのインポータンスは $N_i^*(t+\delta t)$ で表わされる。一方，崩壊した $\lambda_i n\delta t$ 個の核種 i は $f_{i\to j}$ の割合で他の核種 j になりこの核種 j は $N_j^*(t)$ なるインポータンスをもつことになる。同様に，中性子と反応をおこなった $n\sigma_i\phi(t)\delta t$ 個の核種 i は $g_{i\to j}$ の割合で核種 j になりインポータンス $N_j^*(t)$ をもつ。したがって次の等式が得られる。

$$
\begin{aligned}
nN_i^*(t) &= n〔1-(\lambda_i+\sigma_i\phi(t))\delta t〕N_i^*(t+\delta t) \\
&\quad +n\lambda_i\delta t\sum_j f_{i\to j}N_j^*(t)+n\sigma_i\phi(t)\delta t\sum_j g_{i\to j}N_j^*(t)
\end{aligned}
\tag{4.1}
$$

ここで，右辺第1項の $N_i^*(t+\delta t)$ をテイラー展開すると

$$
N_i^*(t+\delta t)=N_i^*(t)+\frac{dN_i^*(t)}{dt}\delta t+\cdots \tag{4.2}
$$

となる。これを(4.1)に代入し整理すると次の随伴方程式が得られる。ただし，δt の2次以上の項は省略する。

$$
-\frac{dN_i^*(t)}{dt}=-(\lambda_i+\sigma_j\phi(t))N_i^*(t)+\sum_j\lambda_i f_{i\to j}N_j^*(t)+\sum_j\sigma_i\phi(t)g_{i\to j}N_j^*(t) \tag{4.3}
$$

上式は作用素の理論から形式的に求められる随伴方程式と同じであることは当然である。

次に，(4.3)を簡単な表式にするために(3.2)と同様な置き換えを行う。即ち，

$$\left.\begin{array}{l}\lambda_i+\sigma_i\phi(t)=\lambda_i^{*}\\ f_{i\to j}\dfrac{\lambda_i}{\lambda_i^{*}}+g_{i\to j}\dfrac{\sigma_i\phi(t)}{\lambda_i^{*}}=f_{i\to j}^{*}\end{array}\right\}\qquad(4.4)$$

とすると（ 4.3 ）は次のようになる。

$$-\frac{dN_i^{*}(t)}{dt}=-\lambda_i^{*}N_i^{*}(t)+\sum_{\substack{j=1\\(j\neq i)}}^{n}\lambda_i^{*}f_{i\to j}N_j^{*}(t)\qquad(4.5)$$

或は

$$-\frac{dN_i^{*}(t)}{dt}=\sum_{j=1}^{n}\lambda_i^{*}f_{i\to j}^{*}N_j^{*}(t)\qquad(i=1,2,\cdots,n)\qquad(4.6)$$

$$f_{i\to j}^{*}=-1\qquad(j=i)\qquad(4.7)$$

と書き換えることができる。

4.2 一般化されたBatemanの解

インポータンスの従う（4.3）或は（4.6）を解くためには核種の検出する時刻 t_f での終端条件（2.8）を与えなければならない。したがって，基本方程式を解く場合と全く逆になっているので（3.12），（3.13）と同じラプラス変換および逆変換は用いられない。次の変型ラプラス変換および逆変換を用いることを提唱する。

$$N^{*}(s)=\int_{-\infty}^{t_f}e^{s(t-t_f)}N^{*}(t)\,dt\qquad(4.8)$$

$$N^{*}(t)=\frac{1}{2\pi i}\int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty}N^{*}(s)\,e^{-s(t-t_f)}ds\qquad(4.9)$$

次に，この変型ラプラス変換および逆変換の成り立つことを簡単に証明する。フーリエの積分定理によれば，$-\infty<x<+\infty$ でなめらかな函数 $f(x)$ に対して $\int_{-\infty}^{\infty}|f(x)|dx$ が存在すれば，

$$f(x)=\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}d\omega\int_{-\infty}^{\infty}f(\xi)\,e^{i\omega(x-\xi)}d\xi\qquad(4.9)$$

で表わされる。[21] 一方，インポータンス函数は

$$\begin{aligned}N^{*}(t)&=N^{*}(t)&&-\infty<t\leq t_f\\&=0&&t_f<t<\infty\end{aligned}\qquad(4.10)$$

の関係を満足する。したがって，

$$G^*(t) = e^{\gamma t} N^*(t) \qquad \gamma > 0 \tag{4.11}$$

とおいても $\int_{-\infty}^{\infty} |G^*(t)| dt$ が存在する。これからフーリエの積分定理により，

$$G^*(t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} d\omega \int_{-\infty}^{t_f} N^*(\xi) e^{(\gamma - i\omega)\xi} d\xi$$

と表わされる。これは次のようにも表式できる。

$$G^*(t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} e^{(\gamma - i\omega) t_f + i\omega t} d\omega \int_{-\infty}^{t_f} N^*(\xi)\, e^{(\gamma - i\omega)(\xi - t_f)} d\xi \tag{4.12}$$

上式で

$$s = \gamma - i\omega$$

$$N^*(s) = \int_{-\infty}^{t_f} N^*(\xi)\, e^{s(\xi - t_f)} d\xi \tag{4.13}$$

とおくと，$ds = -i d\omega$ なので（4.12）は

$$G^*(t) = -\frac{e^{\gamma t}}{2\pi i}\int_{\gamma + i\infty}^{\gamma - i\infty} N^*(s) e^{-s(t - t_f)} ds$$

となる。（4.11）の関係を用いると，

$$N^*(t) = \frac{1}{2\pi i}\int_{\gamma - i\infty}^{\gamma + i\infty} N^*(s)\, e^{-s(t - t_f)} ds \tag{4.14}$$

となる。したがって（4.13）が変型ラプラス変換であり，（4.14）がその逆変換となる。

ここで定義した変型ラプラス変換を用いると，

$$\int_{-\infty}^{t_f} \frac{dN_i^*(t)}{dt}\, e^{s(t - t_f)} dt = N_i^*(t_f) - s N_i^*(s) \tag{4.15}$$

となり，インポータンスの終端条件が自動的に取り入れられることになり，通常のラプラス変換が基本方程式を解くのに便利であったように，新しく定義された変型ラプラス変換はインポータンス方程式，或は随伴方程式を解くのに有効である。次にこの変型ラプラス変換での相乗定理を与える。今，$g_1^*(s)$，$g_2^*(s)$ を変型ラプラス変換を行った函数とし，次の積分を考える。

$$h^*(t) = \frac{1}{2\pi i}\int_{\gamma - i\infty}^{\gamma + i\infty} g_1^*(s)\; g_2^*(s) e^{-s(t - t_f)} ds \tag{4.16}$$

上式に $g_2^*(s)$ の変型ラプラス変換の関係式を代入すると，

$$h^*(t) = \int_{-\infty}^{t_f} d\xi\; g_2^*(\xi)\; \frac{1}{2\pi i}\int_{\gamma - i\infty}^{\gamma + i\infty} g_1^*(s) e^{-s(t + t_f - \xi - t_f)} ds \tag{4.17}$$

となる。これから

$$h^*(t) = \int_{-\infty}^{t_f} g_1^*(t + t_f - \xi)\, g_2^*(\xi) d\xi \tag{4.18}$$

となる。ここで，$g_1(t + t_f - \xi)$，$g_2(\xi)$ はそれぞれ $t_f > t + t_f - \xi > -\infty$，$t_f > \xi > -\infty$ で値を持つインポータンス函数である。これから ξ についての積分範囲は $t_f > \xi > t$ となる。結局相乗定理として次式が得られる。

$$h^*(t) = \int_t^{t_f} g_1^*(t + t_f - \xi)\, g_2^*(\xi) d\xi \tag{4.19}$$

或は

$$h^*(t - t_f) = \int_{t - t_f}^{t_f} g_1^*(t - \xi)\, g_2^*(\xi) d\xi \tag{4.20}$$

と書き直すことができる。以下では上で定義した変型ラプラス変換およびその逆変換を用いて随伴方程式或はインポータンス方程式のBatemanの解を求める。

4.2.1 線型崩壊系列

線型崩壊系列の解を求めることはBateman 法の解法の基礎となる。3.2.1の場合と同じ線型崩壊系列を考える。

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} \cdots X_i \xrightarrow{\lambda_i} \cdots X_n \xrightarrow{\lambda_n}$$

インポータンスを求めるためには基本方程式を解く場合とは逆に線型崩壊系列の最後の核種から順次計算した方が良い。インポータンス方程式は

$$\dot{N}_n^*(t) = \lambda_n N_n^*(t) \tag{4.21}$$

$$\dot{N}_{n-1}^*(t) = \lambda_{n-1} N_{n-1}^*(t) - \lambda_{n-1} N_n^*(t) \tag{4.22}$$

$$\vdots$$

$$\dot{N}_i^*(t) = \lambda_i N_i^*(t) - \lambda_i \dot{N}_{i+1}(t) \tag{4.23}$$

$$\vdots$$

となる。変型ラプラス変換をおこなう。ここで(2.8)の終端条件を用いると

$$h_n - sN_n^*(s) = \lambda_n N_n^*(s) \tag{4.24}$$

$$h_{n-1} - sN_{n-1}^*(s) = \lambda_{n-1} N_{n-1}^*(s) - \lambda_{n-1} N_n^*(s) \tag{4.25}$$

$$\vdots$$

$$h_i - sN_i^*(s) = \lambda_i N_i^*(s) - \lambda_i N_{i+1}^*(s) \tag{4.26}$$

⋮

となる。これをn，n−1，…,と順次整理すると次の一連の式が得られる。

$$N_n^*(s) = \frac{h_n}{s+\lambda_n} \tag{4.27}$$

$$N_{n-1}^*(s) = \frac{h_{n-1}}{s+\lambda_{n-1}} + \frac{\lambda_{n-1}}{(s+\lambda_{n-1})(s+\lambda_n)}\, h_n \tag{4.28}$$

⋮

$$N_i^*(s) = \sum_{j=i}^{n} \frac{\prod_{\ell=i}^{j-1} \lambda_\ell}{\prod_{\ell=i}^{j} (s+\lambda_\ell)}\, h_j \tag{4.29}$$

⋮

上式に変型ラプラス逆変換をおこなうとBateman の解は

$$N_n^*(t) = h_n e^{\lambda_n (t-t_f)} \tag{4.30}$$

$$N_{n-1}^*(t) = h_{n-1} e^{\lambda_{n-1}(t-t_f)} + h_n \left(\frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_n - \lambda_{n-1}} e^{\lambda_{n-1}(t-t_f)} + \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_n} e^{\lambda_n (t-t_f)} \right)$$

⋮

$$\tag{4.31}$$

$$N_i^*(t) = \sum_{k=i}^{n} h_k \sum_{j=i}^{k} d_{i,j}^k e^{\lambda_j (t-t_f)} \tag{4.32}$$

⋮

となる。ただし$d_{i,j}^k$は（3.26），（3.27）で定義されたものと同じである。感度解析ではアクチノイド核種は時刻t_fで1種類の核種のみを検出すると仮定しなければならない。今，m番目の核種を検出する場合を考えると（4.32）から次式が得られる。

$$\begin{aligned} N_{i,m}^*(t) &= 0 & i > m \\ &= h_m \sum_{j=i}^{m} d_{i,j}^m e^{\lambda_j (t-t_f)} & i \leq m \end{aligned} \tag{4.33}$$

これから線型崩壊系列でm番目の核種を検出する時には，それ以後の（m+1）からn番目までの核種の崩壊は寄与しないことが解る。即ち，（m+1）番目以後の核種の崩壊定数が変化してもm番目の核種の生成崩壊は変化しない。これは物理的に考えても当然のことである。

4.2.2 分岐・合流の崩壊系列

崩壊系列の中に分岐・合流がある場合には，それぞれの線型崩壊系列に分解して解を求め，これを重ね合せることにより分岐・合流の解を構成する。これは次の分岐をもつ線型崩壊系列の解を求め，これを重ね合せて一般解を求めることと本質的に同じになる。

$$X_1 \xrightarrow[f_{1\to 2}]{\lambda_1} X_2 \xrightarrow[f_{2\to 3}]{\lambda_2} \cdots X_i \xrightarrow[f_{i\to i+1}]{\lambda_i} \cdots X_n \xrightarrow{\lambda_n}$$
$$\downarrow \qquad \downarrow \qquad \downarrow$$

この線型崩壊系列はこれに属する全ての核種が $f_{i\to i+1}$ なる分岐比を持つ場合である。これに対するインポータンス方程式は

$$\dot{N}_n^*(t) = \lambda_n N_n^*(t) \tag{4.34}$$

$$\dot{N}_{n-1}^*(t) = \lambda_{n-1} N_{n-1}^*(t) - \lambda_{n-1} f_{n-1\to n} N_n^*(t) \tag{4.35}$$

$$\vdots$$

$$\dot{N}_i^*(t) = \lambda_i N_i^*(t) - \lambda_i f_{i\to i+1} N_{i+1}^*(t) \tag{4.36}$$

$$\vdots$$

となる。上記の方程式も変型ラプラス変換を行うと

$$N_n^*(s) = \frac{1}{s+\lambda_n} h_n \tag{4.37}$$

$$N_{n-1}^*(s) = \frac{1}{s+\lambda_{n-1}} h_{n-1} + \frac{\lambda_{n-1}}{(s+\lambda_{n-1})(s+\lambda_n)} f_{n-1\to n} h_n \tag{4.38}$$

$$\dot{N}_i^*(s) = \sum_{k=i}^{n} h_k \prod_{\ell=i}^{k-1} f_{\ell\to\ell+1} \frac{\prod_{j=i}^{k-1} \lambda_j}{\prod_{j=i}^{k} (s+\lambda_j)} \tag{4.39}$$

となる。したがって，(4.39)式の変型ラプラス逆変換を行うと

$$N_i^*(t) = \sum_{k=i}^{n} h_k \prod_{\ell=i}^{k-1} f_{\ell\to\ell+1} \sum_{j=i}^{k} d_{i,j}^k e^{\lambda_j (t-t_f)} \tag{4.40}$$

$$(i = n, n-1, \cdots, 1)$$

が得られる。今，m 番目の核種を検出する場合を考えると，(4.33)と同様の式となる。

$$\begin{aligned} N_{i,m}^*(t) &= 0 & & i > m \\ &= h_m \left(\prod_{\ell=i}^{m-1} f_{\ell\to\ell+1} \right) \sum_{\ell=i}^{m-1} d_{i,j}^m e^{\lambda_j (t-t_f)} & & i \leq m \end{aligned} \tag{4.41}$$

$$(i = 1, \cdots, n)\ (m = 1, \cdots, n)$$

分岐・合流の崩壊系列は実際の例について考えた方が理解しやすいが，ここでは省略する。

4.2.3 同じ崩壊定数を含む崩壊系列

基本方程式の解法で詳しく取扱ったので，インポータンス方程式の場合の解法を要約する。次の崩壊系列について考える。

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} \cdots X_i \xrightarrow{\lambda_i} \cdots X_p \xrightarrow{\lambda_p} \cdots X_q \xrightarrow{\lambda_q} \cdots X_n \xrightarrow{\lambda_n}$$

ただし，$\lambda_p = \lambda_q$とし，さらにm番目の核種の検出を行うと仮定する。この場合に同一の崩壊定数を含む崩壊系列であるためには，$n \geq m \geq q > p \geq i$ の関係が満たされなければならない。(4.26)で，$h_j = h_m$ ($j = m$)，$h_j = 0$ ($j \neq m$) の場合を考える。この時には

$$N^*_{i,m}(s) = \frac{\prod_{j=i}^{m-1} \lambda_j}{\prod_{j=i}^{m} (s+\lambda_j)} h_m \tag{4.42}$$

となる。ここで$N^*_{i,m}(s)$を二つの函数の積に分解し，変型ラプラス変換の相乗定理を用いる。

$$N^*_{i,m}(s) = g^*_{i,m,(p)}(s) \cdot g^*_p(s) \tag{4.43}$$

ここで，

$$g^*_{i,m,(p)}(s) = \frac{\prod_{j=i}^{m-1} \lambda_j}{\prod_{\substack{j=i \\ (j\neq p)}}^{m} (s+\lambda_j)} h_m \tag{4.44}$$

$$g^*_p(s) = \frac{1}{s+\lambda_p} \tag{4.45}$$

である。各々の変型ラプラス変換を行うと

$$g^*_{i,m,(p)}(t) = \sum_{\substack{j=i \\ (j\neq p)}}^{m} h_m \frac{\prod_{\ell=i}^{m} \lambda_\ell}{\prod_{\substack{\ell=i \\ (\ell\neq j,p)}}^{m} (\lambda_\ell - \lambda_j)} e^{\lambda_j (t-t_f)} \tag{4.46}$$

$$g^*_p(t) = e^{\lambda_p (t-t_f)} \tag{4.47}$$

が得られる。ここで(4.19)の相乗定理を用いると

$$N^*_{i,m}(t) = \int_t^{t_f} g^*_{i,m,(p)}(t+t_f-\xi)\, g^*_p(\xi)\, d\xi$$

$$= h_m \sum_{\substack{j=i \\ (j\neq p)}}^{m} \frac{\prod_{\ell=i}^{m-1} \lambda_\ell}{\prod_{\substack{\ell=i \\ (\ell\neq j,p)}}^{m} (\lambda_\ell - \lambda_j)} e^{\lambda_j t}\, e^{-\lambda_p t_f} \int_t^{t_f} e^{(\lambda_p-\lambda_j)\xi}\, d\xi \tag{4.48}$$

と表わされる。さらに，右辺の積分をおこなうときに，$\lambda_j \neq \lambda_p, \lambda_q$ と $\lambda_j = \lambda_p, \lambda_q$ の二つの場合に分けて考える必要がある。これに注意すると（4.4 8）は，

$$N^*_{i,m}(t) = h_m \Big[\sum_{\substack{j=i\\(j\neq p,q)}}^{m} d^m_{i,j}\, e^{\lambda_j(t-t_f)} - \sum_{\substack{j=i\\(j\neq p,q)}}^{m} d^m_{i,j}\, e^{\lambda_p(t-t_f)}$$

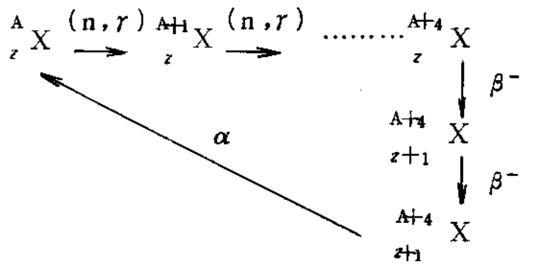
$$+ \frac{\prod_{\ell=i}^{m-1} \lambda_\ell}{\prod_{\substack{\ell=i\\(\ell\neq p,q)}}^{m} (\lambda_\ell - \lambda_p)} (t_f - t)\, e^{\lambda_p(t-t_f)} \Big] \qquad (4.49)$$

$$(n \geq m \geq q > p \geq i)$$

となる。

4.2.4　循環形式の崩壊系列

ここでは 3.2.4 で取扱ったものと同じ循環形式の崩壊系列について考える。



この循環形式の崩壊系列の正確なインポータンス方程式は

$$\dot{N}^*_n(t) = \lambda_n N^*_n(t) - \lambda_n N^*_1(t) \qquad (4.50)$$

$$\vdots$$

$$\dot{N}^*_i(t) = \lambda_i N^*_i(t) - \lambda_i N^*_{i+1}(t) \qquad (4.51)$$

$$\vdots$$

$$\dot{N}^*_1(t) = \lambda_1 N^*_1(t) - \lambda_1 N^*_2(t) \qquad (4.52)$$

となる。上式の変型ラプラス変換を行うと

$$h_n - s N^*_n(s) = \lambda_n N^*_n(s) - \lambda_n N^*_1(s) \qquad (4.53)$$

$$\vdots$$

$$h_i - s N^*_i(s) = \lambda_i N^*_i(s) - \lambda_i N_{i+1}(s) \qquad (4.54)$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots$$

$$h_1 - s N^*_1(s) = \lambda_1 N^*_1(s) - \lambda_1 N^*_2(s) \qquad (4.55)$$

が得られる。これから

$$N_n^*(s) = \frac{h_n}{s+\lambda_n} + \frac{\lambda_n}{s+\lambda_n} N_1^*(s) \qquad (4.56)$$

⋮

$$N_i^*(s) = \sum_{k=i}^{n} h_k \frac{\prod_{j=i}^{k-1} \lambda_j}{\prod_{j=i}^{k} (s+\lambda_j)} + \frac{\prod_{j=i}^{n} \lambda_j}{\prod_{j=i}^{n} (s+\lambda_j)} N_1^*(s) \qquad (4.57)$$

$$N_1^*(s) = \sum_{k=1}^{n} h_k \frac{\prod_{j=1}^{k-1} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{k} (s+\lambda_j)} + \frac{\prod_{j=1}^{n} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{n} (s+\lambda_j)} N_1^*(s) \qquad (4.58)$$

となる。ここでn番目の核種を検出すると仮定すれば(4.58)は

$$N_{1,n}^*(s) = h_n \frac{\prod_{j=1}^{n-1} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{n} (s+\lambda_j)} + D_{1n}^*(s) N_{1n}^*(s) \qquad (4.59)$$

となる。或は次のように展開して表わすことができる。

$$N_{1,n}^*(s) = \frac{\prod_{j=1}^{n-1} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{n} (s+\lambda_j)} h_n \left[1 + D_{1n}^*(s) + D_{1n}^*(s)^2 + \cdots\cdots \right] \qquad (4.60)$$

ここで

$$D_{1n}^*(s) = \frac{\prod_{j=1}^{n} \lambda_j}{\prod_{j=1}^{n} (s+\lambda_j)} \qquad (4.61)$$

である。(4.60)を(4.56)に代入すれば,

$$N_{n,n}^*(s) = \frac{h_n}{s+\lambda_n} \left[1 + D_{1n}^*(s) + D_{1n}^*(s)^2 + \cdots\cdots \right] \qquad (4.62)$$

が得られる。上式で右辺第2項まで取れば

$$X_n \xrightarrow{\lambda_n} X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} \cdots\cdots X_{n-1} \xrightarrow{\lambda_{n-1}} X_n \xrightarrow{\lambda_n} \qquad (4.63)$$

なる線型崩壊系列で近似することになる。一方,さらに近似を高めるため右辺第3項まで取る

と次の線型崩壊系列を考えることに相当する。

$$X_n \xrightarrow{\lambda_n} X_1 \xrightarrow{\lambda_1} \cdots\cdots X_n \xrightarrow{\lambda_n} X_1 \xrightarrow{\lambda_1} \cdots X_n \xrightarrow{\lambda_n} \tag{4.64}$$

これは検出核種から出発し，循環系列を2回まわってもとの検出核種が現れたときに線型崩壊系列を打ち切ることになる。これは循環形式の崩壊系列について基本方程式の解を求めた時と全く同じである。

一般的に$N^*_{i,n}(s)$は（4.60）から次式で表わされる。

$$N^*_{i,n}(s) = h_n G^*_{i\,n}(s) \left[1 + D^*_{1\,n}(s) + D^*_{1\,n}(s)^2 + \cdots\cdots \right] \tag{4.65}$$

ここで

$$G^*_{i\,n}(s) = \frac{\prod_{j=i}^{n-1} \lambda_j}{\prod_{j=i}^{n} (s + \lambda_j)} \tag{4.66}$$

である。一般的な逐次解を求めるために$G^*_{i\,n}(s)$および$D^*_{1n}(s)$の変型ラプラス逆変換を行うと

$$G^*_{in}(t) = \sum_{j=i}^{n} d^n_{i,j}\, e^{\lambda_j (t - t_f)} \tag{4.67}$$

$$D^*_{1\,n}(t) = \sum_{j=1}^{n} \lambda_n d^n_{1,j}\, e^{\lambda_j (t - t_f)} \tag{4.68}$$

となる。これを用いると変型ラプラス変換の相乗定理（4.19）により（4.65）の変型ラプラス逆変換から

$$N^*_{i,n}(t) = h_n \left[n^*_{i,o}(t) + n^*_{i,1}(t) + n^*_{i,2}(t) + \cdots \right] \tag{4.69}$$

と表わされる。ただし

$$n^*_{i,o}(t) = \sum_{j=i}^{n} d^n_{i,j}\, e^{\lambda_j (t - t_f)} \tag{4.70}$$

$$n^*_{i,m}(t) = \int_t^{t_f} n^*_{i,m-1}(t + t_f - \tau)\, D^*_{1n}(\tau)\, d\tau \tag{4.71}$$

$$(i = n, n-1, \cdots, 1)\ (m \geq 1)$$

である。上式で（4.70）は通常の線型崩壊系列の解である。一方，（4.71）で$m=1$，$i=n$で打ち切ると（4.63）の線型崩壊系列で近似した解となり，$m=2$，$i=n$で打ち切ると（4.64）の線型崩壊系列で近似した解となる。

次に（4.71）で$m=1$の場合の解を求める。

$$n^*_{i,m}(t) = \sum_{j=i}^{n} \sum_{\ell=1}^{n} \lambda_n d^n_{i,j} d^n_{1,\ell} e^{\lambda_j t} e^{-\lambda_\ell t_f} \cdot \int_t^{t_f} e^{(\lambda_\ell - \lambda_j)\tau} d\tau \qquad (4.72)$$

上式の積分は $j=\ell \geq i$ と $j \neq \ell$ の場合に分けて考える必要がある。

$$n^*_{i,1}(t) = \sum_{j=i}^{n} \sum_{\substack{\ell=1 \\ (\ell \neq j)}}^{n} d^n_{i,j} d^n_{1,\ell} \frac{\lambda_n}{\lambda_\ell - \lambda_j} \left[e^{\lambda_j (t-t_f)} - e^{\lambda_\ell (t-t_f)} \right]$$

$$+ \sum_{j=i}^{n} \lambda_n d^n_{i,j} d^n_{1,j} (t_f - t) e^{\lambda_j (t-t_f)} \qquad (4.73)$$

$$(i = n, n-1, \cdots, 1)$$

上式で $i=n$ の場合には（3.26）から明らかなように $d^n_{n,j} = 1$ となるので

$$n^*_{n,1}(t) = \sum_{\substack{\ell=1 \\ (\ell \neq n)}}^{n} d^n_{1,\ell} \frac{\lambda_n}{\lambda_n - \lambda_\ell} \left(e^{\lambda_\ell (t-t_f)} - e^{\lambda_n (t-t_f)} \right)$$

$$+ \lambda_n d^n_{1,n} (t_f - t) e^{\lambda_n (t-t_f)} \qquad (4.74)$$

となる。（4.64）の崩壊系列で近似する場合には $m=2$，$i=n$ まで求めておけば充分である。

$$n^*_{n,2}(t) = \int_t^{t_f} n^*_{n,1}(t+t_f-\tau) D^*_{1n}(\tau) d\tau = \sum_{\substack{\ell=1 \\ (\ell \neq n)}}^{n} \sum_{j=1}^{n} \lambda_n d^n_{1,\ell} d^n_{1,j} \frac{\lambda_n}{\lambda_n - \lambda_\ell}$$

$$\cdot \left[e^{\lambda_\ell t - \lambda_j t_f} \int_t^{t_f} e^{(\lambda_j - \lambda_\ell)} d\tau - e^{\lambda_n t - \lambda_j t_f} \int_t^{t_f} e^{(\lambda_j - \lambda_n)\tau} d\tau \right]$$

$$+ \sum_{j=1}^{n} \lambda_n^2 d^n_{1,n} d^n_{1,j} e^{-\lambda_j t_f} e^{\lambda_n t} \int_t^{t_f} (\tau - t) e^{(\lambda_j - \lambda_n)\tau} d\tau \qquad (4.75)$$

上式の積分を行う時には，$j \neq \ell, n$，$j=\ell$，$j=n$ の三つの場合に分けて考える必要がある。結局，$n^*_{n,2}(t)$ は複雑にはなるが，基本方程式の解と類似の次式が得られる。

$$n^*_{n,2}(t) = \sum_{\substack{\ell=1 \\ (\ell \neq n)}}^{n} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq \ell, n)}}^{n} d^n_{1,\ell} d^n_{1,j} \frac{\lambda_n^2}{\lambda_n - \lambda_\ell} \left[\frac{e^{\lambda_\ell (t-t_f)} - e^{\lambda_j (t-t_f)}}{\lambda_j - \lambda_\ell} - \frac{e^{\lambda_n (t-t_f)} - e^{\lambda_j (t-t_f)}}{\lambda_j - \lambda_n} \right.$$

$$+ \sum_{\substack{\ell=1 \\ (\ell \neq n)}}^{n} (d^n_{1,\ell})^2 \frac{\lambda_n^2}{\lambda_n - \lambda_\ell} \left[(t_f - t) e^{\lambda_\ell (t-t_f)} - \frac{e^{\lambda_n (t-t_f)} - e^{\lambda_\ell (t-t_f)}}{\lambda_\ell - \lambda_n} \right]$$

$$+ \sum_{\substack{\ell=1 \\ (\ell \neq n)}}^{n} 2 d^n_{1,\ell} d^n_{1,n} \frac{\lambda_n^2}{\lambda_n - \lambda_\ell} \left[\frac{e^{\lambda_\ell (t-t_f)} - e^{\lambda_n (t-t_f)}}{\lambda_n - \lambda_\ell} - (t_f - t) e^{\lambda_n (t-t_f)} \right]$$

$$+\frac{1}{2}\lambda_n\,(d^n_{1,n})^2\,(t_f-t)^2\,e^{\lambda_n(t-t_f)} \qquad (4.76)$$

以上により，変型ラプラス変換とその逆変換および相乗定理を用いてインポータンス方程式のBatemanの解を種々の場合について統一的に求めることができた。したがって，時間依存のインポータンス方程式を解く場合の有力な手法として変型ラプラス変換の方法が広く応用できるものと思われる。なお，インポータンス方程式は検出核種の数に等しい組の解を求める必要があるが，個々の解は比較的簡単な函数で表わされ，基本方程式を解く場合に1種類の核種のみが初期原子数をもつ解に類似している。さらに放射性核種のインポータンスを考えることにより，その生成崩壊の複雑な系列の物理的理解が極めて容易になる。

5. 固有値法と感度解析の直接法

ここでは古くから定数係数の連立一次常微分方程式を解く方法として知られている固有値法を応用することを試みる。[8] この方法を応用する時には全ての核種の崩壊系列を含めて取扱うために，アクチノイド核種の崩壊系列を分解する不便さはない。しかし，アクチノイド核種には短寿命と長寿命の核種が混在しているために，固有値を求める時にその精度が悪くなる可能性がある。一方，この固有値を求める行列の要素のうち対角要素とそれに近い行と列の要素のみが値を持ち，他の大部分の要素が零となる。したがって，数値計算により精度良い固有値が求められるか否かを検討する必要がある。この方法ではMatrix Exponential法で必要な行列のベキ乗を求める必要はない。しかも計算機の発達した現時点では一応考慮すべき方法であると思われる。

アクチノイド核種の生成崩壊を記述する基本方程式として（2.1）式を考える。

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{n} a_{ij} N_j(t) \qquad (i=1, \cdots, n) \qquad (5.1)$$

この方程式はD'Alembertの連立微分方程式と呼ばれていた。しかし，現在では特にこの様な呼び方はされていないようである。（5.1）式を解くために

$$N_i(t) = c_i e^{\lambda t} \qquad (i=1, \cdots, n) \qquad (5.2)$$

なる解が存在すると仮定し，これを（5.1）式に代入すると

$$\sum_{j=1}^{n} (a_{ij} - \lambda \delta_{ij}) c_j = 0 \qquad (i=1, \cdots, n) \qquad (5.3)$$

が得られる。これは c_j についての一次方程式である。したがって c_j が解を持つためには

$$\Delta(\lambda) = \begin{vmatrix} a_{11}-\lambda, & a_{12} & , \cdots a_{1n} \\ a_{21} & , a_{22}-\lambda & , \cdots a_{2n} \\ \vdots & & \\ a_{n1} & , a_{n2} & , \cdots a_{nn}-\lambda \end{vmatrix} = 0 \qquad (5.4)$$

が満足されなければならない。この固有値方程式はn次方程式なので，その固有値はn個存在する。これを $\lambda_1, \lambda_2, \cdots, \lambda_n$ とする。これらの間に同じ値の固有値があるか否かに分けて考えねばならないが，ここではすべての固有値は異なると仮定する。

今，固有値のいずれか一つ λ_i を（5.3）に代入すると

$$\mathbf{A}\mathbf{C}^{(i)} = \lambda_i \mathbf{C}^{(i)} \qquad (5.5)$$

から固有値 λ_i に対応する固有ベクトル $\mathbf{C}^{(i)}$ が求まる。この要素を $c_{1i}, c_{2i}, \cdots, c_{ni}$ とすれば，必ず1個の未定定数が含まれている。これを1とおくと（5.2）は次の様になる。$N_{1i} = c_{1i} e^{\lambda_i t}, N_{2i} = c_{2i} e^{\lambda_i t}, \cdots, N_{ni} = c_{ni} e^{\lambda_i t}$ （5.6）

これらを要素とするベクトルを $\mathbf{N}^{(i)}$ で表わせば，$i=1, 2, \cdots, n$ について同様の取扱いができ

るので，$N^{(1)}, N^{(2)}, \cdots N^{(n)}$ なる n 個の解ベクトルが求められる。これらの特殊解が一次独立であるためには，固有ベクトルの要素から作られる行列式が

$$|C| = \begin{vmatrix} c_{11} & c_{12} & \cdots\cdots & c_{1n} \\ c_{21} & c_{22} & \cdots\cdots & c_{2n} \\ & & & \\ c_{n1} & c_{n2} & \cdots\cdots & c_{nn} \end{vmatrix} \neq 0 \qquad (5.7)$$

を満足する必要がある[8]。この時，$\mathbf{N}^{(1)}, \mathbf{N}^{(2)}, \cdots \mathbf{N}^{(n)}$ は（5.1）の解の基本系と呼ばれ，任意定数 $\boldsymbol{\alpha}_j$ を用いて一般解は

$$\mathbf{N}(t) = \sum_{j=1}^{n} \boldsymbol{\alpha}_j \mathbf{N}^{(j)}(t) \qquad (5.8)$$

で与えられる。或は次のように表わすことも出来る。

$$N_i(t) = \sum_{j=1}^{n} \boldsymbol{\alpha}_j c_{ij} e^{\lambda_j t} \qquad (i=1, 2, \cdots, n) \qquad (5.9)$$

任意定数 $\boldsymbol{\alpha}_j$ は初期条件から求められる。即ち，上式で $t=0$ とおくと

$$N_i(o) = \sum_{j=1}^{n} c_{ij} \boldsymbol{\alpha}_j \qquad (i=1, 2, \cdots, n) \qquad (5.10)$$

となる。或はマトリックス表示で

$$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & \cdots & c_{1n} \\ c_{21} & c_{22} & \cdots & c_{2n} \\ \vdots & & & \\ c_{n1} & c_{n2} & \cdots & c_{nn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \boldsymbol{\alpha}_1 \\ \boldsymbol{\alpha}_2 \\ \vdots \\ \boldsymbol{\alpha}_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} N_1(o) \\ N_2(o) \\ \vdots \\ N_n(o) \end{bmatrix} \qquad (5.11)$$

となる。この連立一次方程式の解が存在することは（5.7）式から明らかである。

次に時間依存の摂動法を用いて感度解析を行うために，まず，（5.1）式の随伴方程式を上と同じ方法で解くことを考える。感度係数は直接（5.8）或は（5.9）式の変分からも求めることが出来るが，これについては後で詳しく述べることにする。基本方程式（3.4）或は（5.1）式の随伴方程式は（4.6）で与えられる。これを（5.1）式に対応した表式で示すと次の様になる。

$$-\frac{dN_i^*(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{n} a_{ji} N_j^*(t) \qquad (i=1, \cdots n) \qquad (5.12)$$

ここで上式を解くために

$$N_i^*(t) = c_i^* e^{-\lambda(t-t_f)} \qquad (i=1, \cdots n) \qquad (5.13)$$

なる解が存在すると仮定し，（5.12）に代入する。これから

$$\sum_{j=1}^{n} (a_{ji} - \lambda \delta_{ij}) c_j^* = 0 \qquad (i=1, \cdots, n) \tag{5.14}$$

が得られる。係数 c_j^* が存在するための条件から

$$\Delta^*(\lambda) = \begin{vmatrix} a_{11}-\lambda, & a_{21}, & \cdots, & a_{n1} \\ a_{12}, & a_{22}-\lambda, & \cdots, & a_{n2} \\ \vdots & & & \\ a_{1n}, & a_{2n}, & \cdots, & a_{nn}-\lambda \end{vmatrix} = 0 \tag{5.15}$$

が満たされねばならない(8)。上式は (5. 4) との対比から，マトリックス$\mathbf{A}$の転置マトリックス$\mathbf{A}^T$ の固有値を求めることになる。即ち，(5.1 5)は次のようにも表示できる。

$$| \mathbf{A}^T - \lambda \mathbf{E} | = 0 \tag{5.16}$$

マトリックスの固有値に関する定理からマトリックス$\mathbf{A}$の固有値と転置マトリックス$\mathbf{A}^T$ の固有値は一致する。前と同様に n 個の固有値 λ_1, λ_2, …, λ_nはすべて異なると仮定する。

ここで随伴固有ベクトルを求めるため，固有値の一つ λ_i を (5.1 4) に代入すると

$$\mathbf{A}^T \mathbf{C}^{(i)*} = \lambda_i \mathbf{C}^{(i)*} \tag{5.17}$$

となる。これから求まる随伴固有ベクトル$\mathbf{C}^{(i)*}$ の要素をC_{1i}^*, C_{2i}^*, …, C_{ni}^*とすれば，1 個の未定定数を 1 とおいて

$$N_{1i}^* = C_{1i}^* e^{-\lambda_i(t-t_f)}, \quad N_{2i}^* = C_{2i}^* e^{-\lambda_i(t-t_f)}, \quad \cdots, N_{ni}^* = C_{ni}^* e^{-\lambda_i(t-t_f)} \tag{5.18}$$

なる解が得られる。これらを要素とするベクトルを$\mathbf{N}^{(i)*}$で表わせば， $i=1, 2, \cdots, n$ について同様の取扱いができるので，n 個の解ベクトル$\mathbf{N}^{(1)*}, \mathbf{N}^{(2)*}, \cdots, \mathbf{N}^{(n)*}$が求められる。これらの特殊解が一次独立であるためには，(5.7)と同様に随伴固有ベクトルの要素から作られる行列式が零になってはならない。即ち，

$$|\mathbf{C}^*| = \begin{vmatrix} C_{11}^* & C_{12}^* & \cdots & C_{1n}^* \\ C_{21}^* & C_{22}^* & \cdots & C_{2n}^* \\ \vdots & & & \\ C_{n1}^* & C_{n2}^* & \cdots & C_{nn}^* \end{vmatrix} \neq 0 \tag{5.19}$$

が満足されなければならない。これが満たされている時には任意定数をα_j^*として一般解は

$$\mathbf{N}^*(t) = \sum_{j=1}^{n} \alpha_j^* \mathbf{N}^{(j)*}(t) \tag{5.20}$$

で与えられる。或はさらに具体的に表示すれば

$$N_i^*(t) = \sum_{j=1}^{n} \alpha_j^* C_{ij}^* e^{-\lambda_j(t-t_f)} \tag{5.21}$$

となる。任意定数α_j^*は随伴方程式の終端条件から定められる。しかし，これはどの核種を検

出するかに依存する。今，m番目の核種を時刻 t_f で検出するとすれば

$$N_{im}^{*}(t)=\sum_{j=1}^{n}\alpha_{jm}^{*}C_{ij}^{*}e^{-\lambda_j(t-t_f)} \qquad (i=1,\cdots,n)(m=1,\cdots,m) \tag{5.23}$$

となる。ただし，α_{jm}^{*} は(2.8)の関係を用いると次式から定る。

$$\begin{bmatrix} C_{11}^{*} & C_{12}^{*} & \cdots & C_{1n}^{*} \\ C_{21}^{*} & C_{22}^{*} & \cdots & C_{2n}^{*} \\ \vdots & & & \\ C_{n1}^{*} & C_{n2}^{*} & \cdots & C_{nn}^{*} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha_{1m}^{*} \\ \alpha_{2m}^{*} \\ \vdots \\ \alpha_{nm}^{*} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \vdots \\ h_m \\ \vdots \\ 0 \end{bmatrix} \tag{5.24}$$

上式が α_{jm}^{*} について解を持つことは(5.19)から明らかである。

この方法は前にも述べたごとく固有値 $\lambda_1,\lambda_2,\cdots,\lambda_n$ が精度良く求まるか否かに依存している。もしも精度良い固有値が求まればBateman法に比較して計算がはるかに容易になる。尚，この方法は(3.9)或は(3.10)の解法を含んだ一般的な方法であることは明らかである。

次に，(5.9)の変化量から直接感度係数を求める方法を定式化する。即ち，a_{ij} が $a_{ij}+\delta a_{ij}$ に変化した時の $\delta N_i(t)$ は

$$\delta N_i(t)=\sum_{j=1}^{n}\left[\delta\alpha_j C_{ij}+\alpha_j\delta C_{ij}+\alpha_j C_{ij}\,t\,\delta\lambda_j\right]e^{\lambda_j t} \qquad (i=1,\cdots,n) \tag{5.25}$$

で与えられる。しかし，上式の各々の変化量は同じオーダか否かは明確ではない。最初に，$\delta\lambda_j$ と δC_{ij} の値を求める。今，(5.5)で $\mathbf{A}$ が $\varepsilon\,\delta\mathbf{A}$ なる摂動を受けたとすれば，

$$(\mathbf{A}+\varepsilon\,\delta\mathbf{A})C^{(i)\prime}=\lambda_i' C^{(i)\prime} \tag{5.26}$$

となる。ここで

$$C^{(i)\prime}=C_0^{(i)}+\varepsilon C^{(i)}+\cdots\cdots \tag{5.27}$$

$$\lambda_i'=\lambda_{i0}+\varepsilon\lambda_{i1}+\cdots\cdots \tag{5.28}$$

と展開し，(5.26)に代入すれば次の逐次方程式が得られる。

$$\mathbf{A}C_0^{(i)}=\lambda_{i0}C^{(i)} \tag{5.29}$$

$$(\mathbf{A}-\lambda_{i0}\mathbf{E})C_1^{(i)}=-\delta\mathbf{A}C_0^{(i)}+\lambda_{i1}C_0^{(i)} \tag{5.30}$$

$$\vdots$$

一方，(5.17)は次の様にも表示できる。

$$C_0^{(i)*T}\mathbf{A}=\lambda_{i0}C_0^{(i)*T} \tag{5.31}$$

したがって，$C_0^{(i)*T}$ を(5.30)の左側からかけると左辺は消えるので

$$\lambda_{i1}=\frac{C_0^{(i)*T}\,\delta\mathbf{A}\,C_0^{(i)}}{C_0^{(i)*T}C_0^{(i)}} \qquad (i=1,\cdots,n) \tag{5.32}$$

で固有値の1次のオーダの変化量が求められる。一方，C_{ij}の変化は（5.3 0）を直接解く必要があるが，ここで$C_o^{(i)}$と$C_o^{(j)*}$ は直交条件を満たし$C_o^{(i)}$ は一次独立なのでこれを利用する。このために

$$C_1^{(i)} = \sum_{j=1}^{n} b_j^{(i)} C_o^{(j)} \tag{5.33}$$

と展開し，（5.3 3）を（5.3 0） に代入する。

$$(A-\lambda_{io}E)C_1^{(i)} = \sum_{j=1}^{n}(A-\lambda_{io}E)\,b_j^{(i)}C_o^{(j)} = \sum_{\substack{j=1\\(j\neq i)}}^{n} b_j^{(i)}(\lambda_{jo}-\lambda_{io})C_o^{(j)} \tag{5.34}$$

ここで。（5.3 0）の左側から$C^{(i)*\tau}$ をかけ上式の関係を用いると

$$b_j^{(i)} = -\frac{C_o^{(j)*\tau}\,\delta A\,C_o^{(i)}}{\lambda_{jo}-\lambda_{io}} \qquad (j\neq i) \tag{5.35}$$

となる。尚，係数$b_i^{(i)}$ は不定となるが，（5.2 7）が1に規格化されていれば，$C^{(i)*\tau}C_1^{(i)}=0$となるので（5.3 3）から

$$b_i^{(i)} = 0 \qquad (i=1,\cdots,n) \tag{5.36}$$

となる。したがって，一般的に$C_1^{(i)}$ は次式から計算される。

$$C_1^{(i)} = -\sum_{\substack{j=1\\(j\neq i)}}^{n} \frac{C_o^{(j)*\tau}\,\delta A\,C_o^{(i)}}{\lambda_{jo}-\lambda_{io}}\,C_o^{(j)} \qquad (i=1,\cdots,n) \tag{5.37}$$

これからδC_{ij} の1次のオーダの値は次の様になる。

$$C_{ij,1} = -\sum_{\substack{k=1\\(k\neq 1)}}^{n} \frac{C_o^{(k)*\tau}\,\delta A\,C_o^{(j)}}{\lambda_{ko}-\lambda_{jo}}\,C_{ik,o} \qquad \begin{matrix}(i=1,\cdots,n)\\(j=1,\cdots,n)\end{matrix} \tag{5.38}$$

最後に$\delta\alpha_j$ の値を求めるために（5.1 0）の変分を行うと

$$\sum_{j=1}^{n}(C_{ij}\,\delta\alpha_j+\delta C_{ij}\,\alpha_j)=0 \qquad (i=1,\cdots,n) \tag{5.40}$$

となる。或はベクトルで表示すると

$$\sum_{j=1}^{n}(C^{(j)}\,\delta\alpha_j+\delta C^{(j)}\,\alpha_j)=0 \tag{5.41}$$

となる。上式でδC^j として1次のオーダの値を用い，左側から$C^{j\,*\tau}$をかけると

$$\delta\alpha_j = -\sum_{\substack{k=1\\(k\neq i)}}^{n} C_o^{(j)*\tau}\,C_1^{(k)}\,\alpha_k \tag{5.42}$$

となる。上式の導出で$C_0^{(j)*\tau}C_0^{(j)}=1$の規格化の条件を用いた。最終的に（5.2 5）はベクトル

表示を用いて

$$\delta N(t)=\sum_{j=1}^{n}\left[\delta\alpha_j C_0^{(j)}+\alpha_j C_1^{(j)}+\alpha_j C_0^{(j)}\ t\lambda_{j1}\right]e^{\lambda_j t} \tag{5.43}$$

となる。以上の計算で

$$\begin{aligned} C^{(i)*T}C^{(j)} &= 1 \quad (i=j) \\ &= 0 \quad (i \neq j) \end{aligned} \tag{5.44}$$

なる直交条件を用いたが$C^{(i)*T}$の計算では上記の規格化が満たされるように任意定数を選ぶ必要がある。

上記の方法は計算機を直接利用することに重点があるため，方法自身の具体的理解が困難であると思われる。以下，最も単純な例について考えてみる。これには次のような線型崩壊系列が良い。

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} X_3 \xrightarrow{\lambda_3}$$

この場合には次の生成崩壊の基本方程式が成り立つ。

$$\dot{N}_1(t)=-\lambda_1 N_1(t) \tag{5.55}$$

$$\dot{N}_2(t)=-\lambda_2 N_2(t)+\lambda_1 N_1(t) \tag{5.56}$$

$$\dot{N}_3(t)=-\lambda_3 N_3(t)+\lambda_2 N_2(t) \tag{5.57}$$

この時の固有値は次の行列式から定る。

$$\begin{vmatrix} -\lambda_1-\lambda & 0 & 0 \\ \lambda_1 & -\lambda_2-\lambda & 0 \\ 0 & \lambda_2 & -\lambda_3-\lambda \end{vmatrix}=0 \tag{5.58}$$

これから$-\lambda_1$，$-\lambda_2$，$-\lambda_3$が3個の異なる固有値となる。一方，固有ベクトルは

$$C^{(1)}=\begin{bmatrix} 1 \\ \dfrac{\lambda_1}{\lambda_2-\lambda_1} \\ \dfrac{\lambda_2\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1)} \end{bmatrix} \quad C^{(2)}=\begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ \dfrac{\lambda_2}{\lambda_3-\lambda_2} \end{bmatrix} \quad C^{(3)}=\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix} \tag{5.59}$$

となる。この時，行列式

$$|C|=|C^{(1)},C^{(2)},C^{(3)}|=1 \tag{5.60}$$

となる。したがって一般解は

$$N(t)=\alpha_1 C^{(1)}e^{-\lambda_1 t}+\alpha_2 C^{(2)}e^{-\lambda_2 t}+\alpha_3 C^{(3)}e^{-\lambda_3 t} \tag{5.61}$$

となる。ただし係数は(5.11)と同じ方程式から求まる。

$$\left.\begin{aligned}\alpha_1 &= N_1(0)\\ \alpha_2 &= \frac{\lambda_1}{\lambda_1-\lambda_2}N_1(0)+N_2(0)\\ \alpha_3 &= \frac{\lambda_2\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)}N_1(0)+\frac{\lambda_2}{\lambda_2-\lambda_3}N_2(0)+N_3(0)\end{aligned}\right\} \tag{5.62}$$

これから各々の核種の時刻 t での原子個数は，

$$N_1(t)=N_1(0)e^{-\lambda_1 t}$$

$$N_2(t)=N_1(0)\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2-\lambda_1}e^{-\lambda_1 t}+\frac{\lambda_1}{\lambda_1-\lambda_2}e^{-\lambda_2 t}\right)+N_2(0)e^{-\lambda_2 t}$$

$$\begin{aligned}N_3(t)=&N_1(0)\left(\frac{\lambda_2\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1)}e^{-\lambda_1 t}+\frac{\lambda_2\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)}e^{-\lambda_2 t}+\frac{\lambda_2\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)}e^{-\lambda_3 t}\right)\\ &+N_2(0)\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_3-\lambda_2}e^{-\lambda_2 t}+\frac{\lambda_2}{\lambda_2-\lambda_3}e^{-\lambda_3 t}\right)\\ &+N_3(0)e^{-\lambda_3 t}\end{aligned}$$

となる。これはBa teman の解と同じことは当然である。

次に随伴方程式について考える。固有値は（5.58）の転置行列式から求まる。

$$\begin{vmatrix}-\lambda_1-\lambda & \lambda_1 & 0\\ 0 & -\lambda_2-\lambda & \lambda_2\\ 0 & 0 & -\lambda_3-\lambda\end{vmatrix}=0 \tag{5.63}$$

これから固有値は $-\lambda_1$，$-\lambda_2$，$-\lambda_3$ であることは明らかである。一方，随伴固有ベクトルは次のようになる。

$$C^{(1)*}=\begin{bmatrix}1\\0\\0\end{bmatrix}\qquad C^{(2)*}=\begin{bmatrix}\frac{\lambda_1}{\lambda_1-\lambda_2}\\1\\0\end{bmatrix}\qquad C^{(3)*}=\begin{bmatrix}\frac{\lambda_2\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)}\\ \frac{\lambda_2}{\lambda_2-\lambda_3}\\1\end{bmatrix} \tag{5.64}$$

ここで

$$|C^*|=|C^{(1)*},C^{(2)*},C^{(3)*}|=1 \tag{5.65}$$

が成り立つので随伴方程式の解は基本方程式の場合と同様にして計算できる。

さらに，（5.59）と（5.64）から

$$\left.\begin{aligned}C^{(i)*T}C^{(j)} &= 1 \qquad (i=j)\\ &\neq 0 \qquad (i\neq j)\end{aligned}\right. \tag{5.66}$$

なる直交規格化条件が満たされていることが解る。ここでλ_1 が $\lambda_1+\delta\lambda_1$に変化した時の各々の核種の原子数の変化を計算する。この時壊変マトリックスの変化は

$$\delta \mathbf{A}=\begin{bmatrix} -\delta\lambda_1 & 0 & 0 \\ \delta\lambda_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{5.67}$$

となる。これから１次のオーダの固有値は

$$\lambda_{11}=-\delta\lambda_1\ ,\quad \lambda_{21}=0,\quad \lambda_{31}=0 \tag{5.68}$$

となる。これに対して係数$C^{(i)}$の１次のオーダの値は（5.37）から計算され，その結果は

$$\left.\begin{aligned} C_1^{(1)} &= -\frac{\lambda_2\delta\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_2)^2}C_0^{(2)}+\frac{\lambda_2\lambda_3\delta\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_3)(\lambda_1-\lambda_3)^2}C_0^{(3)} \\ C_1^{(2)} &= 0 \\ C_1^{(3)} &= 0 \end{aligned}\right\} \tag{5.69}$$

となる。一方，$\delta\alpha_j$は（5.42）式から計算されるが（5.69）の関係を用いると

$$\left.\begin{aligned} \delta\alpha_1 &= 0 \\ \delta\alpha_2 &= -\frac{\lambda_2\delta\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_2)^2}N_1(0) \\ \delta\alpha_3 &= -\frac{\lambda_2\lambda_3\delta\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_3)(\lambda_1-\lambda_3)^2}N_1(0) \end{aligned}\right\} \tag{5.70}$$

となる。以上の計算によりλ_1を$\delta\lambda_1$だけ変化させたことによる各々の核種の原子数は(5.43)に（5.68），（5.69），（5.70）を代入して次式で与えられる。

$$\delta N_1(t)=-N_1(0)\,t\,\delta\lambda_1 e^{-\lambda_1 t} \tag{5.71}$$

$$\delta N_2(t)=N_1(0)\left(\frac{\lambda_2\delta\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_1)^2}-\frac{\lambda_1\delta\lambda_1}{\lambda_2-\lambda_1}t\right)e^{-\lambda_1 t}-N_1(0)\frac{\lambda_2\delta\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_2)^2}e^{-\lambda_2 t} \tag{5.72}$$

$$\begin{aligned}\delta N_3(t)=N_1(0)\left[\frac{(\lambda_3\lambda_2^2-\lambda_2\lambda_1^2)\delta\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_1)^2(\lambda_3-\lambda_1)^2}-\frac{\lambda_2\lambda_1\delta\lambda_1}{(\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1)}t\right]e^{-\lambda_1 t} \\ -N_1(0)\frac{\lambda_2^2\delta\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_2)^2(\lambda_3-\lambda_2)}e^{-\lambda_2 t}-N_1(0)\frac{\lambda_3\lambda_2\delta\lambda_1}{(\lambda_1-\lambda_3)^2(\lambda_2-\lambda_3)}e^{-\lambda_3 t}\end{aligned} \tag{5.73}$$

この結果は，１次のオーダの計算であるが$N_i(t)$を直接λ_1で微分した値と同じになっている。これは線型崩壊系列を取扱ったためである。また，この方法は任意の時刻での感度係数を計算できる利点がある。しかし，計算方法が複雑になるため，固有値法で基本方程式と随伴方程式のそれぞれの解を求め，これらを用いて時間依存の摂動法より感度係数を求めるのが最も良い。

6. 結　　論

アクチノイド核種の生成崩壊に関する感度解析を行うために，時間依存の摂動法とBateman 法を応用することを主にして基礎的定式化を行なった。このBateman 法ではアクチノイド核種の生成崩壊の複雑な系列を線型崩壊系列に分解し，それぞれの解を重ね合せて各々の核種の生成量を求める必要がある。したがって，解析解が求まるが複雑な崩壊系列を線型崩壊系列に分解する手順の困難さがある。一方固有値法の解法ではすべての崩壊系列を含めて取扱うために，短寿命と長寿命の核種が混在することが，固有値を求める時に精度を悪くする可能性がある。従来は，Bateman 法がほとんどすべての解析に用いられていたが，最近はMatrix Exponential法も用いられるようになってきた。一方，固有値法はある制限のもとでごく最近になって利用され始めている。これらの推移は計算機の進歩と深い関係があると思われる。この観点から，固有値法により精度良く固有値が求まるか否かを検討する必要がある。もし固有値法が利用可能であれば，感度解析では時間依存の摂動法と固有値法を用いるのが最も有効な手法となる。

ここでは，アクチノイド核種を最も効率良く焼却する炉型の選定に必要な感度解析については全く言及できなかった。これは単に中性子断面積や崩壊定数を変化させた時の感度解析だけではなく，アクチノイド核種を焼却する炉の特性や，燃料のリサイクル方式にも関連した感度解析を必要とする。したがって，一つの大きなシステムについての感度解析になり，従来の感度解析の延長上からではなく，新しい視点にたった解析方法の開発が必要となり，また，システム解析の最適化の手法とも深い関連がある。

参　考　文　献

1) Kuroi H., et al. : JAERI-M 6710, P.35 (1976)
2) Hage W. and Schmidt E. : "Reactor Physics Aspects of Burning Actinides in a Nuclear Reactor", EUR/C/IS/119/77e (1976).
3) Kuster H. and Lalovic M. : "Transactinium Isotope Build-up and Decay in Reactor Fuel and Related Sensitivities to Cross Section Changes", Transactinium Isotope Nuclear Data, IAEA Vienna, vol.1, 139 (1976).
4) Tondenelli L. : "Sensitivity of Actinide Concentration During Burn-Up with Respect to Nuclear Data", CNEN report RT/Fi (1976).
5) Gandini A., et al. : Nucl. Sci. Eng., 60, 339 (1976).
6) Gandini A. : Nucl. Sci. Eng., 38, 1 (1969).
7) Tasaka K. : "DCHAIN: Code for Analysis of Build-Up and Decay of Nuclides", JAERI 1250 (1977).
8) Nagumo M. : "Jobibun Hōteishiki", (Ordinary Differential Equations), Kyoritsu Shutsupan, 49 (1935) [in Japanese].
9) Usachev L.N. : J. Nucl. Eng., Part A/B, 18, 571 (1964).
10) Gandini A. : ibid, 21, 755 (1967).
11) Gandini A. : Nucl. Sci. Eng., 35, 141 (1969).
12) Mitani H. and Kuroi H. : "Sensitivity Coefficient of Integral Data and Generalized Perturbation Method", (in Japanese), JAERI-M 4760 (1972).
13) Lietzeke M.P. and Claiborne H.C. : "CRUNCH-An IBM 704 Code for Calculating N Successive First-Order Reactions", ORNL-2958 (1960).
14) Vantuyl H.H. : "ISOGEN-A Computer Code for Radioisotope Generation Calculations", HW-83785 (1964).
15) Pease L. : "DEEMS, A Fortran Program for Solving the First Degree Coupled Differential Equations by Expansion in Matrix Series", TDSI-49 (1963).
16) Ball S.J. and Adams R.K. : "MATEX, A General Purpose Digital Computer Program for Solving Ordinary Differential Equations by the Matrix Exponential Method", ORNL-TM-1933 (1967).
17) Tasaka K., et al. : "Build-up and Decay of Fuel Actinides in the Fuel Cycle of Nuclear Reactors", (in Japanese), JAERI-M 6541 (1976).
18) Bell M.J. : "ORIGEN-The ORNL Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-4628 (1973).

19) Alexander P., et al. : Nucl. Instr. Method, 86, 99 (1970).

20) Takeda T. : "Calculation of the Radionuclide Yields in Complex-decay, Activation and Fission in a Given Time (Code CODAC)", (in Japanese), JAERI-M 6148 (1975).

21) Doetsch G. : "Anleitung Zur Proktischen Gebrauch Der Laplace - Transformation", (translated into Japanese by Takeda S.), Verlag, Müchen, 8 (1956).