

CRAM 在放射性核素存量计算中的应用

张竞宇¹ 马亚栋¹ 陈义学¹ 高 强²

1 (华北电力大学 核科学与工程学院 北京 102206)

2 (环境保护部 核与辐射安全中心 北京 100082)

摘要 在反应堆中,组成材料的稳定核素经受强中子辐照后,会被活化成放射性核素。这些核素及其衰变产物对工作人员的职业辐照剂量具有重要贡献。为了更好地进行人员的辐射防护工作,需要对放射性核素的存量进行精确计算。相对于核素平衡方程的其它求解方法,切比雪夫有理逼近方法(Chebyshev Rational Approximation Method, CRAM)在计算精度和效率方面具有综合性优势。首先介绍了 CRAM 的基本理论,随后选取典型的例题进行了测试验证。与解析解对比的结果表明,采用 CRAM 进行中子辐照下的核素活化衰变计算能够取得不错的效果,但是用于核素长期衰变计算可能导致计算错误。针对此问题,将收缩乘方技术与 CRAM 相结合,取得了正确的计算结果,拓展了 CRAM 的适用范围。

关键词 切比雪夫有理逼近方法,放射性核素,存量计算,收缩乘方

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2017.hjs.40.080502

Application of Chebyshev rational approximation method in inventory calculation of radioactive nuclides

ZHANG Jingyu¹ MA Yadong¹ CHEN Yixue¹ GAO Qiang²

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

2(Nuclear and Radiation Safety Centre, Ministry of Environmental Protection, Beijing 100082, China)

Abstract Background: The material suffering from strong neutron irradiation in the nuclear reactor will be activated to be radioactive nuclides. These nuclides and their decay products contribute a significant part to the occupational radiation exposure (ORE) of personnel. **Purpose:** For better radiation protection of the workers in nuclear reactor, it is supposed to calculate the inventory of radioactive nuclides accurately. **Methods:** Compared with other methods for solving the equilibrium equations of nuclides, the Chebyshev rational approximation method (CRAM) has comprehensive advantages on computational accuracy and efficiency. In this paper, the theory of CRAM method is described firstly, and then some typical cases are tested to verify CRAM method. **Results & Conclusion:** Compared with the analytical solution, CRAM method shows good effect on activation and decay calculation of nuclides under neutron irradiation, but may cause obvious error on long-term decay calculation of nuclides. After coupling with technique of scaling and squaring, CRAM method can derive accurate results for long-term decay calculation of nuclides and its scope of application is extended.

国家自然科学基金(No.11605058)、国际热核聚变实验堆计划专项(No.2014GB119000)、中央高校基本科研业务费专项资金(No.2017MS041)资助
第一作者: 张竞宇, 男, 1984 年出生, 2013 年于清华大学获博士学位, 研究领域为核反应堆燃料燃耗/材料活化计算

通信作者: 高强, E-mail: gaoqiang@chinansc.cn

收稿日期: 2017-01-20, 修回日期: 2017-03-24

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.11605058), National Special Project for Magnetic Confined Nuclear Fusion Energy (No.2014GB119000), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (No.2017MS041)

First author: ZHANG Jingyu, male, born in 1984, graduated from Tsinghua University with a doctoral degree in 2013, focusing on the calculation of fuel depletion/material activation

Corresponding author: GAO Qiang, E-mail: gaoqiang@chinansc.cn

Received date: 2017-01-20, accepted date: 2017-03-24

Key words CRAM, Radioactive nuclides, Inventory calculation, Scaling and squaring

反应堆中存在很强的中子辐照, 会导致结构材料的活化而使其具有放射性, 当工作人员检查或维修反应堆中的管道或设备时, 不可避免地会受到这些 γ 射线的辐照伤害^[1]。此外, 结构材料在活化过程中会产生氢气和氦气, 这些气体物质会对结构材料的强度造成损伤^[2], 其中的氚核素还具有很强的穿透性和放射性, 容易对人员和环境造成危害^[3]。因此, 需要特别关注放射性核素的存量计算问题, 尽可能提高计算结果的准确性。

活化和衰变计算中涉及的核素种类多达上千种, 并且不同核素的反应截面和半衰期差别很大, 因此所对应的核素平衡方程在数学上具有大规模、强刚性的特点。对于此类问题的求解, 学界经过长期的研究, 开发了一系列的方法和程序, 主要包括时间差分方法、线性子链方法和矩阵指数方法。

时间差分方法需要采用特殊处理才能提高计算效率。例如 FISPACT-2007 程序预先将短寿命核素从系数矩阵中移出以降低矩阵的病态性, 再采用显式的指数欧拉方法基于大步长求解仅含有长寿命核素的方程, 最后通过“平衡假设”近似计算短寿命核素, 该方法的计算速度较快, 但是由于采用了近似处理, 在计算初期会有一定误差。

线性子链解析 (Transmutation Trajectory Analysis, TTA) 方法的基本原理是将复杂反应链分解成独立的线性反应链, 再解析求解, 以避免直接处理强刚性方程, 目前已用在以 CINDER 程序为代表的多个程序中^[4]。该方法求得的解析解精度很高, 但是反应链线性化过程比较繁琐使得整体效率较低, 对此吴明宇等^[5]采用回溯算法自动进行反应链搜索, 一定程度上提高了计算效率。

矩阵指数方法将对核素平衡方程的求解转化为对矩阵指数的计算, 目前计算矩阵指数的方法主要基于数值逼近理论, 代表程序有基于泰勒展开多项式逼近方法结合短寿命核素特殊处理的 ORIGEN 程序^[6]、基于切比雪夫有理逼近方法 (Chebyshev Rational Approximation Method, CRAM) 的 SERPENT 程序燃耗模块^[7]和 DEPTH 程序^[8]。其中, CRAM 凭借无需对短寿命核素进行单独处理、在较大的时间步长下仍能得到很高的计算精度等优点而被广泛推荐。

1 切比雪夫有理逼近方法

对于含有 N 种核素的材料, 在中子辐照下, 其核素平衡方程如下:

$$\frac{dx_i}{dt} = -\lambda_i^{\text{eff}} x_i + \sum_j^N b_{j,i}^{\text{eff}} \lambda_j^{\text{eff}} x_j, \quad i=1, \dots, N \quad (1)$$

式中: $\lambda_i^{\text{eff}} = \lambda_i + \phi \sum_j \sigma_{i,j}$, 表示核素 i 的有效衰变

常数, s^{-1} , ϕ 表示中子通量密度, $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, $\sigma_{i,j}$ 表示核素 i 产生核素 j 的反应截面, cm^{-2} ;

$b_{j,i}^{\text{eff}} = \frac{b_{j,i} \lambda_j + \sigma_{j,i} \phi}{\lambda_j^{\text{eff}}}$, 表示核素 j 产生核素 i 的有效

分支比, %; x_i 表示核素 i 的数量, atoms; λ_i 表示核素 i 的衰变常数, s^{-1} 。

式(1)可以写成如下的矩阵形式:

$$d\vec{x} / dt = A\vec{x} \quad (2)$$

式中: A 为系数矩阵。

采用矩阵指数方法求解式(2), 解的形式如下:

$$\vec{x}(t) = e^{At} \vec{x}(0) \quad (3)$$

式中: 矩阵指数 e^{At} 可以采用 CRAM 计算。

根据文献[9]的观察, 系数矩阵 A 的特征值分布在复数平面的负实轴附近。此时, CRAM 是指数函数 e^z 在 $(-\infty, 0]$ 区间的最佳有理逼近^[10], 如式(4)所示:

$$e^z \approx R_{k,k}(z) = \frac{P_k(z)}{Q_k(z)}, \quad z \in (-\infty, 0] \quad (4)$$

式中: $P_k(z)$ 和 $Q_k(z)$ 是 k 阶多项式, 其系数选取要使得指数函数 e^z 在负实轴达到最佳有理逼近。

考虑到数值计算的稳定性, 通常将式(4)写为以极点和留数表示的 PFD (Partial Fraction Decomposition) 形式如下:

$$e^z \approx \alpha_0 + \sum_{i=1}^k \frac{\alpha_i}{z - \theta_i}, \quad z \in (-\infty, 0] \quad (5)$$

式中: α_0 表示 z 在 $-\infty$ 处 e^z 的极限值; α_i 表示留数; θ_i 表示极点; k 表示展开阶数。

由于极点通常是以共轭对的形式出现, 因此可以利用此性质, 将式(5)写成如下形式, 其计算量节省为原来的一半。

$$e^z \approx \alpha_0 + 2\text{Re}\left(\sum_{i=1}^{k/2} \frac{\alpha_i}{z - \theta_i}\right), \quad z \in (-\infty, 0] \quad (6)$$

PFD 系数 (α_0 、 α_i 和 θ_i) 可以在文献[11]提供的多项式系数的基础上通过 Carathéodory-Fejér 方法计算得到^[12]。根据文献[13]的研究, 当阶数 $k \leq 16$ 时, Carathéodory-Fejér 方法可保持较高的计算精度。本文选取 $k=16$, 计算得到 PFD 系数如表 1 所示。

表 1 16 阶切比雪夫有理逼近方法的系数
Table 1 Coefficients of CRAM corresponding to $k=16$.

系数 Coefficient	实部 Real part	虚部 Imaginary part
a_0	$2.124\ 853\ 710\ 495\ 22 \times 10^{-16}$	—
$2a_1$	$1.290\ 017\ 560\ 510\ 16 \times 10^2$	$-4.491\ 888\ 152\ 529\ 92 \times 10^2$
$2a_2$	$-2.267\ 955\ 035\ 697\ 76 \times 10^2$	$2.038\ 944\ 340\ 843\ 36 \times 10^2$
$2a_3$	$1.250\ 367\ 849\ 263\ 86 \times 10^2$	$-2.238\ 078\ 218\ 856\ 09 \times 10^1$
$2a_4$	$-3.011\ 917\ 054\ 005\ 00 \times 10^1$	$-1.150\ 281\ 055\ 528\ 09 \times 10^1$
$2a_5$	$2.958\ 601\ 422\ 711\ 26 \times 10^0$	$3.537\ 317\ 664\ 757\ 34 \times 10^0$
$2a_6$	$-8.204\ 627\ 367\ 084\ 10 \times 10^{-2}$	$-3.148\ 693\ 234\ 690\ 80 \times 10^{-1}$
$2a_7$	$-4.230\ 348\ 436\ 493\ 35 \times 10^{-4}$	$8.778\ 593\ 929\ 475\ 58 \times 10^{-3}$
$2a_8$	$1.018\ 030\ 437\ 302\ 47 \times 10^{-6}$	$4.844\ 003\ 530\ 570\ 76 \times 10^{-5}$
θ_1	$-6.416\ 177\ 699\ 099\ 61 \times 10^0$	$1.194\ 122\ 393\ 370\ 10 \times 10^0$
θ_2	$-5.948\ 152\ 268\ 950\ 84 \times 10^0$	$3.587\ 457\ 362\ 018\ 23 \times 10^0$
θ_3	$-4.993\ 174\ 737\ 718\ 12 \times 10^0$	$5.996\ 881\ 713\ 604\ 12 \times 10^0$
θ_4	$-3.509\ 103\ 608\ 415\ 01 \times 10^0$	$8.436\ 198\ 985\ 884\ 35 \times 10^0$
θ_5	$-1.419\ 375\ 897\ 185\ 57 \times 10^0$	$1.092\ 536\ 348\ 449\ 67 \times 10^1$
θ_6	$1.413\ 928\ 462\ 488\ 86 \times 10^0$	$1.349\ 772\ 569\ 889\ 28 \times 10^1$
θ_7	$5.264\ 971\ 343\ 442\ 69 \times 10^0$	$1.622\ 022\ 147\ 316\ 80 \times 10^1$
θ_8	$1.084\ 391\ 707\ 869\ 69 \times 10^1$	$1.927\ 744\ 616\ 718\ 17 \times 10^1$

当采用 CRAM 计算矩阵指数 e^{At} 时, 式(3)可以写成如下形式:

$$\vec{x}(t) \approx \alpha_0 \vec{x}(0) - 2 \operatorname{Re} \left[\sum_{i=1}^{k/2} \alpha_i (At + \theta_i I)^{-1} \right] \vec{x}(0) \quad (7)$$

当系数矩阵 A 的元素是按照核素质量数增加的顺序排列时, 矩阵具有稀疏结构, 其求逆计算变得相对容易。

2 测试例题的计算结果

2.1 ^{16}O 活化例题的计算结果

^{16}O 活化例题如下:

$^{16}\text{O}(\text{stable}) \rightarrow (\text{n}, \gamma; 6.601\ 89 \times 10^{-5} \text{ b}) \rightarrow$
 $^{17}\text{O}(\text{stable}) \rightarrow (\text{n}, \gamma; 1.184\ 99 \times 10^{-4} \text{ b}) \rightarrow$
 $^{18}\text{O}(\text{stable}) \rightarrow (\text{n}, \gamma; 5.426\ 13 \times 10^{-5} \text{ b}) \rightarrow$
 $^{19}\text{O}(\beta^-, 1.577\ 88 \times 10^7 \text{ s})$

其中: 相关的反应类型和截面已经在括号中予以标注; ^{16}O 的初始数量为 10^{20} 个; 中子通量密度为 $10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; 中子辐照时间为 1 a。

^{16}O 活化例题的计算结果如表 2 所示。表 2 中, 相对偏差定义为: (解析解-CRAM 计算结果)/解析解。其中解析解采用 TTA 计算得到, 为追求较高的计算精度, 截断标准设置为 10^{-25} 。

表 2 ^{16}O 活化例题计算结果
Table 2 Calculation results of ^{16}O activation.

核素 Nuclide	原子数量 (解析法) Number of atoms (analytic)	原子数量(CRAM) Number of atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
^{16}O	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$9.999\ 96 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
^{17}O	$2.083\ 40 \times 10^{14}$	$2.081\ 97 \times 10^{14}$	$-6.863\ 78 \times 10^{-4}$
^{18}O	$3.895\ 55 \times 10^8$	$3.890\ 14 \times 10^8$	$-1.388\ 76 \times 10^{-3}$
^{19}O	$1.626\ 33 \times 10^2$	$1.622\ 46 \times 10^2$	$-2.379\ 59 \times 10^{-3}$

在计算时, CRAM 的时间步长直接取为 1 a, 所消耗的计算时间为 0.0125 s, 解析方法所消耗的计算时间为 0.69 s, 对于这种简单线性链来说, CRAM 的计算效率高于解析方法。结合表 2 可以看到, 采用 CRAM 进行中子辐照下的核素活化计算能够取得不错的效果, 其计算精度和效率都比较高。

2.2 天然 Fe 活化例题的计算结果

天然 Fe 的初始质量为 1 kg, 富集度分布如下:⁵⁴Fe 5.8%、⁵⁶Fe 91.72%、⁵⁷Fe 2.2%、⁵⁸Fe 0.28%。相关的反应类型、截面和半衰期取自 EAF-2007 数据库。中子通量密度为 $3.641 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 中子辐照时间为 1 a。天然 Fe 活化例题中除了活化反应外, 还有大量的衰变反应, 因此本例题为活化衰变复合计算例题, 计算结果如表 3 所示。

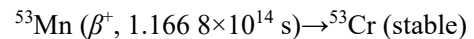
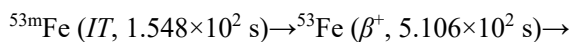
表 3 天然 Fe 活化例题计算结果
Table 3 Calculation results of nature Fe activation.

核素 Nuclide	原子数量 (解析法) Number of atoms (analytic)	原子数量(CRAM) Number of atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
⁴⁸ Ti	$1.264\ 46 \times 10^{17}$	$1.265\ 56 \times 10^{17}$	$8.699\ 37 \times 10^{-4}$
⁴⁹ Ti	$6.326\ 96 \times 10^{16}$	$6.364\ 76 \times 10^{16}$	$5.974\ 43 \times 10^{-3}$
⁴⁹ V	$1.706\ 66 \times 10^{16}$	$1.710\ 99 \times 10^{16}$	$2.537\ 12 \times 10^{-3}$
⁵⁰ V	$3.614\ 83 \times 10^{18}$	$3.615\ 16 \times 10^{18}$	$9.129\ 06 \times 10^{-5}$
⁵¹ V	$6.705\ 75 \times 10^{20}$	$6.706\ 45 \times 10^{20}$	$1.043\ 88 \times 10^{-4}$
⁵⁰ Cr	$5.737\ 91 \times 10^{18}$	$5.738\ 01 \times 10^{18}$	$1.742\ 79 \times 10^{-5}$
⁵¹ Cr	$8.223\ 91 \times 10^{19}$	$8.223\ 87 \times 10^{19}$	$-4.863\ 87 \times 10^{-6}$
⁵² Cr	$2.574\ 26 \times 10^{20}$	$2.574\ 29 \times 10^{20}$	$1.165\ 38 \times 10^{-5}$
⁵³ Cr	$5.418\ 58 \times 10^{21}$	$5.418\ 66 \times 10^{21}$	$1.476\ 40 \times 10^{-5}$
⁵⁴ Cr	$1.488\ 23 \times 10^{21}$	$1.489\ 33 \times 10^{21}$	$7.391\ 33 \times 10^{-4}$
⁵³ Mn	$2.246\ 95 \times 10^{21}$	$2.246\ 93 \times 10^{21}$	$-8.900\ 95 \times 10^{-6}$
⁵⁴ Mn	$2.953\ 06 \times 10^{21}$	$2.953\ 06 \times 10^{21}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
⁵⁵ Mn	$1.542\ 48 \times 10^{22}$	$1.542\ 47 \times 10^{22}$	$-6.483\ 07 \times 10^{-6}$
⁵⁶ Mn	$6.615\ 59 \times 10^{18}$	$6.615\ 60 \times 10^{18}$	$1.511\ 58 \times 10^{-6}$
⁵⁷ Mn	$7.338\ 38 \times 10^{14}$	$7.338\ 45 \times 10^{14}$	$9.538\ 89 \times 10^{-6}$
⁵⁴ Fe	$6.390\ 47 \times 10^{23}$	$6.390\ 45 \times 10^{23}$	$-3.129\ 66 \times 10^{-6}$
⁵⁵ Fe	$4.962\ 58 \times 10^{22}$	$4.962\ 60 \times 10^{22}$	$4.030\ 16 \times 10^{-6}$
⁵⁶ Fe	$9.789\ 64 \times 10^{24}$	$9.789\ 62 \times 10^{24}$	$-2.042\ 98 \times 10^{-6}$
⁵⁷ Fe	$2.356\ 69 \times 10^{23}$	$2.356\ 69 \times 10^{23}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
⁵⁸ Fe	$2.892\ 41 \times 10^{22}$	$2.892\ 41 \times 10^{22}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
⁵⁹ Fe	$3.695\ 06 \times 10^{18}$	$3.695\ 08 \times 10^{18}$	$5.412\ 63 \times 10^{-6}$

在计算时, CRAM 的时间步长直接取为 1 a, 所消耗的计算时间为 2.37 s, 解析方法所消耗的计算时间为 11.84 s, 对于这种复杂网状链来说, CRAM 的计算效率高于解析方法。结合表 3 可以看到, 采用 CRAM 进行中子辐照下的核素活化衰变计算能够取得不错的效果, 其计算精度和效率都比较高。

2.3 ⁵³mFe 衰变例题的计算结果

⁵³mFe 衰变例题如下:



其中: 相关的反应类型和半衰期($T_{1/2}$)已经在括号中予以标注; ⁵³mFe 的初始数量为 10^{20} 个。⁵³mFe 衰变例题的计算结果如表 4 所示。

在计算时, CRAM 的时间步长直接取为衰变时间。从表 4 可以看到, 当衰变时间在 10^{-10^3} s 时, CRAM 的计算结果与解析解符合较好。但是当衰变时间大于 10^3 s, CRAM 的计算结果严重偏离解析解。说明采用 CRAM 进行核素长期衰变计算可能导致计算错误。

表 4 ^{53m}Fe 衰变例题计算结果
Table 4 Calculation results of ^{53m}Fe decay.

衰变时间 Decay times	^{53m}Fe 原子数量 (解析法) Number of ^{53m}Fe atoms (analytic)	^{53m}Fe 原子数量(CRAM) Number of ^{53m}Fe atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	$9.562\ 11 \times 10^{19}$	$9.562\ 09 \times 10^{19}$	$-2.091\ 59 \times 10^{-6}$
1.0×10^2	$6.390\ 52 \times 10^{19}$	$6.390\ 50 \times 10^{19}$	$-3.129\ 64 \times 10^{-6}$
1.0×10^3	$1.135\ 96 \times 10^{18}$	$1.135\ 73 \times 10^{18}$	$-2.024\ 72 \times 10^{-4}$
1.0×10^4	$3.577\ 82 \times 10^0$	$-6.357\ 89 \times 10^{13}$	$-1.777\ 03 \times 10^{13}$
1.0×10^5	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-7.207\ 85 \times 10^{11}$	∞
1.0×10^6	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-2.747\ 47 \times 10^{10}$	∞
1.0×10^7	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-2.321\ 12 \times 10^9$	∞
1.0×10^8	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-2.278\ 50 \times 10^8$	∞
衰变时间 Decay times	^{53}Fe 原子数量 (解析法) Number of ^{53}Fe atoms (analytic)	^{53}Fe 原子数量(CRAM) Number of ^{53}Fe atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	$4.349\ 12 \times 10^{18}$	$4.349\ 12 \times 10^{18}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^2	$3.358\ 19 \times 10^{19}$	$3.358\ 19 \times 10^{19}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^3	$3.529\ 42 \times 10^{19}$	$3.529\ 43 \times 10^{19}$	$2.833\ 33 \times 10^{-6}$
1.0×10^4	$1.825\ 00 \times 10^{14}$	$-8.082\ 13 \times 10^{13}$	$-1.442\ 86 \times 10^0$
1.0×10^5	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-8.497\ 58 \times 10^{12}$	∞
1.0×10^6	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-1.429\ 34 \times 10^{11}$	∞
1.0×10^7	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-8.169\ 92 \times 10^9$	∞
1.0×10^8	$0.000\ 00 \times 10^0$	$-7.567\ 49 \times 10^8$	∞
衰变时间 Decay times	^{53}Mn 原子数量 (解析法) Number of ^{53}Mn atoms (analytic)	^{53}Mn 原子数量(CRAM) Number of ^{53}Mn atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	$2.980\ 86 \times 10^{16}$	$2.980\ 86 \times 10^{16}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^2	$2.512\ 94 \times 10^{18}$	$2.512\ 94 \times 10^{18}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^3	$6.356\ 98 \times 10^{19}$	$6.356\ 98 \times 10^{19}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^4	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^5	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^6	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^7	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^8	$9.999\ 99 \times 10^{19}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-1.000\ 00 \times 10^{-6}$
衰变时间 Decay times	^{53}Cr 原子数量 (解析法) Number of ^{53}Cr atoms (analytic)	^{53}Cr 原子数量(CRAM) Number of ^{53}Cr atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	$5.931\ 38 \times 10^2$	$5.931\ 38 \times 10^2$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^2	$5.218\ 54 \times 10^5$	$5.218\ 54 \times 10^5$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^3	$1.847\ 09 \times 10^8$	$1.847\ 09 \times 10^8$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^4	$5.370\ 31 \times 10^9$	$5.370\ 31 \times 10^9$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^5	$5.883\ 55 \times 10^{10}$	$5.883\ 56 \times 10^{10}$	$1.699\ 65 \times 10^{-6}$
1.0×10^6	$5.934\ 88 \times 10^{11}$	$5.934\ 88 \times 10^{11}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^7	$5.940\ 01 \times 10^{12}$	$5.940\ 01 \times 10^{12}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^8	$5.940\ 52 \times 10^{13}$	$5.940\ 52 \times 10^{13}$	$0.000\ 00 \times 10^0$

3 收缩乘方技术的基本原理及应用效果

如前所述, 式(3)中矩阵 At 的特征值分布在复数平面的负实轴附近时, CRAM 是矩阵指数 e^{At} 在 $(-\infty, 0]$ 区间的最佳有理逼近。对于核素衰变工况, 矩阵 At 的特征值会随着衰变时间 t 而变大, 即特征

值的虚部也会相应变大, 使得特征值显著偏离复数平面的负实轴。此时, 如图 1 所示 (详见文献[13]), 采用 CRAM 近似矩阵指数 e^{At} , 其计算精度会显著下降, 甚至出现计算错误。这问题可以通过引入收缩乘方技术(Scaling and squaring)^[14]予以解决。

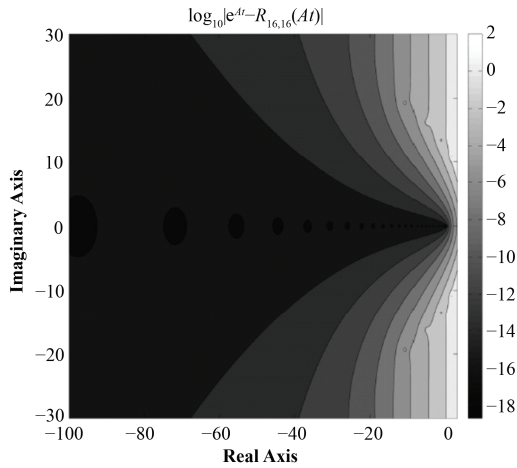


图1 16阶切比雪夫有理逼近方法($R_{16,16}(At)$)近似矩阵指数 e^{At} 的计算精度随矩阵 At 特征值的变化

Fig.1 Computational accuracy of approximating matrix exponential e^{At} with CRAM of order 16 ($R_{16,16}(At)$) changing with the eigenvalues of matrix At .

3.1 收缩乘方技术的基本原理

矩阵指数 e^{At} 可以写成如下形式:

$$e^{At} = (e^{At/m})^m \quad (8)$$

收缩乘方技术就是通过选择合适的参数 m , 使得 $e^{At/m}$ 能够被 CRAM 准确而高效地计算, 随后通过对 $e^{At/m}$ 做 m 次乘方运算, 得到待求的矩阵指数 e^{At} 。

采用收缩乘方技术后, 式(3)可写成如下形式:

$$\begin{aligned} \bar{x}(t) &= (e^{At/m})^m \bar{x}(0) \\ &\approx \{\alpha_0 - 2\text{Re}[\sum_{i=1}^{k/2} \alpha_i (At/m + \theta_i I)^{-1}]\}^m \bar{x}(0) \quad (9) \end{aligned}$$

收缩乘方技术的本质是将总的计算时间 t 划分为 m 个时间步长。相对于矩阵 At , 矩阵 At/m 特征值减小了 m 倍, 相应地其虚部也减小了 m 倍, 意味着特征值更靠近复数平面的负实轴, 使得 CRAM 的适用性得到了更好的满足。

在选择参数 m 时, 一个常用的标准是取最小的 m , 使得 $\|A\|_2 t/m \leq 1$ ^[14], 其中 $\|A\|_2$ 是矩阵 A 的谱范数, 即 $\|A\|_2 = [\lambda_{\max}(A^T A)]^{1/2}$ 。在 ^{53}mFe 衰变例题中, 矩阵 A 的谱范数 $\|A\|_2 = 0.00641$, 在谱范数计算领域这是一个很大的值, 意味着矩阵 A 是强刚性的, 这主要是矩阵 A 中各个元素的变化速率差别过大造成的, 比如 ^{53}mFe 的衰变常数为 $4.478 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, ^{53}Mn 的衰变常数为 $5.969 \times 10^{-15} \text{ s}^{-1}$, 两者相差了 12 个量级。所以当衰变时间 t 较长时, $\|A\|_2 t$ 会远大于 1, 此时需要应用收缩乘方技术, 以满足 $\|A\|_2 t/m \leq 1$ 。

3.2 收缩乘方技术的应用效果

采用收缩乘方技术后, ^{53}mFe 衰变例题的计算结果如表 5 所示。

表 5 采用收缩乘方技术后 ^{53}mFe 衰变例题计算结果
Table 5 Calculation results of ^{53}mFe decay after adopting technique of scaling and squaring.

衰变时间 Decay times	^{53}mFe 原子数量 (解析法) Number of ^{53}mFe atoms (analytic)	^{53}mFe 原子数量(CRAM) Number of ^{53}mFe atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	9.56211×10^{19}	9.56211×10^{19}	0.00000×10^0
1.0×10^2	6.39052×10^{19}	6.39052×10^{19}	0.00000×10^0
1.0×10^3	1.13596×10^{18}	1.13592×10^{18}	-3.52125×10^{-5}
1.0×10^4	3.57782×10^0	3.57674×10^0	-3.01860×10^{-4}
1.0×10^5	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
1.0×10^6	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
1.0×10^7	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
1.0×10^8	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
衰变时间 Decay times	^{53}Fe 原子数量 (解析法) Number of ^{53}Fe atoms (analytic)	^{53}Fe 原子数量(CRAM) Number of ^{53}Fe atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	4.34912×10^{18}	4.34912×10^{18}	0.00000×10^0
1.0×10^2	3.35819×10^{19}	3.35819×10^{19}	0.00000×10^0
1.0×10^3	3.52942×10^{19}	3.52935×10^{19}	-1.98333×10^{-5}
1.0×10^4	1.82500×10^{14}	1.82490×10^{14}	-5.47945×10^{-5}
1.0×10^5	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
1.0×10^6	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
1.0×10^7	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0
1.0×10^8	0.00000×10^0	0.00000×10^0	0.00000×10^0

(续表 5)

衰变时间 Decay times	^{53}Mn 原子数量 (解析法) Number of ^{53}Mn atoms (analytic)	^{53}Mn 原子数量(CRAM) Number of ^{53}Mn atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	$2.980\ 86 \times 10^{16}$	$2.980\ 86 \times 10^{16}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^2	$2.512\ 94 \times 10^{18}$	$2.512\ 94 \times 10^{18}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^3	$6.356\ 98 \times 10^{19}$	$6.356\ 87 \times 10^{19}$	$-1.730\ 38 \times 10^{-5}$
1.0×10^4	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$9.999\ 90 \times 10^{19}$	$-8.000\ 02 \times 10^{-6}$
1.0×10^5	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^6	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^7	$1.000\ 00 \times 10^{20}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-2.000\ 00 \times 10^{-6}$
1.0×10^8	$9.999\ 99 \times 10^{19}$	$9.999\ 98 \times 10^{19}$	$-1.000\ 00 \times 10^{-6}$
衰变时间 Decay times	^{53}Cr 原子数量 (解析法) Number of ^{53}Cr atoms (analytic)	^{53}Cr 原子数量(CRAM) Number of ^{53}Cr atoms (CRAM)	相对偏差 Relative deviation
1.0×10^1	$5.931\ 38 \times 10^2$	$5.931\ 38 \times 10^2$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^2	$5.218\ 54 \times 10^5$	$5.218\ 54 \times 10^5$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^3	$1.847\ 09 \times 10^8$	$1.847\ 06 \times 10^8$	$-1.624\ 18 \times 10^{-5}$
1.0×10^4	$5.370\ 31 \times 10^9$	$5.370\ 28 \times 10^9$	$-5.586\ 27 \times 10^{-6}$
1.0×10^5	$5.883\ 55 \times 10^{10}$	$5.883\ 56 \times 10^{10}$	$1.699\ 65 \times 10^{-6}$
1.0×10^6	$5.934\ 88 \times 10^{11}$	$5.934\ 88 \times 10^{11}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^7	$5.940\ 01 \times 10^{12}$	$5.940\ 01 \times 10^{12}$	$0.000\ 00 \times 10^0$
1.0×10^8	$5.940\ 52 \times 10^{13}$	$5.940\ 52 \times 10^{13}$	$0.000\ 00 \times 10^0$

鉴于矩阵 A 的谱范数 $\|A\|_2 = 0.006\ 41$, 为了满足标准 $\|A\|_2 t/m \leq 1$, 时间步长 t/m 被选为 $100\ \text{s}$ 。这样对于衰变时间为 $10^8\ \text{s}$ 的情况, 就需要划分为 10^6 个时间步长进行计算, 可预计的时间消耗是很大的。但是由表 5 可以发现, 对于像 $^{53\text{m}}\text{Fe}$ 、 ^{53}Fe 这样的短寿命核素, 在衰变 $10^5\ \text{s}$ 时, 原子数量已经减少到 0 个, 此时可以从矩阵 A 中将它们移除, 相应地新的矩阵的谱范数变为 $5.940\ 58 \times 10^{-15}$, 在 $\|A\|_2 t/m \leq 1$ 条件下, 时间步长可以取到 $10^{14}\ \text{s}$, 使得计算效率得以大幅提高。经统计, 对于衰变时间为 $10^8\ \text{s}$ 的情况, 解析方法的计算耗时为 $0.53\ \text{s}$, 耦合了收缩乘方技术的 CRAM 的计算耗时为 $0.62\ \text{s}$, 两者基本相当。

此外, 从表 5 可以看到, 耦合了收缩乘方技术后, 采用 CRAM 进行核素长期衰变计算就可以得到准确的结果。

4 结语

本文介绍了 CRAM 的基本理论, 以及应用于求解核素平衡方程的实现方式。选取 ^{16}O 核素和天然 Fe 元素活化例题以及 $^{53\text{m}}\text{Fe}$ 核素衰变例题对 CRAM 进行了测试验证, 并与 TTA 方法得到的解析解进行了对比。

对于存在中子反应的问题来说, TTA 方法在将闭环反应链线性化过程中, 会截断和舍弃一部分反应链, 因此从原理上来说会有一定误差, 但是如果

截断标准选取得比较严格, 闭环反应链线性化引入的误差是很小的, 但是会增加大量的计算时间。而 CRAM 方法不会对闭环反应链进行截断和舍弃, 因此不存在这方面的误差, 其计算精度比较高, 而且可以采用大的计算步长, 因此计算效率也比较高。

对于核素衰变问题, 不涉及闭环反应链, 因此 TTA 方法可以直接给出精确的解析解, 计算效率也比较高。CRAM 方法对于核素短期衰变计算是适用的, 时间步长可以直接取为衰变时间, 但是对于核素长期衰变计算, 如果时间步长直接取为衰变时间, 矩阵 $A t$ 的特征值会偏离复数平面的负实轴, 此时采用 CRAM 方法计算 $e^{A t}$ 容易出现计算错误。因此需要配合使用收缩乘方技术, 使得 CRAM 方法的适用性得到更好的满足, 收缩乘方技术的应用会一定程度上降低 CRAM 方法的计算效率, 但是仍然与 TTA 方法相当。

后续将对 CRAM 方法进行进一步的测试验证和工程应用。

参考文献

- 李璐, 张竞宇, 郭庆洋, 等. 水冷聚变堆主回路活化产物源项计算分析[J]. 核技术, 2016, 39(11): 110603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.110603.
LI Lu, ZHANG Jingyu, GUO Qingyang, et al. Calculation and analysis of activation products source term in water-cooled fusion reactor primary circuit[J].

- Nuclear Techniques, 2016, **39**(11): 110603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.110603.
- 2 石巍, 曾勤, 李卫, 等. CFETR 第一壁及赤道面外包层中子辐照损伤初步分析[J]. 核技术, 2016, **39**(12): 120602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.120602. SHI Wei, ZENG Qin, LI Wei, *et al.* Primary analysis of radiation damage on first wall and the outboard blanket on equatorial plane for CFETR[J]. Nuclear Techniques, 2016, **39**(12): 120602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.120602.
- 3 Lyu X W, Xia X B, Zhang Z H, *et al.* Analysis of tritium production in a 2 MW liquid-fueled molten salt experimental reactor and its environmental impact[J]. Nuclear Science and Techniques, 2016, **27**(4): 78. DOI: 10.1007/s41365-016-0100-z.
- 4 Cetnar J. General solution of bateman equations for nuclear transmutations[J]. Annals of Nuclear Energy, 2006, **33**(7): 640–645. DOI: 10.1016/j.anucene.2006.02.004.
- 5 吴明宇, 王事喜, 杨勇, 等. 回溯算法在燃耗计算中的应用[J]. 原子能科学技术, 2013, **47**(7): 1127–1132. DOI: 10.7538/yzk.2013.47.07.1127. WU Mingyu, WANG Shixi, YANG Yong, *et al.* Application of backtracking algorithm to depletion calculations[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2013, **47**(7): 1127–1132. DOI: 10.7538/yzk.2013.47.07.1127.
- 6 Croff G. Origen2: a versatile computer code for calculating the nuclide compositions and characteristics of nuclear materials[J]. Nuclear Technology, 1983, **62**: 335–352. DOI: 10.13182/NT83-1.
- 7 Leppänen J, Pusa M, Viitanen T. The serpent Monte Carlo code: status, development and applications in 2013[J]. Annals of Nuclear Energy, 2015, **82**: 142–150. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.08.024.
- 8 She D, Wang K, Yu G L. Development of the point-depletion code DEPTH[J]. Nuclear Engineering and Design, 2013, **258**(17): 235–240. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2013.01.007.
- 9 Pusa M, Leppanen J. Computing the matrix exponential in burnup calculations[J]. Nuclear Science and Engineering, 2010, **164**(2): 140–150. DOI: 10.13182/NSE09-14.
- 10 Cody W J, Meinardus G, Varga R S. Chebyshev rational approximation to $\exp(-x)$ in $[0, +\infty]$ and applications to heat conduction problems[J]. Journal of Approximation Theory, 1969, **2**(1): 50–65. DOI: 10.1016/0021-9045(69)90030-6.
- 11 Carpenter A J, Ruttan A, Varga R S. Extended numerical computations on the “1/9” conjecture in rational approximation theory[J]. Lecture Notes in Mathematics, 1984, **1105**(4): 383–411. DOI: 10.1007/BFb0072427.
- 12 Trefethen L N, Weideman J A C, Schmelzer T. Talbot quadratures and rational approximations[J]. BIT Numerical Mathematics, 2006, **46**(3): 653–670. DOI: 10.1007/s10543-006-0077-9.
- 13 Pusa M. Higher-order Chebyshev rational approximation method and application to burnup equations[J]. Nuclear Science and Engineering, 2016, **182**(3): 297–318. DOI: 10.13182/NSE15-26.
- 14 Moler C, Loan C V. Nineteen dubious ways to compute the exponential of a matrix[J]. SIAM Review, 1978, **20**(4): 801–836. DOI: 10.1137/1020098.