

Комплекс программ АСТІ для определения изотопного состава и удельной активности облученных конструкционных элементов ядерно-физических установок

И.И. Дегтярев, А.Е. Лоховицкий, М.А. Маслов, И.А. Язынин
ГНЦ РФ Институт физики высоких энергий, Протвино, Россия

Введение

Существование достаточно большого количества действующих ядерно-физических установок, срок эксплуатации которых достигает нескольких десятилетий, ставит проблему снятия их с эксплуатации или реконструкции. Связанные с этим работы по демонтажу, транспортировке и захоронению активированного оборудования регламентируются НРБ и требуют детального прогнозирования уровней остаточного излучения, связанного с радиоизотопным составом облученных материалов.

Широкий спектр энергий частиц, которыми производится облучение (от протонов с энергией в несколько сотен ГэВ до тепловых нейтронов), множественность типов частиц и огромное число каналов трансмутации изотопов, наиболее характерное для высокоэнергетических ядерных реакций, сильно затрудняют предварительный анализ конкретной ситуации для выделения значимых, с точки зрения образования радиоизотопов, процессов и построения частной схемы расчета. Кроме того, согласно последним рекомендациям МКРЗ (публикации 60, 61 [7], значительно понизились значения предельно допустимых концентраций радиоактивных нуклидов, что также требует проведения более качественного активационного анализа. По этим причинам необходимо учитывать при рассмотрении образования радионуклидов все разнообразие процессов, приводящих к трансмутации изотопов.

1. Методы расчета трансмутации изотопов

Процесс трансмутации изотопов описывается системой балансовых обыкновенных дифференциальных уравнений. Для концентрации N_i , где индекс i пробегает все значения от 1 до M (общего числа нуклидов, участвующих в связанных переходах), данная система уравнений имеет следующий вид:

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -N_i \cdot \left(\lambda_i + \sum_k \int_0^{E_0^k} \sigma_i^k(E) \cdot \phi^k(E, t) dE \right) + \sum_{j \neq i} N_j \cdot \left(\lambda_{ji} + \sum_k \int_0^{E_0^k} \sigma_{ji}^k(E) \cdot \phi^k(E, t) dE \right) \quad (1)$$
$$N_i(0) = N_i^0,$$

где $\sigma_i^k(E)$ — общее сечение реакций, приводящих к изменению состава i -го ядра; $\sigma_{ji}^k(E)$ — парциальные сечения реакций образования i -го изотопа из j -х материнских ядер под действием частиц сорта k с энергией E ; λ_i — постоянная распада i -го радионуклида; λ_{ji} — постоянные распада j -х изотопов по каналам, приводящим к образованию i -го нуклида; $\phi^k(E, t)$ — плотность потока частиц сорта k с энергией E , максимальное значение которой E_0^k . Разбивая период облучения материала на ряд временных интервалов (сеансов), в течение которых $\phi^k(E, t) \cong \phi^k(E)$, получаем из

(1) автономную систему уравнений с постоянными коэффициентами, аналитическое решение которой записывается в матричном виде:

$$N(t) = \exp(Ct)N_0, C_{ij} = \begin{cases} - (\lambda_i + \sum_k \int_0^{E_0^k} \sigma_i^k(E) \cdot \phi^k(E) dE) & \text{если } i = j \\ \lambda_{ij} + \sum_k \int_0^{E_0^k} \sigma_{ij}^k(E) \cdot \phi^k(E) dE & \text{если } i \neq j, \end{cases} \quad (2)$$

где $\exp(Ct)$ — матричная экспонента:

$$\exp(Ct) = \sum_{s=0}^{\infty} \frac{C^s t^s}{s!}, C^0 = E. \quad (3)$$

Отметим ряд особенностей системы уравнений (1):

- Практически при любом режиме облучения или выдержки произвольного материала процесс трансмутации изотопов содержит как быстрые, так и медленные составляющие, причем различие между ними может достигать 20 и более порядков. Такой разброс значений элементов матрицы приводит к ее плохой обусловленности [$cond(C) \gg 1$] и дает основание предполагать, что система уравнений (1) является “жесткой”. Математически корректное определение “жесткости” системы уравнений требует вычисления собственных значений λ матрицы C , что является достаточно сложной задачей для матриц большого размера. Обычно для этих целей используют следующий критерий — система ОДУ является “жесткой”, если выполняются неравенства [1]:

$$\|C\|_1^{-1} \ll H, \quad |Sp(C)|^{-1} \ll H, \quad (4)$$

где H — продолжительность сеанса облучения или выдержки; $\|C\|_1$ и $Sp(C)$ — соответственно норма и след матрицы C :

$$\|C\|_1 = \max_{1 \leq i \leq n} \sum_{j=1}^n |c_{ij}|, \quad Sp(C) = \sum_{i=1}^n c_{ii} = \sum_{i=1}^n \lambda_i.$$

Численное интегрирование “жестких” систем любыми явными разностными методами типа Рунге-Куты, Адамса и т.д. [2] приводит к эффекту “взрыва погрешности” при выбранном шаге $h \geq \max(\|C\|_1^{-1}, |Sp(C)|^{-1})$. Данное ограничение сверху на шаг интегрирования может приводить к нереальным временам расчета в тех случаях, когда связанные переходы (комбинированные с ядерными реакциями цепочки радиоактивного распада) содержат нуклиды с сильно отличающимися временами жизни. Следовательно, применение стандартных методов численного интегрирования нежестких систем в задаче трансмутации изотопов неприемлемо.

- Большинство специализированных методов численного интегрирования “жестких” систем уравнений основаны на неявных разностных методах (методы Розенброка, Калахана и т.д. [1]), которые в случае системы с постоянными коэффициентами требуют вычисления обратной матрицы $(E + hC)^{-1}$, где h — шаг

интегрирования; E — единичная матрица. Так как подавляющее большинство элементов матрицы C значительно меньше 1, обращение данной матрицы производится с большой погрешностью, которая растет при увеличении ее размера и при уменьшении шага интегрирования. Использование арифметики с плавающей точкой двойной точности для задач трансмутации изотопов не снимает этой проблемы (например, при радиоактивном распаде ядер U^{235} $C_{ii} = 3 \cdot 10^{-17}$, и в случае малого h даже операция суммирования диагональных элементов матрицы E и hC уже проходит на грани допустимой “машинной” точности при использовании ЭВМ с 64-разрядной сеткой).

Отмеченная специфика задачи трансмутации изотопов ограничивает применимость разностных методов численного интегрирования систем ОДУ, что делает их непригодными для построения универсальной расчетной схемы.

Прямое использование аналитического решения (2) при больших временах и плохой обусловленности матрицы C приводит к неоправданным количествам слагаемых при вычислении экспоненциала и высокой погрешности. Для решения системы уравнений (1) в активационном комплексе АСТИ была применена рекуррентная схема вычисления $\exp(Ct)$, которая дает удовлетворительные результаты даже в случае ярко выраженной “жесткости” системы уравнений (1) в широком диапазоне интервалов времени h .

Для построения рекуррентной схемы вычисления $\exp(CH)$, где H — продолжительность сеанса облучения, интервал H разбивается на ряд произвольных равномерных отрезков h . Тогда концентрации изотопов в каждый дискретный момент времени $t_n = nh$, $n = 0, 1, \dots$ определяются по формуле

$$N_{n+1} = \exp(Ch)N_n, \quad n = 0, 1, \dots \quad (5)$$

Для вычисления экспоненциала $\exp(Ch)$ строится дополнительное рекуррентное матричное соотношение. Выбирается такой шаг h' , который бы удовлетворял следующим условиям:

$$h' = \frac{h}{2^K}, \quad h' \ll \min(\|C\|^{-1}, |Sp(C)|^{-1}),$$

где K — произвольное целое число. Вычислив по (3) $\exp(Ch')$, можем найти $\exp(Ch)$, применяя последовательно формулы

$$\exp(2Ch') = \exp(Ch') \exp(Ch'),$$

...

$$\exp(2^K Ch') = \exp(2^{K-1} Ch') \exp(2^{K-1} Ch').$$

Запишем эти уравнения в виде рекуррентного матричного соотношения:

$$\phi_{k+1} = \phi_k^2, \quad \text{где } \phi_k = \exp(2^k Ch'), \quad k = 0, 1, \dots, K-1; \quad (6)$$

Таким образом, можно выбрать настолько малую величину h' , что обеспечивается сколь угодно высокая точность представления $\exp(Ch')$ разложением (3) с малым числом членов (s). С другой стороны, использование рекуррентных соотношений (5)

и (6) при решении системы (1) значительно уменьшает число шагов интегрирования для заданного интервала H :

$$\frac{H}{h} = 2^{-K} \frac{H}{h'},$$

что снимает проблему “больших времен” в произвольных смесях изотопов. Оценка относительной погрешности численной схемы решения системы уравнений (1) производится по правилу Рунге: сравниваются результаты, полученные для шага $h'(K)$ и $h'/2(K+1)$.

В качестве показательного процесса трансмутации изотопов с ярко выраженной “жесткостью” системы уравнений (1) выбран спонтанный распад ядер U^{235} , где в связанных переходах участвуют как короткоживущие, с периодом полураспада $T_{1/2} < 1 \text{сек}$ (Po^{211} , Po^{215}), так и долгоживущие (Pa^{231} , U^{235}) радионуклиды. Кроме того, длина цепочки переходов урана составляет более 10 звеньев, что также может продемонстрировать надежность расчетного метода при “экстремальной” ситуации.

На рис.1 приведена расчетная зависимость концентраций ядер Pb^{211} (8 звеньев¹), Th^{227} (4 звена) и Pa^{231} (2 звена), образовавшихся при спонтанном распаде “чистого” U^{235} в течение 10000 лет, от шага интегрирования h (сплошные горизонтальные линии — точное аналитическое решение).

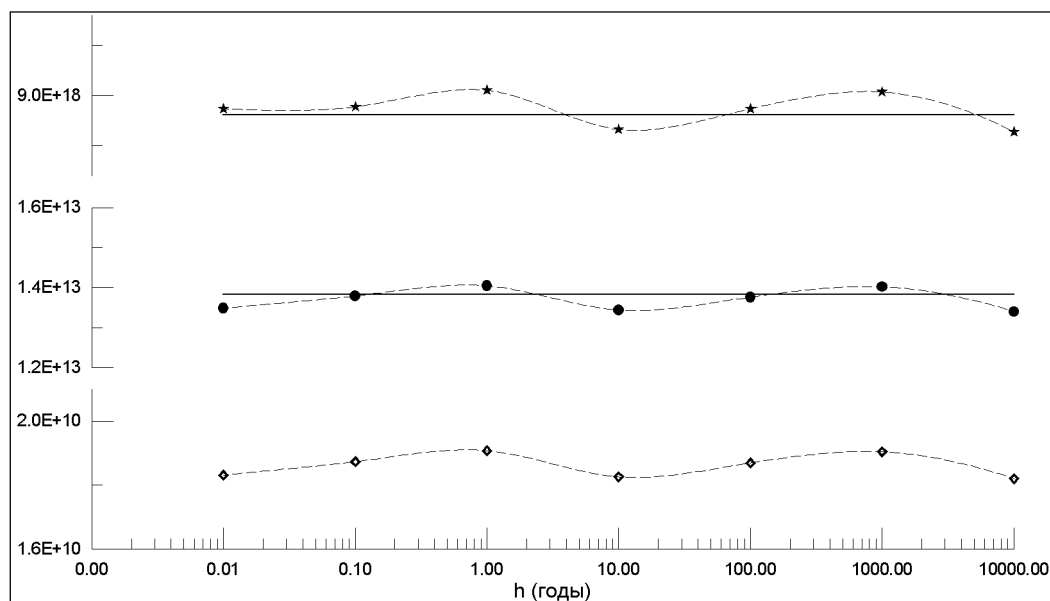


Рис. 1: Зависимость расчетных концентраций ядер Pb^{211} (\diamond), Th^{227} (\bullet) и Pa^{231} (\star) от шага интегрирования h при распаде “чистого” U^{235} в течении 10000 лет.

¹Удаленность от вершины переходов.

2. Константное обеспечение комплекса

Распадная библиотека комплекса содержит 2438 изотопов, радиационные характеристики которых скомпилированы на основе данных ENDF/B-VI [3] и справочника [4].

Парциальные сечения неупругого взаимодействия высокоэнергетичных адронов с энергией $E \geq 100$ МэВ на ядрах $9 \leq A_t \leq 209$ рассчитываются по многопараметрической аппроксимации Зильберберга и Тсао:

$$\sigma = \sigma_0 f(A_p) f(E) e^{-P \Delta A} \exp \left(-R \left| Z_p - S A_p + T A_p^2 + U A_p^3 \right|^\nu \right) \Omega \mu \xi. \quad (7)$$

В соответствии с классификацией неупругих реакций по степени расщепления ядра-мишени для расчета значений параметров уравнения (7) используются различные зависимости [5-6]. Для получения общих сечений неупругого взаимодействия σ_{in} применяется аппроксимация Letaw [6]:

$$\sigma_{in}(E) = 45 A_t^{0.7} [1 + 0.016 \sin(5.3 - 2.63 \ln A)] \cdot \left[1 - 0.62 e^{-E/200} \sin(10.9 E^{-0.28}) \right]. \quad (8)$$

Библиотека активационных сечений комплекса АСТІ для низкоэнергетичных нейтронов ($E \leq 20$ МэВ) скомпилирована на основе оцененных поточечных баз данных ENDF/B-VI, EAF-4 и JENDL-2. Выходы осколков деления тяжелых элементов в ядерных реакциях и при спонтанном распаде соответствуют данным библиотеки ENDF/B-VI [3].

Список литературы

- [1] Ю.В.Ракитский, С.М.Устинов, И.Г.Черноруцкий. Численные методы решения жестких систем. — М.: Наука, 1979.
- [2] В.В.Иванов. Методы вычислений на ЭВМ. Справочное пособие. — Киев, Наукова Думка, 1986.
- [3] ENDF-102. Data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF-6. July 1990, Revised October 1991, BNL-NCS 44945.
- [4] Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения. Рекомендации МКРЗ. 1-4 т., Энергоатомиздат, 1987.
- [5] R.Silberberg, C.H.Tsao. Partial Cross-Sections in High-Energy Nuclear Reactions and Astrophysical Applications. — The Astrophysical Journal Supplement Series, supplement number: 220, vol.25, 1973.
- [6] R.Silberberg, C.H.Tsao. Spallation processes and nuclear interaction products of cosmic rays. Physics reports, A Review Section of Physics Letters, vol.191, № 6, August 1990.
- [7] Рекомендации Международной комиссии по радиологической защите. Публикации 60-61 от 1990 г. — Москва, Энергоатомиздат, 1994.