

基于随机抽样的衰变热不确定度量化研究

马纪敏, 郭海兵, 黄洪文

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要: 为研究核数据引起的核素存量及导出量的不确定度, 在自主程序 GNET 上实现了基于随机抽样的不确定度量化方法。利用贝叶斯更新方法获得裂变产物独立产额的协方差数据, 弥补裂变产物协方差数据缺失。对热中子引起的²³⁵U 一次裂变后衰变热不确定度进行了计算。结果表明, 裂变产物产额的不确定度贡献占主要部分。该算例表明 GNET 程序具备了核素存量的不确定度量化功能。

关键词: 不确定度量化; 随机抽样; 衰变热; 协方差; 贝叶斯更新方法

中图分类号: TL329

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2024)06-1280-07

doi: 10.7538/yzk.2023.youxian.0766

Decay Heat Uncertainty Quantification Based on Stochastic Sampling Method

MA Jimin, GUO Haibing, HUANG Hongwen

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract: Nuclear data are the important source of uncertainties that affect nuclide inventory analysis. The new domestic code GNET (general nuclear engineering tool) has been developed to study the uncertainties of nuclide inventory and relevant quantities due to nuclear data. GNET is a pure Python3 package devoted to promote and accelerate the application in nuclear data, nuclide inventory, reactor physics data analysis, and so on. The code makes use of HDF5 format file and provides several auxiliary library files. The uncertainty quantification method in GNET is based on stochastic sampling. Nuclear data and their uncertainties such as decay data, fission yield and cross sections have been sampled to generate random library files. Then the application calculation with these files was performed. Finally, a statistical analysis of the response variables can be carried out to obtain mean values and their standard deviation. Uncertainties and covariance data in ENDF/B-VII.1 were analyzed. Nuclear data libraries lack fission product yield covariance data. To solve the problem, the Bayesian updating method was applied to obtain fission yield covariance. As one of state-of-art fission yield covariance generation methodologies, the Bayesian updating method is an adjustment technique which updates the prior data with new knowledge. The covariance matrix of independent fission yields has been generated using consistency with cumulative fission yields, binary fission, mass and charge conservations. In this paper, the decay heat uncertainty quantification for a burst thermal fission of ²³⁵U was investigated with GNET. Decay heat was calculated by summation method. The result of decay

heat for a burst thermal fission of ^{235}U was compared with FISPACT-II results, ORNL and Tobias's compiled data. It is shown that GNET result is consistent with FISPACT-II and measurement results. A large number of calculations were used to calculate decay heat uncertainty due to uncertainties of decay constant, branching ratio, decay energy and IFYs in ENDF/B-VII.1. The convergence of uncertainty calculations was tested, which shows that it is sufficient to achieve an acceptable statistical stability using about 200 random files in this problem. The decay heat uncertainty as a function of the cooling time for a burst thermal fission of ^{235}U was given. The total relative decay heat uncertainty is less than 6.5%. The uncertainty of fission yields is the major contributors to total decay heat uncertainty, followed by uncertainties of decay energy and decay constant. Uncertainty of branching ratio has very weak effect on total decay heat uncertainties and can be ignored. The preliminary application shows that the flexible code GNET has implemented uncertainty quantification capability. It is planned to extend the code to uncertainty calculations of more physical quantities in nuclear engineering simulations.

Key words: uncertain quantification; stochastic sampling; decay heat; covariance; Bayesian updating method

不确定度量化利用各种数学和统计学方法, 建立模型和模拟过程中输入量和响应量之间的关系, 量化给出响应量的不确定度。不确定度量化是核科学与工程中极具挑战的问题。通常, 问题模型、数值方法和核参数等均会引起计算误差, 导致计算结果的不确定度。随着理论模型和计算能力的发展, 问题模型和数值方法引起的不确定性逐渐降低, 而核数据引起的不确定性成为计算结果不确定度的主要来源^[1]。

不确定度量化的方法可分为两类: 基于微扰理论的不确定性方法和随机抽样方法^[2-3]。在核能领域中, 临界参数(如 k_{eff} 、反应性系数等)的不确定度量化研究较成熟^[4-6], 以基于微扰理论的敏感性和不确定度分析方法为主。近年来, 对于核素存量及导出量(如衰变热)的不确定度量化研究逐渐发展^[7], 由于该问题涉及大量核素及各种反应过程, 输入量非常多, 导致传统微扰方法难以直接应用, 故大部分为随机抽样方法。这方面的一典型应用是计算衰变热的不确定度^[8-10], 研究重点为不确定度量化流程和协方差数据处理方法。这些研究建立了相关方法, 且得到了核数据方差引起的衰变热不确定度, 但仍存在难以获取裂变产额协方差数据、使用过程繁琐等问题。

本研究的目的是发展基于随机抽样的核素存量不确定度量化的通用工具。目前, 在自主研发的通用核工程 Python 包 GNET 的基础上, 分析各类基础核数据的方差信息, 制作裂变产额协方差

数据, 拟实现衰变热的不确定度量化流程且获得不确定度量化结果。

1 基于随机抽样的不确定度量化分析方法

核数据的不确定度量化可分为确定性敏感分析和随机抽样两大类。随机抽样方法依据输入数据的方差和协方差进行抽样, 经程序计算后, 统计分析输出结果分布给出不确定度。确定性敏感分析主要基于伴随计算方法, 得到敏感性系数, 然后根据误差传播理论(或三明治公式)获得不确定度。随机抽样方法的优点是可利用现有程序, 且一次可获得所有响应量的不确定度。

基于随机抽样的不确定度量化基本流程如图 1 所示。其主要步骤为: 从输入数据的均值和方差出发, 抽样获得 N 个随机输入数据 $\{x_i\}$; 使用这些样本值, 运行应用程序开展多次计算, 获得计算结果 $\{y_i\}$; 计算结果的响应值 $\{r_i\}$, 观察收敛曲线, 若收敛, 则对结果及其响应值进行统计分析, 获得其均值和方差等, 即获得响应值因输入数据不确定性导致的不确定度。

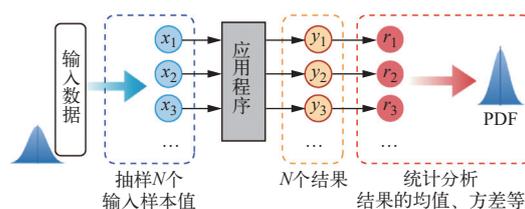


图 1 基于随机抽样的核数据不确定度量化的基本流程
Fig. 1 Flow chart for sampling-based nuclear data uncertainty quantification

1.1 随机变量抽样

单变量一般可采用正态分布密度函数 $N(\mu, \sigma^2)$ 抽样, 其中, μ 、 σ 为均值和标准差。在某些情况下, 为避免抽样产生无意义的负值, 采用对数正态分布抽样。

多维相关随机变量无法直接抽样, 可进行如下操作给出样本值: s 维独立标准正态分布 $N(0, 1)$ 抽样产生 $\mathbf{z} = (z_1, z_2, \dots, z_s)^T$; 将协方差矩阵进行 Cholesky 矩阵分解 $\mathbf{C} = \mathbf{L}\mathbf{L}^T$, 得到下三角矩阵 \mathbf{L} ; 进行仿射变换, 则相关正态分布的样本值为 $\mathbf{x} = \boldsymbol{\mu} + \mathbf{L} \cdot \mathbf{z}$ 。

1.2 统计分析

结果样本的均值 \bar{y} 和标准差 σ_y 分别为:

$$\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i, \quad \sigma_y^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2 \quad (1)$$

2 通用核工程 Python 包 GNET

中国工程物理研究院核物理与化学研究所自主开发了通用核工程分析工具 GNET, 该程序旨在发展一个核工程领域通用的方便用户使用的计算工具, 主要应用于核数据、核素存量分析(能耗和活化)、反应堆物理计算前后端处理等方面。该程序的主要特征如下。

1) 采用纯 Python3 语言开发, 具有轻量的第三方库依赖, 可通过 wheel 或源码编译安装。

2) 配套了多个 HDF5 格式核数据文件, 并提供了 ENDF-6^[11]、EAF^[12]、GENDF^[13] 等格式转换到 HDF5 文件的函数。HDF5 格式是存储科学计算数据的一种文件格式, 具有节省存储空间、可快速读取、适应于高性能并行 IO 等特点。以 EAF-2010 数据库^[11] 为例, 原始库包含 1 570 个文件, 共 900 MB。转换为 HDF5 格式后为单个文件, 大小为 308 MB, 仅为原来的 1/3。目前, 配套的 HDF5 核数据文件包括 EAF-2010、ENDF/B-VII.1、TENDL-2014 和辐射输运常用材料组成(PNNL-2011)等, 涵盖了反应堆物理中的核素、元素、材料、放射性等各种数据。

3) 具有核素存量分析求解器, 可完成涉及到能耗、活化、衰变等的相关计算。该求解器采用了 GNIAC 程序^[14] 内核, 即 PFD 和 IPF 格式的切比雪夫有理近似方法(CRAM)。求解过程需要的单群反应截面和裂变产物产额可手动输入, 也可

输入任意能谱或内置能谱由程序自动归并并配套的多群截面后获得。

在 GNET 基础上, 本文实现基于随机抽样的核素存量及其导出量不确定度量化功能。程序基于基础核数据抽样获得多个 HDF5 格式文件, 之后使用核素存量分析求解器和每个数据文件进行求解, 最后对结果分析获得核素存量及其导出量不确定度。程序实现了多线程并行加速来提高计算效率。

3 核数据的方差与协方差

3.1 基础核数据的方差

基础核数据包括核素质量、核素半衰期、衰变分支比、衰变能、独立裂变产物产额、反应截面等数据, 这些数据的方差和协方差是衰变热不确定度量化的基础。以 ENDF/B-VII.1 为例, 分析发现, 绝大部分核素质量的相对不确定度小于 0.01%, 不稳定核素的核素半衰期相对不确定度为 0.1%~20%(图 2), 衰变分支比相对不确定度为 0.01%~10%, 衰变能的相对不确定度为 0.1%~20%。热中子引起的 ²³⁵U 裂变产物独立产额的不确定度直方图和分布如图 3 所示, 大部分产额的相对不确定度为 64%。

多群截面协方差数据取自 SCALE 程序的 44 群协方差数据库^[15]。

3.2 裂变产物协方差数据

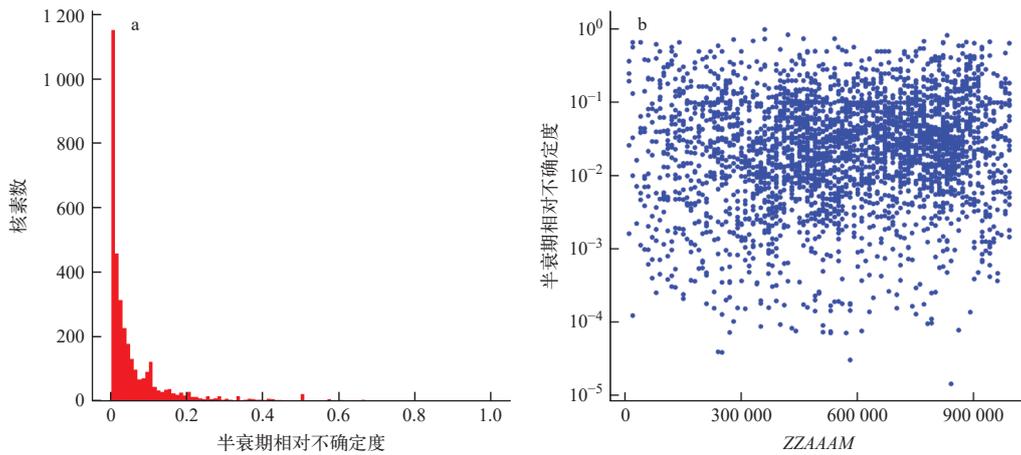
目前, 国际上各核评价数据库均未给出裂变产物产额的协方差数据。这里采用贝叶斯更新方法来获得独立裂变产物产额的协方差数据^[8, 16]。

贝叶斯更新方法是一种数据调整方法, 采用新知识来更新先验数据, 从而保持数据与新知识的一致性。这些知识可是测量数据, 或对先验数据的物理约束条件。对如下多变量回归模型:

$$\mathbf{c} = \mathbf{X}\mathbf{y} + \boldsymbol{\varepsilon} \quad (2)$$

其中: \mathbf{c} 为将被更新或估计的观察值; \mathbf{y} 为将被更新的参数; \mathbf{X} 为设计矩阵, 表示估计参数和观察值之间的线性映射; $\boldsymbol{\varepsilon}$ 为观察值的测量误差, 其期望值和方差一般有 $E(\boldsymbol{\varepsilon}) = 0$ 和 $\text{Var}(\boldsymbol{\varepsilon}) = \mathbf{V}$ 。

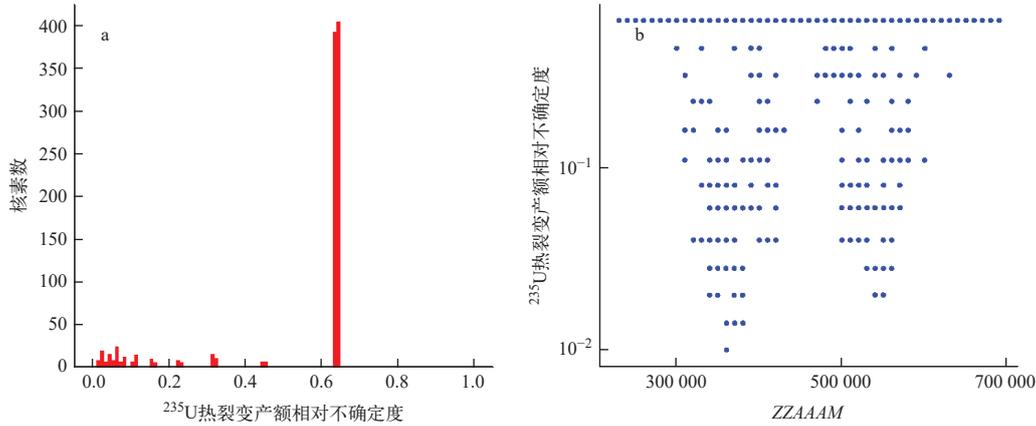
核数据 \mathbf{y} 先被赋予某种概率密度分布, 称为先验概率密度函数 $p(\mathbf{y})$ 。核数据的新认知信息(新观察值) \mathbf{c} 被同样赋予某种概率密度分布, 从而计算似然值 $p(\mathbf{c}|\mathbf{y})$ 。根据贝叶斯定理, 核数据的后



a——相对不确定度分布; b——相对不确定度按核素分布

图2 核素半衰期不确定度 (数据取自 ENDF/B-VII.1)

Fig. 2 Half-life uncertainties (Data from ENDF/B-VII.1)



a——裂变产额相对不确定度分布; b——相对不确定度按核素分布

图3 热中子引起的²³⁵U裂变产物独立产额不确定度 (数据取自 ENDF/B-VII.1)

Fig. 3 Independent fission yield uncertainties for ²³⁵U thermal fission (Data from ENDF/B-VII.1)

验概率分布 $p(\mathbf{y}|\mathbf{c})$ 可表示为:

$$p(\mathbf{y}|\mathbf{c}) \propto p(\mathbf{c}|\mathbf{y})p(\mathbf{y}) \quad (3)$$

假定核数据先验概率分布为如下高斯分布:

$$p(\mathbf{y}) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2} |\mathbf{Z}_0|^{1/2}} \cdot \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{y}-\mathbf{y}_0)^T \mathbf{Z}_0^{-1}(\mathbf{y}-\mathbf{y}_0)\right) \quad (4)$$

其中,期望值向量 $E[\mathbf{y}]=\mathbf{y}_0$, 协方差矩阵 $\text{Var}(\mathbf{y})=\mathbf{Z}_0$.

对观察值也同样使用高斯分布, 故似然函数如下:

$$p(\mathbf{c}|\mathbf{y}) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2} |\mathbf{V}|^{1/2}} \cdot \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{X}\mathbf{y}-\mathbf{c})^T \mathbf{V}^{-1}(\mathbf{X}\mathbf{y}-\mathbf{c})\right) \quad (5)$$

可得出, 后验概率分布也为高斯分布, 只是参数变量发生了变化, 如下:

$$\mathbf{y}_{\text{post}} = \mathbf{y} + \mathbf{Z}_1 \mathbf{X}^T \mathbf{V}^{-1} (\mathbf{c} - \mathbf{X}\mathbf{y}_0) \quad (6)$$

其中, \mathbf{Z}_1 为后验协方差矩阵。

$$\mathbf{Z}_1 = (\mathbf{Z}_0^{-1} + \mathbf{X}^T \mathbf{V}^{-1} \mathbf{X})^{-1} \quad (7)$$

上式根据伍德贝瑞逆矩阵等式, 可得:

$$\mathbf{Z}_1 = \mathbf{Z}_0 - \mathbf{Z}_0 \mathbf{X}^T (\mathbf{V} + \mathbf{X} \mathbf{Z}_0 \mathbf{X}^T)^{-1} \mathbf{X} \mathbf{Z}_0 \quad (8)$$

将上述理论应用于裂变产物的独立产额协方差计算过程。假定初始协方差矩阵为对角阵, 对角元为核数据库 ENDF/B-VII.1 内各个裂变产额的方差。分别引入累积裂变产物产额数据、二元裂变守恒、质量数守恒、电荷数守恒等, 进行 4 次更新后可得到裂变产物产额的协方差矩阵。图 4 给出了分别经过 1 次和 4 次更新后的裂变产物产额敏感性系数矩阵。经过更新后, 裂变产物独立产额的相对不确定度大部分由原来的 63% 下降到约 42%。

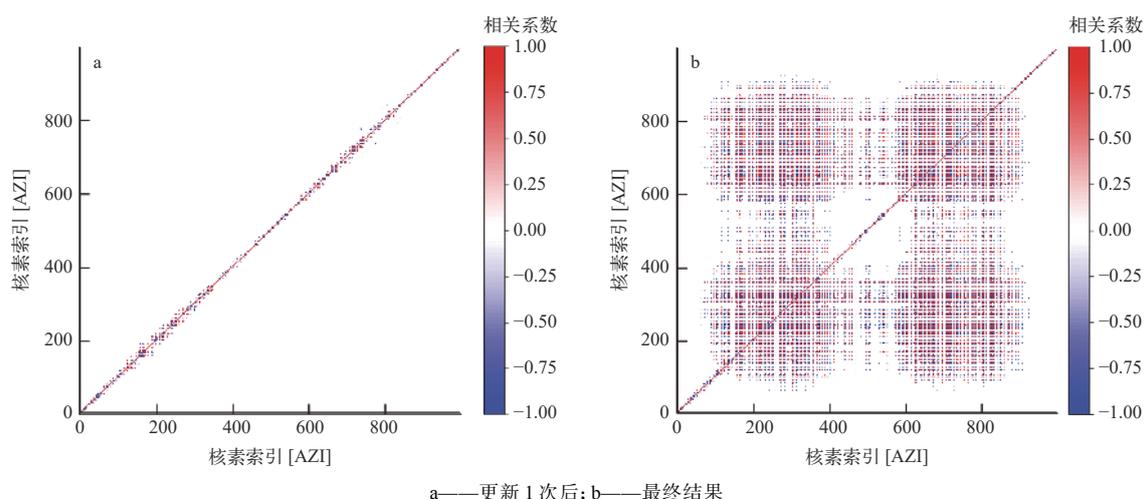


图4 热中子引起的 ^{235}U 裂变产物独立产额相关系数矩阵

Fig. 4 Independent fission yield correlation matrix for ^{235}U thermal fission

4 衰变热的不确定度量化结果

4.1 衰变热计算方法

在反应堆停堆后,经冷却时间的衰变热可使用求和方法给出:

$$H(t_c) = \sum_i \bar{E}_i \lambda_i N_i(t_c) \quad (9)$$

其中: λ_i 为核素 i 的衰变常量; t_c 为反应堆停堆后的冷却时间; $N_i(t_c)$ 为核素 i 在 t_c 时刻的原子数; \bar{E}_i 为核素 i 衰变过程的总平均释放能量。

采用第1节的方法实现衰变热的不确定度量化。使用GNET的随机抽样模块从基础数据库获得 N 个样本核数据HDF5文件,使用GNET的核素存量分析模块和调用这些样本核数据文件进行 N 次计算获得计算结果,分析这些结果的概率分布可获得衰变热的不确定度。

4.2 数值结果

对热中子引起的 ^{235}U 一次裂变后衰变热问题采用GNET程序进行计算,数据库采用ENDF/B-VII.1,计算结果示于图5。GNET计算结果与FISPACT-II计算结果及Dickens(1980)^[17]、Tobias(1989)^[18]实验结果符合较好,程序具备裂变产物衰变热计算功能,且计算精度较高。

为保证结果的收敛性,使用了不确定度的均值和相对标准偏差作为估计量。对各输入量进行了不同次数的抽样,使用估计量分析衰变热不确定度量化计算结果。图6给出了衰变热在5个不同时刻的不确定度相对标准偏差收敛曲线。可见,样本数在200以上时衰变热不确定度相对标准偏差基本达到稳定,表明结果已收敛。

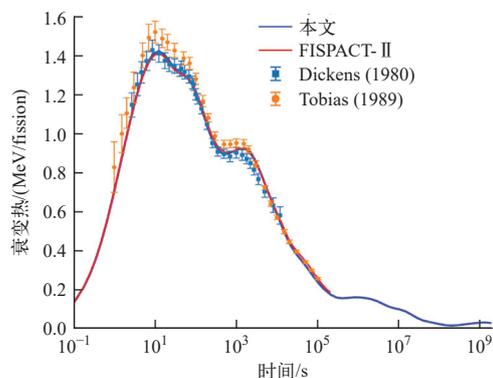


图5 热中子引起的 ^{235}U 一次裂变后衰变热随时间的变化

Fig. 5 Decay heat after single ^{235}U thermal fission pulse

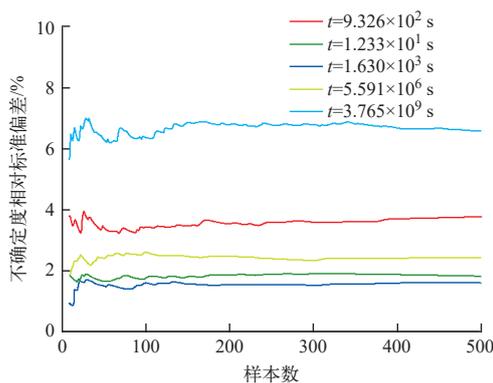


图6 热中子引起的 ^{235}U 一次裂变后衰变热不确定度的收敛曲线

Fig. 6 Convergence curve of decay heat uncertainty after single ^{235}U thermal fission pulse

图7给出了使用ENDF/B-VII.1数据计算的热中子引起的 ^{235}U 一次裂变后衰变热不确定度。可见,裂变产额的不确定度贡献占衰变热不确定度的主要部分,其次是衰变能的不确定度贡献,这与

文献 [7] 结果一致。衰变热总不确定度在 $t_c < 10^4$ s 内小于 3%, 在 $t_c = 10^5$ s 处有一个小峰值 4.2%, 在 $t_c > 10^8$ s 后迅速变大至 6.5%。在 $t_c = 10^5$ s 处的峰值主要是由 $A=97$ 质量链引起, 其占总衰变热的 11.4%, 不确定度的主要贡献是 ^{97}Nb (2.5%) 和 ^{97}Zr (1.7%), 这些核素是由独立裂变产物 ^{97}Y 和 $^{97}\text{Y}^m$ 的衰变形成的。在 $t_c > 10^8$ s 后主要是由 $A=90$ 质量链引起, 其占总衰变热的 84.8%, 不确定度的主要贡献是 ^{90}Y (5.2%) 和 ^{90}Sr (1.1%), 这些核素主要是由独立裂变产物 $^{90}\text{Rb}^m$ 衰变形成的。在 ENDF/B-VII.1 库内, ^{97}Y 、 $^{97}\text{Y}^m$ 和 $^{90}\text{Rb}^m$ 的独立裂变产物产额的相对不确定度分别均为 64%。

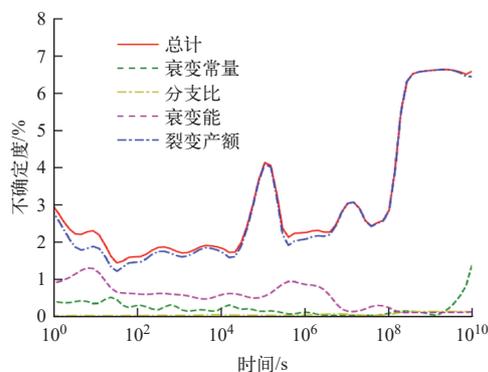


图7 热中子引起的 ^{235}U 一次裂变后衰变热不确定度计算结果

Fig. 7 Decay heat uncertainty results for decay heat uncertainty after single ^{235}U thermal fission pulse

5 结论

本文在自主开发的通用核工程 Python 包 GNET 上实现了基于随机抽样的核素存量不确定度量化功能。分析了基础核数据的方差, 利用贝叶斯更新方法获得了裂变产物独立产额的协方差数据。将该程序应用于热中子引起的 ^{235}U 一次裂变后衰变热不确定度量化计算。结果表明, 裂变产物产额的不确定度贡献占衰变热不确定度的主要部分, 衰变热总不确定度在 6.5% 以内。后续将进一步拓展 GNET 的相关接口, 并将其应用于更多的不确定度量化过程和其他核工程模拟场景。

感谢清华大学核能与新能源技术研究院郭炯副教授在裂变产物产额协方差制作方面给予的指导。

参考文献:

[1] SMITH D L. Nuclear data uncertainty quantification:

Past, present and future[J]. Nuclear Data Sheets, 2015, 123: 1-7.

[2] IONESCU-BUJOR M, CACUCI D G. A comparative review of sensitivity and uncertainty analysis of large-scale systems- I: Deterministic methods[J]. Nuclear Science and Engineering, 2004, 147(3): 189-203.

[3] CACUCI D G, IONESCU-BUJOR M. A comparative review of sensitivity and uncertainty analysis of large-scale systems- II: Statistical methods[J]. Nuclear Science and Engineering, 2004, 147(3): 204-217.

[4] ROCHMAN D, VASILIEV A, FERROUKHI H, et al. Nuclear data uncertainty for criticality-safety: Monte Carlo vs. linear perturbation[J]. Annals of Nuclear Energy, 2016, 92: 150-160.

[5] 刘勇, 曹良志, 吴宏春, 等. 基于经典微扰理论的特征值灵敏度 and 不确定度分析[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(7): 1 247-1 253.

LIU Yong, CAO Liangzhi, WU Hongchun, et al. Eigenvalue sensitivity and uncertainty analysis based on classical perturbation theory[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2015, 49(7): 1 247-1 253(in Chinese).

[6] 万承辉, 曹良志, 吴宏春, 等. 基于抽样方法的特征值不确定度分析[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(11): 1 954-1 960. WAN Chenghui, CAO Liangzhi, WU Hongchun, et al. Eigenvalue uncertainty analysis based on statistical sampling method[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2015, 49(11): 1 954-1 960(in Chinese).

[7] EASTWOOD J W, MORGAN J G, SUBLET J C. Inventory uncertainty quantification using TENDL covariance data in Fispact- II [J]. Nuclear Data Sheets, 2015, 123: 84-91.

[8] TSILANIZARA A, GILARDI N, HUYNH T D, et al. Probabilistic approach for decay heat uncertainty estimation using URANIE platform and MENDEL depletion code[J]. Annals of Nuclear Energy, 2016, 90: 62-70.

[9] FIORITO L, DIEZ C J, CABELLOS O, et al. Fission yield covariance generation and uncertainty propagation through fission pulse decay heat calculation[J]. Annals of Nuclear Energy, 2014, 69: 331-343.

[10] II AS G, LILJENFELDT H. Decay heat uncertainty due to modeling and nuclear data uncertainties[M]. US: SCALE Users' Group Workshop 2017, ORNL, 2017.

[11] HERMAN M. ENDF-6 formats manual: Data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF/B-VI and ENDF/B-VII, BNLNCS- 44945-05-Rev[R]. US: Brookhaven National Laboratory, 2010.

[12] SUBLET J C, PACKER L W, KOPECHY J, et al. The European activation file: EAF-2010 neutron-induced

- cross section library, CCFE-R (10) 05[R]. UK: CCFE, 2010.
- [13] MACFARLANE R E, MUIR D W, BOICOURT R M, et al. The NJOY nuclear data processing system, version 2012, LA-UR-12-27079[R]. US: Los Alamos National Security, 2012.
- [14] MA J, HUANG H. Development of a new general nuclide inventory analysis code GNIAC[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2018, 115: 415-422.
- [15] REARDEN B T, WILLIAMS M L, JESSEE M A, et al. Sensitivity and uncertainty analysis capabilities and data in SCALE[J]. *Nuclear Technology*, 2011, 174(2): 236-288.
- [16] 王毅箴, 崔梦蕾, 郭炯, 等. 基于贝叶斯更新方法的 ^{235}U 热中子独立裂变产额协方差估计[J]. *现代应用物理*, 2021, 12(1):010202.
- WANG Yizhen, CUI Menglei, GUO Jiong, et al. Covariance estimation of ^{235}U thermal neutron independent fission yield based on Bayesian updating method[J]. *Modern Applied Physics*, 2021, 12(1): 010202(in Chinese).
- [17] DICKENS J, LOVE T, PEELLE R. Fission product energy release for times following thermal neutron fission of ^{235}U between 2 and 14, 000 seconds[J]. *Nuclear Science and Engineering*, 1980, 74: 106-129.
- [18] TOBIAS A. Derivation of decay heat benchmarks for ^{235}U and ^{239}Pu by a least squares fit to measured data, CEGB report RD/B/6210/R89.1989[R]. UK: CEGB, 1989.