

УДК 519.63:539.17

Расчет изотопного состава реакторных установок при моделировании процессов выгорания и остаточного энерговыделения ядерного топлива в программном комплексе CONCORD

Дается описание программного модуля, предназначенного для расчета процесса ядерной кинетики в реакторных установках на тепловых и быстрых нейтронах, который входит в состав программного комплекса CONCORD. Приводятся источники данных модуля, описываются используемые методы и модели расчета.

С. В. Мжачих, А. В. Алексеев,
А. Н. Гребенников, Е. А. Гусев,
А. А. Ермаков, Е. А. Ириничев,
С. С. Касаткин, Н. А. Крутько

Введение

Состав топлива энергетического или специального ядерного реактора претерпевает непрерывные изменения из-за радиоактивных распадов его компонент и превращений, обусловленных взаимодействиями нейтронов с этими компонентами: реакций радиационного захвата нейтронов, процессов нейтронного размножения ($n, 2n$) и ($n, 3n$), реакций с вылетом заряженных частиц.

В процессе работы реактора в составе уранового топлива образуются новые активно делящиеся тяжелые изотопы, например долгоживущие атомы ^{241}Pu , $^{242\text{m}2}\text{Am}$, ^{243}Cm , и атомы ^{233}U , ^{236}Np , ^{239}Pu , ^{245}Cm , которые на практике можно считать стабильными. Эти ядра вносят свой вклад в энерговыделение, и учет их накопления необходим для правильного прогнозирования характеристик реактора на разных этапах его работы. Крайне важным является также знание изотопного состава выгружаемого отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Так, например, содержащиеся в ОЯТ актиноиды ^{232}U , $^{242, 244}\text{Cm}$ в большей степени определяют радиационный фон вблизи отработанной ТВС [1]. Если интерес представляет нейтронная активность ОЯТ по процессу спонтанного деления, то требуется информация о концентрации изотопов $^{242, 244, 246}\text{Cm}$, ^{252}Cf . Согласно [1] для реактора ВВЭР-1000 их вклад составляет около 97 %.

Еще одна причина изменения первоначального состава топлива – реакции деления актиноидов нейтронами, в результате которых накапливаются осколки деления. В самом общем представлении продукты деления можно разбить на две категории: осколки-шлаки и выделенные осколки. Выделенные осколки, в свою очередь, можно разделить на три группы: изотопы-отравители, экологически опасные изотопы и изотопы – источники запаздывающих нейтронов деления.

К отравителям относят осколки, имеющие значительное сечение радиационного захвата. Такие ядра образуются в результате деления актиноидов, нейтронно-ядерных (Н-Я) и радиоактивных превращений самих осколков. Они способны оказывать существенное влияние на формирование пространственно-энергетического распределения поля нейтронного потока в активной зоне реакторной установки, особенно в режимах изменения мощности реактора. Например, к этой группе могут быть отнесены изотопы ^{105}Rh , ^{135}Xe , ^{149}Sm , активно поглощающие тепловые нейтроны.

Экологически опасные осколки имеют значительный выход γ -излучения, поэтому должны учитываться в задачах обоснования безопасного обращения с ОЯТ при его хранении, транспортировании и переработке. Примером таких осколков могут служить атомы ^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{125}Sb , ^{137}Cs , $^{137\text{m}}\text{Ba}$, ^{144}Ce , $^{154, 155}\text{Eu}$, дающие наибольший вклад в гамма-фон ОЯТ [1]. Экологически опасные осколки могут быть отделены при регенерации ОЯТ для дальнейшего захоронения или трансмутации.

Так называемые запаздывающие нейтроны (ЗН) деления рождаются при радиоактивном преобразовании ядер-осколков. Точнее, для некоторых осколков процесс β^- -распада сопровождается испусканием одного или нескольких нейтронов. Например, для изотопа ^{92}As , по данным библиотеки ENDF/B-7.1, существует канал β^- -распада с образованием четырех нейтронов. Все осколки этого типа являются короткоживущими с периодом полураспада τ от нескольких миллисекунд (например, для ^{100}Kr $\tau = 7$ мс) до нескольких десятков секунд (для ^{87}Br $\tau = 55,65$ с).

Накопление осколков-шлаков ведет к снижению запаса реактивности и определяет период возможной работы реактора без перегрузки топлива. К группе осколков-шлаков можно отнести, например, стабильные атомы ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , $^{105, 108}\text{Pd}$, ^{109}Ag , $^{131, 134, 136}\text{Xe}$, ^{133}Cs , ^{141}Pr , $^{143, 144, 145}\text{Nd}$, ^{152}Sm и долгоживущий изотоп ^{147}Pm . Эти изотопы вместе с уже упоминавшимся стабильным изотопом ^{149}Sm вносят заметный вклад в общее макросечение среды на конечной стадии кампании реакторной установки.

Требования к точности численного моделирования изотопной кинетики в настоящее время возрастают. Это связано с тенденцией увеличения глубины выгорания актиноидов как для штатного диоксид-уранового топлива, так и для перспективных видов керамического топлива. Появление компьютеров с возможностью параллельной и векторной обработки данных, а также усложнение расчетных моделей ставят перед математиками задачу разработки новых эффективных методов расчета процесса кинетики ядер [2].

Программный комплекс CONCORD [3] разрабатывался для проведения двумерных ячеечных многогрупповых расчетов ядерных реакторов и эволюции их физических характеристик, связанных с изменением нуклидного состава топлива в процессе его выгорания. В настоящее время расчет кинетики изотопов в комплексе CONCORD осуществляется программным модулем, получившим название КРИСТАЛЛ (Код Расчета Изотопного Состава ТВС).

Модуль КРИСТАЛЛ может быть использован для расчета тепловых и быстрых реакторов. Основные задачи модуля:

- нестационарный расчет изотопного состава ТВС на стадии критичности реактора при известном поле нейтронной плотности;

- расчет нестационарного источника ЗН деления в топливных стержнях (ТВЭЛ, ТВЭГ) на стадии критичности реактора;
- нестационарный расчет изотопного состава и остаточного энерговыделения (тепловыделения) для отработанных ТВС;
- нестационарный расчет источников нейтронного и γ -излучения для отработанных ТВС. Работа по расчету источника γ -излучения еще не завершена.

Рассчитываемые процессы радиоактивного преобразования ядра

В модуле КРИСТАЛЛ учитываются следующие радиоактивные процессы:

- распад с эмиссией электрона (β^- -распад);
- распад с эмиссией электрона и одного или нескольких нейтронов ($\beta^- n, \dots, \beta^- 4n$);
- распад с эмиссией позитрона (β^+ -распад) или захват ядром электрона с оболочки (ec);
- изомерный переход (it);
- распад с эмиссией α -частицы (α -распад);
- распад с эмиссией протона (p -распад);
- распад с эмиссией нейтрона (n -распад, свойственный легким ядрам);
- спонтанное деление (sf) с образованием ядер-осколков, нейтронов и γ -квантов.

Основными источниками данных о распадах ядер являются библиотеки оцененных данных ENDF/B-7.1 и JEF-3.1.1, причем в указанном порядке с точки зрения приоритета данных. При отсутствии каких-либо данных в этих библиотеках они берутся из библиотек JENDL-4 или ROSFOND.

С помощью специально разработанных программных средств из библиотек оцененных данных читается необходимая информация, которая затем помещается в соответствующие текстовые файлы. На текущий момент эти файлы содержат:

1. Общие данные о радиоактивных процессах (для 3742 изотопов и изомеров от ^1H до ^{260}Fm , включая стабильные, – библиотеки ENDF/B-7.1, JEF-3.1.1).
2. Число нейтронов процесса sf (имеются данные для 28 атомов актиноидов из библиотек ENDF/B-7.1, JEF-3.1.1).
3. Спектр нейтронов процесса sf (имеются данные только для ^{252}Cf).
4. Независимые (прямые) выходы осколков процесса sf (на данном этапе исследования требуются данные только для ^{242}Cm из JEF-3.1.1);
5. Спектр ЗН деления χ_k^{dn} (имеются данные для 289 короткоживущих атомов-осколков).

В файле с общими данными (см. п. 1) имеются:

- период полураспада τ_k (с) и число процессов $\hat{i}_k$ для ядра k ;
- доля C_k^i процесса i в одном акте преобразования ядра k ($\sum_{i=1}^{\hat{i}_k} C_k^i = 1$);
- уровень возбуждения ядра-потомка k' (0, 1, 2) для процесса i на ядре k ;
- калорийность E_k^i (МэВ) процесса i ;
- целое число нейтронов ν_k^i (0, 1, 2, 3, 4), образуемых на процессе i .

Рассчитываемые нейтронно-ядерные процессы

В модуле КРИСТАЛЛ учитываются следующие основные процессы Н-Я взаимодействия:

- нейтронные захваты: (n, γ) , (n, α) и др.;
- деление ядра (f) нейтроном с образованием ядер-осколков, нейтронов и γ -квантов;
- упругое нейтронное рассеяние (el).

Процесс упругого рассеяния не меняет концентрации изотопов, но в модуле КРИСТАЛЛ происходит подсчет актов данного процесса. Если нейтронный спектр захватывает область больше ~ 5 МэВ, то список процессов нужно дополнить так называемыми пороговыми процессами:

- нейтронное размножение: $(n, 2n)$, $(n, 3n)$;
- захват нейтрона с эмиссией быстрого иона: (n, p) , (n, α) и др.;
- неупругого нейтронного рассеяния: (n, n') , $(n, n'p)$, $(n, n'\alpha)$ и др.

В качестве источника данных для расчета Н-Я процессов используются современные библиотеки оцененных данных: ENDF/B-6, ENDF/B-7.1, JEF-3.1.1, JENDL-4, ROSFOND. Для сравнительных расчетов константы могут быть подготовлены на базе старых данных (ENDL-82 и т. п.). Далее оцененные данные преобразуются в групповые. В расчетах по комплексу CONCORD единственным источником групповых констант взаимодействий нейтронов с разными сортами атомов является архив GEMUS [4]. Модулю КРИСТАЛЛ для расчета требуются следующие данные об изотопах, сохраняемые в библиотеке архива:

- сечения процессов, заданные на сетке по температуре T атомов и на сетке по сечению разбавления σ_0 ;
- калорийности процессов, из которых в дальнейшем получают энерговыделение (кинетическую энергию вторичных атомов). Включать или нет энергию высвобождаемых γ -квантов в это энерговыделение, зависит от модели расчета.

Точнее, на вход модуля КРИСТАЛЛ подаются массивы групповых сечений и энерговыделения для всех типов атомов и всех веществ (пространственных зон) задачи, т. е. вопросы интерполяции сеточных величин решаются в вызывающей программе.

Для расчета концентрации ядер, которые являются продуктами реакции деления, необходима информация о прямых выходах (ПВ) осколков. Значения выходов выбираются из библиотек оцененных данных и сохраняются в текстовых файлах комплекса CONCORD. Данные задаются для трех значений энергии нейтрона (0,0253 эВ, 500(400) кэВ, 14 МэВ). В настоящее время в модуле КРИСТАЛЛ используются данные для 29 делящихся изотопов.

Разным сортам делящихся ядер соответствует разное число атомов-осколков. Например, в библиотеке ENDF/B-7.1 минимальное число атомов-осколков, равное 966, приходится на изотоп ^{227}Th , тогда как максимум, равный 1208, соответствует изотопу ^{239}Pu . Сумма ПВ ядер-осколков равна 2. В библиотеках JEF-3.1.1 и JENDL-4 имеются выходы для легких изотопов с относительной массой $A \leq 6$ (возможен ^{21}Ne), при этом сумма ПВ ядер-осколков немного больше 2.

Данные с описанием рассчитываемых Н-Я процессов вносят вручную в отдельный текстовый файл комплекса CONCORD. Заметим, что для некоторых Н-Я реакций можно задавать несколько каналов протекания, отличающихся числом и типом вторичных частиц.

Уравнения и метод их решения

Если учитывать самое широкое множество Н-Я и радиоактивных процессов, то связь между типами атомов становится очень сложной и носит неявный характер, т. е. для расчета концентрации определенного типа атомов требуется знать концентрацию как атомов-предшественников, так и атомов-потомков. Однако если пренебречь некоторыми процессами, например пороговыми реакциями $(n, 2n)$, $(n, 3n)$, (n, p) , (n, α) , которые практически не сказываются на работе тепловых реакторов, а также исключить из рассмотрения кинетику процессов α - и β^+ -распадов, то система становится явной и допускает аналитическое решение.

Заметим, что среди продуктов деления только некоторые атомы могут распадаться с испусканием α -частицы (^{144}Nd , ^{146}Sm , ^{152}Gd). Однако для них период полураспада настолько велик, что позволяет рассматривать их в расчете как стабильные. Что касается актиноидов, то в практических расчетах кампании достаточно учитывать α -распад лишь для изотопов ^{242}Cm ($\tau = 162,79$ сут), ^{243}Cm ($\tau = 29,1$ год), ^{244}Cm ($\tau = 18,1$ год), концентрация которых в составе топлива мала. Заметим также, что концентрация изотопов $^{238-240}\text{Pu}$ мало зависит от процесса распада упомянутых изотопов Cm, поэтому собственно кинетику α -распада, т. е. превращения изотопов Cm в изотопы Pu, можно не учитывать. Процесс β^+ -распада также не относится к основным, так как он, как правило, характерен для атомов, образованных в реакции $(n, 2n)$. Отметим, что для реакторов на быстрых нейтронах роль пороговых процессов значительно возрастает.

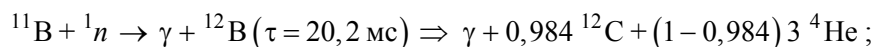
В модуле КРИСТАЛЛ задача расчета изотопной кинетики формулируется в полной постановке, т. е. с учетом неявной зависимости между атомами. В пространственной точке (зоне) решается следующая система дифференциальных уравнений:

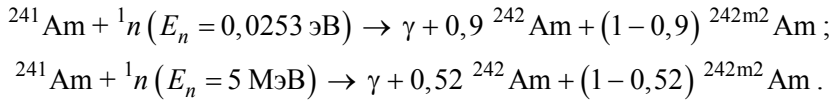
$$\frac{\partial \varphi_k}{\partial t} = \sum_{k'} \varphi_{k'} \lambda_{k'} Y_{k' \rightarrow k} + \sum_{k'} \varphi_{k'} \sum_g \psi_g \sum_{p_{k'}} \sigma_{k',g}^{p_{k'}} Y_{k' \rightarrow k,g}^{p_{k'}} - \varphi_k \left(\lambda_k + \sum_g \psi_g \sigma_{k,g}^t \right) + \left\{ Q_k^{fp} \text{ для осколков} \right\}, \quad k=1, \dots, \hat{k}. \quad (1)$$

Здесь φ_k – концентрация атомов сорта k , 10^{24} см^{-3} ; $\lambda_k = \tau_k^{-1} \ln 2$ – временная постоянная распада атома k , с^{-1} ; ψ_g – плотность потока нейтронов группы g , $10^{24} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$; $Q_k^{fp} = \sum_g \psi_g \sum_{k'} \varphi_{k'} \sigma_{k',g}^f Y_{k' \rightarrow k,g}^f$ – источник ядра-осколка сорта k (по делению всех ядер k'), $10^{24} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$; $Y_{k' \rightarrow k,g}^f$ – выход (эффективный) ядер-осколков сорта k в одном акте деления ядра сорта k' нейтроном группы g ; $Y_{k' \rightarrow k,g}^{p_{k'}}$ – выход ядер сорта k в одном акте процесса $p_{k'}$ -взаимодействия нейтрона группы g с ядром сорта k' ; $Y_{k' \rightarrow k}$ – выход ядер сорта k в одном акте преобразования ядра k' ; $\sigma_{k',g}^{p_{k'}}$ – сечение процесса $p_{k'}$ -взаимодействия нейтрона группы g с ядром сорта k' , 1 барн = 10^{-24} см^2 ; $\sigma_{k,g}^f$, $\sigma_{k,g}^t$ – соответственно сечение деления и полное сечение изотопа сорта k .

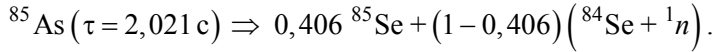
Сделаем некоторые замечания касательно величин, участвующих в записи уравнения (1).

1. Значения $Y_{k' \rightarrow k,g}^{p_{k'}}$ не всегда равны 1, и в общем случае $Y_{k' \rightarrow k,g}^{p_{k'}}$ имеет энергетическую зависимость. Приведем примеры таких процессов (символ $\Rightarrow$ означает распад изотопа):





2. Значения $Y_{k' \rightarrow k}$ также не всегда равны 1. В качестве примера можно привести распад ^{12}B (см. выше). Еще один пример:



3. При расчете $\sigma_{k',g}^t$ и второго слагаемого в правой части уравнения (1) учитывается процесс упругого рассеяния нейтрона. Этот процесс не меняет концентрации атомов, для него $Y_{k \rightarrow k,g}^{\text{sel}} \equiv 1$, и, как видно из уравнения (1), при расчете второго слагаемого правой части равенства его можно не принимать во внимание. В этом случае при расчете третьего слагаемого нужно из полного сечения $\sigma_{k,g}^t$ вычесть сечение рассеяния $\sigma_{k,g}^{\text{sel}}$.

В расчетах задач реакторной кинетики следует учитывать, что некоторая часть атомов изотопного состава ТВС находится в изомерном состоянии. Изомеры образуются как непосредственно при делении ядер, так и в результате Н-Я процессов и распадов. Сейчас имеются данные для расчета некоторых атомов с первым и вторым уровнем возбуждения ядра. Обратим внимание на то, что для медленных нейтронов вероятность образования изомера в процессе (n, γ) слабо зависит от энергии и может быть представлена в расчете константой. Однако в общем случае (особенно это касается пороговых процессов) вероятность следует задавать групповым вектором.

Дифференциальная система уравнений (1) относится к жесткому типу. Строгого определения понятия жесткости нет, но обычно под ним подразумевают наличие как быстро затухающих, так и медленно меняющихся компонент решения [5]. В рассматриваемом случае жесткость является следствием широкого диапазона значений для периода полураспада.

Жесткие системы достаточно трудны для численного решения и требуют специальных методов. В модуле КРИСТАЛЛ система уравнений вида $d\vec{\phi}/dt = A\vec{\phi}$ решается с помощью разностной схемы Розенброка, обобщенной Ваннером. Выбор этого метода (ROW-метода) обусловлен рекомендацией из работы [5]. Схема относится к классу устойчивости L1. В общем случае формулы перехода от слоя $t = t^n$ к слою $t = t^{n+1} = t^n + \tau$ записываются следующим образом:

$$\vec{\phi}^{n+1} = \vec{\phi}^n + \tau \sum_{i=1}^s \beta_i \vec{k}_i, \quad (E - \tau \gamma_{ii} A) \vec{k}_i = A \left(\vec{\phi}^n + \tau \sum_{j=1}^{i-1} \alpha_{ij} \vec{k}_j \right) + \tau A \sum_{j=1}^{i-1} \gamma_{ij} \vec{k}_j, \quad i=1, \dots, s. \quad (2)$$

Здесь E – единичная матрица, s – число стадий схемы. Полагаем, что на интервале $[t^n, t^{n+1}]$ матрица A от t не зависит.

В модуле КРИСТАЛЛ реализован вариант двухстадийной ($s = 2$) и трехпараметрической схемы (2) с ошибкой аппроксимации вида $O(\tau^2)$. Решение для такой разностной схемы:

$$\vec{\phi}^{n+1} = \vec{\phi}^n + \tau ((1-b) \vec{k}_1 + b \vec{k}_2).$$

Вычисление векторов $\bar{k}_1$ и $\bar{k}_2$ сводится к последовательному решению двух систем линейных уравнений:

$$\begin{aligned} R_1 \bar{k}_1 &= z, \quad \text{где } z = A\bar{\varphi}^n; \quad R_1 = E - \tau\gamma_{11} A \\ R_2 \bar{k}_2 &= (1 - \chi)z + \chi\bar{k}_1, \quad \text{где } \chi = \frac{a + \gamma_{21}}{\gamma_{11}}; \quad R_2 = E - \tau\gamma_{22} A. \end{aligned} \quad (3)$$

Для расчета коэффициентов используем следующие формулы:

$$\gamma_{11} = c, \quad \gamma_{22} = \frac{1 - 2c}{2(1 - c)}, \quad \gamma_{21} = \frac{1 - 2c}{2b} - \frac{2c^2 - 4c + 1}{2(1 - c)} - a,$$

где a, b, c – параметры схемы. На сегодняшний день в модуле КРИСТАЛЛ реализованы три схемы с различными наборами коэффициентов, для которых $R_1 = R_2$:

- 1) схема Розенброка: $a = 2^{1/2}$; $b = (1 - 2^{-1/2})/2$; $c = 1 - 2^{-1/2}$ ($\gamma_{21} = 0$; $\gamma_{22} = \gamma_{11}$);
- 2) схема Ваннера: $a = 1$; $b = 1/2$; $c = 1 + 2^{-1/2}$ ($\gamma_{21} = -c/b$; $\gamma_{22} = \gamma_{11}$);
- 3) схема Калиткина: $a = -3^{-1/2}$; $b = 1$; $c = 1 + 2^{-1/2}$ ($\gamma_{21} = 1/2 - c - a$; $\gamma_{22} = \gamma_{11}$).

Специальным упорядочиванием изотопов добиваемся того, чтобы верхняя треугольная часть матрицы A стала сильно разреженной, причем ее редкие ненулевые элементы были бы малы. Эти элементы отвечают процессам $(n, 2n)$, (n, p) , (n, α) , а также β^+ - и α -распадам на атомах-предшественниках. Как правило, эти процессы не определяют значений концентраций долгоживущих ядер. Таким образом, матрицы R_1 и R_2 , которые в используемых нами разностных схемах не отличаются, близки к треугольным, поэтому для расчета систем (3) эффективен итерационный метод Зейделя.

Кинетика актиноидов

Рассмотрим множество изотопов и изомеров, которое рассчитывается с помощью модуля КРИСТАЛЛ. Изменение во времени нейтронно-физических свойств активной зоны определяется главным образом эволюцией изотопного состава топливных стержней. Изотопы, относящиеся к актиноидам, претерпевают серьезные превращения из-за взаимодействия с нейтронным потоком, при этом образуются новые изотопы актиноидной группы, стабильные и нестабильные, и атомы – продукты деления. Помимо расчета изотопного состава топлива интерес может представлять расчет *выгорания* стабильных изотопов – сильных поглотителей тепловых нейтронов, таких как ^{10}B , ^{113}Cd , ^{151}Eu , $^{155, 157}\text{Gd}$, ^{164}Dy , которые представлены в материалах СВП и регулирующих стержней. Заметим, что в топливных стержнях и стержнях ПЭЛ могут «нарабатываться» другие долгоживущие изотопы-поглотители, например ^{149}Sm (стабильный), ^{151}Sm , $^{152, 155}\text{Eu}$.

Для расчета кинетики изотопов топлива в модуле КРИСТАЛЛ используется стандартная цепочка U-Np-Pu-Am-Cm из 50 сортов атомов, относящихся к урановому типу. Для расчета более дальних (тяжелых) актиноидов к указанной цепочке могут быть добавлены изотопы Bk, Cf, Fm. В расчетах реакторов с ториевым топливом могут быть учтены также изотопы Th и Pa. Таким образом, полная цепочка рассчитываемых изотопов и изомеров химических элементов от Th до Fm насчитывает примерно 100 типов атомов.

В зависимости от класса решаемой задачи цепочки актиноидов могут быть сокращены. Например, при расчете реакторов на тепловых нейтронах это можно сделать за счет нуклидов, образующихся на двойном процессе $(n, 2n)$. Однако и здесь надо учитывать специфику задачи. Так, если после расчета кампании требуется провести расчет радиационного фона ОЯТ, то изотоп ^{232}U является важным и его следует оставить в цепочке.

В модуле КРИСТАЛЛ имеется возможность расчета кинетики ядер в каждом топливном стержне и при необходимости в каждом стержне ПЭЛ. При этом для каждого вещества i в каждом стержне j используется свое значение плотности нейтронного потока $\psi_{i,j}$, полученное усреднением по соответствующим пространственным точкам. Для расчета стержней применяются методы параллельной обработки данных.

Кинетика продуктов деления

Недавно в модуле КРИСТАЛЛ появилась новая возможность расчета атомов топлива. Теперь эффективные осколки-шлаки и цепочки выделенных осколков могут замещаться системой атомов – продуктов деления. Новая модель обладает рядом достоинств по сравнению с традиционным способом расчета.

Во-первых, модель позволяет рассчитывать эволюцию Н-Я свойств осколков деления, тогда как характеристики взаимодействия нейтронов с эффективными осколками-шлаками статичны.

Во-вторых, появляется возможность расчета темпа тепловыделения осколков непосредственно по их концентрации, что позволяет решать задачу остаточного энерговыделения ТВС. Используется формула

$$W(\vec{r}, t) = \sum_k \phi_k^{fp}(\vec{r}, t) \lambda_k \sum_i C_k^i E_k^i,$$

где ϕ_k^{fp} – концентрация осколка сорта k ; E_k^i – калорийность процесса распада i для атома k .

Как уже говорилось, имеются данные о выходах более 1000 осколков. Однако использовать все эти атомы в расчете не всегда разумно. В настоящее время для расчета системы осколков разработаны несколько моделей, согласованных между собой и отличающихся размерностью системы дифференциальных уравнений.

Самая полная модель, которую авторы называли FULL, включает в себя атомы от ^{67}Fe до ^{174}Yb с кумулятивным выходом (КВ) $Y^{\text{cum}} \geq 10^{-8}$ для всех актиноидов и энергией нейтронов $E_n \leq 500$ кэВ. Теперь из множества модели FULL исключим те изотопы и изомеры, период полураспада которых меньше 5 секунд. Новое множество вместе с моделью его расчета назовем 5s. Аналогично получаем модели 50s ($\tau > 50$ с), 10m ($\tau > 10$ мин), 33m ($\tau > 33$ мин). После нескольких численных экспериментов оптимальной для расчета кампании ТВС реактора типа ВВЭР признана модель 10m.

Все сорта атомов, которые рассчитываются в модуле КРИСТАЛЛ, можно условно разделить на следующие типы в зависимости от полноты исходных данных:

- 1) *полный* изотоп (изомер): имеются данные о радиоактивном преобразовании ядра, нейтронные сечения и калорийности Н-Я процессов, энергоугловое распределение вторичных нейтронов;
- 2) *неполный* изотоп (изомер): отсутствуют данные об энергоугловом распределении, а данные по сечениям относятся только к процессам поглощения нейтрона;
- 3) *пустой* изотоп (изомер): имеются данные только о радиоактивном преобразовании ядра;
- 4) эффективные легкий и тяжелый осколки-шлаки: не имеют данных о распаде.

В табл. 1 приведено количество рассчитываемых атомов-осколков для каждой из перечисленных выше моделей. При этом легкие ядра-осколки (их примерно 20), данные о которых есть в библиотеках JEF-3.1.1 и JENDL-4, не учитываются. В таблице учтены как атомы, непосредственно рожденные в процессе деления, так и атомы, которые образуются только в результате радиоактивных процессов (для них ПВ нулевой, но есть КВ).

Таблица 1

Число рассчитываемых сортов атомов-осколков в разных моделях

Тип изотопа/Модель	33m	10m	50s	5s	FULL
Полный	209	209	209	209	209
Неполный	104	104	104	104	104
Пустой	60	101	210	349	713
Всего	373	414	523	662	1026

Исследования показали, что можно директивно присвоить неполный тип многим изотопам-осколкам, которые имеют данные по энергоугловому распределению вторичных нейтронов. На точности расчета нейтронного переноса это практически не сказывается, но позволяет значительно экономить размер используемой программой оперативной памяти. Заметим, что в расчете общего макросечения среды, требуемого при моделировании кинетики нейтронов, учитываются сечения всех осколков (полного и неполного типов).

Как видно из табл. 1, модели отличаются числом пустых изотопов. В расчетах кампании ТВС реактора типа ВВЭР-1000 множество из 209 полных изотопов можно без видимой потери точности расчета сократить до 110 атомов. Установлено, что на оставшиеся полные изотопы приходится не меньше 0,999 от числа всех Н-Я актов на всех 313 осколках деления, причем это утверждение истинно для любого момента времени кампании и не зависит от типа ТВС.

Как уже было сказано, разработанные модели расчета осколков являются согласованными. Поясним, что под этим подразумевается.

Во-первых, для всех моделей сумма ПВ всех осколков есть константа (2 без учета легких ядер). При переходе от сложной модели к более простой выход (ПВ или КВ) исключаемых ядер перераспределяется среди ядер из рассчитываемого множества. Вводится понятие эффективного выхода (ЭВ) осколка. В простейших случаях ЭВ совпадает с ПВ или КВ, но в общем случае ЭВ задается формулой, в которой операндами являются ЭВ атомов-предшественников. Формула может быть универсальной для нескольких элементов множества, но может быть и уникальной.

Во-вторых, при исключении ядра могут возникать новые эффективные радиоактивные процессы для ядер-предшественников. Калорийности таких процессов учитывают калорийности процессов исключенного ядра. То же самое можно сказать и о числах рождаемых легких частиц (n, p, α).

В-третьих, для согласования моделей был пересчитан КВ для всех ядер-осколков. Дело в том, что данные КВ библиотеки ENDF/B-7.1 не согласованы с данными ПВ (возможно, КВ откорректирован для какой-то конкретной расчетной модели). Использование данных КВ библиотеки приводило к тому, что результаты расчетов остаточного энерговыделения ТВС по разным моделям для большого времени охлаждения не совпадали.

Для создания и редактирования моделей была разработана специальная интерактивная программа MODELER с графическим интерфейсом, которая позволяет рассчитывать ЭВ и параметры эффективных процессов, а также пересчитывать значения КВ.

Прямой метод расчета источника запаздывающих нейтронов деления

Традиционно данные о ЗН деления читались из соответствующих файлов библиотек оцененных данных. Эти данные отсортированы по так называемым группам запаздывания. В библиотеке ENDF/B-7.1 групп запаздывания 6, в библиотеке JEF-3.1.1 – 8. Каждой группе соответствует некоторое множество короткоживущих атомов – осколков деления, которым свойственны процессы типа $\beta^- \nu n$ ($\nu=1,2,3,4$). В оцененных данных группа характеризуется своими спектральными данными о числе ЗН и их энергетическом распределении. Если источник ЗН рассчитывается в нестационарном приближении, то дополнительно нужна информация об усредненных значениях периода полураспада осколков, соответствующих разным группам запаздывания. Если источник ЗН стационарен, то данные по группам запаздывания можно эффективно просуммировать до расчета задачи, сформировав тем самым псевдопроцесс *запаздывающего* деления (*df*). Заметим, что данные, о которых идет речь, относятся к делящемуся изотопу, т. е. выборка из библиотек оцененных данных нужна для всех актиноидов задачи.

С помощью модуля КРИСТАЛЛ можно рассчитать нестационарный и стационарный источник ЗН еще одним способом – непосредственно по данным о β^- -распаде короткоживущих атомов-осколков. Заметим, что эти источники полностью согласованы между собой. Для решения задачи привлечем множество FULL, которое наиболее полно представляет короткоживущие атомы.

Для расчета нестационарного источника ЗН используем формулу

$$Q_g^{dn} = \sum_k \phi_k^{fp} \lambda_k \nu_k^{dn} X_{k,g}^{dn}, \quad (4)$$

где $\nu_k^{dn} = \sum_i C_k^i \nu_k^i$, $X_{k,g}^{dn} = \int_{E_g}^{E_g-1} \chi_k^{dn} dE$, $\sum_g X_{k,g}^{dn} = \int_0^\infty \chi_k^{dn} dE = 1$; ν_k^{dn} – усредненное по всем процессам β^- -распада число ЗН для атома k .

Рассмотрим установившийся (стационарный) режим образования осколков – источников ЗН. Положим в уравнении (1) $\partial \phi_k / \partial t = 0$ и исключим слагаемые, отвечающие за Н-Я взаимодействия, так как они ничтожно малы по отношению к слагаемым, ответственным за радиоактивные преобразования ядер. Получим равенства для короткоживущих осколков:

$$\phi_k^{fp} \lambda_k = \sum_{g'} \Psi_{g'} \sum_{k'} \phi_{k'} \sigma_{k',g'}^f Y_{k' \rightarrow k,g'}^{cum},$$

где $Y_{k' \rightarrow k,g'}^{cum}$ – КВ ядра-осколка k при делении актиноида k' нейтроном группы g' . Подставив правую часть равенства в формулу (4), получаем выражение для расчета стационарного источника ЗН по данным псевдопроцесса *df* на актиноидах:

$$Q_g^{dn} = \sum_{g'} \Psi_{g'} \sum_{k'} \phi_{k'} \sigma_{k',g'}^f \nu_{k',g'}^{df} \xi_{k',g' \rightarrow g}^{df}, \quad (5)$$

где $\nu_{k',g'}^{df} = \sum_k Y_{k' \rightarrow k,g'}^{cum} \nu_k^{dn}$, $\xi_{k',g' \rightarrow g}^{df} = \frac{1}{\nu_{k',g'}^{df}} \sum_k Y_{k' \rightarrow k,g'}^{cum} \nu_k^{dn} X_{k,g}^{dn}$, $\sum_g \xi_{k',g' \rightarrow g}^{df} = 1$.

Видно, что величины $\nu_{k',g'}^{df}$ и $\xi_{k',g' \rightarrow g}^{df}$ псевдопроцесса запаздывающего деления можно рассчитывать с помощью независимых источников данных – по группам запаздывания оцененных данных или по формулам (5). Естественно, возникает вопрос: насколько близки значения рассчитанных таким образом величин между собой? Сравнение выполнялось следующим образом.

Процесс запаздывающего деления формировался для библиотеки групповых данных с числом групп 192. Сравнивались величины $\nu_{k',g'}^{df}$, полученные на базе стационарного решения системы атомов-осколков с использованием выходов современных библиотек (ENDF/B-7.1, JEF-3.1.1, JENDL-4), и сумма ЗН по всем группам запаздывания. Данные по группам запаздывания были взяты из библиотеки ENDF/B-7.1. Выбор этой библиотеки обусловлен, во-первых, ее новизной, а во-вторых, наличием данных для широкого множества актиноидов. Схема превращений осколков в радиоактивных процессах также была взята из библиотеки ENDF/B-7.1.

На рис. 1 представлены зависимости ν^{df} от энергии нейтрона E , рассчитанные для изотопа ^{235}U . Видно, что ближе всего к кривой 3, которая получена традиционным способом, лежит кривая, построенная на базе стационарного решения по данным библиотеки JEF-3.1.1.

По результатам сравнения были выработаны рекомендации по использованию данных о выходах осколков (табл. 2).

Таблица 2

Рекомендованные библиотеки оцененных данных
для расчета выходов осколков

Актиниод	Библиотека
$^{227}, ^{229}\text{Th}$; ^{231}Pa ; $^{232}, ^{233}, ^{236}, ^{237}\text{U}$; ^{241}Pu ; ^{242}Cm	ENDF/B-7.1
^{230}Th	ROSFOND
^{232}Th ; $^{234}, ^{235}, ^{238}\text{U}$; $^{237}, ^{238}\text{Np}$; $^{239}, ^{242}\text{Pu}$; $^{241}, ^{242m2}\text{Am}$; ^{243}Cm	JEF-3.1.1
$^{238}, ^{240}\text{Pu}$; $^{242}, ^{243}\text{Am}$; $^{244}, ^{245}, ^{246}, ^{248}\text{Cm}$	JENDL-4

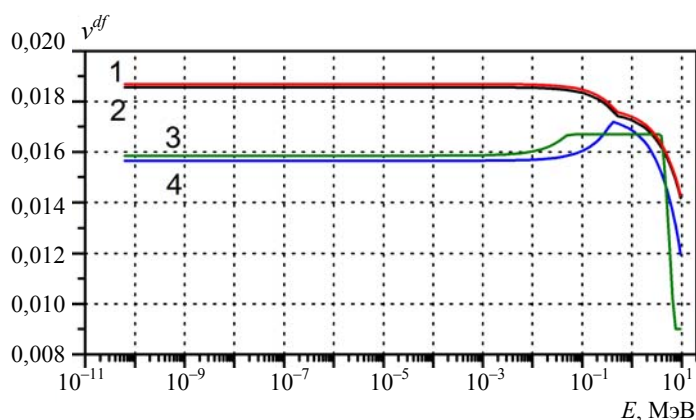


Рис. 1. Энергетические зависимости для числа ЗН процесса запаздывающего деления ^{235}U , рассчитанные с использованием разных данных: 1 – стационарное решение, выходы из ENDF/B-7.1; 2 – стационарное решение, выходы из JENDL-4; 3 – сумма по группам запаздывания (ENDF/B-7.1); 4 – стационарное решение, выходы из JEF-3.1.1

Численное исследование точности ROW-метода на задаче расчета кампании ТВС

В качестве тестовой задачи возьмем задачу расчета кампании ТВС реактора ВВЭР-1000. Среди атомов, образующихся в процессе деления актиноидов, есть такие, концентрация которых может быть рассчитана как разностным методом, так и точно, т. е. с помощью решения соответствующего дифференциального уравнения.

Рассмотрим рис. 2, на котором представлена схема превращений осколков, относящихся к изобарам 149–153. Заметим, что концентрация стабильного изотопа ^{151}Eu фактически определяется только β^- -распадом долгоживущего изотопа ^{151}Sm . Действительно, соседи (по рисунку) слева – атомы $^{149, 150, 150m}\text{Eu}$ – непосредственно в акте деления не рождаются (по данным ENDF/B-7.1) и не образуются на распадах короткоживущих осколков, так как «экранированы» стабильными изотопами ^{149}Sm и ^{150}Sm . Следовательно, на изотоп ^{151}Eu фактически не влияют. Сосед изотопа ^{151}Eu справа, долгоживущий изотоп ^{152}Eu , также «экранирован» стабильным атомом ^{152}Sm , а его непосредственный выход в акте деления пренебрежимо мал. Для атомов $^{152, 152m1, 152m2}\text{Eu}$ существует слабая зависимость от атома ^{153}Eu . Сам по себе процесс $^{153}\text{Eu}(n, 2n) ^{152, 152m1, 152m2}\text{Eu}$ для тепловых реакторов малозначим, так как является высокопороговым (~9 МэВ). Тем не менее, в расчете процесс лучше учитывать, так как изотоп ^{153}Eu является стабильным и его концентрация со временем растет.

Из рис. 2 также следует, что концентрация стабильного изотопа ^{152}Gd фактически зависит только от соседей по изобаре. Таким образом, если считать известными концентрации изотопов ^{151}Sm и ^{153}Eu , то концентрации атомов ^{151}Eu , $^{152m2}\text{Eu}$, ^{152}Eu , $^{152m1}\text{Eu}$, ^{152}Gd можно рассчитать последовательно из соответствующих дифференциальных уравнений. Более того, учитывая достаточно большой период полураспада изотопа ^{151}Sm ($\tau \approx 90$ лет), можно заключить, что концентрации изотопов ^{151}Sm и ^{151}Eu через какое-то время будут отличаться друг от друга на несколько порядков.

Таким образом, сравнение разностного и точного решений для изотопа ^{151}Eu позволит оценить практическую точность ROW-метода.

Для численного исследования точности ROW-метода был использован следующий метод расчета. Изотопная кинетика кампании ТВС рассчитывается, как обычно, с помощью ROW-метода. Параллельно рассчитывались концентрации пяти изотопов, перечисленных выше, при этом считаются известными разностные значения концентраций для изотопов ^{151}Sm и ^{153}Eu . Атомы, концентрации которых рассчитаны из дифференциальных уравнений, никак не влияют на расчет кампании. Будем называть их изотопами-дублерами.

В табл. 3 представлены относительные отклонения значений концентраций для изотопов-дублеров от соответствующих значений, рассчитанных с помощью ROW-метода. Как видно, для стабильных изотопов ^{151}Eu , ^{152}Gd , для долгоживущего изотопа ^{152g}Eu и короткоживущего изомера $^{152m1}\text{Eu}$ совпадение можно считать очень хорошим. Для другого короткоживущего изомера $^{152m2}\text{Eu}$ совпадение можно считать удовлетворительным. Однако следует учесть, что для всего временного интервала кампании, за исключением небольшого начального участка, концентрация атомов $^{152m2}\text{Eu}$ была на 5–8 порядков меньше по сравнению с концентрацией других изотопов-дублеров.

Высокая точность расчета, продемонстрированная ROW-методом на данном тесте, является следствием не только точности аппроксимации разностной схемы Розенброка – Ваннера, но и выверенной тактики предсказания шага по времени.

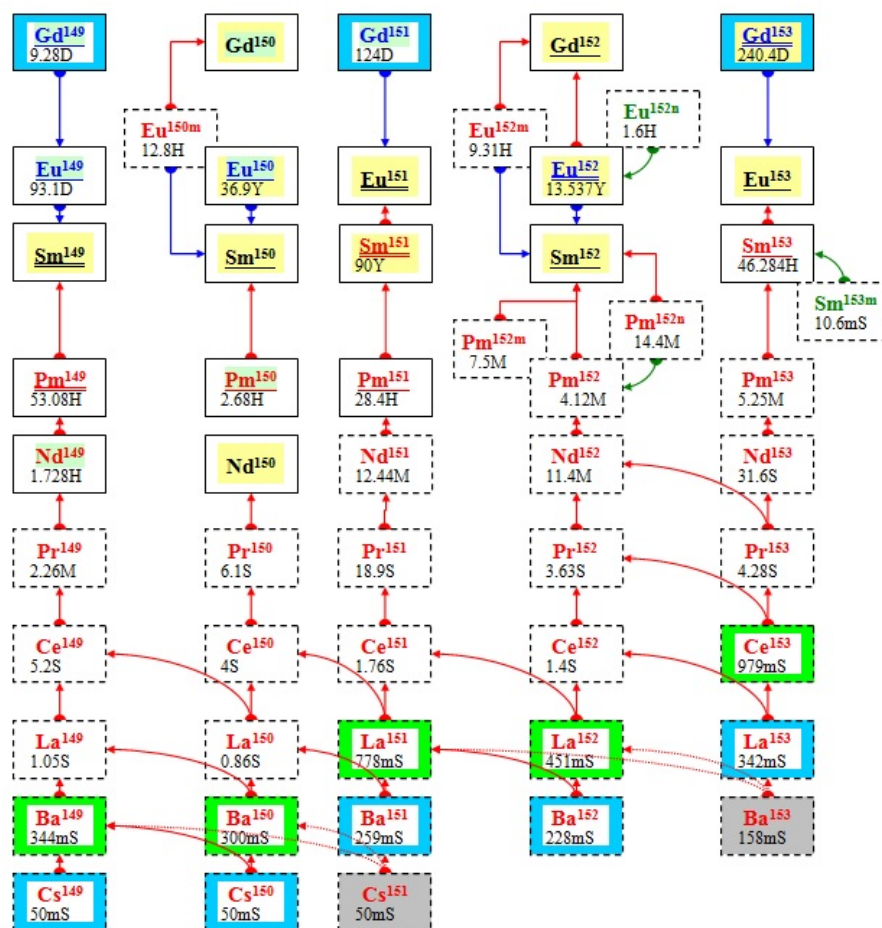


Рис. 2. Схема радиоактивных превращений для атомов – осколков деления, относящихся к изобарам 149–153

Таблица 3

Относительные отклонения значений концентраций (%) для изотопов-дублеров, полученных в точном расчете, от соответствующих значений разностного расчета

Изотоп-дублер	Отклонение, %	
	в конце расчета	максимальное
^{151}Eu	0,001	0,021
^{152g}Eu	0,001	0,040
$^{152m1}\text{Eu}$	0,002	0,040
$^{152m2}\text{Eu}$	-0,476	1,194
^{152}Gd	-0,005	0,069

Некоторые возможности программы по расчету энерговыделения ОЯТ

Продemonстрируем некоторые возможности программы для расчета класса задач охлаждения ТВС. Исследовалась ТВС реактора ВВЭР-1000.

На рис. 3 представлены зависимости мощности тепловыделения от времени охлаждения, полученные при расчетах с разными моделями учета короткоживущих атомов-осколков. Из рисунка хорошо видны области применимости этих моделей. Видно также, что все зависимости с течением времени сходятся к одной, однако это стало возможным только после того, как авторы рассчитали данные КВ по значениям ПВ с помощью программы MODELER.

Рис. 4 иллюстрирует вклад P радиоактивных процессов – α -распадов, β^- -распадов, изомерных переходов – в мощность тепловыделения все той же ТВС. На рисунке показана также кривая для актиноидов (для суммы по всем процессам). Как видно из рис. 4, примерно через 3 недели после начала охлаждения ОЯТ процессы β^- -распада актиноидов перестают оказывать влияние на энерговыделение. При дальнейшем охлаждении (примерно через 80 лет) процесс α -распада актиноидов становится доминирующим для темпа энерговыделения ОЯТ, причем доля процесса со временем стремительно возрастает. Подобные исследования были описаны в работе [6].

На рис. 5 представлены изотопы и изомеры, вносящие основной вклад в интегральное энерговыделение ОЯТ (~94 %). Результаты аналогичных исследований можно найти в работе [7]. Пользователи программы CONCORD могут исследовать процессы спонтанного деления в ОЯТ.

На рис. 6 показаны результаты расчета дифференциального выхода нейтронов для процесса sf на момент охлаждения ТВС 3 года. Диаграмма отображает изотопы, наиболее активные в рассматриваемом процессе на фиксированный момент времени. Видно, что источник нейтронов фактически определяется изотопом ^{244}Cm . Подобные исследования были описаны в работе [1].

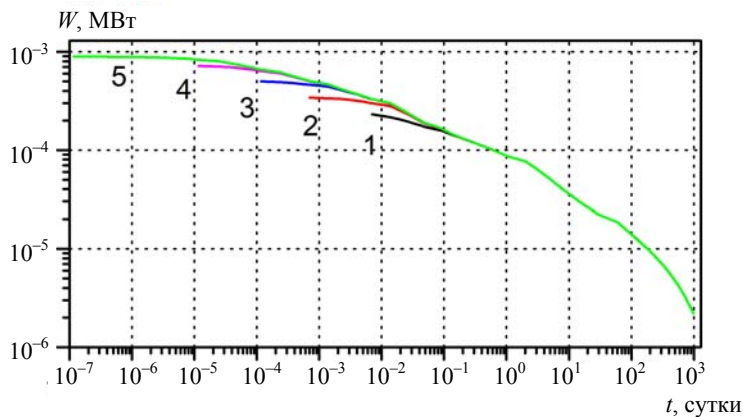


Рис. 3. Временные зависимости мощности остаточного энерговыделения ТВС для разных моделей расчета осколков: 1 – модель 33m; 2 – 10m; 3 – 50s; 4 – 5s; 5 – FULL

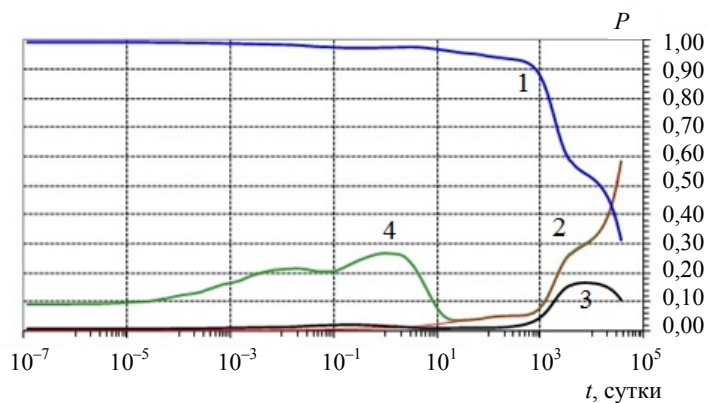


Рис. 4. Вклад радиоактивных процессов в мощность тепловыделения ТВС в расчете до 100 лет:
1 – β^- -распад, включая $\beta^- \alpha$, $\beta^- n$, ..., $\beta^- 4n$; 2 – α -распад; 3 – изомерный переход;
4 – все распады на актиноидах

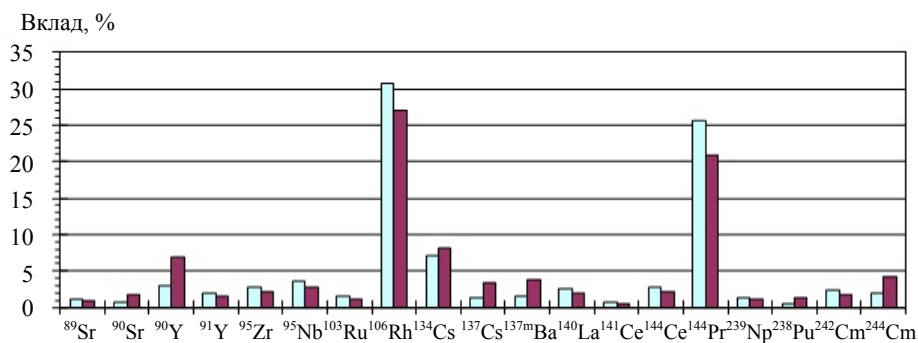


Рис. 5. Вклад ядер в энерговыделение ОЯТ: $\square$ – на момент времени 3 года;
 $\blacksquare$ – на момент времени 10 лет

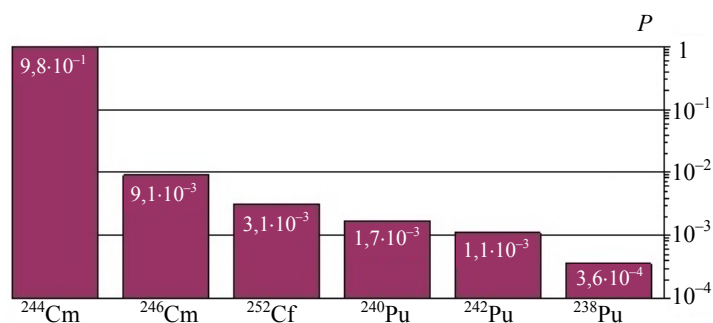


Рис. 6. Вклад (в долях) изотопов в дифференциальный выход нейтронов процесса $\$f$ на момент охлаждения ТВС 3 года

Заключение

Сформулируем основные выводы.

1. В РФЯЦ-ВНИИЭФ разработан программный модуль КРИСТАЛЛ для расчета процесса кинетики ядер в реакторах на тепловых и быстрых нейтронах. Модуль интегрирован в программные комплексы CONCORD [3] и TDMCC [8].

2. Модуль позволяет работать с широким множеством нейтронно-ядерных и радиоактивных процессов. Основными источниками данных для модуля являются современные библиотеки оцененных данных.

3. Модуль позволяет рассчитывать полную систему продуктов деления, при этом число рассчитываемых ядер-осколков может быть больше 1000 (значение определяется только наличием данных).

4. Имеется возможность прямого метода расчета нестационарного и стационарного источников ЗН деления по данным процессов β -распада короткоживущих осколков. Заметим, что при этом данные о группах запаздывания не используются.

5. При расчете вероятностей образования изомеров в результате нейтронно-ядерных взаимодействий учитывается энергетическая зависимость.

6. Программный модуль позволяет рассчитывать кинетику изотопов в каждом топливном стержне и стержне ПЭЛ, используя при этом параллельные вычисления. Имеется возможность расчета кинетики ядер в радиальных слоях стержней.

7. Имеется возможность исследовать этап остаточного энерговыделения ТВС. Можно рассчитывать источник нейтронов спонтанного деления.

8. Для расчета системы изотопов применяется разностная схема Розенброка – Ваннера второго порядка точности. Эффективность метода расчета подтверждена на практике.

Для анализа оцененных данных активно использовалась информационно-справочная система NDX [9].

Работа над модулем КРИСТАЛЛ потребовала разработки программных средств выборки необходимых оцененных данных, а также создания нескольких автономных графических программ – обработчиков информации. Например, с помощью интерактивной программы MODELER формировались входные данные для разных моделей расчета, которые затем сохранялись в соответствующих текстовых файлах. При необходимости эти файлы можно легко откорректировать вручную. Объем данных модуля КРИСТАЛЛ, задаваемых пользователем для решения (по комплексу CONCORD) конкретной задачи, минимален и в основном включает в себя указания по выбору моделей и режимов расчета.

С помощью интерактивной программы ISOREL можно визуально контролировать корректность ввода некоторых данных задачи, относящихся к расчету изотопной кинетики. При запуске программы ISOREL на экран монитора выводятся данные файла, записанного модулем КРИСТАЛЛ по окончании этапа расчета начальных данных задачи. Заметим, что данные этого файла являются проекцией числовых массивов оперативной памяти, используемых на этапе регулярного счета. Информация представляется в виде электронного графа, задающего связи между рассчитываемыми атомами для разных физических областей ТВС.

Список литературы

1. Шаманин И. В., Беденко С. В., Павлюк А. О., Лызко В. А. Использование программы ORIGEN-ARP при расчете изотопного состава отработанного топлива реактора ВВЭР-1000 // Изв. Томского политехн. ун-та. Сер. Энергетика. 2010. Т. 317, № 4. С. 25–28.
2. Модестов Д. Г. Интегрирование уравнений эволюции ядерного состава вещества в постоянных радиационных полях // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Матем. моделирование физ. процессов. 2012. Вып. 1. С. 17–28.
3. Алексеев А. В., Касаткин С. С., Бочков А. И. Комплекс программ расчета ячеечных констант CONCORD. Параллельная версия // Тез. докл. конф. «Нейтроника-2011». Нейтронно-физические и теплофизические проблемы ядерной энергетики с замкнутым топливным циклом. Обнинск, 24–26 октября 2011 г.
4. Гребенников А. Н., Иванникова В. Н., Крутько Н. А., Фарафонов Г. Г. Современное состояние системы константного обеспечения нейтронно-физических расчетов // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Матем. моделирование физ. процессов. 1999. Вып. 4. С. 76–82.
5. Калиткин Н. Н. Численные методы решения жестких систем // Матем. моделирование. 1995. Т. 7, № 3. С. 8–11.
6. Блохин Д. А., Митенкова Е. Ф. Подготовка библиотек распадных данных для пакета «ORIGEN» // Труды научной сессии «МИФИ-2010». Т. 1. «Физико-технические проблемы ядерной энергетики». – М.: МИФИ, 2010. С. 67–70.
7. Забродская С. В., Хомяков Ю. С., Цибуля А. А. Расчет выгорания с использованием программы ORIGEN в вычислительном комплексе CONKEMO // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерные константы. 2001. Вып. 2. С. 98–110.
8. Семенова Т. В., Гусев Е. А., Житник А. К. и др. Новые возможности программы TDMCC. Расчет выгорания топлива // Нейтронно-физические проблемы атомной энергетики. 2012. Т. 2. – Обнинск: ГНЦ РФ–ФЭИ, 2012. С. 398–413.
9. Гребенников А. Н., Фарафонов Г. Г., Алексеев А. Вл. и др. Технология подготовки групповых макроскопических констант и методика их уточнения в процессе расчета задач переноса нейтронов // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Матем. моделирование физ. процессов. 2005. Вып. 4. С. 15–24.

Calculations of the Isotopic Composition of Reactor Fuel in Burnup and Residual Energy Release Simulations Using the Concord Software Package

S. V. Mzhachikh, A. V. Alekseev, A. N. Grebennikov, E. A. Gusev,
A. A. Yermakov, E. A. Irinichev, S. S. Kasatkin, N. A. Krut'ko

Evolution of physical characteristics of an operating reactor is basically governed by the variation of the nuclide composition of its fuel. In addition, it is extremely important to know the isotopic composition, because it underlies safety studies of handling spent nuclear fuel during its storage, transportation and reprocessing. We describe a software module of the CONCORD package that serves to simulate the process of nuclear kinetics in slow and fast reactors. Sources of data of the module are listed, and methods and models employed are described.