

基于切比雪夫有理逼近和矩阵 自适应降阶的活化计算方法

张彬航^{1,2}, 郝丽娟¹, 葛 鹏¹, 宋 婧¹, 何 鹏¹

(1. 中国科学院核能安全技术研究所, 中国科学院中子输运理论与辐射安全重点实验室, 安徽 合肥 230031;

2. 中国科学技术大学, 安徽 合肥 230027)

摘要:在核反应堆运行过程中,产生的大量中子对结构材料、回路中的腐蚀产物有很强的活化作用,从而对工作人员在运行、检修、退役等多个环节造成辐射危害。因此高精度、高效率的活化计算在反应堆设计和安全分析研究中有着重要的作用。切比雪夫有理逼近方法(Chebyshev rational approximation method, CRAM)相比于传统的活化计算方法,不需要单独处理短寿命核素,具有计算速度快、精度高、步长包容性好的优点。本文基于超级蒙卡核模拟软件系统 SuperMC,采用切比雪夫有理逼近方法,并发展了基于深度优先搜索的活化链动态构建方法和大规模矩阵自适应降阶方法,进行了活化计算的初步研究。通过选用 IAEA-ACB(International Atomic Energy Agency-Activation Calculation Benchmark)国际基准例题及压水堆燃料包壳材料例题,初步验证了该活化计算方法的正确性,且测试结果表明,本文发展的大规模矩阵自适应降阶方法能够有效的提高活化系数矩阵的求解效率。

关键词:活化计算;切比雪夫有理逼近方法;SuperMC;活化链

中图分类号:TL329.2

文章标志码:A

文章编号:0258-0918(2017)01-0065-08

Research and Verification of Activation Calculations Based on Chebyshev Rational Approximation Method

ZHANG Bin-hang^{1,2}, HAO Li-juan¹, GE Peng¹, SONG Jing¹, PENG He¹

(1. Institute of Nuclear Energy Safety Technology, Key Laboratory of Neutronics and Radiation Safety,

Chinese Academy of Sciences, Hefei of Anhui Prov. 230031, China,

2. University of Science & Technology of China, Hefei of Anhui Prov. 230027, China)

Abstract: A large number of neutrons are produced in nuclear reactor operation. These neutrons cause strong activation on structural materials and corrosion products, which is main radiation source on persons working on operation, maintenance and decommission. It is essential to develop activation calculation with high precision and

修回日期:2016-12-06

基金项目:国家自然科学基金(11305203)、国家磁约束核聚变能发展研究专项(2014GB1120001)、中国科学院国防科技创新基金项目(CXJJ-16Q 231、CXJJ-15M037)、产业化基金

作者简介:张彬航(1989—),男,湖北荆州人,博士研究生,主要从事活化计算方法及程序研发工作

通讯作者:何 鹏: peng. he@fds. org. cn

high efficiency for the reactor design and safety analysis. Compared with the traditional activation calculation algorithm, Chebyshev rational approximation method has the advantages of computing efficiency, high precision, longtime step calculation and no need to deal with short-lived nuclides separately. In this paper, based on SuperMC, Cheyshev rational approximation method was adopted to study activation calculation, and dynamic construction method of activation chain and adaptive order reduction on massive matrix method were developed. Benchmark cases of IAEA-Activation Calculation Benchmark and PWR-Cladding Materials Case were used to validate the method. The calculation results have good agreements with reference values, which demonstrated the correctness of the activation calculation method of this work. In addition, the reduction on massive matrix method can effectively improve the efficiency of the matrix calculation.

Key words: Activation; Chebyshev rational approximation method; SuperMC; Activation chain;

反应堆在运行过程中,堆芯内部产生的大量中子会对结构部件、回路中的腐蚀产物有很强的活化作用,所形成的放射性活化产物是反应堆运行及检修人员职业照射的主要来源。因此,精确计算活化问题对于反应堆的安全分析、辐射防护和退役方案的制订具有重要意义。

活化计算主要关心的是材料内的轻核素和中等质量核素受中子辐照后引起的放射性情况。在实际活化计算中,通常涉及的核素种类及反应类型繁多,核素间的转换关系复杂,同时会产生大量的短寿命核素,给活化计算带来困难。目前活化计算方法大致分为解析方法和数值计算方法两类^[1,2]。解析方法是将复杂的核素系统转换为一系列的线性子链进行求解,计算速度慢,同时需要引入截断误差。数值计算方法主要包含常微分方程差分解法和矩阵指数法。常微分方程组差分解法对时间步长包容性差,矩阵指数法需要对短寿命核素进行特殊处理,影响计算精度。近年来发展的切比雪夫有理逼近方法(Chebyshev rational approximation method, CRAM)^[3],作为一种新的矩阵指数法,具有计算速度快、精度高、步长包容性好等特点,且不需要单独处理短寿命核素。

本文基于超级蒙卡核模拟软件系统 SuperMC(Super Monte Carlo Simulation Program for Nuclear and Radiation Process)^[4-6],采用切比雪夫有理逼近方法,进行了活化计算的研究。SuperMC 是 FDS 团队自主研发的通用、智能、精

准的核系统设计与安全评价软件,可用于反应堆的设计与分析^[7-11],辐照屏蔽分析^[12-16]等领域。SuperMC 目前已通过 2 000 多个国际基准模型与实验的校验^[17-20]。

1 活化方程与 CRAM 方法

材料在被中子辐照的过程中,中子与材料内的原子核发生核反应,其核素种类和密度随着时间 t 和空间 \vec{r} 发生复杂变化,难以计算得到精确解。在实际计算中,通常认为某一区域内核素密度是均匀分布的,并且随时间均匀变化,同时假设区域内中子通量密度为常数,因此活化计算问题转换为点模型。根据点活化模型,系统内核素 i 的核子密度 n_i 随时间的变化率为:

$$\frac{dn_i}{dt} = -\lambda_i n_i - \phi(t) n_i \sum_{j \neq i}^N \sigma_{i,k} + \sum_{j \neq i}^N n_j (b_{j,i} \lambda_j + \sum_k \phi(t) \sigma_{j,k} y_{i,j,k}) \quad i=1, \dots, n \quad (1)$$

式中, $\phi(t)$ 表示 t 时刻的中子通量密度, λ_i 表示核素 i 的衰变常数, $\sigma_{i,k}$ 表示核素 i 生成核素 k 单群截面, $b_{j,i}$ 表示核素 j 生成核素 i 的分支比, $y_{i,j,k}$ 表示核素 j 发生 k 反应生成核素 i 的产额。从而问题简化为关于单一变量 t 的一阶线性微分方程,描述了核反应系统中核素随时间的变化规律。

若定义矩阵元:

$$A_{i,j} = \begin{cases} -\lambda_i + \phi \sum_k \sigma_{i,k}, & i=j \\ b_{i,j} \lambda_j + \sum_k y_{i,j,k} \sigma_{i,k} \phi, & i \neq j \end{cases} \quad (2)$$

则可将一阶线性微分方程组转换为矩阵形式并得到其指数解的形式如下：

$$\frac{dn(t)}{dt} = \mathbf{A}n(t) \quad (3)$$

$$n(t) = e^{\mathbf{A}t} n(0) \quad (4)$$

式中, $n(t)$ 表示 t 时刻所有核素密度组成的向量, $n(0)$ 表示 $t=0$ 时刻的初始值, \mathbf{A} 为系数矩阵。

由于系数矩阵 \mathbf{A} 的特征值落在复平面的负实轴附近, 在 CRAM 方法中, 采用切比雪夫有理函数对矩阵指数 $e^{\mathbf{A}t}$ 进行最佳有理近似。切比雪夫有理函数 $\hat{r}_{k,k}$ 的形式如下：

$$\hat{r}_{k,k}(z) = \alpha_0 + \sum_{i=1}^k \frac{\alpha_i}{z - \theta_i} \quad (5)$$

其中, α_0 是 z 趋于无穷时的函数值。标量 α_i 是极点 θ_i 的留数, 极点 $\{\theta_1, \dots, \theta_k\}$ 为离散值。利用 $\hat{r}_{k,k}$ 对矩阵指数 $e^{\mathbf{A}t}$ 展开后, 得到 t 时刻核素密度的解为：

$$n(t) = e^{\mathbf{A}t} n_0 \approx \alpha_0 n_0 - 2 \operatorname{Re} \left(\sum_{i=1}^{\frac{k}{2}} \alpha_i (At + \theta_i I)^{-1} n_0 \right) \quad (6)$$

式中, I 为单位矩阵, k 为展开阶数, 通过求解线性方程组(6)得到 t 时刻核核子密度。

2 活化计算中的关键问题研究

在活化计算中, 首先建立活化计算的物理模型, 包括活化计算涉及的核素、活化反应链及反应率等; 其次, 采用切比雪夫有理逼近方法对物理模型进行数值求解; 最后, 根据数值求解得到的核子密度进行活化物理量的计算, 包括: 活度、余热、接触剂量、衰变光子谱等。本文针对活化计算中活化链构建方式、求解效率等关键问题开展了研究。

2.1 基于深度优先搜索的活化链动态构建方法

在建立活化计算的物理模型时, 由于初始材料核素信息通常不包括活化产物的核素信息, 因此需要充分考虑材料中核素在中子辐照过程中产生的新核素。FISPACT^[21]、ORIGEN 等计算程序中采取预先定义的中子活化链进行活化产物添加, 但往往覆盖的核素不够全面, 扩展性较差。

由于活化涉及的核素种类繁多且变化复杂, 需要寻求一种既能覆盖所有核素反应路径

又能根据实际问题自动搜索活化产物的算法。本文基于深度优先搜索算法, 发展了活化链动态构建方法。从核素的中子反应信息和衰变信息出发, 基于深度优先搜索算法跟踪初始核素及其子核的所有反应路径, 获得当前问题的解空间, 同时在搜索过程中引入截断条件(反应截面、重复核素等)来避免无效搜索, 提高搜索效率。当约束条件判断当前反应链终止时, 则搜索返回上级子核素开始下一条反应链的搜索, 因此在搜索过程就形成了树状结构, 如图 1 所示, 从而完成系统内所有核素的添加和活化反应链的动态构建。该方法能够根据初始计算条件自动搜索活化产物并构建活化链, 具有扩展性强、精度高的特点。

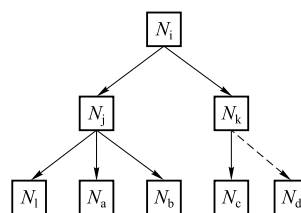


图 1 活化链动态构建示意图

Fig. 1 Schematic diagram of dynamic construction of activation chain

2.2 大规模矩阵自适应降阶方法

在利用切比雪夫有理逼近方法对活化方程进行数值求解时, 大量的短寿命核素会导致系数矩阵规模大, 刚性强, 直接影响数值求解的效率和精度。考虑到实际的辐照中子能谱, 活化链中的部分活化反应可能不会发生, 从而对应的活化产物产额为零。这些产额为零的核素会增加系数矩阵的规模, 使得求解效率和精度降低。本文发展了大规模矩阵自适应降阶方法, 有效降低了系数矩阵的规模和刚性, 提高活化计算的求解效率。

在活化计算中, 系数矩阵 \mathbf{A} 如图 2 所示, 对角线矩阵元代表核素的总反应消失率, 同时对于 \mathbf{A} 中的任意一行, 除去对角线矩阵元以外, 其余矩阵元分别代表其他行核素生成该核素的反应率。在确定系统内核素与各矩阵元对应关系的条件下, 本方法依次对 \mathbf{A} 中的每一个核素的总反应产生率进行判断, 若该核素的总产生率为零, 则认为该核素对于系统中其他核

素的生成没有贡献。同时对该核素进行标记,并将该核素对其他核素的产生反应率置为零。若标记核素的总个数为 n ,则由该方法处理后得到的系数矩阵规模由原先的 m 阶降低为 $(m-n)$ 阶,从而降低了矩阵规模,提高了活化计算的求解效率。

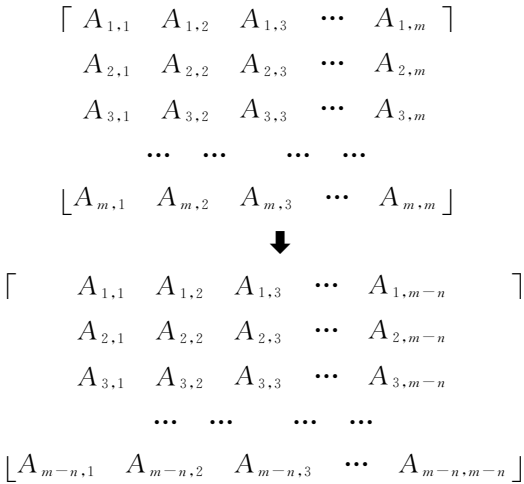


图 2 大规模矩阵自适应降阶方法示意图

Fig. 2 Schematic diagram of the mass matrix adaptive order reduction method

3 测试与验证

为了验证所发展的活化计算方法的正确性,本文选用 IAEA-ACB 国际基准例题^[22]以及压水堆包壳材料例题^[23]进行了测试,选取 FISPACT-II 作为参考程序。

3.1 IAEA-ACB 国际基准例题

IAEA-ACB 国际基准例题旨在验证活化计算程序的四个方面:(1)正确读取活化数据库的能力;(2)在多步长的计算中,活化程序的计算结果与基准值偏差不超过 5%;(3)正确处理轻质量核素(H、He 等);(4)正确处理数据库中的同质异能核素。该国际基准例题包括 Fe 和 Cr 两个子例题,覆盖了常见的中子活化反应和衰变反应类型。根据初始条件,Fe 的质量为 1 kg,Cr 的核子密度为 $1.0\text{E}+20\text{ cm}^{-3}$,辐照时间均为一年,中子通量谱参见文献[22]。本文的活化计算结果与基准值的相对误差参见图 3 和图 4。

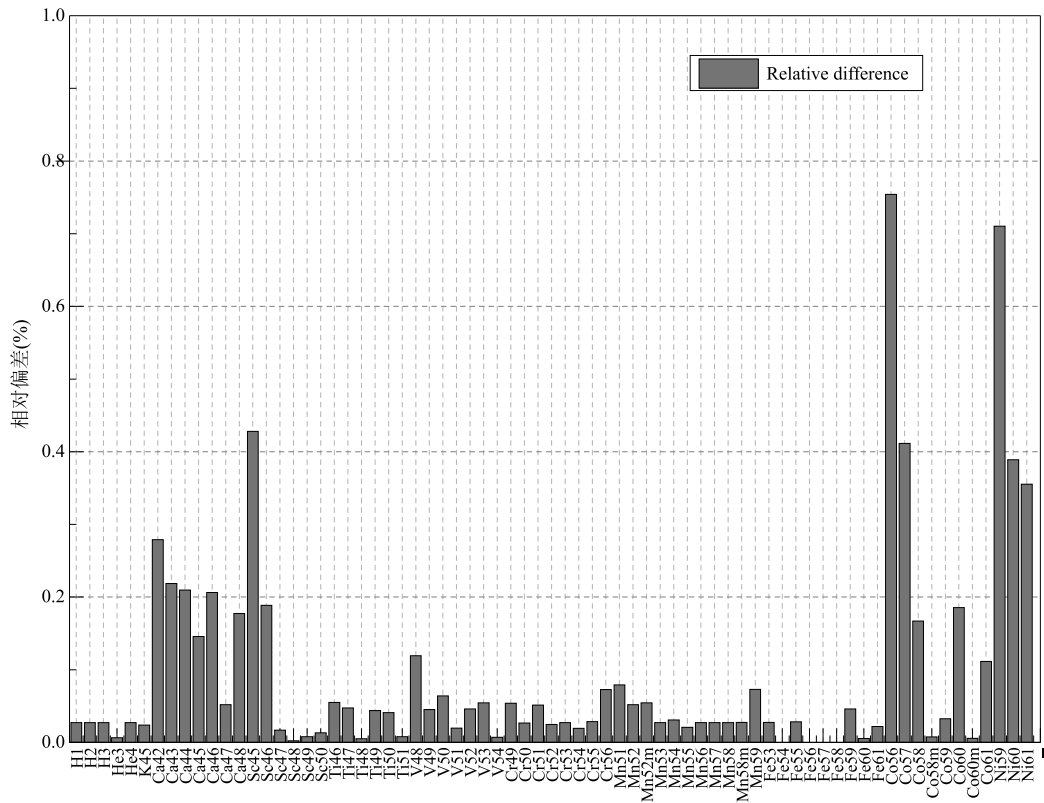
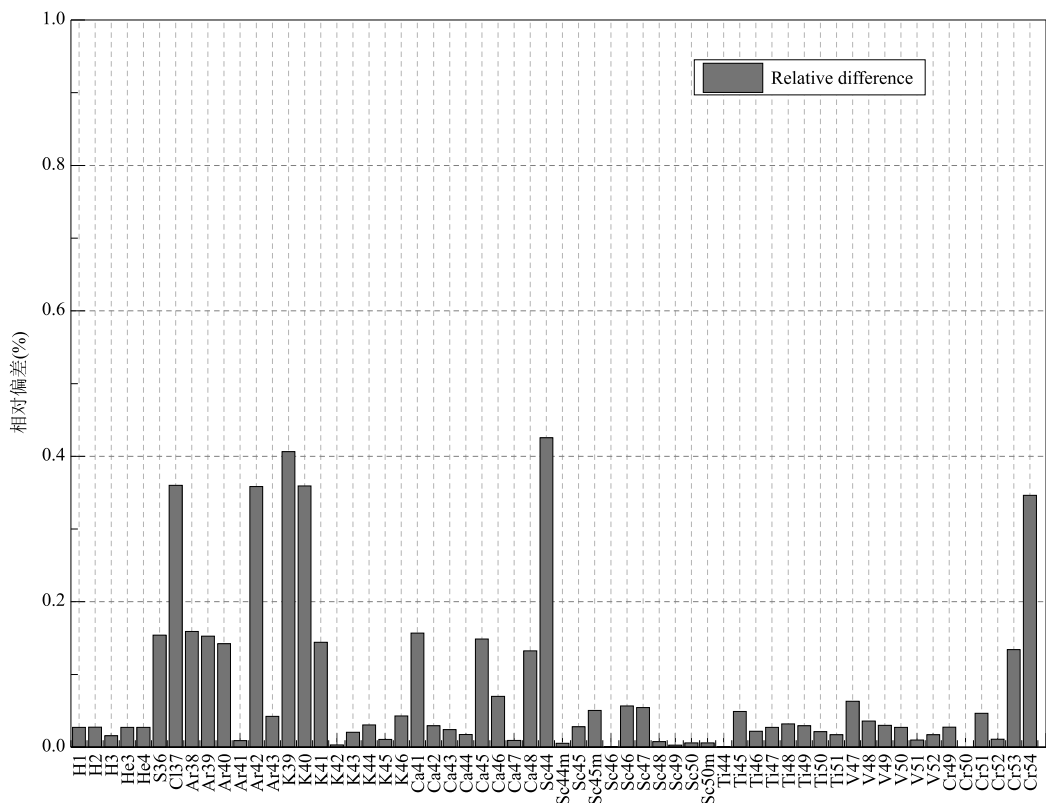


图 3 Fe 的活化产物核子密度相对误差

Fig. 3 The relative difference of activation of Fe calculation results



其计算结果随时间的衰减趋势完全一致。同时经大规模矩阵自适应降阶方法处理后的矩阵求解效率相对于处理前的矩阵求解效率提高了1.56倍。在停堆初期,包壳材料的活度约为 10^{15} Bq。在停堆后的一个月,包壳材料的活度衰减缓慢,未出现量级变化,在此期间,包壳材料的活度主要受到核素 ^{89m}Y ($T_{1/2}=1.56\text{e}\times 10^{-1}\text{ s}$)和 ^{89}Zr ($T_{1/2}=2.82\times 10^5\text{ s}$)的影响。在

停堆一个月至 10^4 年内,包壳材料的活度依次受到核素 ^{117m}Sn ($T_{1/2}=1.17\times 10^6\text{ s}$)、 ^{119m}Sn ($T_{1/2}=2.53\times 10^7\text{ s}$)和 ^{117m}Sn ($T_{1/2}=1.17\times 10^9\text{ s}$)的影响而出现量级衰减。停堆 10^4 年后,包壳材料的活度衰减程度趋于平缓。由图6可知,本文的计算结果在12个冷却时段与FISPACT-II的相对偏差均低于0.04%,验证了本文发展的活化计算方法的正确性。

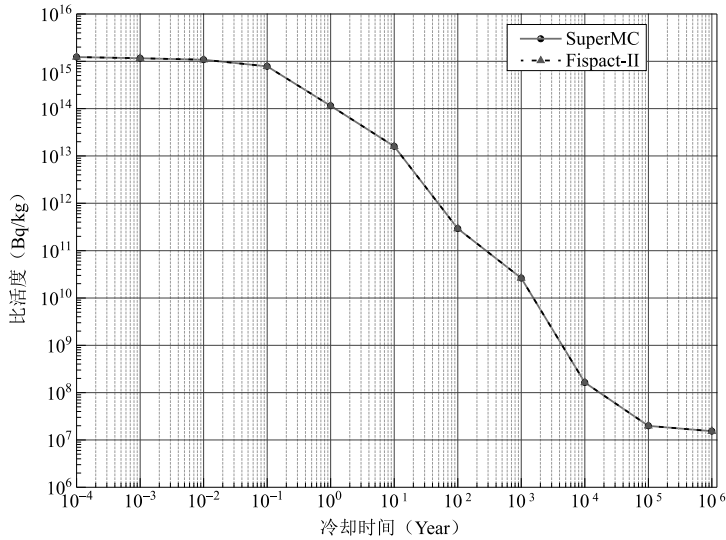


图5 新型锆合金 N18 活度计算结果

Fig. 5 The activity results of new zirconium alloy N18

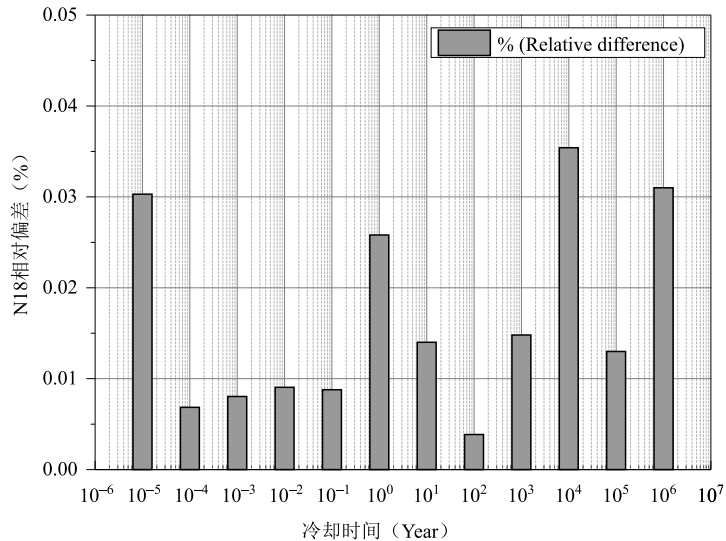


图6 新型锆合金 N18 活度计算结果相对误差

Fig. 6 The relative difference of new zirconium alloy N18 calculation results

注:偏差公式为 $(A_{\text{SuperMC}} - A_{\text{Fispact-II}}) \times 100 / A_{\text{Fispact-II}}$,其中: $A_{\text{Fispact-II}}$ 为Fispact-II计算结果; A_{SuperMC} 为本文计算结果。

Note: Deviation formula is $(A_{\text{SuperMC}} - A_{\text{Fispact-II}}) / A_{\text{Fispact-II}}$, $A_{\text{Fispact-II}}$ and A_{SuperMC} are presented by the results of Fispact-II and SuperMC.

4 结语

本文基于超级蒙卡核模拟软件系统 SuperMC,采用切比雪夫有理逼近方法,进行了活化计算的研究,并对活化链构建等关键问题的处理方法进行了优化,发展了基于深度优先搜索的活化链动态构建方法和大规模矩阵自适应降阶方法。通过对 IAEA-ACB 国际基准例题及压水堆燃料包壳材料例题验证,初步证明了本文所实现活化计算方法的有效性与正确性,并且测试结果表明,本文发展的大规模矩阵自适应降阶方法能够有效提高矩阵的求解效率。本文活化计算方法的更多验证与应用研究将在后续工作中开展。

致谢

本文开展研究工作中,得到了 FDS 团队其他成员的大力帮助和支持,在此深表感谢!

参考文献:

- [1] Cetnar J. General solution of Bateman equations for nuclear transmutations[J]. Annals of nuclear Energy, 2006, 33: 640-645. DOI: 10. 1016/j. anucene. 2006. 02. 004.
- [2] Croff A G. A user's manual for ORIGEN2 computer code[R]. Oak Ridge National Laboratory, 1980. DOI: 10. 2172/5285077.
- [3] Pusa M, Leppanen J. Computing the matrix exponential in burnup calculations [J]. Nuclear science and engineering, 2010, 164(2): 140-150.
- [4] Wu Y, Song J, Zheng H, et al. CAD-based Monte Carlo program for integrated simulation of nuclear system SuperMC[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, 82(1): 161-168. DOI: 10. 1016/j. anucene. 2014. 08. 058.
- [5] Wu Y, FDS Team. CAD-Based Interface Programs for Fusion Neutron Transport Simulation. Fusion Engineering and Design, 2009, 84 (7-11): 1987-1992. DOI: 10. 1016/j. fusengdes. 2008. 12. 041.
- [6] Y. Li, L. Lu, A. Ding, H. Hu, Q. Zeng, S. Zheng, Wu Y. Benchmarking of MCAM4.0 with the ITER 3D Model. Fusion Engineering and Design, 2007, 82: 2861-2866. DOI: 10. 1016/j. fusengdes. 2007. 02. 022.
- [7] Wu Y, FDS Team. Conceptual Design Activities of FDS Series Fusion Power Plants in China. Fusion Engineering and Design, 2006, 81(23-24): 2713-2718. DOI: 10. 1016/j. fusengdes. 2006. 07. 068.
- [8] L. Qiu, Wu Y, B. Xiao, Q. Xu, Q. Huang, B. Wu, Y. Chen, W. Xu, Y. Chen, X. Liu. A Low Aspect Ratio Tokamak Transmutation System. Nuclear Fusion, 2000, 40: 629-633. DOI: 10. 1088/0029-5515/40/3Y/325.
- [9] Wu Y, J. Jiang, M. Wang, M. Jin, FDS Team. A Fusion-Driven Subcritical System Concept Based on Viable Technologies. Nuclear Fusion, 2011, 51(10): 103036. 1-7. DOI: 10. 1088/0029-5515/ 51/10/103036.
- [10] Wu Y, FDS Team. Conceptual Design and Testing Strategy of a Dual Functional Lithium-Lead Test Blanket Module in ITER and EAST. Nuclear Fusion, 2007, 47 (11): 1533-1539. DOI: 10. 7538/yzk. 2015. 49. S0. 0007.
- [11] Wu Y, FDS Team. Fusion-Based Hydrogen Production Reactor and Its Material Selection. Journal of Nuclear Materials, 2009, 386-388: 122-126. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2008. 12. 075.
- [12] Wu Y, FDS Team. Design Status and Development Strategy of China Liquid Lithium-Lead Blankets and Related Material Technology, 2007, 367-370: 1410-1415. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2007. 04-031.
- [13] Wu Y, J. Qian, J. Yu. The Fusion-Driven Hybrid System and Its Material Selection. Journal of Nuclear Materials, 2002, 307-311: 1629-1636. DOI: 10. 1016/S0022-3115(02)01272-2.
- [14] Q. Huang, Wu Y, J. Li, et al. Status and Strategy of Fusion Materials Development in China. Journal of Nuclear Materials, 2009, 386-388: 400-404. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2008. 12. 158.
- [15] Q. Huang, J. Li, Y. Chen. Study of Irradiation Effects in China Low Activation Martensitic Steel CLAM. Journal of Nuclear Materials, 2004, 329: 268-272. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2001. 04. 056.
- [16] Y. Li, Q. Huang, Wu Y, T. Nagasaka, T. Muroga. Mechanical Properties and Microstructures of China Low Activation Martensitic Steel Compared with JLF-1. Journal of Nuclear Materials, 2007, 367-370: 117-121. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2007. 03. 012.
- [17] Wu Y, FDS Team. Design Analysis of the China Dual-Functional Lithium Lead (DFLL) Test Blanket Module in ITER. Fusion Engineering and Design, 2007, 82: 1893-1903. DOI: 10. 1016/j. fusengdes. 2007. 08. 012.
- [18] Wu Y, Xie Z, Fischer U. A discrete ordinates nodal method for one-dimensional neutron transport calculation in curvilinear geometries[J]. Nuclear Science and Engineering, 1999, 133 (3): 350-357. DOI: 10. 1016/j. anucene. 2013. 10. 018.
- [19] Wu Y, Zheng S, Zhu X, Wang W, et al. Conceptual Design of the Fusion-Driven Subcritical System FDS-I [J]. Fusion Engineering and Design, 2006, 81 (Part B): 1305-1311. DOI: 10. 1016/j. fusengdes. 2005. 10. 015.
- [20] Wu Y, FDS Team. Conceptual design of the china

- fusion power plant FDS-II[J].Fusion Engineering and Design, 2008, 83 (1): 1683-1689. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2008.06.048.
- [21] Jean-Christophe C. Sublet, et al. The FISPACT-II User Manual[R].Culham Centre Fusion Energy,UK,2014.
- [22] E. T. Cheng, et al. Report on the second international activation calculation benchmark comparison study[R].Austria,1994.
- [23] Han Wenjing. Numerical Study and Preliminary Application of Activation Method Based on CRAM [D].North China Electric Power University,2015.