

РАСЧЕТ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА И НАВЕДЕННОЙ АКТИВНОСТИ ОБЛУЧЕННЫХ МАТЕРИАЛОВ ИННОВАЦИОННЫХ ЭЛЕКТРОЯДЕРНЫХ УСТАНОВОК

Ю.А. Коровин, А.В. Максимушкина

Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ. 249033, г. Обнинск, Калужской обл., Студгородок, 1.



Дано описание системы SNT.1 по расчету изотопного состава и наведенной активности облученных материалов инновационных ЭЯУ. Приводятся алгоритм SNT.1; перечень и формат входных данных; список библиотек оцененных ядерных данных, которые могут быть использованы при расчетах; возможные варианты расчетов. Для проекта TRADE – расчет активности воды, охлаждающей мишень из Та, результаты расчета сравнивались с расчетами по другим программным кодам. Проведен расчет концентрации и активности нуклидов, образующихся при облучении свинцово-висмутовой мишени, с учетом изменения тока ускорительной установки во время облучения. Рассмотрена возможность использования нейронных сетей для аппроксимации и восстановления данных, таких как сечения реакций. Было выбрано две структуры нейронных сетей (RBF и GRNN), с помощью которых аппроксимировались данные по сечениям реакций $^{209}\text{Bi}(n, 3n)^{207}\text{Bi}$ и $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$. Нейронные сети использовались для восстановления данных по полному сечению реакций взаимодействия нейтронов с ядрами ^{209}Bi . Качество аппроксимации оценивалось с помощью факторов согласия.

Ключевые слова: трансмутация, расчет активности, облученные материалы, ядерно-физические данные, сечения реакций, нейронные сети.

ТРАНСМУТАЦИЯ ЯДЕРНЫХ ОТХОДОВ

Трансмутация долгоживущих ядер из отработанного реакторного топлива в стабильные или короткоживущие нуклиды рассматривается в качестве альтернативы захоронению отходов, что может позволить существенно снизить влияние, оказываемое ядерной энергетикой на окружающую среду. Благодаря трансмутации отходов можно получить более радиологически чистую ядерную энергетику. Таким образом, становится необходимым создание программных кодов для расчета изотопного состава и наведенной активности облученных материалов. Такие расчеты являются важными как для теоретических и практических работ, связанных с ядерно-энергетическими установками, так и для областей медицины и экологии.

Основную опасность представляют долгоживущие трансурановые элементы. Изменение со временем относительной радиотоксичности долгоживущих трансурановых элементов представлено в табл. 1 (радиотоксичность плутония за 10 лет принята за единицу).

Со временем активность ОЯТ снижается за счет распада короткоживущих ПД, но значительный вклад в активность на протяжении сотен тысяч лет вносят долгоживущие трансурановые элементы и продукты деления.

Таблица 1

Изменение со временем относительной радиотоксичности долгоживущих трансурановых элементов

Нуклид	$T_{1/2}$, лет	Время хранения, лет			
		10	100	1000	10000
^{238}Pu	87.7	233	110	0.3	1.5
^{239}Pu	$2.4 \cdot 10^4$	1	1	0.97	0.75
^{240}Pu	$5.56 \cdot 10^3$	3.6	3.6	3.3	1.3
^{241}Pu	14.4	45	56	13	0.02
^{242}Pu	$3.7 \cdot 10^5$	0.05	0.05	0.05	0.05
^{237}Np	$2.1 \cdot 10^6$	0.02	0.02	0.02	0.02
^{241}Am	432	63	54	13	0.02
^{243}Am	737	3.3	3.3	3.1	1.8
^{244}Cm	18.1	600	20	3.3	1.3

Основными стратегиями по решению проблемы с радиоактивными отходами являются следующие [1 – 3]:

- прямое захоронение РАО (принятая стратегия);
- частичное уменьшение Pu, MA и продуктов распада посредством трансмутации, а затем захоронение в геологические формации;
- сокращение ядерных отходов, насколько это возможно, посредством трансмутации в стабильные изотопы, например, при помощи электроядерных установок (ЭЯУ) или ADS (accelerator-drive system).

Актуальными становятся разработка и использование ядерных установок с внешним нейтронным источником, которые могут быть использованы и для наработки редких изотопов для медицинских целей.

В настоящее время различными мировыми организациями ведутся исследования в области технологий по разделению и трансмутации.

Для расчетов и исследований в области трансмутации и активации материалов, ЭЯУ, ядерной медицины используются современные программные средства и коды, позволяющие рассчитывать различные характеристики для ЭЯУ, изотопный состав, активность материалов, дозу облучения, радиационные повреждения.

ИНТЕРАКТИВНАЯ СИСТЕМА ПО РАСЧЕТУ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА И АКТИВНОСТИ ОБЛУЧЕННЫХ МАТЕРИАЛОВ

В основе расчетов изотопного состава и наведенной активности материалов лежит решение системы уравнений Бейтмана, реализуемое несколькими методами: численное решение, решение методом матричной экспоненты и аналитическое решение (формулы Бейтмана).

Уравнение для концентрации отдельного k -ого нуклида имеет вид

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sum_{k \neq i} (\lambda_{ik}^r + \lambda_{ik}^d) \cdot N_k(t) - (\lambda_i^r + \lambda_i^d) \cdot N_i(t),$$

где $N_i(t)$ – концентрация i -го нуклида в момент времени t ; λ_{ik}^r и λ_{ik}^d – скорости ядерной реакции и радиоактивного распада, в результате которого k -й нуклид превращается в i -й; λ_i^r – скорость трансмутации i -го нуклида в ядерных реакциях; λ_i^d – скорость радиоактивного распада такого нуклида.

Для решения системы уравнений Бейтмана использовался программный комплекс SNT.1 [4], в котором расчет концентрации изотопов выполняется методом матричной экспоненты. В этом случае решение ищется в виде

$$\mathbf{N}(t) = \exp(t\mathbf{C})\mathbf{N}(0).$$

Обозначив $t\mathbf{C} = \mathbf{A}$, разложим экспоненту в ряд Тейлора. Тогда решение будет иметь вид

$$\exp(\mathbf{A})\mathbf{N}(0) = (1 + \mathbf{A} + \mathbf{A}^2/2! + \mathbf{A}^3/3! + \dots)\mathbf{N}(0).$$

Комплекс SNT.1 представляет собой расчетный модуль и пользовательский графический интерфейс. Расчетный модуль – это набор программ, реализованных на Фортране. Пользовательский интерфейс ввода-вывода написан с использованием среды разработки Microsoft Visual Studio.Net 2008 на языке C#. Такая комбинация позволяет обеспечить, с одной стороны, большой объем вычислений, а с другой – простой и понятный ввод необходимых данных и вывод результатов в удобной форме в виде графиков и таблиц, которые можно сохранять, переводить в другие форматы и открывать с помощью различных приложений (Word, Excel, MathCad и др.). Схема комплекса показана на рис. 1, вид интерфейса – на рис. 2.

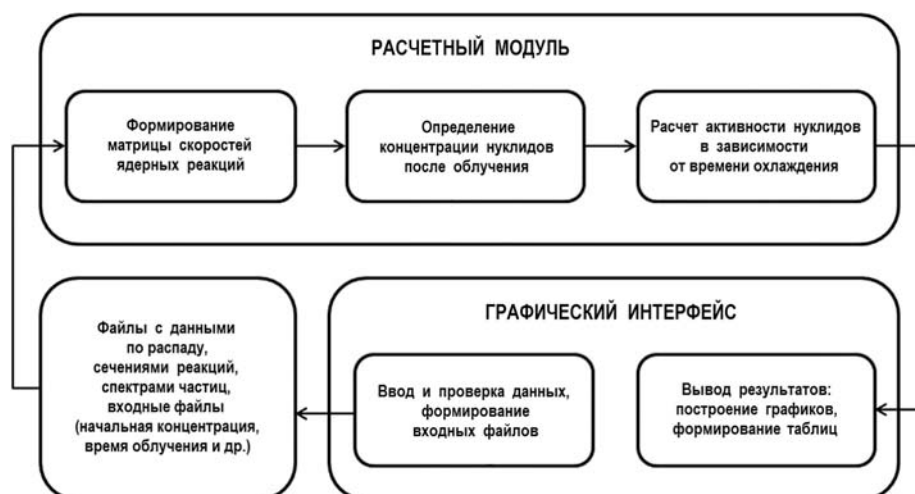


Рис.1. Схема программного комплекса SNT.1

Расчет концентрации и активности нуклидов производится в процессе облучения и при охлаждении облученного материала. Входными данными являются спектр частиц, сечения ядерных реакций, протекающих в рассматриваемом диапазоне энергий, и данные по радиоактивному распаду исследуемых ядер. Все эти расчеты делаются с учетом режима облучения (варианты с изменяющимся током ускорительной установки и с переменным спектром). Для варианта с изменяющимся со временем током установки необходимо задать значения токов и интервалы времени, в течение которых они поддерживались. Для расчета с переменным спектром частиц задаются спектры и интервалы времени.

Проведение расчетов включает в себя подготовку данных, необходимых для расчета концентраций нуклидов, вычисление изотопного состава материалов при облучении, расчет концентраций и активностей изотопов при охлаждении.

Данные по сечениям могут быть взяты из нейтронных и протонных библиотек:

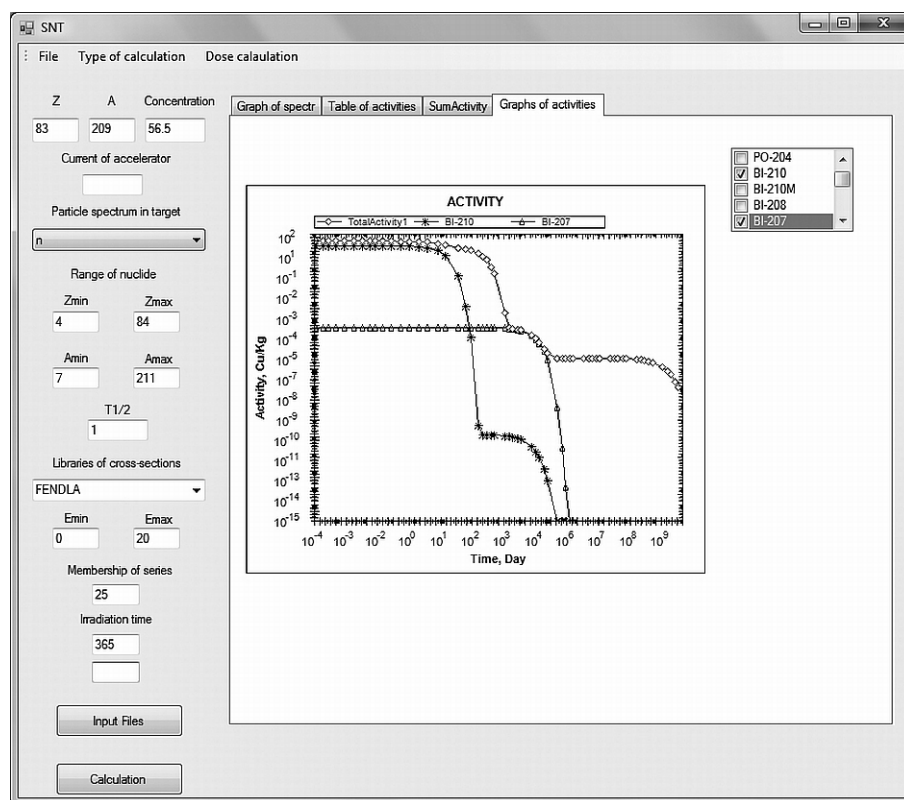


Рис.2. Пользовательский интерфейс ввода-вывода

- нейтронных библиотек, представленных в формате ENDF-6 (могут быть получены из библиотеки с помощью программного модуля ADR (activation data reader) [5];
- библиотеки MENDL [6], содержащей сечения нейтронных реакций для ядер от Al до Po при энергиях от 20 до 100 МэВ;
- библиотеки WIND [6], включающей в себя данные по сечениям нейтронных и протонных реакций для долгоживущих радионуклидов при энергии от 1 МэВ до 10 ГэВ;
- библиотеки PADF [9], содержащей сечения протонных реакций для ядер от Mg до Ra при энергиях от 0 до 150 МэВ;
- библиотеки IEAF [7], содержащей сечения нейтронных реакций для ядер от H до Po при энергиях от 150 до 1000 МэВ;
- библиотеки HEAD [8], содержащей сечения нейтронных и протонных реакций для ядер от H до Po при энергиях от 150 до 1000 МэВ.

С практической точки зрения для определения потенциальной биологической опасности радионуклидов лучше использовать термин «токсичность». Поэтому одним из режимов работы комплекса является оценка токсичности в зависимости от типа попадания нуклида в организм: поглощенная с пищей (ingestion toxicity) и ингаляционная (inhalation toxicity).

Для каждого изотопа приводятся зависимость активности от времени и результаты расчета токсичности для различных органов в виде таблиц и графиков. Пример расчета приведен на рис.3.

ПРАКТИЧЕСКОЕ ПРИМЕНЕНИЕ SNT.1

Расчет активности для проекта TRADE

Для верификации программы был проделан расчет активности воды, охлаждающей

мишень из Ta в проекте TRADE (TRiga Accelerator Driven Experiment) [10]. Мишень облучалась протонами с энергией 140 МэВ. Результаты расчета сравнивались с расчетами по программам FISPACT [11], SP-FISPACT [12], ANITA-IEAF [13].

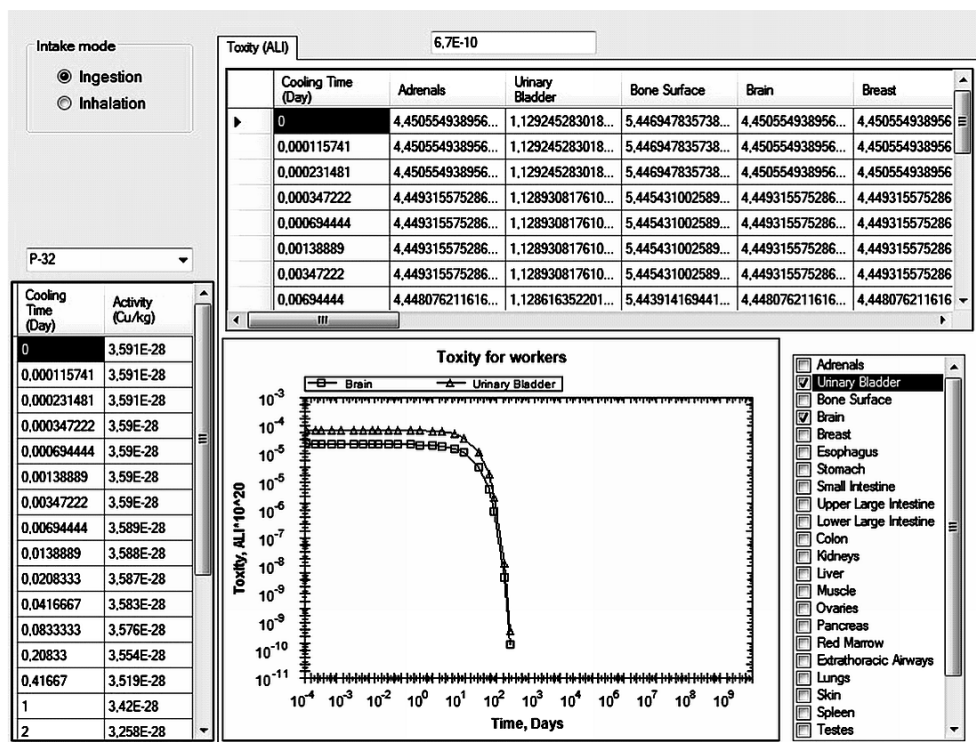


Рис.3. Пример расчета токсичности

Результаты расчета активности по всем программам представлены на рис. 4 и в табл. 2. Графики, полученные с помощью программ SNT.1 и FISPACT, лежат близко друг к другу, не смотря на то, что в программных кодах реализованы разные методы решения уравнения Бейтмана.

Таблица 2

Результаты расчета

Время после окончания облучения, год	Активность, Бк/кг			
	FISPACT	SP-FISPACT	ANITA-IEAF	SNT.1
1,00E-10	4,53E+10	1,73E+11	1,90E+11	6,43E+10
3,17E-08	4,14E+10	1,61E+11	1,80E+11	6,43E+10
0,00274	2,79E+09	8,46E+09	2,65E+10	5,29E+09
0,01918	2,78E+09	8,25E+09	2,64E+10	5,29E+09
0,08493	2,77E+09	7,58E+09	2,63E+10	5,29E+09
1	2,63E+09	5,52E+09	2,50E+10	5,03E+09
10	1,59E+09	3,31E+09	1,51E+10	3,03E+09
100	1,05E+07	2,56E+07	1,02E+08	2,05E+07
1000	376115	4,09E+06	5,81E+06	1,08E+06

Расчет концентрации и активности нуклидов, образующихся при облучении Pb-Bi-мишени, с учетом изменения тока ускорительной установки во время облучения

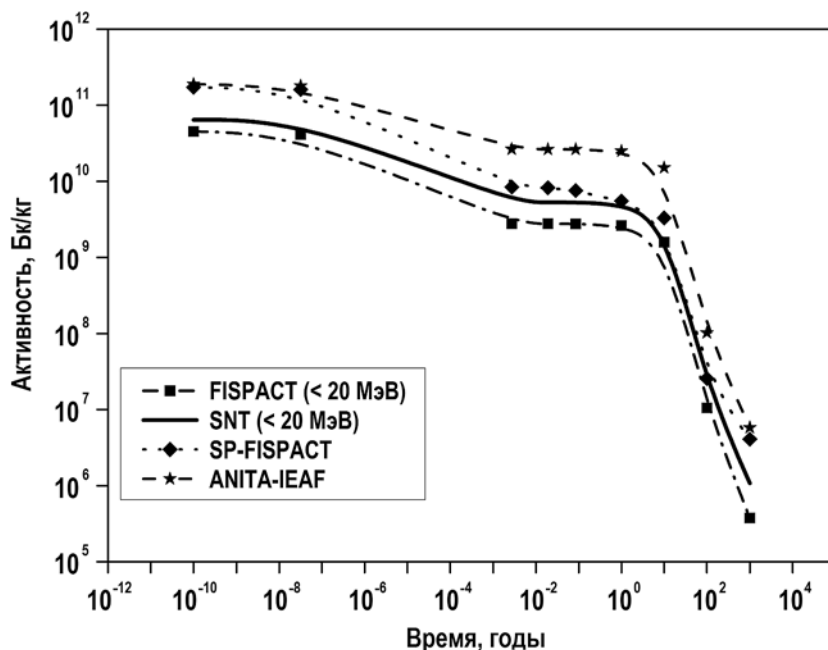


Рис.4. Результаты расчета активности

Рассчитывались концентрации и активности нуклидов, возникающих при облучении свинцово-висмутовой мишени (43.5% Pb, 56.5% Bi) протонами с энергией 575 МэВ. Рассматривались три варианта облучения:

- с переменным значением тока ускорительной установки;
- с постоянным значением тока установки 77.42×10^{-6} А (среднее суточное значение тока для первого варианта) в непрерывном режиме;
- с постоянным значением тока установки 77.42×10^{-6} А, непрерывно работающей по 12 часов в сутки.

Результаты расчета активностей для всех случаев представлены на рис. 5.

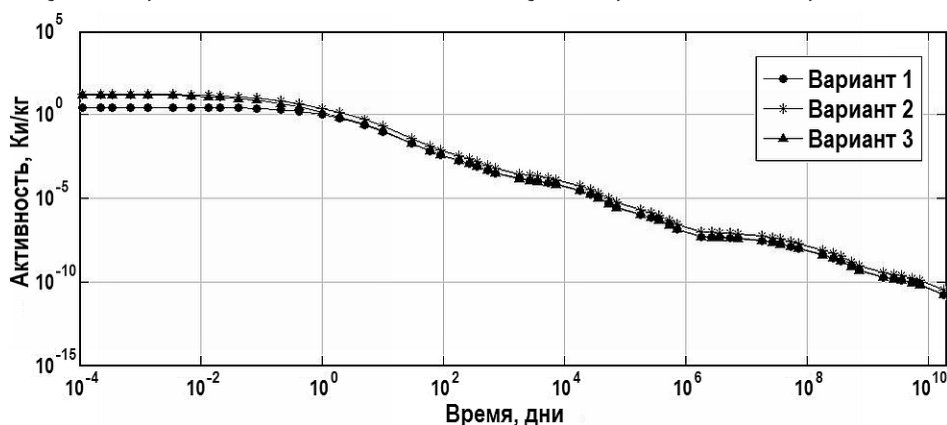


Рис.5. Графики активностей для трех вариантов облучения

НЕЙРОННЫЕ СЕТИ ДЛЯ АППРОКСИМАЦИИ И ПОЛУЧЕНИЯ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ ДАННЫХ

Получение экспериментальных ядерно-физических данных, таких как сечения реакций, является технически и экономически сложной задачей, поэтому широкое применение получило использование различных расчетных кодов, моделирующих физические процессы,

происходящие при взаимодействии ядер с протонами или нейтронами. Была проанализирована возможность получения таких данных с использованием нейронных сетей [14, 15].

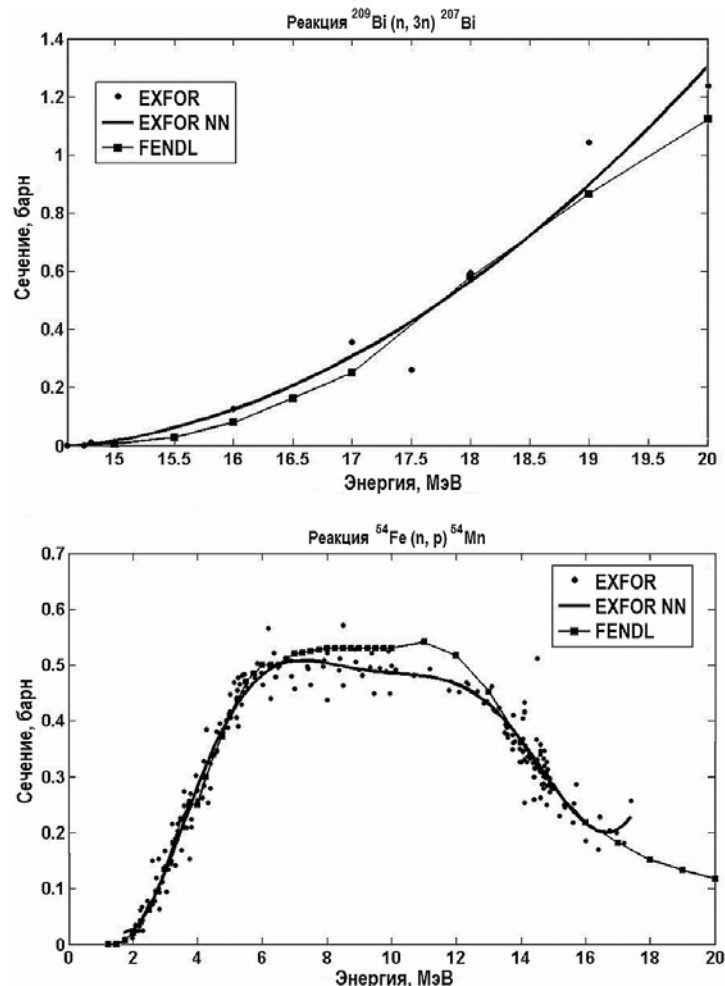


Рис. 6. Сечения реакций $^{209}\text{Bi}(n, 3n)^{207}\text{Bi}$ (вверху) и $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ (внизу)

С помощью нейронной сети были аппроксимированы экспериментальные данные, взятые из библиотеки EXFOR [16], по сечениям для реакций $^{209}\text{Bi}(n, 3n)^{207}\text{Bi}$ и $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ (рис.6). Результат аппроксимации сравнивался с библиотекой сечений FENDL, качество аппроксимации оценивалось с помощью факторов согласия.

Для проверки возможности получения данных с помощью нейронных сетей в диапазонах энергий, где имеется нехватка или отсутствие экспериментальных данных, были взяты данные по полному сечению реакций при взаимодействии нейтронов с ядрами ^{209}Bi для энергий от 150 до 1000 МэВ из библиотеки экспериментальных данных EXFOR.

Рассматривались два варианта:

- с изъятием из данных части сечений в диапазоне от 150 до 200 МэВ (в этой области сечение при росте энергии уменьшается);
- с изъятием из данных части сечений в диапазоне от 200 до 400 МэВ (сначала сечение уменьшается, а потом возрастает).

С помощью нейронных сетей RBF (радиально-базисной) и GRNN (обобщенно-регрессионной) выполнили восстановление этих данных, и результаты сравнили с первоначальными данными из EXFOR. Результаты расчета с помощью нейронных сетей для двух

областей показаны на рис. 7.

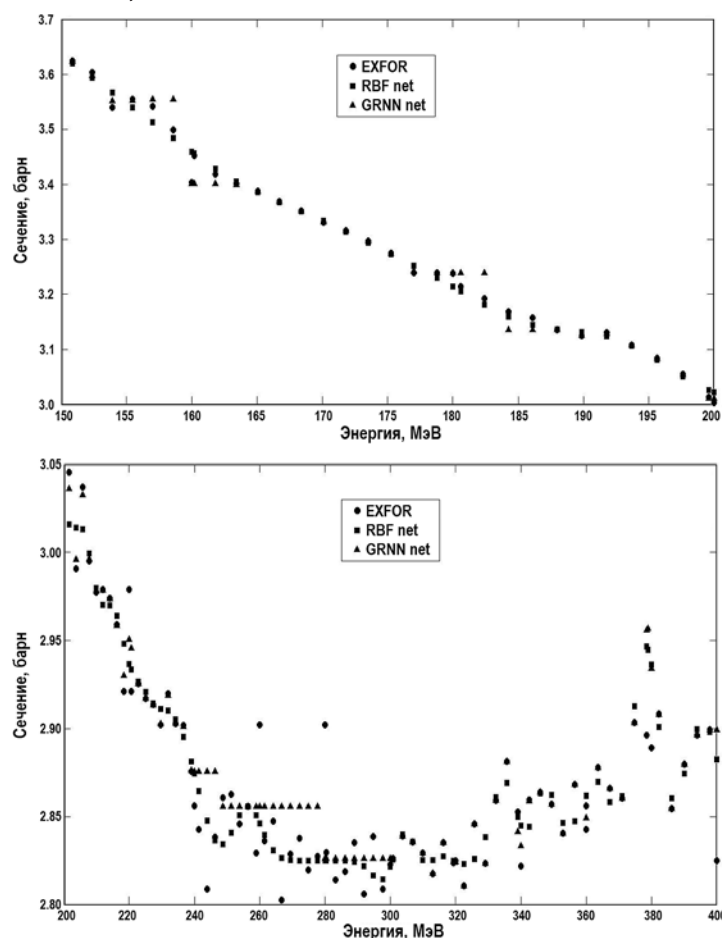


Рис. 7. Расчет для диапазона от 150 до 200 МэВ (вверху) и от 200 до 400 МэВ (внизу)

Таким образом, используя нейронные сети как математическую модель, описывающую характер изменения имеющихся экспериментальных данных, можно получать необходимые данные и производить дальнейшие расчеты, не применяя сложные программные расчетные комплексы, основанные на физических моделях процессов, происходящих при взаимодействии ядер с протонами или нейтронами.

Литература

1. House of lords select committee on science and technology, management of nuclear waste, session 1998-99 3-rd report, 1999.
2. Physics and Safety of Transmutation Systems, A Status Report, NEA No. 6090, OECD 2006.
3. Казанский Ю.А., Клинов Д.А. Эффективность трансмутации осколков деления // Известия вузов. Ядерная энергетика. 2000. – №4. – С. 38-46.
4. Коровин Ю.А., Максимушкина А.В., Наталенко А.А. Интерактивная система по расчету изотопного состава и наведенной активности облученных материалов перспективных ЯЭУ // Вестник НИЯУ МИФИ. – 2013. – Т. 2. – №1. – С. 79-84.
5. Коровин Ю.А., Наталенко А.А., Саенко А.В. Верификация и валидация моделей высокоэнергетических нуклон-ядерных взаимодействий на базе программного комплекса CADEP// Ядерная физика и инжиниринг, 2010. – Т. 1, – №6. – С. 504-511.
6. Коровин Ю.А., Конобеев А.Ю., Переславцев П.Э., Станковский А.Ю. Ядерные данные для исследования радиационных эффектов, активации и трансмутации материалов,

облучаемых частицами промежуточных энергий // Известия вузов. Ядерная энергетика. 1996. – № 6. – С. 76.

7. Конобеев А.Ю., Коровин Ю.А., Наталенко А.А. и др. Нейтронная библиотека активационных файлов IEAF-2005 в энергетическом диапазоне от 150 МэВ до 1 ГэВ // Известия вузов. Ядерная энергетика. 2007. – № 2. – С. 8.

8. Конобеев А.Ю., Коровин Ю.А., Наталенко А.А. и др. Библиотека протонных активационных ядерных данных NEPAD-2008 // Известия вузов. Ядерная энергетика. 2009. – № 3. – С. 97.

9. Konobeyev A. Yu., Broeders C.H.M., Fischer U. et al. The Proton Activation Data File PADF-2007 // DOI:10.1051/ndata:07352.

10. TRADE - Final feasibility report, The Working Group on TRADE, TRADE PC.0 FS 0020, March 2002, (www.trade.enea.it).

11. Forrest R.A. FISPACT-2001: User manual (UKAEA FUS 450, 2001).

12. Petrovich C. SP-FISPACT2001. A Computer Code for Activation and Decay Calculations For Intermediate Energies. A Connection Of FISPACT With MCNPX, ERG/2001/10 (ENEA, 2001).

13. Cepiraga D.G., Frisoni M., Cambi G. Fusion Engineering and Design 69 (2003) p.719-722.

14. Нейронные сети: <http://www.mathworks.com/products/neural-network/>

15. Mark Hudson Beale, Martin T. Hagan, Howard B. Demuth. Neural Network Toolbox™ User's Guide R2013b.

16. Библиотека EXFOR: <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>

Поступила в редакцию 18.12.2013 г.

Авторы

Коровин Юрий Александрович, профессор, доктор физ.-мат. наук

E-mail: korovin@iate.obninsk.ru

Максимушкина Анастасия Владимировна, ассистент

E-mail: a.v.saenko@mail.ru

CALCULATION OF ISOTOPIC COMPOSITION AND INDUCED ACTIVITY OF IRRADIATED MATERIALS IN INNOVATIVE ACCELERATOR-DRIVEN SYSTEMS

Korovin Yu.A., Maksimushkina A.V.

Obninsk Institute of Nuclear Power Engineering, National Research Nuclear University «MEPhI». 1, Stodgorodok, Obninsk, Kaluga region, 249040 Russia

ABSTRACT

The paper describes the SNT.1 system for calculating the isotopic composition and induced activity of irradiated materials in innovative accelerator-driven systems (ADS). The SNT.1 algorithm, the list and format of the input data, the list of evaluated nuclear data libraries to be used in the calculations as well as various calculation options are given. The calculations performed by SNT.1 are presented. For the TRADE project, the activity calculation of the water cooling the Ta target is presented, the calculation results were compared with those obtained by other software codes. The results of activity calculations by different codes show good agreement. The concentration and activity of nuclides formed during irradiation of the lead-bismuth target are performed with due account of the variations in the accelerator current during irradiation. The possibility of using neural networks for approximation and recovery of data, such as the reaction cross-sections, is considered. RBF and GRNN neural network structures were selected to approximate data on the ^{209}Bi ($n, 3n$) ^{207}Bi and ^{54}Fe (n, p) ^{54}Mn reaction cross sections. Neural networks were used to restore the data on the total cross-section of the neutron- ^{209}Bi interaction reactions. The approximation quality was assessed using agreement factors. It was shown that it is possible to obtain the necessary data and produce further calculations without using complex software systems.

Key words: transmutation, activity calculation, irradiated materials, nuclear data, reaction cross-sections, neural networks.

REFERENCES

1. House of lords select committee on science and technology, management of nuclear waste, session 1998-99 3rd report, 1999.
2. Physics and Safety of Transmutation Systems, A Status Report, NEA No. 6090, OECD 2006.
3. Kazanskiy Yu.A., Klinov D.A. Effektivnost' transmutacii oskolkov deleyniya [Transmutation Efficiency of Fission Fragments.] *Izvestiya Vuzov. Yadernaya Energetika*. 2000, no. 4, pp. 38-46.
4. Korovin Yu.A., Maksimushkina A.V., Natalenko A.A. Interaktivnaya sistema po raschetu izotopnogo sostava i navedennoy aktivnosti obluchennykh materialov perspektivnykh YaEU [Interactive System for Calculating the Isotope Composition and Induced Radioactivity of Irradiated Materials on Nuclear Power Facilities]. *Vestnik NRNU MEPhI*. 2013, v. 2, no. 1, pp. 79-84.
5. Korovin Yu.A., Natalenko A.A., Saenko A.V. Verifikatsiya i validatsiya modeley vysokoenergeticheskikh nuklon-yadernykh vzaimodeystviy na baze programmogo kompleksa CADEP [Verification and validation of models of high-energy nucleon-nucleus interactions based on software system CADEP]. *Nuclear Physics and Engineering*. 2013, v. 1, no. 6, pp. 504-511.
6. Korovin Yu.A., Konobeev A.Yu., Pereslavytsev P.E., Stankovsky A.Yu. Yadernye dannye dlya issledovaniya radiatsionnykh effektiv, aktivatsii i transmutatsii materialov, obluchaemykh chastitsami promezhutochnykh energiy [Nuclear Data for the study of radiation effects, activation and transmutation of materials irradiated by intermediate energy particles]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*. 1996, no. 6, p. 76.
7. Konobeev A.Yu., Korovin Yu.A., Natalenko A.A., et al. Neytronnaya biblioteka

aktivatsionnykh faylov IEAF-2005 v energeticheskom diapazone ot 150 MeV do 1 GeV [Neutron activation library files "IEAF-2005" in the energy range from 150 MeV to 1 GeV]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*. 2007, no. 2, p. 8.

8. Konobeev A. Yu., Korovin Yu. A. Natalenko A. A., et al. Biblioteka protonnykh aktivatsionnykh yadernykh dannykh HEPAD-2008 [Library of proton activation nuclear data HEPAD-2008]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*. 2009, no. 3, p. 97.

9. Konobeyev A. Yu., Broeders C. H. M., Fischer U. et al. The Proton Activation Data File PADF-2007. DOI:10.1051/ndata:07352.

10. TRADE – Final feasibility report. The Working Group on TRADE, TRADE PC.0 FS 0020, March 2002. Available at: <http://www.trade.enea.it>

11. Forrest R. A. FISPACT-2001: User manual (UKAEA FUS 450, 2001).

12. Petrovich C. SP-FISPACT2001. A Computer Code for Activation and Decay Calculations For Intermediate Energies. A Connection Of FISPACT With MCNPX, ERG/2001/10 (ENEA, 2001).

13. Cepraga D. G., Frisoni M., Cambi G. Fusion Engineering and Design 69 (2003) pp. 719-722.

14. Neural Network. Available at: <http://www.mathworks.com/products/neural-network/>

15. Mark Hudson Beale, Martin T. Hagan, Howard B. Demuth. Neural Network Toolbox™ User's Guide R2013b

16. EXFOR Library. Available at: <http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>

Authors

Korovin Yuriy Aleksandrovich, Professor, Dr. Sci. (Phys.-Math.)

E-mail: korovin@iate.obninsk.ru

Maksimushkina Anastasiya Vladimirovna, Assistant

E-mail: a.v.saenko@mail.ru