

核工程大作业

裂变产物中毒的时空变化

未央书院 孙乐然 2021012394

2024 年 6 月 11 日

目录

1	背景	1
1.1	问题重述	1
1.2	碘-135 和氙-135	1
1.3	钷-149 和钷-149	1
2	裂变产物中毒的时间变化	2
2.1	欧拉法	2
2.2	启动和停堆	2
2.3	功率变化	4
3	裂变产物中毒的空间变化	6
4	裂变产物中毒与点堆动力学的耦合	7
4.1	耦合方法	7
4.2	反应堆升功率过程模拟	8
4.3	反应堆降功率过程模拟	9
4.4	通过控制棒调节吸收截面使得反应堆稳定	9
5	裂变产物中毒与非稳态双群中子扩散方程的耦合	12
6	参考文献	13

1 背景

1.1 问题重述

反应堆运行过程中，某些裂变产物的热中子吸收截面特别大，会吸收中子，引起反应堆的反应性下降。这种现象被称为裂变产物中毒。

除了引起反应堆反应性下降，对反应堆的后备反应性提出要求外，对中毒现象的错误处理也可能引起安全问题。因此，研究裂变产物中毒的时空变化是非常有必要的。

经过物理分析和数学推导，我们可以计算出毒物带来的负反应性：

$$\Delta\rho_{poison} = -\frac{\Sigma_a^P}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M}$$

其中 Σ_a^P 是毒物的吸收截面， $\Sigma_a^F + \Sigma_a^M$ 是其他无毒物质的吸收截面之和。截面正比于核密度，因此要求我们从毒物产生的角度，对毒物的核密度进行计算，从而分析中毒现象。

比较重要的两种毒物是氙-135 和钐-149，以下我们对这两种毒物进行考虑。

1.2 碘-135 和氙-135

氙-135 是反应堆中的头号毒物，其热中子吸收截面可达 $\sigma_a = 2.7 * 10^6 \text{ barn}$ 。

氙-135 可以由裂变直接产生，也可以由铯-135、碲-135、碘-135 衰变得到。其中铯-135 和碲-135 的衰变常数很大，半衰期相比氙-135 的变化周期可以忽略不计，于是把他们的裂变产额算到碘-135 上。氙-135 的去向主要有两个，分别是衰变得到铯-135 以及俘获中子得到氙-136。由此，可以列出描述氙和碘核密度时空变化的偏微分方程：

$$\begin{aligned}\frac{\partial N_I}{\partial t} &= \gamma_I \Sigma_f \phi - \lambda_I N_I \\ \frac{\partial N_{Xe}}{\partial t} &= \gamma_{Xe} \Sigma_f \phi + \lambda_I N_I - (\lambda_{Xe} + \sigma_a^{Xe} \phi) N_{Xe}\end{aligned}$$

对于氙和碘这样的核素，可以忽略它们在反应堆中的扩散，因此该方程不包含空间偏导项。

1.3 钐-149 和钐-149

钐-149 的毒性比氙-135 小，但仍需要关注。

裂变产生钐-149，它衰变产生钐-149，而钐-149 衰变产生钐-149。钐-149 不会进一步衰变。因此可以列出描述这三种核素核密度时空变化的偏微分方程：

$$\begin{aligned}\frac{\partial N_{Nd}}{\partial t} &= \gamma_{Nd} \Sigma_f \phi - \lambda_{Nd} N_{Nd} \\ \frac{\partial N_{Pm}}{\partial t} &= \lambda_{Nd} N_{Nd} - \lambda_{Pm} N_{Pm} \\ \frac{\partial N_{Sm}}{\partial t} &= \lambda_{Pm} N_{Pm} - \sigma_a^{Sm} \phi N_{Sm}\end{aligned}$$

在这里笔者保留了对钐-149 的考虑，没有将其直接裂变产额算到钐-149 上。不过之后的求解过程中我们可以看到，钐-149 一直保持着较低的密度，且随着中子通量变化非常迅速，确实可以按照参考书的做法忽略掉。

2 裂变产物中毒的时间变化

2.1 欧拉法

在中子通量阶跃提升的情况下，上述偏微分方程可以得到解析解。这一假设一般来说也是可行的，因为反应堆功率提升的速度（分钟量级）远小于氙和碘的变化周期（小时量级）。

但是在更复杂的情况下，例如连续的功率变化，就需要用数值方法求解上述方程。以碘的方程为例：

$$\frac{\partial N_I}{\partial t} = \gamma_I \Sigma_f \phi - \lambda_I N_I$$

使用向前欧拉方法：

$$\frac{N_I^{n+1} - N_I^n}{\Delta t} = \gamma_I \Sigma_f \phi^n - \lambda_I N_I^n$$

其中 Δt 为迭代时间步长。由欧拉法的误差分析可知，该方法的误差为 $O((\Delta t)^2)$ ，也就是和时间步长的平方同一量级。可以通过添加高阶项的方法减小误差，不过由于本模拟效率很高，可以通过简单的缩小 Δt 达到精度要求，因此不进行添加高阶项的推导。同理，本模拟也用不到龙格-库塔法等方法。

2.2 启动和停堆

取反应堆中子通量的典型值 $\phi = 3 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ，宏观截面 $\Sigma_f = 0.043 \text{cm}^{-1}$ （来自课件例题），反应堆在 $t = 0$ 时启动，在 $t = 60d$ 时停堆，其他参数如下表：

参数名	单位	数值
γ_I		6.386e-2
γ_{Xe}		0.228e-2
γ_{Nd}		1.13e-2
λ_I	s^{-1}	2.87e-5
λ_{Xe}	s^{-1}	2.09e-5
λ_{Nd}	s^{-1}	1.11e-4
λ_{Pm}	s^{-1}	3.63e-6
$\sigma_{a,Xe}$	barn	2.7e6
$\sigma_{a,Sm}$	barn	40800

模拟得到如下结果（每个图的第一个子图为总变化，之后两个子图为放大的启动和停堆时的变化）：

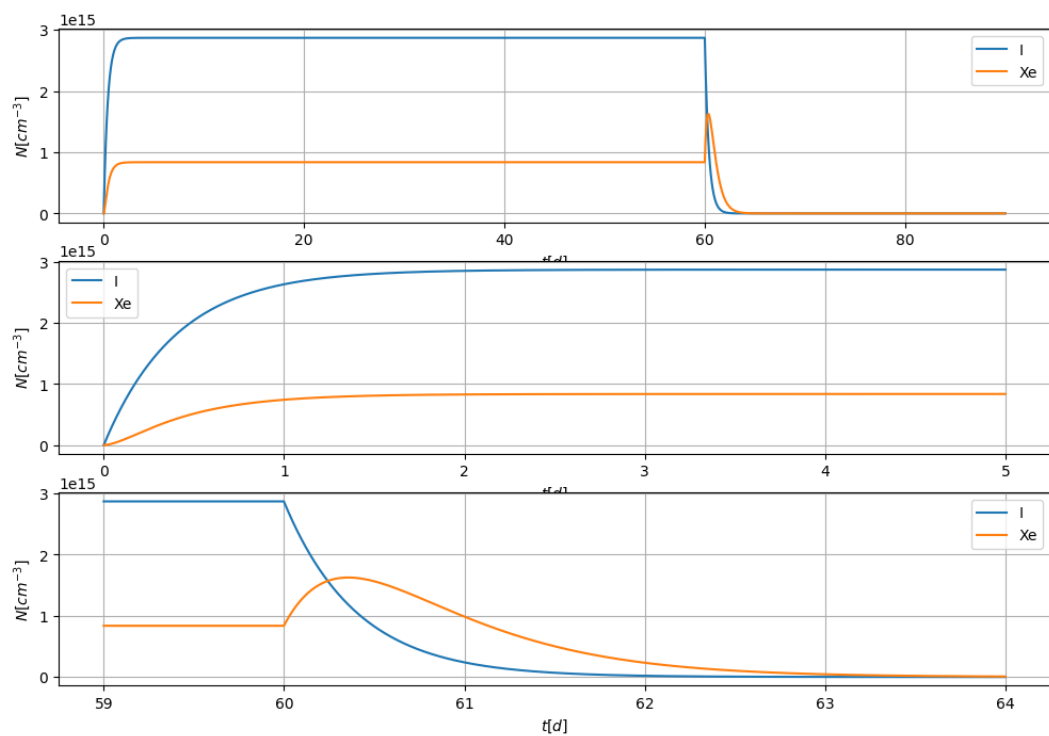


图 1: I-135 和 Xe-135 的核密度在启动和停堆时的变化

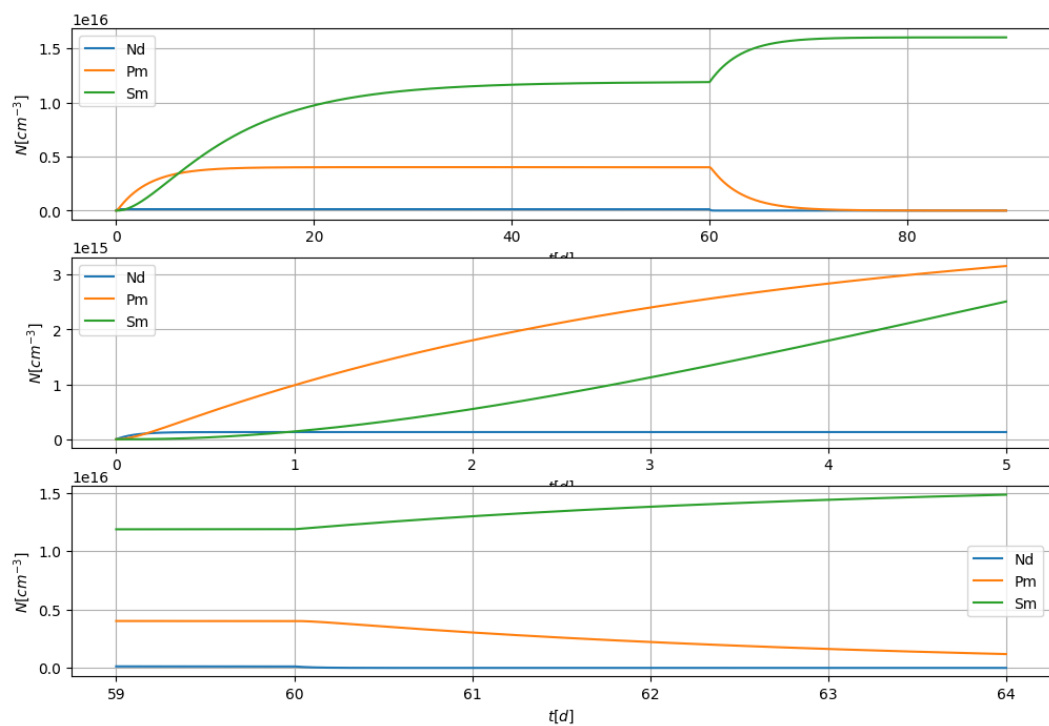


图 2: Nd-149、Pm-149、Sm-149 的核密度在启动和停堆时的变化

可以看到, I-135 和 Xe-135 的核密度在 1d 左右的时间到达稳定。停堆时, I-135 的核密度迅速降低, 而 Xe-135 的核密度先升高后降低。Xe-135 的核密度到达最高点的时间略小于 0.5d, 和课本上的 11h 相符合。

Nd-149 和 Pm-149 的变化规律与 I-135 相似, 而由于 Sm-149 是稳定的核素, 因此停堆之后它只有上升, 不会像 Xe-135 一样在之后降低。

2.3 功率变化

其他参数不变, 考虑反应堆在 60d 之后 (此时认为我们考虑的五种核素的核密度都已饱和), 1h 时间内从满功率下降到一半功率, 保持 1h, 之后 1h 时间内从一半功率恢复满功率。

计算反应性变化时, 参照二维 BWR 基准问题的数据, 不妨取 $\Sigma_a^F = 0.1091/2.43\text{cm}^{-1}$, $\Sigma_a^M = 0.1003\text{cm}^{-1}$ 。

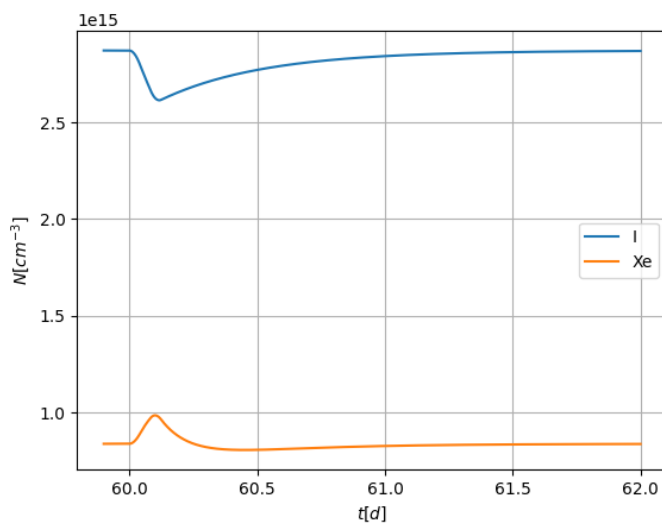


图 3: I-135 和 Xe-135 核密度在功率变化时的变化

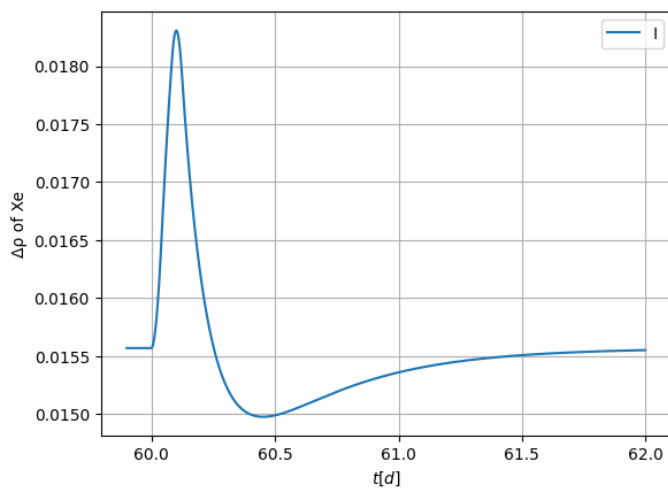


图 4: Xe-135 带来的负反应性的变化

可以看到，这样的功率变化下，I-135 和 Xe-135 的核密度有一定的波动，而带来的负反应性的波动是非常大的（从约 0.0156 到约 0.0183）。如此大的负反应性波动，如果没有后备反应性作为补充，反应堆将会掉入“碘坑”。

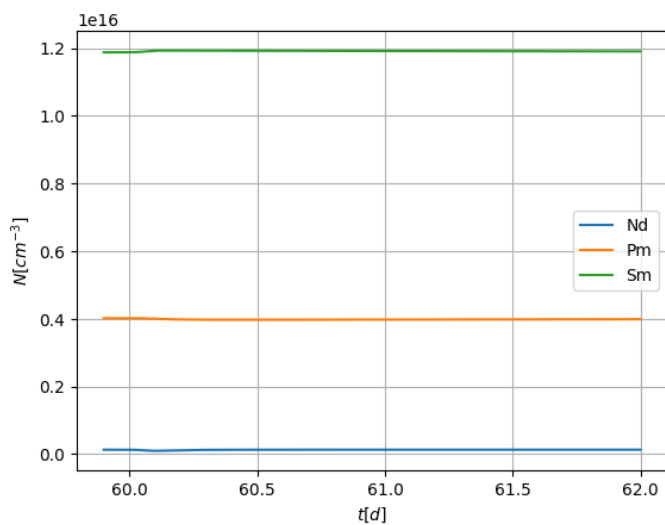


图 5: Nd-149、Pm-149、Sm-149 核密度在功率变化时的变化

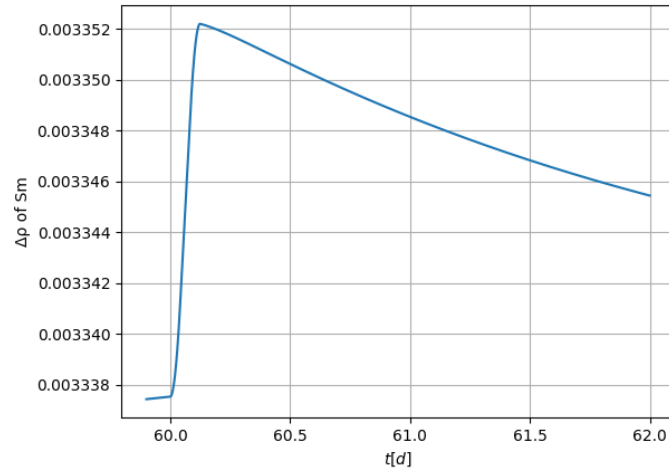


图 6: Sm-149 带来的负反应性的变化

相比而言，因为 Nd-149、Pm-149、Sm-149 的变化周期比较慢，因此功率变化时，Sm-149 带来的负反应性的波动也比较小，和 Xe-135 相比几乎可以忽略。

3 裂变产物中毒的空间变化

反应堆停止运行时，反应堆各空间位置的中子通量都会迅速降为 0（相较于毒物的变化周期），且毒物的扩散可以忽略，因此研究裂变产物中毒的空间变化，等同于研究不同中子通量下的中毒现象。

在这里我们以 I-135 和 Xe-135 为例进行研究，选取三个不同的中子通量：

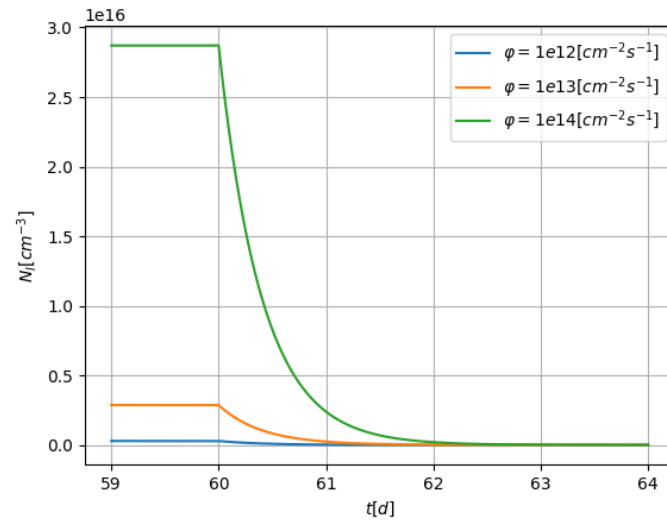


图 7: 不同中子通量下 I-135 的核密度在停堆时的变化

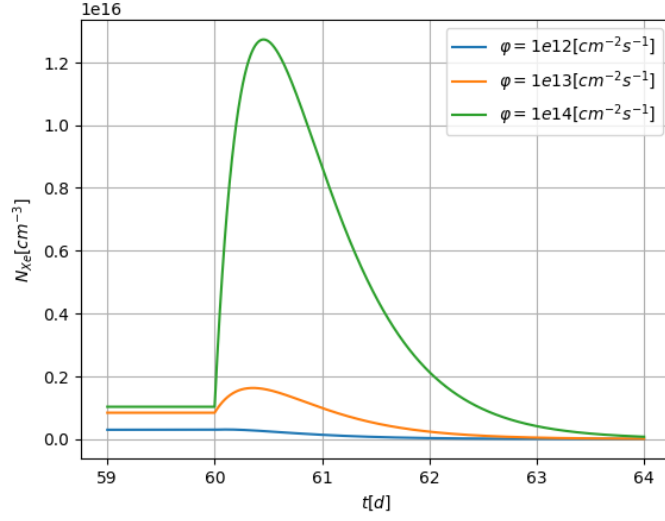


图 8: 不同中子通量下 Xe-135 的核密度在停堆时的变化

可以看到，中子通量越高，“碘坑”越明显。直观来看，因为 Xe-135 的消失同时有吸收中子和衰变这两个因素。如果吸收中子占主导，那么停堆之后，Xe-135 的消失速度迅速下降，“碘坑”非常明显。而如果衰变占主导，则 Xe-135 的消失速度变化不大，“碘坑”不明显甚至不存在。

在拉马什的教材中，定义了 $\phi_X = 0.756 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ，作为吸收中子和衰变引起 Xe-135 消失速度相等时的热中子通量。这也解释了为什么上图中 $\phi = 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ 时几乎观察不到“碘坑”。

4 裂变产物中毒与点堆动力学的耦合

4.1 耦合方法

考虑到使用点堆中子动力学方程计算得到 ϕ ，而毒物的核密度变化会影响 ρ ，点堆中子动力学方程可以与毒物的核密度方程进行耦合：

$$\begin{aligned}\frac{dn}{dt} &= \frac{\rho - \beta}{\Lambda} n + \lambda C \\ \frac{dC}{dt} &= \frac{\beta}{\Lambda} n - \lambda C \\ \rho &= \rho_0 + \Delta\rho_{Xe} + \Delta\rho_{Sm} \\ \phi &= nv\end{aligned}$$

其中 ρ_0 为不考虑毒物时的反应性，其数值保证 $\rho(t=0) = 0$ 。其他参数：

参数名	单位	数值
β		0.0065
λ	s^{-1}	0.0785
Λ	s	0.0001
v	m/s	2200

(之前出现过的方程和参数已省略)

毒物引入的反应性会和中子通量形成正反馈，因此有必要对这两者的耦合进行研究，从而使得反应堆安全、稳定地运行。

4.2 反应堆升功率过程模拟

初始的时候，反应堆处于稳定运行状态， $\rho = 0$ ， n 和 C 为常数，毒物核密度饱和。之后突然引入持续 5s 的 0.0025 的正反应性：

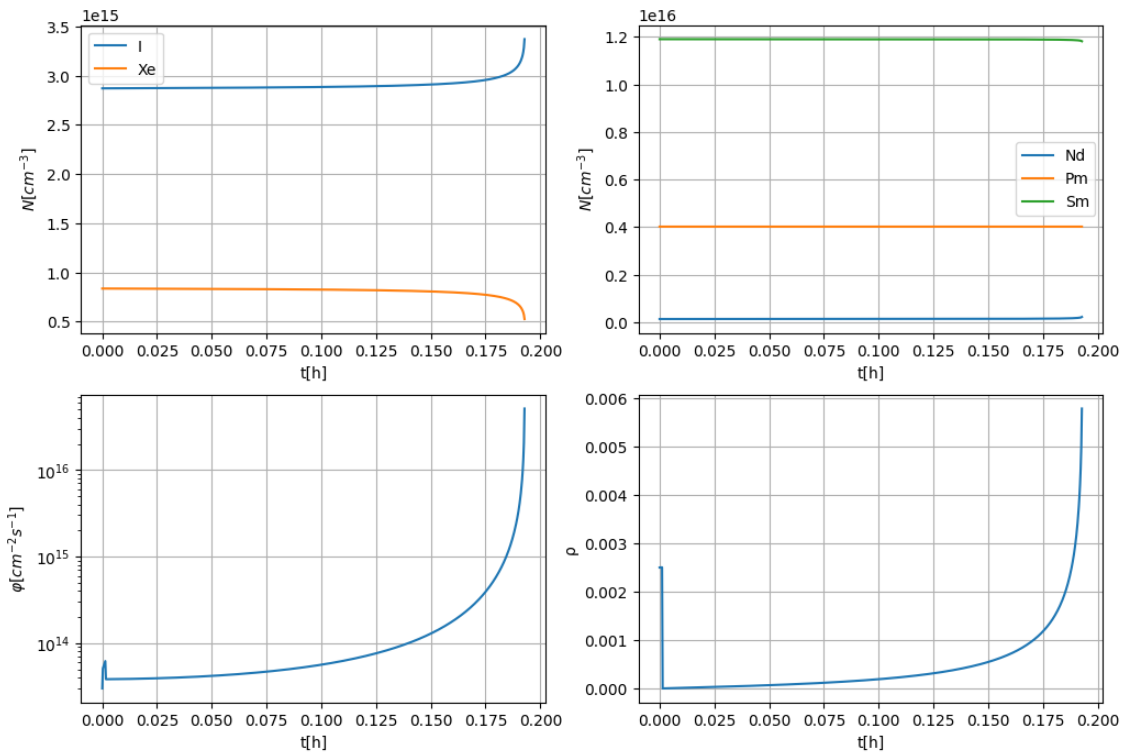


图 9: 引入正反应性后各物理量的变化

可以看到，引入短暂的正反应性之后，由于 Xe-135 和 Sm-149 的核密度的降低，其宏观吸收截面减小，反应性和中子通量持续上升。700s 左右的时候， $\rho > \beta$ ，反应堆达到瞬发超临界。

由此可见，反应堆运行过程中，必须进行实时的调控，否则将产生安全问题。

4.3 反应堆降功率过程模拟

初始的时候，反应堆处于稳定运行状态， $\rho = 0$ ， n 和 C 为常数，毒物核密度饱和。之后突然引入持续 5s 的 0.0025 的负反应性：

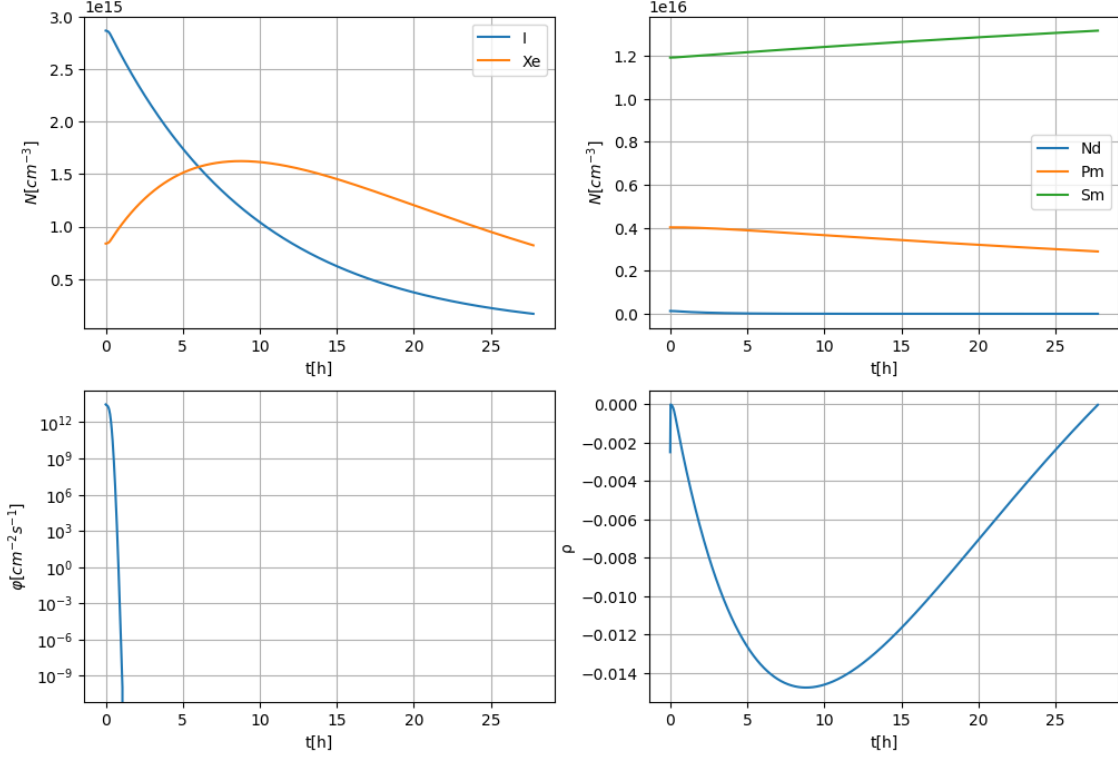


图 10: 引入负反应性后各物理量的变化

可以看到，在正反馈下，中子通量迅速减小，在 1h 内完全停堆。反应性最开始因为于 Xe-135 和 Sm-149 的核密度的升高而减小，后续由于 Xe-135 衰变，反应性回升。

4.4 通过控制棒调节吸收截面使得反应堆稳定

在上一部分的条件下，如果 5s 之后，正/负反应性消失，此时通过调节控制棒改变 Σ_a^M 的取值，而不是保持 $\Sigma_a^M = 0.1003 \text{ cm}^{-1}$ 的定值，则可以使得反应堆恢复稳定。

在这里为了简单起见，我们假设恢复稳定的条件是 $\rho = 0$ ，于是可以推导得到：

$$\Sigma_a^M = \frac{\Sigma_a^{Xe} + \Sigma_a^{Sm}}{\rho_0} - \Sigma_a^F$$

通过模拟，得到如下结果：

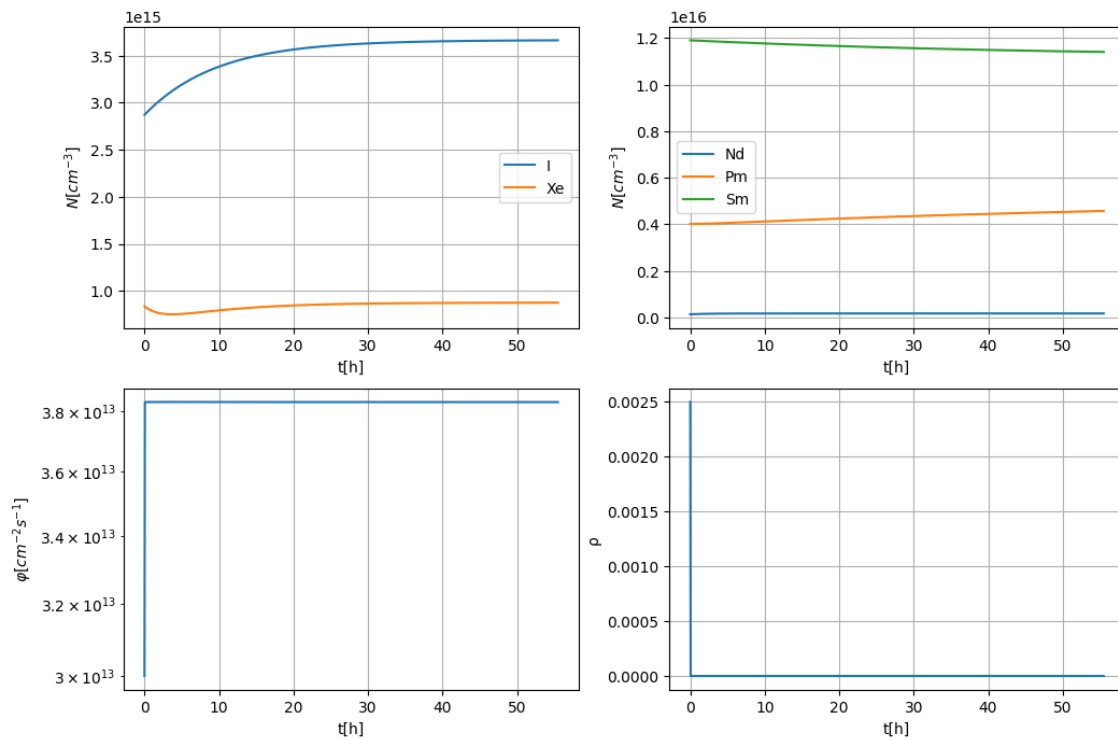
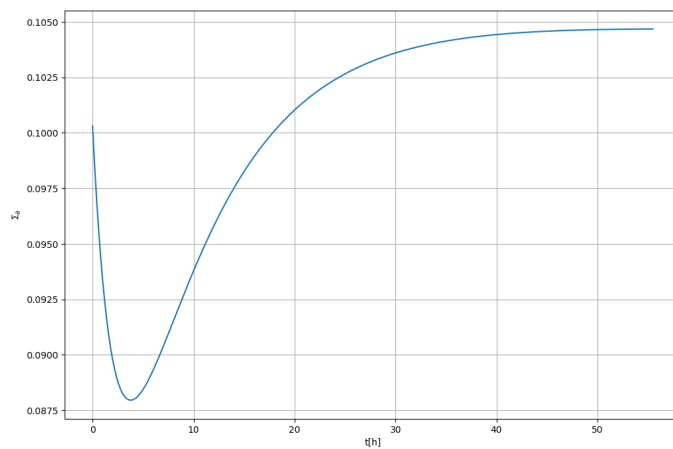


图 11: 引入正反应性后各物理量的变化

图 12: 引入正反应性后 Σ_a 的变化

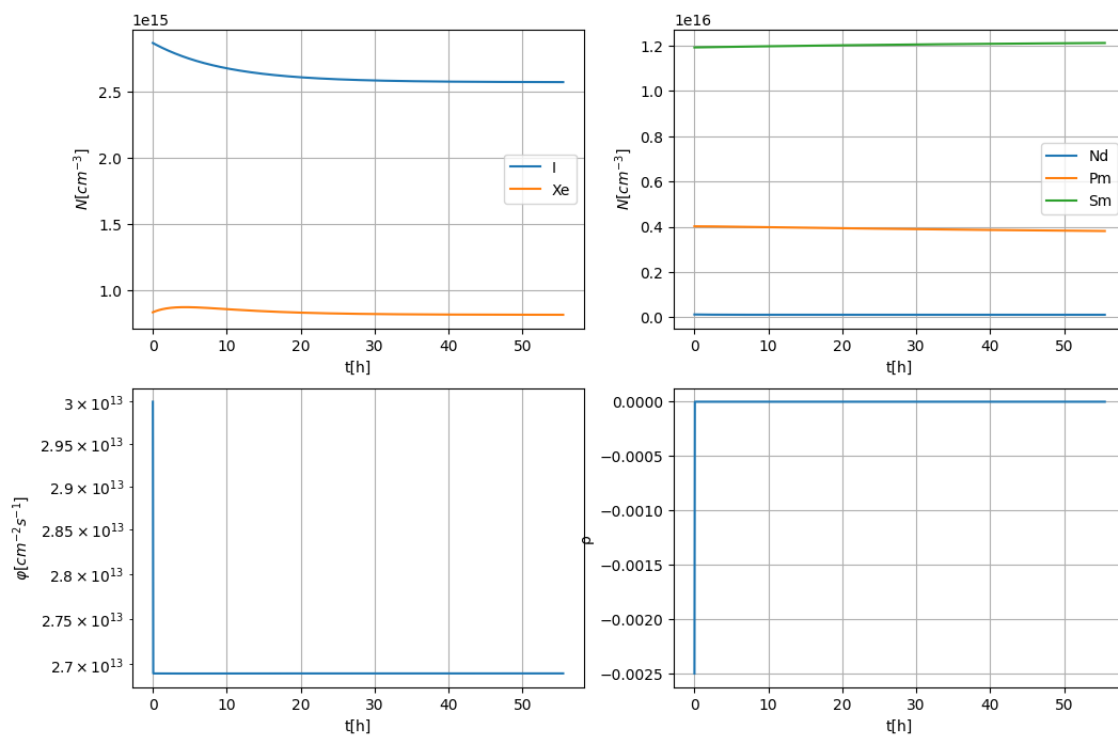
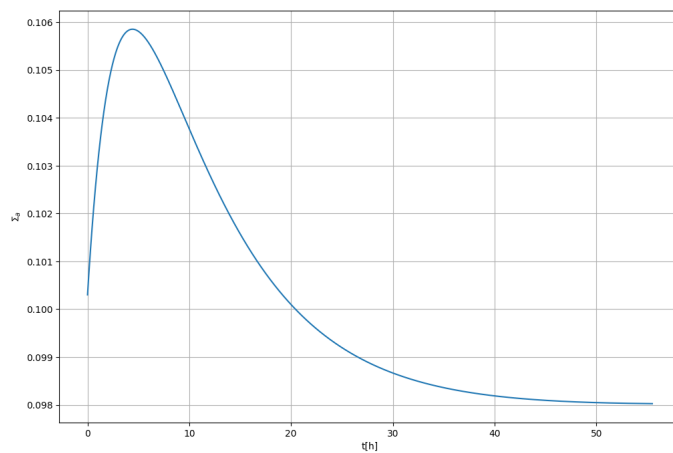


图 13: 引入负反应性后各物理量的变化

图 14: 引入负反应性后 Σ_a 的变化

可以看到，通过调节控制棒， Σ_a 与反应性产生反方向的变化，从而快速稳定住了反应性和中子通量。而毒物会持续产生变化，此时仍需要我们不断调节控制棒，最终在 50h 左右达到稳定。

5 裂变产物中毒与非稳态双群中子扩散方程的耦合

为了进一步的分析，可以用非稳态双群中子扩散方程代替上一部分的点堆中子动力学方程，进行耦合计算：

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{v_1 \partial t} \phi_1 &= \nabla \cdot D_1 \nabla \phi_1 - \Sigma_{R,1} \phi_1 + \chi_1 ((\nu \Sigma_f)_1 \phi_1 + (\nu \Sigma_f)_2 \phi_2) \\ \frac{\partial}{v_2 \partial t} \phi_2 &= \nabla \cdot D_2 \nabla \phi_2 - \Sigma_{R,2} \phi_2 + \Sigma_{1 \rightarrow 2} \phi_1\end{aligned}$$

(暂不考虑缓发中子)

使用有限体积法可以得到差分格式：

$$\begin{aligned}\frac{\phi_{1,i,j} - \phi_{1,i,j}^{n-1}}{v_1 \Delta t} &= \frac{D_{i+1/2,j}}{(\Delta x)^2} \phi_{1,i+1,j} + \frac{D_{i-1/2,j}}{(\Delta x)^2} \phi_{1,i-1,j} + \frac{D_{i,j+1/2}}{(\Delta y)^2} \phi_{1,i,j+1} + \frac{D_{i,j-1/2}}{(\Delta y)^2} \phi_{1,i,j-1} \\ &+ \left(-\frac{D_{i+1/2,j} + D_{i-1/2,j}}{(\Delta x)^2} - \frac{D_{i,j+1/2} + D_{i,j-1/2}}{(\Delta y)^2} - \Sigma_{R,1} + \chi_1 (\nu \Sigma_f)_1 \right) \phi_{1,i,j} + \chi_1 (\nu \Sigma_f)_2 \phi_{2,i,j} \\ \frac{\phi_{2,i,j} - \phi_{2,i,j}^{n-1}}{v_2 \Delta t} &= \frac{D_{i+1/2,j}}{(\Delta x)^2} \phi_{2,i+1,j} + \frac{D_{i-1/2,j}}{(\Delta x)^2} \phi_{2,i-1,j} + \frac{D_{i,j+1/2}}{(\Delta y)^2} \phi_{2,i,j+1} + \frac{D_{i,j-1/2}}{(\Delta y)^2} \phi_{2,i,j-1} \\ &+ \left(-\frac{D_{i+1/2,j} + D_{i-1/2,j}}{(\Delta x)^2} - \frac{D_{i,j+1/2} + D_{i,j-1/2}}{(\Delta y)^2} - \Sigma_{R,2} \right) \phi_{2,i,j} + \Sigma_{1 \rightarrow 2} \phi_{1,i,j}\end{aligned}$$

(为了方便，D 的能群标记被忽略。D 的计算为周围两个区域 D 的调和平均。)

笔者花了很多功夫在这一部分，但还未能完成。目前笔者遇到的问题是，在进行非稳态临界计算时，每一步的收敛准则为：

$$\left| \frac{k_{eff}^n - k_{eff}^{n-1}}{k_{eff}^{n-1}} \right| < \varepsilon_k$$

这要求足够小的时间步，但是每一个时间步的计算代价较大（对大型稀疏矩阵进行迭代求解），毒物的变化周期非常长，导致无法进行足够高效的计算。

目前已经学习并且使用了基于 GPU 的 cuSOLVER 库进行加速，但仍然不够快。笔者将在之后的一段时间里对此进行进一步探索。

这是笔者目前能够求解的 BWR 基准问题的中子通量分布：

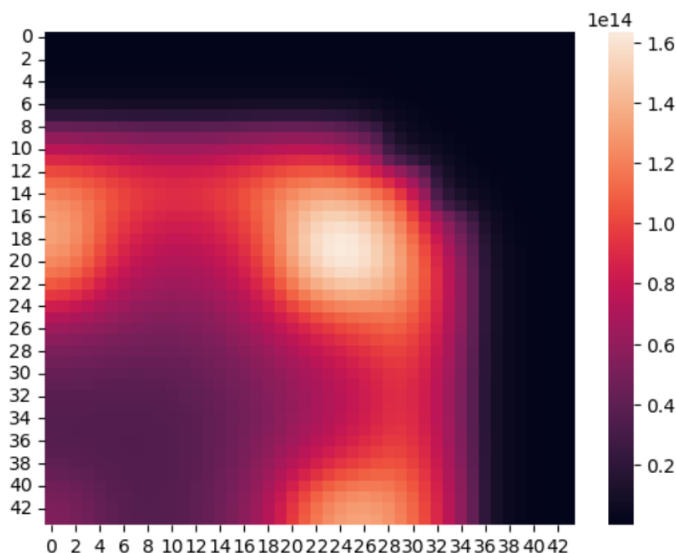


图 15: 引入负反应性后 Σ_a 的变化

6 参考文献

- [1] SONG Q F. Verification of neutron-induced fission product yields evaluated by a tensor decomposition model in transport-burnup simulations[J].
- [2] YASINSKY J, NATELSON M, HAGEMAN L. TWIGL: A PROGRAM TO SOLVE THE TWO-DIMENSIONAL, TWO-GROUP, SPACE-TIME NEUTRON DIFFUSION EQUATIONS WITH TEMPERATURE FEEDBACK.: WAPD-TM-743, 4530879[R/OL]. 1968: WAPD-TM-743, 4530879[2024-06-05]. <https://www.osti.gov/servlets/purl/4530879/>. DOI:10.2172/4530879.
- [3] SHEN Q, WANG Y, JABAAY D, 等. Transient analysis of C5G7-TD benchmark with MPACT[J/OL]. Annals of Nuclear Energy, 2019, 125: 107-120. DOI:10.1016/j.anucene.2018.10.049.
- [4] ZHANG H, GUO J, LU J, 等. The comparison between nonlinear and linear preconditioning JFNK method for transient neutronics/thermal-hydraulics coupling problem[J/OL]. Annals of Nuclear Energy, 2019, 132: 357-368. DOI:10.1016/j.anucene.2019.04.053.
- [5] GE J, ZHANG D, TIAN W, 等. Steady and transient solutions of neutronics problems based on finite volume method (FVM) with a CFD code[J/OL]. Progress in Nuclear Energy, 2015, 85: 366-374. DOI:10.1016/j.pnucene.2015.07.012.
- [6] ALESSO H P, PEARSON J S, NGUYEN D H, 等. Status of Benchmarks for Criticality Calculations Involving Fission Product Poisons and Special Actinides in Spent Fuel[J/OL]. International Journal of Radioactive Materials Transport, 1990, 1(1): 25-32. DOI:10.1179/rmt.1990.1.1.25.
- [7] ANSARIFAR G R, RAFIEI M. Second-order sliding-mode control for a pressurized water nuclear reactor considering the xenon concentration feedback[J/OL]. Nuclear Engineering and Technology, 2015, 47(1): 94-101. DOI:10.1016/j.net.2014.11.003.
- [8] KOTCHOUBEY J. POLCA-T Neutron Kinetics Model Benchmarking[J].

- [9] BAUDRON A M, LAUTARD J J, MADAY Y, 等. Parareal in time 3D numerical solver for the LWR Benchmark neutron diffusion transient model[J/OL]. Journal of Computational Physics, 2014, 279: 67-79. DOI:10.1016/j.jcp.2014.08.037.
- [10] SCHEICHL R. Parallel solvers for the transient multigroup neutron diffusion equations[J/OL]. International Journal for Numerical Methods in Engineering, 2000, 47(10): 1751-1771. DOI:10.1002/(SICI)1097-0207(20000410)47:10<1751::AID-NME855>3.0.CO;2-4.
- [11] (JIA) HOU J, IVANOV K N, BOYARINOV V F, 等. OECD/NEA benchmark for time-dependent neutron transport calculations without spatial homogenization[J/OL]. Nuclear Engineering and Design, 2017, 317: 177-189. DOI:10.1016/j.nucengdes.2017.02.008.
- [12] TAO S, XU Y. Neutron transport analysis of C5G7-TD benchmark with PANDAS-MOC[J/OL]. Annals of Nuclear Energy, 2022, 169: 108966. DOI:10.1016/j.anucene.2022.108966.
- [13] DJAROUM B, MOHAMMEDI B, KHELIL A, 等. Modeling of nuclear reactor core for power control simulation with temperature feedback and xenon concentration effect[J].
- [14] RADY K, ABOUELSOUD A A, KOTB S A, 等. Modeling and Estimation of Nuclear Reactor Performance Using Fractional Neutron Point Kinetics with Temperature Effect and Xenon Poisoning[J/OL]. Nuclear Science and Engineering, 2020, 194(7): 572-582. DOI:10.1080/00295639.2020.1755808.
- [15] ABDELOUAHED C, ABDELHAMID J, OUADIE K, 等. Evaluation of The IAEA 2D PWR Benchmark Problem Using TRIVAC and OpenMOC Codes[J].
- [16] KREHER M A, SMITH K, FORGET B. Direct Comparison of High-Order/Low-Order Transient Methods on the 2D-LRA Benchmark Problem[J/OL]. Nuclear Science and Engineering, 2022, 196(4): 409-432. DOI:10.1080/00295639.2021.1980363.
- [17] FIORINA C, KERKAR N, MIKITYUK K, 等. Development and verification of the neutron diffusion solver for the GeN-Foam multi-physics platform[J/OL]. Annals of Nuclear Energy, 2016, 96: 212-222. DOI:10.1016/j.anucene.2016.05.023.
- [18] BAHADIR T. Development and Benchmarking of Transient Nodal Code SIMULATE5-K Neutron Kinetics Solver[C/OL]//International Conference on Physics of Reactors 2022 (PHYSOR 2022). Pittsburgh, PA: American Nuclear Society, 2022: 400-409[2024-06-04]. DOI:10.13182/PHYSOR22-37639.
- [19] LLOYD R C, CLAYTON E D. Criticality Safety Data Applicable to Processing Liquid-Metal Fast Breeder Reactor Fuel[J].
- [20] HAGEMAN L A, YASINSKY J B. Comparison of Alternating-Direction Time-Differencing Methods with Other Implicit Methods for the Solution of the Neutron Group-Diffusion Equations[J/OL]. Nuclear Science and Engineering, 1969, 38(1): 8-32. DOI:10.13182/NSE38-8.
- [21] WERNER W. BENCHMARK SOURCE SITUATION[J].
- [22] PALMTAG S P. Advanced Nodal Methods for MOX Fuel Analysis[J].
- [23] 张亦宁, 求解中子输运方程的区块无网格方法, 哈尔滨工业大学博士论文