

基于直接求导方法的中子活化计算 不确定性研究

肖懿鑫 张竞宇 于 虢 赵晓泽 谭 琳 倪王慕鸿 王娟娟
(华北电力大学 核科学与工程学院 北京 102206)

摘要 在中子活化计算中,由于输入核数据存在一定的固有不确定性,这将对计算结果产生一定的影响。而计算结果的不确定度对核设施源项分析、辐射屏蔽设计发挥着重要的作用。首先研究了用于不确定性分析的直接求导方法和 Gear 算法,随后进行了活化系数矩阵以及敏感性系数矩阵的构造,最后利用 Gear 算法同步求解活化方程组和敏感性方程组,得到核素存量对于核数据的敏感性系数,并结合核数据的相对不确定度得出核素存量的相对不确定度。将本工作研发的方法集成到中子活化程序 ABURN 中,并选取典型例题进行了测试验证。结果表明:ABURN 程序对于核素存量及其敏感性系数与相对不确定度的计算结果,与解析解和欧洲活化程序 FISPACT 数值解的计算偏差很小,绝大部分偏差不超过 0.2%,最大偏差不超过 1%,说明此方法和程序具备了高精度分析核素存量的敏感性和不确定性的能力,能够为核设施辐射防护以及源项分析工作提供工具和数据支持。

关键词 活化计算, 不确定性分析, 直接求导方法, Gear 算法, 敏感性系数矩阵

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.030602

Uncertainty of neutron activation calculation based on direct derivative method

XIAO Yixin ZHANG Jingyu YU Xiao ZHAO Xiaoze TAN Lin
NI Wangmuhong WANG Juanjuan

(School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing 102206, China)

Abstract [Background] In the neutron activation calculation, the inherent uncertainty of the input nuclear data will cause a certain impact on the calculation results. The uncertainty of the calculation results plays an important role in the source term analysis and radiation shielding design of nuclear facilities. [Purpose] This study aims to analyze the uncertainty of neutron activation calculation based on direct derivative method. [Methods] Firstly, the direct derivation method and Gear algorithm for uncertainty analysis were investigated, and the activation coefficient matrix and sensitivity coefficient matrix were constructed. Then, the Gear algorithm was employed to solve the activation equation and sensitivity equation simultaneously, and the sensitivity coefficient of nuclide inventory to nuclear data was obtained. The relative uncertainty of nuclide inventory was obtained by combining the relative uncertainty of nuclear data. Finally, This method was integrated into the neutron activation program ABURN, and typical examples

国家磁约束核聚变能发展研究专项(No.2019YFE03110000、No.2019YFE03110003)资助

第一作者: 肖懿鑫, 男, 1997 年出生, 2018 年毕业于华北水利水电大学, 现为硕士研究生, 研究领域为核科学与技术

通信作者: 张竞宇, E-mail: poptnt@163.com

收稿日期: 2022-08-14, 修回日期: 2022-09-16

Supported by National Magnetic Confinement Fusion Program of China (No.2019YFE03110000, No.2019YFE03110003)

First author: XIAO Yixin, male, born in 1997, graduated from North China University of Water Resources and Electric Power in 2018, master student, focusing on nuclear science and technology

Corresponding author: ZHANG Jingyu, E-mail: poptnt@163.com

Received date: 2022-08-14, revised date: 2022-09-16

was selected to test and verify its performance. **[Results]** The calculation results of the nuclide inventory and its sensitivity coefficient and relative uncertainty by the ABURN program have little deviation from the analytical solution and the numerical solution of the European activation program FISPACT, most of the deviations do not exceed 0.2%, and the maximum deviation does not exceed 1%. **[Conclusions]** Verification results show that the method and procedure developed in this paper have the ability to analyze the sensitivity and uncertainty of nuclide inventory with high precision, and can provide tools and data support for the radiation protection of nuclear facilities and the source term analysis.

Key words Activation calculation, Uncertainty analysis, Direct derivation method, Gear algorithm, Sensitivity coefficient matrix

核设施运行中会产生大量中子,这些中子对结构部件、冷却回路中的腐蚀产物有很强的活化作用,所形成的活化产物是核设施运行和检修人员职业照射的主要来源^[1],所以中子诱发的活化计算是放射性源项分析的重要工作,对核设施的辐射屏蔽有着重要意义。而在进行活化计算过程中,输入的核数据,如衰变常数以及核反应截面存在一定的不确定度,这就导致对计算结果产生了影响。相比较于采用保守的安全分析,“最佳估算值+不确定性”有着更大的优势,能够更好地留出安全裕量,因此在活化计算中进行敏感性与不确定性分析是十分重要的。

在核工程领域,由于不确定性分析的重要性,国内外许多学者对其进行了大量的研究。目前国内外主要针对 k_{eff} 、堆芯功率等反应堆物理参数进行不确定性分析。郝琛等^[2]采用广义微扰理论,研究核数据不确定性对先进压水堆 AP1000 燃料组件宏观截面参数计算不确定性的贡献与影响机理。刘勇等^[3]提出了两步法的敏感性计算策略,针对快堆基准题 BN-600 进行了有效增殖因数的敏感性分析,并量化了其不确定性的主要来源。曹良志等^[4]提出了 COST 先进抽样方法,并首次基于高保真数值反应堆程序量化了各类核参数的协方差在堆芯稳态和瞬态分析中的不确定度传递。国外学者 Ahmed 等^[5]得出了在 JENDL-4.0 和 ENDF/B-VII.1 核评价数据库中, k_{eff} 关于 ^{239}Pu 裂变截面具有最大的不确定性。Langton 等^[6]针对加拿大超临界水冷反应堆进行了核数据敏感性和不确定性研究,得出了造成反应堆物理参数不确定性的最大因素是 ^{239}Pu 、 ^{232}Th 、 ^3H 以及铕的同位素。

在核反应堆源项分析领域,对于活化或燃耗计算的不确定性分析也开展了一些研究。Kim 等^[7]对 EPFL (École Polytechnique Fédérale de Lausanne) 的零功率研究堆 CROCUS 进行了源项计算,考虑了核数据特别是反应截面和裂变产额的不确定性,采用了三种随机抽样方法,最后分析得出 ^{235}U 裂变产额不确定度是确定裂变产物 ^{90}Sr 、 ^{91}Y 、 ^{131}I 、 ^{137}Cs 、 ^{140}Ba 、

^{140}La 和 ^{144}Ce 同位素活度不确定度的主要因素,而 ^{238}U 俘获截面的不确定度是 ^{239}Pu 活度不确定度的主导因素。Ilas 等^[8]研究评估了核数据(截面和裂变产额)以及建模数据的不确定性对典型沸水堆燃料组件衰变热计算的影响,计算得出衰变热总的不确定度为 1.3%,该计算数值与测量不确定度一致。英国原子能管理局(UK Atomic Energy Authority, UKAEA)的 Eastwood^[9]和 华北电力大学的石涛等^[10]研究了采用抽样方法进行活化计算的敏感性和不确定性分析。然而,总体来说,与活化计算不确定性分析相关的研究工作还非常有限,选取的方法也大多集中于抽样方法(方法简单但是计算效率较低),对于确定论方法的应用比较少(需要进行公式推导但是计算效率较高)。此外,很多知名的活化或燃耗计算程序,比如国外的 ORIGEN 程序、CINDER 程序以及国内的 NUIT 程序、JBURN 程序等都不具备敏感性和不确定性分析功能,在此方面欧洲活化程序 FISPACT 的功能相对完备,同时应用了抽样方法和确定论方法。本文基于确定论中的直接求导方法计算核素存量的敏感性系数以及相对不确定度,并将此项功能集成到华北电力大学核设施源项研究组自主研发的活化计算程序 ABURN 中。随后采用典型例题,将 ABURN 程序的计算结果与解析解和 FISPACT 程序进行对比,有效验证了本文研发的方法和程序的准确性。

1 理论方法

从方法学上讲,用于敏感性和不确定性分析的方法主要分为两种:统计方法和确定论方法^[10]。一般来说,统计方法需要对输入数据进行大量的重复抽样,得出计算结果,此过程逻辑简单,容易实现,但由于计算精度与抽样次数有关,因而往往需要耗费大量的计算时间。而确定论方法首先进行敏感性方程推导和求解,接着利用所求得的敏感性系数进行不确定度计算,此类方法计算精度高,计算速度快,常用于核数据的不确定性分析。

1.1 直接求导方法

本文采用确定论方法中的直接求导方法来进行核素存量的不确定性分析。核素存量 N 相对于输入参数 X 的“敏感性”可以用敏感性系数 S 定量表示^[11],将 S 定义如下:

$$S = \frac{\partial N}{\partial X} \frac{X}{N} \quad (1)$$

式中: ∂N 为核素存量的绝对不确定度; ∂X 为输入参数的绝对不确定度。计算得到核素存量相对于输入参数的敏感性系数 S 之后,便可以利用式(2)进行核素存量相对不确定度的计算。

$$\frac{\partial N}{N} = S \frac{\partial X}{X} \quad (2)$$

式中: $\frac{\partial N}{N}$ 为核素存量的相对不确定度; S 为敏感性系数; $\frac{\partial X}{X}$ 为输入参数的相对不确定度。 ∂X 和 X 的值可以从EAF-2007数据库中读取获得。

1.2 Gear算法

本文所面临的问题包括核素的活化方程和敏感性方程求解,本质上都是求解大型刚性常微分方程组,因此可以根据此类问题的特点选用稳定性和计算精度都较为突出的Gear算法进行求解。

Gear算法从本质上来讲是一种可以变阶变步长的向后差分数值积分方法。其优点是:容易改变阶和步长,能够应用高阶和高稳定的格式,每积分一步解隐式方程组所需的工作量较小^[12]。一般来说,Gear算法主要用于求解大型刚性常微分方程组,这类方程可以表示成如下形式^[13]:

$$\dot{y} = \frac{dy}{d\xi} = f(y(\xi), \xi) \quad (3)$$

$$y(\xi_0) = y_0 = \text{Given} \quad (4)$$

式中: \dot{y} 代表输出参数 y 对输入参数 ξ 的一阶导数; y_0 为输出参数的初值,须为已知常数。Gear算法的一般形式为^[14]:

$$y_{n+k} = \sum_{i=0}^{k-1} \alpha_i y_{n+i} + h\beta_k f_{n+k} \quad (5)$$

式中: α_i 和 β_k 为待定的 $k+1$ 个常系数; h 为迭代步长。

2 敏感性系数矩阵构建

由式(1)可知,敏感性系数 S 与核素存量 N 有关,因此,必须同步进行活化计算。活化计算需要构建活化系数矩阵(用于表征不同核素之间的转换关系以及具体的反应速率),然后利用解析或者数值方

法求解活化系数矩阵所对应的活化方程组。可将活化方程组写成矩阵的形式:

$$\frac{dN}{dt} = AN \quad (6)$$

式中: N 为核素存量的向量; t 为反应时间; A 为活化系数矩阵。

对式(6)两边关于 X 求偏导,并交换微分顺序,可得:

$$d\left(\frac{\partial N}{\partial X}\right) = A \frac{\partial N}{\partial X} + \frac{\partial A}{\partial X} N \quad (7)$$

将式(7)与式(6)进行对比可以发现,式(7)与式(6)具有类似的结构形式,并且使用着相同的活化系数矩阵 A ,因此可以利用求解活化方程组的方法求解 $\frac{\partial N}{\partial X}$ 。此时, $\frac{\partial N}{\partial X}$ 的初值为0^[15]。式(7)比式(6)多出来了一个常数项 $\frac{\partial A}{\partial X} N$,将其中的 $\frac{\partial A}{\partial X}$ 命名为敏感性系数矩阵。

2.1 衰变常数的敏感性系数矩阵构建

当输入参数 X 为任一核素 N_i 的衰变常数 λ_i 时, $\frac{\partial A}{\partial X}$ 可以写成 $\frac{\partial A}{\partial \lambda_i}$ 。 $\frac{\partial A}{\partial \lambda_i}$ 代表活化系数矩阵 A 里面的每一个位置元素对衰变常数 λ_i 求偏导。由于在 A 中只有第 i 列代表 N_i 与其他核素的相互转换关系,因此,其他列相对于 λ_i 求偏导都可以看成是常数对 λ_i 求偏导,所以其结果都为0。针对 A 中对角线元素 $a_{i,i}$ 对 λ_i 求偏导,可以用式(8)表示:

$$\frac{\partial a_{i,i}}{\partial \lambda_i} = \frac{\partial(-\sigma_i \phi - \lambda_i)}{\partial \lambda_i} = \frac{\partial(-\lambda_i)}{\partial \lambda_i} = -1 \quad (8)$$

式中: σ_i 代表 i 种核素总的活化反应截面。

针对第 i 列任意一位置元素 $a_{r,i}(r \neq i)$ 对 λ_i 求偏导,可以用式(9)表示:

$$\frac{\partial a_{r,i}}{\partial \lambda_i} = \frac{\partial(\lambda_i B_{r,i} + \sigma_{r,i} \phi)}{\partial \lambda_i} = B_{r,i} \quad (9)$$

式中: $B_{r,i}$ 代表 i 种核素衰变为 r 种核素的衰变分支比; $\sigma_{r,i}$ 代表 i 种核素活化产生 r 种核素总的反应截面。因此 $\frac{\partial A}{\partial \lambda_i}$ 可以写成以下形式:

$$\begin{pmatrix} 0 & \dots & B_{1,i} & \dots & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots \\ 0 & \dots & -1 & \dots & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots \\ 0 & \dots & B_{r,i} & \dots & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots \\ 0 & \dots & B_{n,i} & \dots & 0 & \dots & 0 \end{pmatrix}_{n \times n} \quad (10)$$

2.2 活化截面的敏感性系数矩阵构建

当输入参数 X 为任意核素 N_i 的某种活化反应截面时,假设该活化反应类型为 y ,生成的子核为 N_x 。此时 $\frac{\partial A}{\partial X}$ 可以写成 $\frac{\partial A}{\partial \sigma_{x,i}^y}$,其中: $\sigma_{x,i}^y$ 表示核素 N_i 通过 y 类型的中子活化反应产生核素 N_x 的反应截面。由于在活化系数矩阵中只有两个位置即 $a_{i,i}$ 和 $a_{x,i}$ 与该活化反应有关,因此除去这两个位置的其他位置的导数值均为0。则 $\frac{\partial a_{i,i}}{\partial \sigma_{x,i}^y}$ 可以用式(11)表示:

$$\frac{\partial a_{i,i}}{\partial \sigma_{x,i}^y} = \frac{\partial(-\sigma_i \phi - \lambda_i)}{\partial \sigma_{x,i}^y} = -\phi \frac{\partial(\sigma_i)}{\partial \sigma_{x,i}^y} = -\phi \frac{\partial(\sigma_{1,i} + \sigma_{2,i} + \dots + \sigma_{x,i}^y + \dots)}{\partial \sigma_{x,i}^y} = -\phi \quad (11)$$

同样, $\frac{\partial a_{x,i}}{\partial \sigma_{x,i}^y}$ 可以用下式表示:

$$\frac{\partial a_{x,i}}{\partial \sigma_{x,i}^y} = \frac{\partial(\lambda_i B_{x,i} + \sigma_{x,i} \phi)}{\partial \sigma_{x,i}^y} = \phi \frac{\partial(\sigma_{x,i})}{\partial \sigma_{x,i}^y} = \phi \frac{\partial(\sigma_{x,i}^{y1} + \sigma_{x,i}^{y2} + \dots + \sigma_{x,i}^y + \dots)}{\partial \sigma_{x,i}^y} = \phi \quad (12)$$

式中: $\sigma_{x,i}^{y1}$ 、 $\sigma_{x,i}^{y2}$ 代表核素 N_i 分别通过 $y1$ 类型、 $y2$ 类型的活化反应产生子核 N_x 的截面。因此 $\frac{\partial A}{\partial \sigma_{x,i}^y}$ 可以写成以下形式:

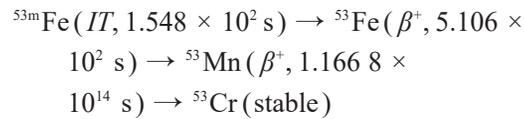
$$\begin{pmatrix} 0 & \dots & 0 & \dots & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots \\ 0 & \dots & -\phi & \dots & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots \\ 0 & \dots & \phi & \dots & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots & \dots & \vdots \\ 0 & \dots & 0 & \dots & 0 & \dots & 0 \end{pmatrix}_{n \times n} \quad (13)$$

3 测试例题和结果分析

本文基于直接求导方法和 Gear 算法自主开发了核素存量敏感性与不确定性分析计算模块,并将其集成在由华北电力大学核设施源项研究组自主研发的活化计算程序 ABURN 中。选取了三个测试例题来验证计算结果:分别是欧洲活化程序 FISPACT-2007 用户手册^[16]中的 ^{53m}Fe 纯衰变单链例题、 ^{16}O 先活化后衰变单链例题以及国际原子能机构(International Atomic Energy Agency, IAEA)发布的天然铁活化基准题^[17]。对于前两个单链例题,可以推导核素存量、敏感性系数和不确定度的解析解,则将 ABURN 程序计算结果与解析解进行对比。而对于天然铁活化基准题,其活化网络是非常复杂的,无法精确推导其解析解,则将 ABURN 程序计算结果与欧洲活化程序 FISPACT-2007 进行比对。

3.1 ^{53m}Fe 衰变例题计算分析

^{53m}Fe 衰变反应单链如下所示:



反应链中括号内代表相应的衰变反应类型以及半衰期(stable 表示为稳定核素)。初始时刻 ^{53m}Fe 的核素存量为 10^{20} 个,衰变时间为 $7.2 \times 10^3 \text{ s}$, λ_1 代表 ^{53m}Fe 的衰变常数,其相对不确定度为 $1.162 791 \times 10^{-2}$ 。相对误差计算公式为:(ABURN 结果-解析解)/解析解。核素存量、敏感性系数、相对不确定度的计算结果对比如表 1~3 所示。

表 1 ^{53m}Fe 衰变例题核素存量计算结果对比
Table 1 Comparison of nuclide inventory results of ^{53m}Fe decay calculation

核素名称 Nuclide name	解析解 Analytical solution / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{53m}Fe	$9.967 918 \times 10^5$	$9.970 978 \times 10^5$	0.030 699
^{53}Fe	$8.166 458 \times 10^{15}$	$8.166 463 \times 10^{15}$	0.000 061
^{53}Mn	$9.999 184 \times 10^{19}$	$9.999 184 \times 10^{19}$	0
^{53}Cr	$3.706 978 \times 10^9$	$3.706 977 \times 10^9$	-0.000 018

对于 ^{53m}Fe 衰变例题,以解析解作为比较基准,ABURN 程序计算得到的核素存量的最大误差为 0.030 699%、敏感性系数的最大误差为 -0.175 425%、相对不确定度的最大误差为 -0.175 425%,具有较高的计算精度。该衰变算例的

计算结果表明:本文所采用的敏感性和不确定性计算方法和程序实现对于衰变问题是准确的。

3.2 ^{16}O 活化例题计算分析

^{16}O 活化反应单链如下所示:

表2 ^{53m}Fe 衰变例题核素存量敏感性系数计算结果对比
 Table 2 Comparison of nuclide inventory sensitivity coefficient results of ^{53m}Fe decay calculation

核素名称 Nuclide name	解析解 Analytical solution / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{53m}Fe	$-3.223\ 940 \times 10^1$	$-3.223\ 745 \times 10^1$	-0.006 054
^{53}Fe	-4.350758×10^{-1}	$-4.350\ 760 \times 10^{-1}$	0.000 039
^{53}Mn	$3.553\ 318 \times 10^{-5}$	$3.547\ 085 \times 10^{-5}$	-0.175 425
^{53}Cr	$3.578\ 522 \times 10^{-2}$	$3.578\ 498 \times 10^{-2}$	-0.000 668

表3 ^{53m}Fe 衰变例题核素存量相对不确定度计算结果对比
 Table 3 Comparison of nuclide inventory relative uncertainty results of ^{53m}Fe decay calculation

核素名称 Nuclide name	解析解 Analytical solution / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{53m}Fe	$-3.748\ 769 \times 10^{-1}$	$-3.748\ 542 \times 10^{-1}$	-0.006 054
^{53}Fe	$-5.059\ 023 \times 10^{-3}$	$-5.059\ 025 \times 10^{-3}$	0.000 039
^{53}Mn	$4.131\ 767 \times 10^{-7}$	$4.124\ 519 \times 10^{-7}$	-0.175 425
^{53}Cr	$4.161\ 073 \times 10^{-4}$	$4.161\ 045 \times 10^{-4}$	-0.000 668

$^{16}\text{O}(\text{stable}) \rightarrow (n, \gamma: 6.60189 \times 10^{-5} \text{ b}) \rightarrow$
 $^{17}\text{O}(\text{stable}) \rightarrow (n, \gamma: 1.184\ 99 \times 10^{-4} \text{ b}) \rightarrow$
 $^{18}\text{O}(\text{stable}) \rightarrow (n, \gamma: 5.426\ 13 \times 10^{-5} \text{ b}) \rightarrow$
 $^{19}\text{O}(\beta^-, 1.577\ 88 \times 10^7 \text{ s})$

反应链中括号内写出了具体的活化反应类型以及反应截面、衰变反应类型和半衰期。初始时刻 ^{16}O

的核素存量为 10^{20} 个,中子辐照时间为1 a,中子通量密度为 $10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。 σ_1 代表 ^{16}O 活化产生 ^{17}O 的活化截面,其相对不确定度为 $5.430\ 972 \times 10^{-1}$ 。核素存量计算结果、敏感性系数、相对不确定度计算结果对比如表4~6所示。

表4 ^{16}O 活化例题核素存量计算结果对比
 Table 4 Comparison of nuclide inventory results of ^{16}O activation calculation

核素名称 Nuclide name	解析解 Analytical solution / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{16}O	$9.999\ 979 \times 10^{19}$	$9.999\ 979 \times 10^{19}$	0.000 000
^{17}O	$2.083\ 392 \times 10^{14}$	$2.083\ 392 \times 10^{14}$	0.000 004
^{18}O	$3.895\ 470 \times 10^8$	$3.895\ 470 \times 10^8$	0.000 003
^{19}O	$1.625\ 481 \times 10^2$	$1.625\ 481 \times 10^2$	-0.000 003

表5 ^{16}O 活化例题核素存量敏感性系数计算结果对比
 Table 5 Comparison of nuclide inventory sensitivity coefficient results of ^{16}O activation calculation

核素名称 Nuclide name	解析解 Analytical solution / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{16}O	$-2.083\ 398 \times 10^{-6}$	$-2.083\ 398 \times 10^{-6}$	0.000 001
^{17}O	$9.999\ 990 \times 10^{-1}$	$9.999\ 989 \times 10^{-1}$	-0.000 002
^{18}O	$9.999\ 993 \times 10^{-1}$	$9.999\ 993 \times 10^{-1}$	-0.000 002
^{19}O	$9.999\ 994 \times 10^{-1}$	$9.999\ 994 \times 10^{-1}$	-0.000 002

表6 ^{16}O 活化例题核素存量相对不确定度计算结果对比
 Table 6 Comparison of nuclide inventory relative uncertainty results of ^{16}O activation calculation

核素名称 Nuclide name	解析解 Analytical solution / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{16}O	$-1.131\ 488 \times 10^{-6}$	$-1.131\ 488 \times 10^{-6}$	0.000 001
^{17}O	$5.430\ 966 \times 10^{-1}$	$5.430\ 966 \times 10^{-1}$	-0.000 002
^{18}O	$5.430\ 968 \times 10^{-1}$	$5.430\ 968 \times 10^{-1}$	-0.000 002
^{19}O	$5.430\ 969 \times 10^{-1}$	$5.430\ 969 \times 10^{-1}$	-0.000 002

对于 ^{16}O 活化例题,以解析解作为比较基准, ABURN程序计算得到的核素存量的最大误差为0.000 004%、敏感性系数的最大误差为-0.000 002%、相对不确定度的最大误差为-0.000 002%,具有较高的计算精度。该活化算例的计算结果表明,本文所采用的敏感性和不确定性计算方法和程序实现对于活化问题是准确的。

3.3 天然铁活化基准题计算分析

天然铁活化过程是一个复杂的活化反应网络,涉及很多的核素。反应的初始核素为Fe的4种同位素,分别为 ^{54}Fe 、 ^{56}Fe 、 ^{57}Fe 和 ^{58}Fe ,它们各自的核素存量分别是: $6.468\ 07\times 10^{23}$ 、 $9.863\ 18\times 10^{23}$ 、 $2.324\ 28\times$

10^{23} 和 $2.907\ 17\times 10^{22}$,中子辐照时间为1 a,中子通量密度为 $3.640\ 99\times 10^{15}\ \text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 。选取的输入参数 X 为活化反应 $^{54}\text{Fe}(n, 2p)^{53}\text{Cr}$ 的反应截面 $5.250\ 422\times 10^{-4}\ \text{b}$,用 σ_x 来表示,其相对不确定度为2.000 000。其他与反应有关的核数据取自欧洲活化数据库EAF-2007。相对误差计算公式为:(ABURN结果-FISPACT结果)/FISPACT结果。天然铁活化产生的核素种类较多,不同核素受 $^{54}\text{Fe}(n, 2p)^{53}\text{Cr}$ 的反应截面不确定度的影响不一,本文选取了FISPACT程序输出的核素存量相对不确定度最大的前十种核素进行比较分析。核素存量、敏感性系数、相对不确定度计算结果对比如表7~9所示。

表7 天然铁活化基准题核素存量计算结果对比
Table 7 Comparison of nuclide inventory results of nature Fe activation calculation

核素名称 Nuclide name	FISPACT计算值 FISPACT calculation result / atoms	ABURN计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{53}CR	$5.420\ 000\times 10^{21}$	$5.422\ 275\times 10^{21}$	0.041 970
^{53}V	$1.496\ 560\times 10^{13}$	$1.496\ 552\times 10^{13}$	-0.000 561
^{50}Sc	$1.607\ 610\times 10^9$	$1.611\ 207\times 10^9$	0.223 736
$^{50}\text{Sc-m}$	$7.174\ 480\times 10^5$	$7.190\ 589\times 10^5$	0.224 538
^{50}Ti	$2.019\ 730\times 10^{18}$	$2.024\ 272\times 10^{18}$	0.224 896
^{44}Ar	$4.299\ 090\times 10^3$	$4.308\ 789\times 10^3$	0.225 606
^{47}K	$3.654\ 510\times 10^2$	$3.663\ 002\times 10^2$	0.232 365
^{47}Ca	$3.754\ 670\times 10^{12}$	$3.763\ 383\times 10^{12}$	0.232 063
^{49}Sc	$9.145\ 860\times 10^9$	$9.180\ 006\times 10^9$	0.373 348
^{49}Ti	$6.375\ 080\times 10^{16}$	$6.418\ 506\times 10^{16}$	0.681 177

表8 天然铁活化基准题核素存量敏感性系数计算结果对比
Table 8 Comparison of nuclide inventory sensitivity coefficient results of nature Fe activation calculation

核素名称 Nuclide name	FISPACT计算值 FISPACT calculation result / atoms	ABURN计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
^{53}CR	$7.099\ 000\times 10^{-3}$	$7.098\ 079\times 10^{-3}$	-0.012 974
^{53}V	$7.080\ 000\times 10^{-3}$	$7.079\ 479\times 10^{-3}$	-0.007 357
^{50}Sc	$5.935\ 000\times 10^{-3}$	$5.946\ 874\times 10^{-3}$	0.200 066
$^{50}\text{Sc-m}$	$5.939\ 000\times 10^{-3}$	$5.946\ 873\times 10^{-3}$	0.132 564
^{50}Ti	$5.939\ 000\times 10^{-3}$	$5.946\ 873\times 10^{-3}$	0.132 564
^{44}Ar	$5.937\ 000\times 10^{-3}$	$5.945\ 412\times 10^{-3}$	0.141 688
^{47}K	$5.937\ 000\times 10^{-3}$	$5.945\ 406\times 10^{-3}$	0.141 588
^{47}Ca	$5.937\ 000\times 10^{-3}$	$5.945\ 406\times 10^{-3}$	0.141 587
^{49}Sc	$3.281\ 000\times 10^{-3}$	$3.284\ 315\times 10^{-3}$	0.101 030
^{49}Ti	$1.457\ 000\times 10^{-3}$	$1.465\ 072\times 10^{-3}$	0.554 015

对于天然铁活化基准题,以FISPACT-2007程序计算结果作为比较基准, ABURN程序计算得到的核素存量的最大误差为0.681 177%、敏感性系数的最大误差为0.554 015%、相对不确定度的最大误差为0.571 268%,主要是由于FISPACT程序选用的数值计算方法为欧拉指数方法结合短寿命核素长期平

衡近似处理,与ABURN程序选用的Gear方法的计算精度有一定差别,并且FISPACT程序是基于简化的核素反应路径进行不确定度计算,与本文的不确定度计算方法有显著区别,但是两个程序计算结果的总体偏差小于1%,在活化计算中属于合理范围。

天然铁活化部分核素反应网络图如图1所示。

表9 天然铁活化基准题核素存量相对不确定度计算结果对比
Table 9 Comparison of nuclide inventory relative uncertainty results of nature Fe activation calculation

核素名称 Nuclide name	FISPACT 计算值 FISPACT calculation result / atoms	ABURN 计算值 ABURN calculation result / atoms	相对误差 Relative error / %
⁵³ CR	1.419 800×10 ⁻²	1.419 616×10 ⁻²	-0.012 974
⁵³ V	1.416 100×10 ⁻²	1.415 896×10 ⁻²	-0.014 420
⁵⁰ Sc	1.186 900×10 ⁻²	1.189 375×10 ⁻²	0.208 510
⁵⁰ Sc-m	1.187 800×10 ⁻²	1.189 375×10 ⁻²	0.132 564
⁵⁰ Ti	1.187 800×10 ⁻²	1.189 375×10 ⁻²	0.132 564
⁴⁴ Ar	1.187 500×10 ⁻²	1.189 082×10 ⁻²	0.133 255
⁴⁷ K	1.187 500×10 ⁻²	1.189 081×10 ⁻²	0.133 154
⁴⁷ Ca	1.187 500×10 ⁻²	1.189 081×10 ⁻²	0.133 154
⁴⁹ Sc	6.561 400×10 ⁻²	6.568 630×10 ⁻²	0.110 185
⁴⁹ Ti	2.913 500×10 ⁻²	2.930 144×10 ⁻²	0.571 268

从图中可以看出,核素存量的敏感性系数与相对不确定度最大的 10 种核素都在活化反应 $^{54}\text{Fe}(n, 2p)^{53}\text{Cr}$ 的反应网络上,这同样也说明了其计算结果的合理性。

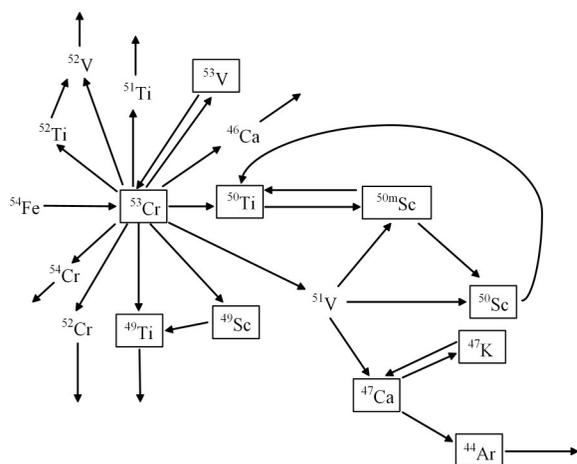


图1 核素反应网络图
Fig.1 Network diagram of nuclear reaction

4 结语

为了保证核设施源项分析的准确性,在活化计算过程中对核数据进行敏感性与不确定性分析是十分必要的。本文基于确定论中的直接求导方法的理论逻辑,结合 Gear 算法开发了计算核素存量的敏感性系数与相对不确定度的程序模块,并集成到了活化计算程序 ABURN 中。选用了 ^{53m}Fe 纯衰变单链例题、 ^{16}O 先活化后衰变单链例题以及天然铁活化基准题进行程序的验证,对比了 ABURN 程序计算结果与解析解以及国际同类程序 FISPACT 计算结果。对比结果表明,无论是核素存量本身还是核素存量的敏感性系数和相对不确定度的偏差都比较小,说明 ABURN 程序具备了对核素存量的敏感性和不确

定性进行高精度分析的能力,进而为核设施源项分析提供了计算不确定度的有效工具,同时也可工程实践中的辐射防护设计提供数据支持。

作者贡献声明 肖懿鑫:实施研究,采集数据,分析解释数据,起草文章;张竞宇:对文章的知识性内容作批评性审阅,指导,技术支持;于斌:技术支持,统计分析,内容校核;赵晓泽:采集数据,分析数据;谭琳:采集数据,分析数据;倪王慕鸿:采集数据,分析数据;王娟娟:采集数据,分析数据。

参考文献

- 张竞宇, 马亚栋, 陈义学, 等. CRAM 在放射性核素存量计算中的应用[J]. 核技术, 2017, 40(8): 080502. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.080502.
ZHANG Jingyu, MA Yadong, CHEN Yixue, *et al.* Application of Chebyshev rational approximation method in inventory calculation of radioactive nuclides[J]. Nuclear Techniques, 2017, 40(8): 080502. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.080502.
- 郝琛, 赵强, 李富, 等. 先进压水堆燃料组件计算不确定性分析[J]. 核动力工程, 2016, 37(3): 173 - 180. DOI: 10.13832/j.jnpe.2016.03.0173.
HAO Chen, ZHAO Qiang, LI Fu, *et al.* Uncertainty analysis of advanced pressurized water reactor fuel assembly[J]. Nuclear Power Engineering, 2016, 37(3): 173 - 180. DOI: 10.13832/j.jnpe.2016.03.0173.
- 刘勇, 曹良志, 吴宏春, 等. 核数据敏感性与不确定性分析及其在目标精度评估中的应用[J]. 原子能科学技术, 2019, 53(1): 86 - 93. DOI: 10.7538/yzk.2018.youxian.0136.
LIU Yong, CAO Liangzhi, WU Hongchun, *et al.* Nuclear data sensitivity and uncertainty analysis and its

- application in target accuracy assessment[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2019, **53**(1): 86 - 93. DOI: [10.7538/yzk.2018.youxian.0136](https://doi.org/10.7538/yzk.2018.youxian.0136).
- 4 曹良志, 邹晓阳, 刘宙宇, 等. 高保真数值核反应堆不确定度量化方法研究进展[J]. 核动力工程, 2021, **42**(2): 1 - 15. DOI: [10.13832/j.jnpe.2021.02.0001](https://doi.org/10.13832/j.jnpe.2021.02.0001).
CAO Liangzhi, ZOU Xiaoyang, LIU Zhouyu, *et al.* Research progresses of uncertainty quantification methods for high fidelity numerical nuclear reactor[J]. Nuclear Power Engineering, 2021, **42**(2): 1 - 15. DOI: [10.13832/j.jnpe.2021.02.0001](https://doi.org/10.13832/j.jnpe.2021.02.0001).
- 5 Ahmed A, Boukhal H, El Bardouni T, *et al.* Sensitivity and uncertainty analysis on k_{eff} due to nuclear data in the KRITZ-2: 19 - comparison between JENDL-4.0 and ENDF/B-VII.1[J]. Annals of Nuclear Energy, 2019, **129**: 308 - 315. DOI: [10.1016/j.anucene.2019.02.014](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2019.02.014).
- 6 Langton S E, Buijs A, Pencer J. Nuclear data sensitivity and uncertainty for the Canadian supercritical water-cooled reactor II: full core analysis[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, **75**: 635 - 644. DOI: [10.1016/j.anucene.2014.09.017](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.09.017).
- 7 Kim W, Hursin M, Pautz A, *et al.* Determination of the activity inventory and associated uncertainty quantification for the CROCUS zero power research reactor[J]. Annals of Nuclear Energy, 2020, **136**: 107034. DOI: [10.1016/j.anucene.2019.107034](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2019.107034).
- 8 Ilas G, Liljenfeldt H. Decay heat uncertainty for BWR used fuel due to modeling and nuclear data uncertainties [J]. Nuclear Engineering and Design, 2017, **319**: 176 - 184. DOI: [10.1016/j.nucengdes.2017.05.009](https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2017.05.009).
- 9 Eastwood J W, Guy Morgan J. Pathways and uncertainty prediction in fispact-II[C]//SNA + MC 2013 - Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications + Monte Carlo. Paris, France. Les Ulis, France: EDP Sciences, 2014. DOI: [10.1051/snanc/201402403](https://doi.org/10.1051/snanc/201402403).
- 10 石涛. 多种工况下的中子活化计算不确定性分析[D]. 北京: 华北电力大学(北京), 2019.
- SHI Tao. Uncertainty analysis of neutron activation calculations under various conditions[D]. Beijing: North China Electric Power University, 2019.
- 11 Khursheed A. Neutron-induced activation of materials for the first wall of conceptual fusion reactors/Amjad Khursheed[D]. London, UK: University of London, 1989.
- 12 李育文, 易孟林, 罗晓玉, 等. 基于 Gear 算法的一个符号化仿真系统设计原理[J]. 河南科学, 2001, **19**(2): 154 - 156. DOI: [10.13537/j.issn.1004-3918.2001.02.012](https://doi.org/10.13537/j.issn.1004-3918.2001.02.012).
LI Yuwen, YI Menglin, LUO Xiaoyu, *et al.* A symbolism simulation system design theory based on Gear algorithm [J]. Henan Science, 2001, **19**(2): 154 - 156. DOI: [10.13537/j.issn.1004-3918.2001.02.012](https://doi.org/10.13537/j.issn.1004-3918.2001.02.012).
- 13 Radhakrishnan K, Hindmarsh A. Description and use of LSODE, the Livermore solver for ordinary differential equations[R]. Lawrence Livermore National Laboratory, California (USA), 1993.
- 14 耿超, 徐楠, 钱经. 基于有限元与 Gear 算法的变压器绕组振动的理论建模分析[J]. 电工材料, 2017(6): 14 - 18. DOI: [10.16786/j.cnki.1671-8887.eem.2017.06.003](https://doi.org/10.16786/j.cnki.1671-8887.eem.2017.06.003).
GENG Chao, XU Nan, QIAN Jing. Theoretical modeling analysis of transformer winding vibration based on finite element and gear algorithm[J]. Electrical Engineering Materials, 2017(6): 14 - 18. DOI: [10.16786/j.cnki.1671-8887.eem.2017.06.003](https://doi.org/10.16786/j.cnki.1671-8887.eem.2017.06.003).
- 15 Sandu A, Daescu D N, Carmichael G R. Direct and adjoint sensitivity analysis of chemical kinetic systems with KPP: Part I—theory and software tools[J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(36): 5083 - 5096. DOI: [10.1016/j.atmosenv.2003.08.019](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2003.08.019).
- 16 Forrest R A. FISPACT-2007: user manual[R]. EURATOM/UKAEA Fusion Association, Abingdon (UK), 2007.
- 17 Cheng E T, Forrest R A, Pashchenko A B. Report on the second international activation calculation benchmark comparison study[R]. IAEA Nuclear Data Section, Vienna (Austria), 1994.