



На правах рукописи

СМИРНОВА Анастасия Константиновна

**Разработка математической модели выхода радионуклидов из
топлива при авариях на РБМК**

Специальность 2.4.9. – Ядерные энергетические установки, топливный цикл,
радиационная безопасность

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Москва – 2023 г.

Работа выполнена в Национальном исследовательском центре «Курчатовский институт» (НИЦ «Курчатовский институт»)

Научный руководитель: *Краюшкин Александр Викторович*
доктор технических наук,
руководитель отделения канальных реакторов
НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва.

**Официальные
оппоненты:** *Загребаев Андрей Маркоянович*
доктор физико-математических наук, профессор,
заведующий кафедрой кибернетики Института
интеллектуальных кибернетических систем НИЯУ
МИФИ, г. Москва;

Евдокимов Игорь Анатольевич
кандидат физико-математических наук,
заместитель директора отделения теоретической
физики, вычислительной математики и
перспективных разработок
АО «ГНЦ РФ ТРИНИТИ», г. Троицк.

Ведущая организация: АО «Всероссийский научно-исследовательский институт по эксплуатации атомных электростанций» (ВНИИАЭС), г. Москва.

Защита диссертации состоится 5 марта 2024 г., начало в 15:30, на заседании диссертационного совета 02.1.003.04 на базе НИЦ «Курчатовский институт» по адресу: 123182, г. Москва, пл. Академика Курчатова, д.1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ «Курчатовский институт» и на сайте www.nrcki.ru

Автореферат разослан « ____ » _____ 2023 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета 02.1.003.04
кандидат физико-математических наук



Д.А. Шкаровский

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

События на АЭС Фукусима в 2011 году вызвали новый виток интереса к исследованию запроектных тяжелых аварий, которые, например, применительно к АЭС с РБМК ранее практически не рассматривались. При моделировании и анализе любых аварий одним из центральных вопросов является прогнозирование радиационных последствий. Анализ радиационных последствий аварий является обязательной частью обоснования безопасности АЭС. Исходными данными для прогнозирования радиационной обстановки и далее для принятия решений по управлению аварией и минимизации ее последствий, а также для рассмотрения вариантов по защите населения и персонала является количество накопленных в топливе и под оболочкой твэла радиоактивных веществ.

Большинство запроектных, тяжелых аварий, как правило, сопровождаются сильным разогревом ядерного топлива. Поэтому вопрос о количественной оценке выхода продуктов деления из топлива при повышении его температуры является крайне важным для определения состава и активности выброса и, как следствие, оценки радиационного воздействия на население и персонал.

Также при моделировании процесса выхода представляют интерес не только летучие радионуклиды (РН), но и РН с пониженной степенью летучести. Вклад в радиационные последствия при авариях РН с пониженной степенью летучести редко рассматривается по причине недостаточной информации о скорости и степени выхода.

Вследствие этого тема исследования представляется актуальной.

Цели и задачи исследования

Целью данной работы явилась разработка математической модели и программного средства для оценки выхода продуктов деления из топлива при авариях на реакторе РБМК для анализа радиационной безопасности.

Для достижения цели были выполнены следующие задачи:

- Разработка математической модели выхода из топлива летучих и слаболетучих продуктов деления, применимой как для оценки выхода накопленных под оболочкой РН в течение предшествовавшей аварии нормальной работы (из-за разрушения оболочек), так и при нагреве топлива в ходе аварии.
- Верификация, валидация и аттестация программного средства на основе разработанной математической модели для оценки выхода продуктов деления из топлива.
- Расчет зависимостей скорости выхода РН из топлива от температуры топлива различных групп летучести при аварии с полным обесточиванием.
- Разработка метода оценки массы топлива, попавшего в графитовую кладку в результате возможной аварии, по данным радиационного контроля активности отходящих из реакторного пространства газов.

Научная новизна работы

Разработана математическая модель и программы «*CHAIN*»/«*CHAIN-2*» расчета выхода РН из топлива РБМК, которые можно использовать как при оценке выхода накопленных под оболочкой в течение предшествующей аварии нормальной работе радионуклидов, так и при аварийном нагреве топлива для реакторов типа РБМК. Верифицированные и прошедшие процедуру аттестации программные средства для расчета выхода продуктов деления из топлива РБМК при авариях с повышением температуры топлива на момент начала работы отсутствовали.

Помимо выхода основных дозообразующих (газообразные и летучие ПД) в программе также рассматриваются выходы РН средней и слабой степени летучести, которые ранее для РБМК практически не рассматривались.

Практическая значимость работы

Заключается в повышении безопасности АЭС с реакторами типа РБМК и снижении консерватизма расчетов в рамках проведения анализа безопасности. Разработанные программы («*CHAIN*»/«*CHAIN-2*») прошли процедуру аттестации, следовательно, их можно использовать в работах по обоснованию безопасности реакторов типа РБМК.

Результаты исследования входят в актуализированные материалы технических обоснований Руководств по управлению запроектными авариями на Ленинградской, Курской и Смоленской атомных станциях, а также в материалы обоснований безопасности АЭС с РУ РБМК.

Степень достоверности и апробация результатов

Достоверность результатов подтверждена валидацией и аттестацией разработанных программ с присвоением Ростехнадзором паспорта №543 от 28.12.2021 (ПС «CHAIN») и № 585 от 23.08.2023 («CHAIN-2»).

По результатам выполненной научно-квалификационной работы было опубликовано 5 работ в научных журналах, 3 из которых в рецензируемых научных изданиях, входящих в перечень научных изданий ВАК, 1 в Scopus, 1 в WOS. Результаты также докладывались и обсуждались на 6 научных межотраслевых и международных конференциях. По результатам работы получено 3 свидетельства о РИД.

Основные положения, выносимые на защиту

1) Математическая модель расчета выхода РН из топлива при авариях и ее программная реализация (ПС «CHAIN» – для летучих радионуклидов, «CHAIN-2» для радионуклидов пониженной степени летучести).

2) Результаты обоснования и валидации модели и программы. Показано, что созданное программное средство на основе разработанной модели находится в приемлемых для радиационной безопасности пределах погрешности.

3) Метод оценки массы топлива, попавшего в графитовую кладку в результате возможной аварии, по данным радиационного контроля активности отходящих из реакторного пространства газов.

4) Расчетные зависимости скорости выхода радионуклидов различных групп летучести из топлива от температуры при аварии с полным обесточиванием.

Личный вклад автора

Автор лично выполнил поиск в открытых публикациях, анализ и обобщение информации по теме исследования. Автором совместно с научным руководителем диссертации выполнена разработка математической модели выхода РН из топлива

РБМК и программы, реализующей данную модель. Автором лично проведен подбор материалов для верификации, проведена верификация и валидация программы в период с 2017 по 2023 г, а также выполнены расчеты выходов РН при авариях на РБМК, которые представлены в диссертации.

Структура и объем диссертации

Диссертация изложена на 151 стр., содержит 31 рисунок, 47 таблиц, состоит из введения, 4 глав, заключения и списка литературы из 98 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность работы, сформулирована ее цель, и поставлены задачи для достижения цели, приведена информация о научной новизне, описана практическая значимость и достоверность полученных результатов, изложены основные положения, выносимые на защиту, приведена информация об основных публикациях по теме работы

В первой главе проведен аналитический обзор существующих подходов к описанию выхода продуктов деления из топлива.

Общепринято, что выход ПД (кроме криптона и ксенона) происходит в два этапа: сначала ПД в матрице диффундируют до границ зерен, а затем за счет механизма испарения ПД переносятся с поверхности зерна за пределы топливной матрицы (образование пузырьков на поверхности, перенос газа по взаимосвязанным туннелям к свободным поверхностям). Для температур ниже 1200°С выбросы в значительной степени связаны с выделением газа, находящегося на границе зерен и накопленного на этом уровне при стандартном облучении. При более высоких температурах происходит классическая диффузия газов.

Общий вывод из литературных данных следует такой: для летучих ПД выход из топлива зависит в основном от диффузии внутри уранового топлива, тогда как выход слаболетучих и нелетучих продуктов деления в большей степени зависит от термохимии облученного топлива и окружающей газовой среды.

Существует два подхода к исследованию выходов продуктов деления из топлива. Первый – создание сложных моделей, описывающих поведение

пузырьков газа, – механистический подход. Второй – эмпирический, т.е. создание моделей на основе результатов экспериментов. Однако ситуация усугубляется отсутствием полной (и главное точной) экспериментальной информации о ключевых свойствах материалов, например, о коэффициентах диффузии. В целом, из-за неопределенности измерений и сложности экспериментальных подходов, основные свойства часто пытаются смоделировать, используя теоретические подходы, корректируя коэффициенты в диапазоне неопределенностей, чтобы получить наилучшее общее согласие с доступными экспериментальными данными. При использовании механистического подхода неопределенности в описании и обосновании основных механизмов поведения ПД значительно усложняют любое прогнозирование. Еще одной проблемой детального механистического подхода при создании кодов для расчета выхода продуктов деления под оболочку твэла является невозможность точного описания поведения пузырьков газа, т.к. их образование и рост трудно наблюдать непосредственно, хотя существует ряд исследований с экспериментальными доказательствами образования и роста внутризеренных пузырьков. С другой стороны, при создании эмпирических упрощенных моделей, без учета зарождения, роста и миграции пузырьков, возможно завышение скорости выхода газов, так как не будут учтены важные механизмы влияния точечных (и протяженных) дефектов на рост пузырьков. Однако, с точки зрения радиационной безопасности, это оказывается не настолько важно, упрощенная модель оказывается выгоднее быстротой расчета и приемлемостью результатов, особенно в случае повышения температуры топлива.

Во второй главе приведено описание математической модели и ее программной реализации.

Для расчета выхода РН из топливной таблетки была разработана подпрограмма *RR*, которая интегрирована в основную программу *CHAIN* (программа *CHAIN* была ранее разработана в НИЦ «Курчатовский институт» для расчета изотопного состава и радиационных характеристик). Разработанный блок расчета выхода РН является модификацией и продолжением развития программы

CHAIN. Далее был дописан блок для расчета выхода РН пониженной степени летучести, что учтено в модифицированной версии программы *CHAIN-2*.

Для расчета выхода РН из топлива рассматривается фрагмент диоксида урана цилиндрической формы (т.е. моделируется одна топливная таблетка). РН генерируются в объеме фрагмента и диффундируют к поверхности. Часть РН выходит через геометрические поверхности, часть через внутренние каналы – открытую пористость. Иллюстрация модели приведена на рисунке 1.

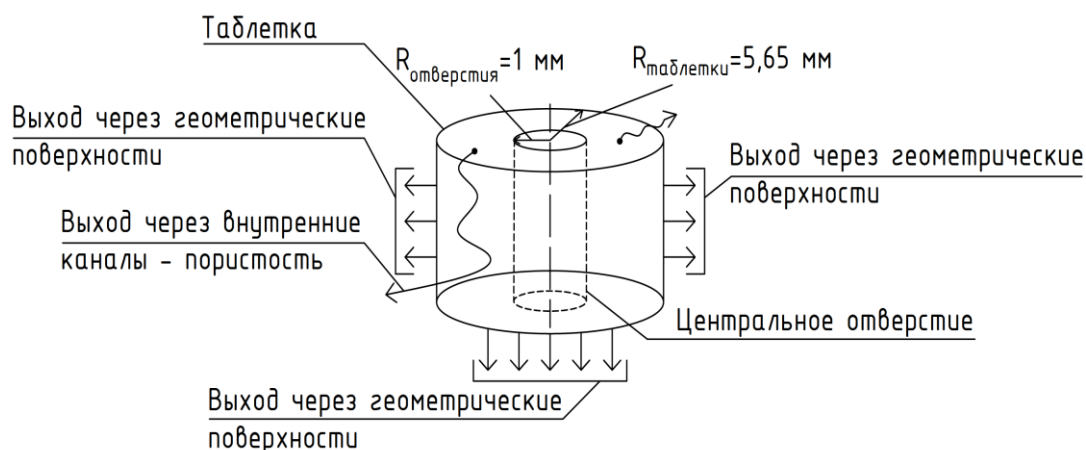


Рисунок 1. Иллюстрация модели, заложенной в основу программы

Миграция РН описывается уравнением (1):

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \nabla D \nabla N - \lambda_{эфф} N - \Sigma N + q, \quad (1)$$

где N – концентрация рассматриваемого РН;

D – коэффициент диффузии;

$\lambda_{эфф}$ – эффективная постоянная ухода РН, $\lambda_{эфф} = \lambda + \sigma_x \cdot \Phi$;

λ – постоянная распада;

$\sigma \cdot \Phi$ – скорость выгорания РН в потоке нейтронов в расчете на одно ядро;

Σ – величина, учитывающая уход РН из зерен диоксида урана в поры и последующий выход за пределы диоксида;

q – скорость генерации РН при делении и распаде предшественников (если они есть).

Ключевым параметром в данной задаче является коэффициент диффузии, который определяется выражением (2) из статьи «Fission gas release from UO_2

nuclear fuel: A review» авторов J. Rest, M.W.D. Cooper, J. Spino, J.A. Turnbull, P. van Uffelen, C.T. Walker (Journal of nuclear materials V. 513, 2019):

$$D = A \cdot e^{-\frac{B}{T}} + C \cdot \sqrt{n} \cdot e^{-\frac{13800}{T}} + D_0 \cdot n, \quad (2)$$

где T – температура диоксида урана (К);

n – плотность делений (дел/(м³·с));

A, B, C, D_0 – коэффициенты, полученные из анализа экспериментальных данных.

Зачастую программные средства создаются на основе моделей расчета выходов при нормальных условиях (в первую очередь имеются в виду температуры топлива при нормальной эксплуатации). Однако для аварийных условий, либо при отступлении от нормальных условий такие модели (соответственно и программы) использоваться не могут. Разработанная модель является отступлением от механистических подходов, когда моделируется поведение (образование, рост, миграция) пузырьков газа. Это обуславливает быстроту расчетов, простоту методики, снижение неопределенностей. Однако основная неточность заключается в погрешности исходных данных и погрешности эмпирических коэффициентов. Цель настоящей работы заключалась в том, чтобы распространить одну математическую модель на оба режима: накопление РН под оболочкой герметичного твэла при нормальной эксплуатации и выходе при аварии, включая нагрев топлива. В общем случае топливный фрагмент (по умолчанию для РБМК это твэл) делится на ноды по радиусу и высоте, в каждой ноде на каждом временном шаге рассматривается баланс (рисунок 2) между генерацией, распадом и выжиганием РН, уходом из ноды за счет диффузии в соседние ноды и за счет ухода через поры. Для описания ухода РН через поры вводится член $\Sigma \cdot N$. Таким образом член $\Sigma \cdot N$ в уравнении (1) выступает как некое внутреннее поглощение, в результате которого РН выходит за пределы диоксида урана. На рисунке 2 показаны стрелками макроскопические перетоки РН. Нода состоит из отдельных зерен диоксида урана, разделенных порами. Выделяется характерное зерно (показано на рисунке 2 справа), окруженное пространством пор. Утечка из зерна в

это пространство означает частичный выход РН в свободное пространство твэла (под оболочку). Утечка из зерен описывается приближенно диффузионным законом (N_{in} – средняя концентрация РН внутри зерна, N_{out} – концентрация РН в порах).

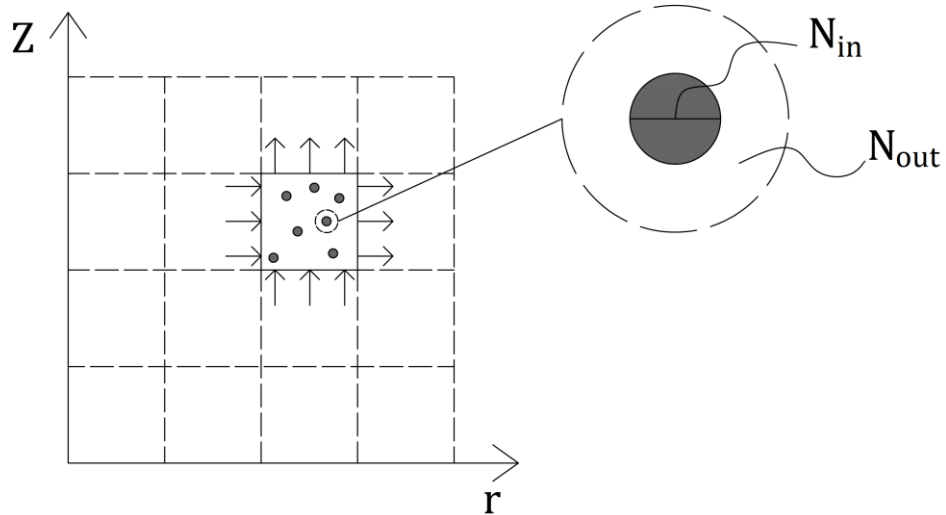


Рисунок 2. Схематическое представление баланса РН внутри поры

Таким образом, утечка через единицу площади (Y) будет равна:

$$Y = D \cdot \xi \frac{N_{in} - N_{out}}{R_3},$$

$$\Sigma \sim \frac{D}{R_3} \quad (3)$$

В качестве Σ будет выступать:

$$\Sigma = \frac{S_1}{R_3} \cdot D_{eff},$$

$$D_{eff} = D \cdot \xi \left(1 - \frac{N_0}{N}\right) \quad (4)$$

где ξ – доля пор, из которых имеется открытый выход из диоксида;

S_1 – площадь поверхности зерен, приходящаяся на единицу объема, м^{-1} ;

R_3 – радиус зерна диоксида урана, м;

N – концентрация РН в диоксиде;

N_0 – концентрация РН в открытом пространстве (под оболочкой и в открытых порах);

D_{eff} – эффективный коэффициент диффузии, $\text{м}^2/\text{с}$.

Величина N_0 определяется в ходе расчета с учетом заданной доли открытого пространства в твэле, которая может изменяться во времени (например, из-за сокращения зазора между топливом и оболочкой).

Уравнение (1) дискретизируется по времени, используя неявную схему. Далее уравнение дискретизируется по пространственным переменным r и z . В результате на каждом временном шаге получается система линейных алгебраических уравнений с источником. Эта система решается итерационно. В качестве начального приближения используется распределение с предыдущего шага. Используя полученные распределения на каждом шаге, вычисляется утечка радионуклида за пределы таблетки через геометрические поверхности и утечка через поры как интеграл по объему $Y = \int_{V_1}^{V_2} \Sigma(\vec{r}) \cdot N(\vec{r}) dV$. Уравнение (1) решается в двумерной r - z геометрии конечно-разностным методом с граничными условиями $N = 0$ на торцах и боковой поверхности цилиндра (включая центральное отверстие в таблетке, если оно есть) и начальным условием $N(\vec{r}, 0) = 0$.

Температура по таблетке в радиальном направлении рассчитывается специальной подпрограммой с учетом изменения с выгоранием топлива зазора топливо-оболочка, либо радиальное распределение может быть задано. После определения температуры в каждой ноде рассчитывается коэффициент диффузии, и определяются конечно-разностные коэффициенты уравнения диффузии, в том числе коэффициенты, связывающие соседние ноды. Учет перетечек из ноды в ноду в топливной таблетке не имеет значения, за исключением нод вблизи геометрических поверхностей, где этот учет позволяет аккуратно описать утечку. Однако вклад утечки через геометрические поверхности количественно не превышает $10^{-2} \div 10^{-3}$ от полного выхода. В этом же блоке производится расчет выгорания и коэффициентов, зависящих от выгорания и температуры, и используемых при расчете коэффициента диффузии, включая изменение размера зерна диоксида при больших выгораниях (> 50 МВт·сут/кг).

После получения распределений РН в объеме топливных таблеток, либо в объеме рассматриваемой частицы диоксида вычисляется выход РН, как отношение

количества ядер РН, находящихся вне диоксида, к полному числу ядер РН, накопленному к данному моменту.

Исходные значения для эмпирических констант A и B в выражении (2) следующие: $A = 7,5 \cdot 10^{-11} \text{ м}^2/\text{с}$; $B = 35000 \text{ К}$. Они корректировались, основываясь на экспериментальных данных, для возможности распространения модели на нормальные и аварийные условия. Для оценки возможности использования формулы (2) при температурах выше 1200°C рассматривались и сравнивались с экспериментальными данными (полученными в ФЭИ) расчеты по выходу цезия-137 из облученного топлива при нагреве. Фрагменты облученного диоксида урана массой от 4 до 22 г нагревались до определенной температуры в интервале от 1200°C до 2200°C и затем выдерживались при этой температуре в течение $100 \div 200$ мин.

В таблице 1 сравниваются экспериментальные и расчетные данные по выходу цезия-137. Расчеты проведены как с исходными параметрами A и B в выражении (2), так и с скорректированными.

Таблица 1 – Выход ^{137}Cs при нагреве топлива (% от накопленного)

№	Температура, $^\circ\text{C}$	Эксперимент	Расчет	
			Исходные параметры A и B в (2)	Скорректированные параметры A и B в (2)
1	1250*	2÷3	–	1,5
2	1400	10	0,008	9,2
3	1600	20	0,08	20
4	1800	35÷45	0,5	44
5	2000	50÷60	2,0	64
6	2100*	55÷70	–	85

Видно, что исходные значения параметров A и B в формуле (2) приводят к существенной недооценке выхода и являются по существу непригодными для описания выхода при нагреве топлива, хотя при расчете выходов при нормальной работе эти параметры обеспечивают приемлемые результаты. Корректировка этих параметров для случая аварийного нагрева позволяет при этом получить неплохое согласие. Звездочкой помечены температуры в 1250°C и 2100°C , которые не использовались при корректировке. Т.е. с их помощью расчет проверяется за пределами интервала, на котором корректировка проводилась.

Корректировка заключалась в следующем:

1) На основании литературных данных, совокупности экспериментов по выходу РН из диоксида урана при нагреве, и рассмотрения различных эмпирических моделей выхода РН, изменены значения параметров A и B :

- параметр A с $7,5 \cdot 10^{-11}$ на $3 \cdot 10^{-8}$
- параметр B с 35000 на 32000.

Целесообразно прокомментировать такое значительное изменение параметра A . $A=7,5 \cdot 10^{-11}$ м²/с является минимальной оценкой этого параметра. Максимальная, встречающаяся в литературе, составляет $1 \cdot 10^{-8}$ м²/с, которая тем не менее давала заниженные выходы.

2) Эти значения используются до уровня температур 1400°С. При бóльших температурах величина A снижается:

$$A(T) = A(1400) \cdot \chi(T),$$

Параметр $\chi(T)$ равен единице при $T=1400^\circ\text{C}$ и при росте температуры снижается, что описывает отступление от экспоненциальной зависимости коэффициента диффузии от температуры по закону Аррениуса, которое наблюдается в экспериментах при высоких температурах.

В третьей главе приведена валидация разработанной модели.

Полученная после корректировки расчетная модель проверяется на данных других, независимых экспериментов.

В таблице 2 приведена краткая характеристика экспериментов VI. В таблице 3 приведены экспериментально полученные выходы для йода и цезия и соответствующие расчетные значения.

Таблица 2 – Краткая характеристика экспериментов по измерению выхода РН при нагреве фрагментов топлива.

№	Обозначение эксперимента	Содержание эксперимента
1	VI – 2	Нагрев до $T_{\max} = 2300\text{K}$ и выдержка при T_{\max} в течение 60 мин
2	VI – 3	Нагрев до $T_{\max} = 2700\text{K}$ и выдержка при T_{\max} в течение 20 мин
3	VR – 3	Нагрев до $T_{\max} = 2570\text{K}$ и выдержка при T_{\max} в течение 15 мин
4	VR – 4	Нагрев до $T_{\max} = 2570\text{K}$ и выдержка при T_{\max} в течение 30 мин

Таблица 3 – Экспериментальные и расчетные величины выхода РН (%).

№	РН	Эксперимент	Расчет	Отклонение от эксперимента, %
1	<i>I</i>	40,0	35,9	-10,3
	<i>Cs</i>	67,0	36,0	-46,3
2	<i>I</i>	79,0	72,4	-8,4
	<i>Cs</i>	99,9	72,6	-27,3
3	<i>I</i>	70,0	78,7	12,4
	<i>Cs</i>	70,0	78,9	12,7
4	<i>I</i>	87,0	90,1	3,6
	<i>Cs</i>	93,0	90,4	-2,8

Из результатов, приведенных в таблице 3, видно, что максимальное отклонение расчета от эксперимента 46,3%, что является приемлемой величиной погрешности для расчетов, необходимых для дальнейших оценок радиационной безопасности.

Необходимо заметить, что коэффициент диффузии, даваемый выражением с одинаковыми параметрами (2) предлагается использовать для всех изотопов йода, цезия, а также для всех инертных радиоактивных газов. Йод и цезий – летучие ПД с большим вкладом в радиологические последствия в особенности при тяжелых авариях. Это одни из основных (наравне с РБГ) дозообразующих радионуклидов при авариях.

Модель расчета выходов РН пониженной летучести при аварийном нагреве топлива будет отличаться коэффициентами, которые входят в уравнение диффузии. Коэффициенты, подобранные полуэмпирическим путем, учитывают значительную зависимость выхода слабо- и средне летучих ПД от состояния атмосферы, с которой они взаимодействуют.

Для *Cs*, *I*, *Xe*, *Kr*, *Te* (летучие РН) параметры *A* и *B* не изменяются во всех случаях. Для остальных РН параметр *A* меняется в зависимости от свойств среды, в которую выходит РН. Свойства среды устанавливаются в каждом конкретном случае, и соответствующие значения *A* вводятся во входном файле программы.

Для верификации и валидации программы использовались зарубежные эксперименты *VI*, *VR* (*ORNL*), а также Российские – эксперименты ФЭИ.

В таблице 4 приводятся основные характеристики экспериментов. Для экспериментов VI-2, VI-3, VR-5 атмосфера была в основном окислительная, для VI-4, VI-5, VR-4 – восстановительная. В таблице 5 приводятся результаты сравнения расчетных данных с экспериментальными.

Таблица 4 – Основные характеристики экспериментов

Эксперимент	VI-2	VI-3	VI-4	VI-5	VI-6	VR-3	VR-4	VR-5
Выгорание, ГВт·сут/тU	42	42	47	42	42	38,3	38,3	38,3
T_{max} , К	2300	2700	2440	2720	2300	2570	2570	2570
Время при T_{max} , мин	60	30	20	20	60	15	30	30
Атмосфера	H_2O+He	H_2O+He	H_2+He	H_2+He	H_2O+H_2+He	H_2O+H_2	H_2	H_2O
Размер зерна, мкм	6	6	6	6	6	4	8	8

Таблица 5 – Результаты сравнения расчетов выхода ПД с экспериментами

Радионуклид	Эксперимент VI-2		
	Эксперимент	Расчет	Отклонение от эксперимента, %
<i>Mo</i>	86	99	15,1
<i>Ba</i>	19	13	-31,6
Эксперимент VI-3			
<i>Te</i>	99	99	0,0
<i>Sr</i>	2,7	3,9	44,4
<i>Mo</i>	77	100	29,9
<i>Ru</i>	5	4,8	-4,0
<i>Ba</i>	29,7	60	102,0
<i>Ce</i>	0,2	2,9	>100
Эксперимент VI-4			
<i>Te</i>	46	99	115,2
<i>Ba</i>	27	22	-18,5
<i>Eu</i>	19	16,3	-14,2
Эксперимент VI-5			
<i>Te</i>	82	100	22,0
<i>Sr</i>	34	41,7	22,6
<i>Mo</i>	2,26	9	298,2
<i>Ba</i>	75	74	-1,3
<i>Ce</i>	2	0,91	-54,5
<i>Eu</i>	57	26,7	-53,2
Эксперимент VI-6			
<i>Te</i>	63	99	57,1
<i>Sr</i>	5,8	9,3	60,3
<i>Mo</i>	13	39	200,0
<i>Ba</i>	32	24	-25,0
<i>Eu</i>	14	19,1	36,4
Эксперимент VR-3			

<i>Te</i>	76	99	30,3
<i>Mo</i>	42	55	31,0
<i>Ba</i>	13	38	192,3
<i>La</i>	<4	1,3	-67,5
<i>Eu</i>	<6	18	200,0
Эксперимент VR-4			
<i>Te</i>	100	99	-1,0
<i>Sr</i>	<6	27	350,0
<i>Mo</i>	47	45	2,5
<i>Ru</i>	6	6,1	1,7
<i>Ba</i>	80	57	-28,8
<i>Ce</i>	3	0,87	-71,0
<i>La</i>	<3	2,3	-23,3
<i>Eu</i>	<5	11,5	130,0
Эксперимент VR-5			
<i>Te</i>	>98	99	1,0
<i>Sr</i>	<6	2,02	-66,3
<i>Mo</i>	92	100	8,7
<i>Ru</i>	6	1,91	-68,2
<i>Ba</i>	55	35	-36,4
<i>Ce</i>	<3	2,26	-24,7
<i>La</i>	<3	2	-33,3
<i>Eu</i>	<3	2,77	-7,7

Из таблицы 5 видно, что наибольшее отклонение от эксперимента соответствует стронцию и церию, причем расчеты дают более консервативный результат в большинстве тестов. Выход радионуклидов пониженной степени летучести из топлива крайне зависит от окислительно-восстановительных условий, эмпирические коэффициенты, подобранные по сериям экспериментов, могут недостаточно детально описывать условия воспроизводимых экспериментов в тестах. Также высокая погрешность у молибдена, что объясняется достаточно консервативным подходом к рассмотрению данного радионуклида при восстановительной атмосфере, для которого характерна смена состояния от летучего при окислительной атмосфере до пониженной степени летучести при восстановительной.

В четвертой главе рассмотрены в качестве примера использования модели и программы некоторые аварии: аварийная ситуация с попаданием топлива в графитовую кладку реактора и гипотетическая запроектная авария с полным обесточиванием.

Инциденты, когда из-за пережога твэлов и канальной трубы топливо попадало в графитовую кладку реактора, произошли на Ленинградской АЭС в 1975 и 1992 году, а также в 1982 году на первом энергоблоке Чернобыльской АЭС. Количество топлива после многих лет облучения в кладке представляет интерес в задачах вывода реактора из эксплуатации. Для анализа количества просыпей топлива, проникших и оставшихся в графитовой кладке, можно использовать для сравнения данные по активности короткоживущих ИРГ в потоке гелий-азотной смеси на выходе из реакторного пространства. Данные измерения регулярно проводятся на каждом блоке.

Предположим, что в кладку в результате аварии попало топливо. К концу эксплуатации энергоблока (спустя 45 лет) единичная масса топлива остается в кладке. Для расчета активности радиоактивных газов на выходе из РП, что является индикатором нахождения просыпей топлива в кладке, с которым можно сравниться, была определена с помощью программы *CHAIN* удельная активность ИРГ в топливе. Выполнено моделирование облучения гипотетической аварийной ТВС в канале, а затем фрагментов топлива этой ТВС в графите. Предполагалось, что выгорание топлива в ТВС на момент аварии соответствовало 10 МВт·сут/кг, далее частицы топлива выгорали в потоке нейтронов в течение 45 лет до значения >100 МВт·сут/кг. Результаты модельного расчета стационарных активностей ИРГ, которые регистрируются при мониторинге на энергоблоках, приведены в таблице 6. Поскольку положение фрагментов и их размер неизвестны, то рассматривался вариант расположения просыпей на внешней поверхности графитового блока.

Таблица 6 – Удельная активность ИРГ в топливе, ГБк/г

Радионуклид	Активность
<i>Kr-85m</i>	2,4
<i>Kr-87</i>	5,2
<i>Kr-88</i>	6,6
<i>Xe-133</i>	40,5
<i>Xe-135</i>	6,5
<i>Xe-138</i>	30,6

Активность ИРГ, которую можно измерить на выходе из реакторного пространства ($A_{\text{ВЫХ.ИЗМЕР}}$), можно связать с массой и активностью топлива по соотношению (5):

$$A_{\text{ВЫХ.ИЗМЕР}} = m \cdot A_{\text{ВЫХ1}} = 0,693 \cdot m \cdot \frac{A_{\text{ТОПЛ}} \cdot \varepsilon}{T + T_{\text{П}}}, \quad (5)$$

где $A_{\text{ВЫХ1}}$ – активность, которая фиксировалась бы на выходе при единичной массе топлива в кладке, Бк/г;

m – масса топлива в графитовой кладке, г

ε – доля активности, выходящая за пределы топлива;

$A_{\text{ТОПЛ}}$ – стационарная активность в топливе, Бк/г;

T – период полураспада РН;

$T_{\text{П}}$ – период, соответствующий удалению половины РН продувкой.

С помощью программы *CHAIN* определены параметры ε , $A_{\text{ТОПЛ}}$ (таблица 6), входящие в выражение (5), далее выполнена оценка активности для каждого ИРГ. Предполагалось, что на момент 45 лет эксплуатации в графитовой кладке присутствует один килограмм топлива. Результаты представлены в таблице 7.

Таблица 7 – Оценки скорости поступления ИРГ из реакторного пространства при массе топлива 1 килограмм, ГБк/час

Радионуклид	Активность отходящих из РП газов
^{85m}Kr	8,9
^{87}Kr	23,0
^{88}Kr	28,9
^{133}Xe	19,9
^{135}Xe	26,4
^{138}Xe	56,6

При сравнении с результатами измерений отклонение оценочных расчетов по данной методике составляет ~100%, т.е. оценочные расчеты примерно в 2 раза завышены.

Таким образом с использованием постоянно измеряемых экспериментальных данных по выходам ИРГ из реакторного пространства, расчетов образования ИРГ и их выхода из фрагментов топлива в объем реакторного пространства можно оценить количество топлива в кладке без проведения специальных измерений.

В качестве второго примера рассмотрена гипотетическая запроектная авария с полным обесточиванием. Если моделирование любых проектных аварий нормативные документы предписывают проводить консервативно, то для запроектных аварий необходимо использовать реалистический подход. Расчет количества вышедших радионуклидов вместо предположения о полном выходе ПД из топлива – реализация реалистического подхода. Одной из основных запроектных аварий, которую требуется рассматривать при обосновании безопасности, является полное длительное обесточивание, т.к. она включает в себя последствия почти всех других запроектных тяжелых аварий, за исключением аварий реактивностного характера.

Для реалистичного прогноза развития запроектной аварии с полным обесточиванием необходимо знать о полномасштабном выходе радионуклидов, т.е. необходимо учитывать состояние каждой конкретно ТВС: ее выгорание, температуру, расположение в активной зоне. Для анализа этой аварии в РБМК в НИЦ «Курчатовский институт» разработано программное средство *STEPAN-T*, в котором одной из центральных задач является задача оценки выхода РВ при полном обесточивании энергоблока. Блок расчета выходов интегрирован в программу *STEPAN-T*, массивы данных передаются в основную программу и далее обрабатываются для каждой ТВС отдельно. С учетом пространственного распределения и временной зависимости температур определяются моменты разгерметизации твэлов. Предполагается, что после этого момента вся накопленная под оболочкой активность выходит в объем каналов, а при дальнейшем нагреве твэла выходят дополнительно РН, накопленные в топливной матрице.

На рисунке 3 показаны зависимости, полученные по программе *STEPAN-T*, температуры (максимальной и средней) топлива от времени при развитии такой

аварии (без управляющих воздействий). Температура – самый важный фактор, влияющий на выход радионуклидов.

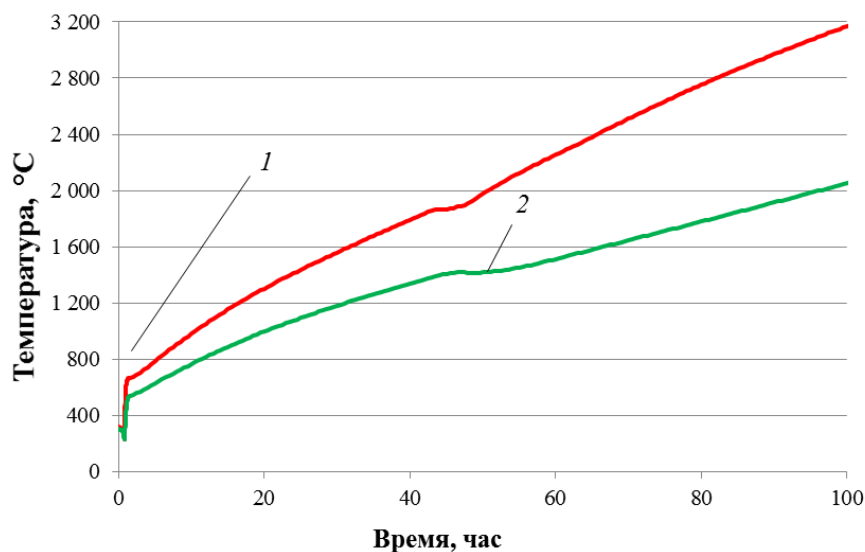


Рисунок 3. Зависимость температуры топлива от времени:
1 – максимальная температура топлива; 2 - средняя температура топлива.

Чтобы проиллюстрировать общее поведение ПД, принадлежащих к различным категориям летучести, на рисунках 4, 5 сравнивается зависимость скорости выхода от температуры для йода (летучая группа) и рутения (слаболетучая). Нелетучие ПД, такие как, например, цирконий, в программе не рассматриваются.

На рисунке 4 показана зависимость от температуры скорости выхода для йода-131, которая, как показывают расчеты, может быть принята идентичной также для ИРГ, других РН йода и цезия (т.е. всех летучих продуктов деления). На рисунке 5 показана аналогичная зависимость для рутения-103, представляющего группу слаболетучих продуктов деления.

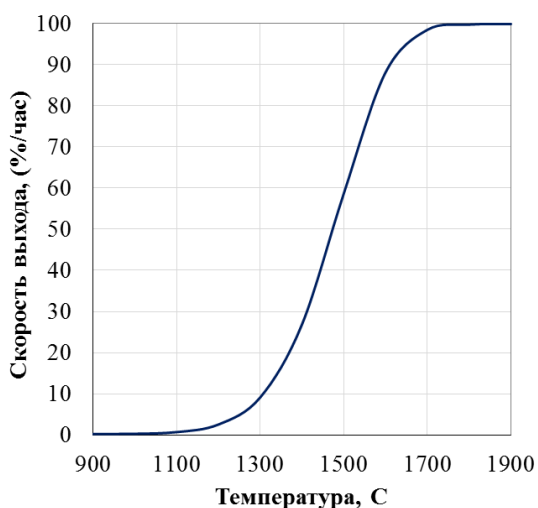


Рисунок 4. Зависимость от температуры скорости выхода для I-131

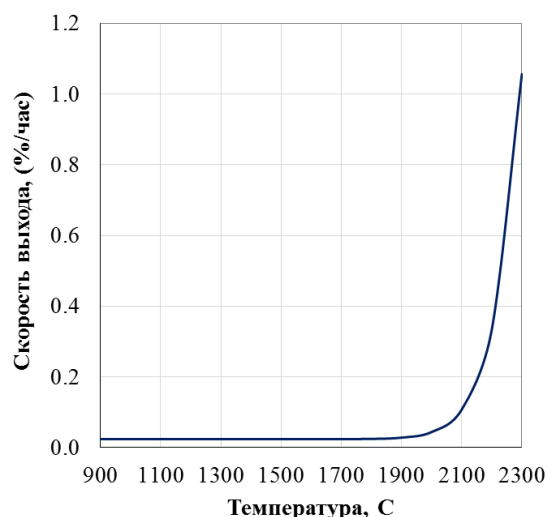


Рисунок 5. Зависимость от температуры скорости выхода для Ru-103

Из рисунка 4 следует, что скорость выхода из топливной матрицы для группы летучих РН за счет нагрева топлива становится заметной при температурах выше 1100°C и достигает величины 100% от накопленного в час при температурах 1700÷1800°C. Для нелетучих РН эта скорость практически равна нулю примерно до уровня температур 2000°C и повышается до величины порядка 1% от накопленного лишь при температуре 2300°C (при выдержке 1 час). Для РН с пониженной степенью летучести необходима бóльшая температура и более длительное время выдержки для процесса выхода из топлива.

Получаемые в расчете данные по выходам радионуклидов являются исходными для дальнейшей оценки доз на население.

Для сравнения и понимания о радиологической опасности радионуклидов для населения, которое проживает за пределами АЭС, в таблице 8, на примере некоторых радионуклидов, содержавшихся в аварийном выбросе при протекании аварии на Чернобыльской АЭС, приведена активность и коэффициенты дозового преобразования, необходимые для расчета радиационных последствий. В скобках приведен процент выхода РН в окружающую среду от накопленного в топливе по данным из монографии И.П. Крышева и Е.П. Рязанцева «Экологическая безопасность ядерно-энергетического комплекса России».

Таблица 8 - Радионуклидный состав аварийного выброса с ЧАЭС

Нуклид	Активность, 10^{15} Бк	Процент выхода в ОС от накопленного в топливе, %	$R^r_{\text{поверхность}}$, $\text{Зв}\cdot\text{м}^2/\text{с}\cdot\text{Бк}$	$R^r_{\text{облако}}$, $\text{Зв}\cdot\text{м}^3/\text{с}\cdot\text{Бк}$	$R_{\text{ингаляция}}$, $\text{Зв}/\text{Бк}$	Период полураспада, часы
<i>Sr-90</i>	8	4-5	$1,6\cdot 10^{-18}$	$9,8\cdot 10^{-17}$	$1,5\cdot 10^{-7}$	$2,5\cdot 10^5$
<i>I-131</i>	1200-1700	40-70	$3,6\cdot 10^{-16}$	$1,7\cdot 10^{-14}$	$1,7\cdot 10^{-7*}$	193
<i>Cs-137</i>	70-85	20-40	$5,3\cdot 10^{-16}$	$3,6\cdot 10^{-14}$	$8,8\cdot 10^{-9}$	$2,6\cdot 10^5$
<i>La-140</i>	-	Образуется при распаде <i>Ba-140</i>	$2,2\cdot 10^{-15}$	$1,1\cdot 10^{-13}$	$6,3\cdot 10^{-9}$	40
<i>Ru-103</i>	170	3,5-6	$4,49\cdot 10^{-16}$	$2,08\cdot 10^{-14}$	$1,1\cdot 10^{-8}$	942
*для молекулярной формы йода						

Из таблицы 8 видно, что основной вклад в дозу облучения от облака или поверхности при расчете радиационных последствий аварии, будут давать йод и цезий. Процент выхода элементов пониженной степени летучести (для примера рассматривается стронций, лантан, рутений) на порядок ниже, однако их учёт повышает дозу облучения на десятки процентов. При небольшом проценте выхода данных элементов их коэффициенты дозового преобразования могут на порядок превышать коэффициенты для йода и цезия, данное превышение отчетливо прослеживается для *La-140*, который может также образоваться при распаде уже вышедшего из топлива *Ba-140*, и *Ru-103*. Неучет элементов пониженной степени летучести при детальном реалистичном расчете радиационных последствий запроектных тяжелых аварий может привести к недооценке дозы облучения как персонала, так и населения, проживающего вокруг станции.

В работах (например, И.И. Крышев, Е.П. Рязанцев «Экологическая безопасность ядерно- энергетического комплекса России», изд. АТ, 2010г.; И.Н. Гераскин, А.В. Краюшкин, А.К. Смирнова, Программа РС расчёта доз от радиоактивных выбросов в атмосферу, Вопросы атомной науки и техники. Серия: физика ядерных реакторов, вып. 5, 2022 г), где рассчитываются дозы от поверхности в районе Чернобыльского «рыжего леса», можно отметить, что на 01.10.86 30% дозы приходится на *Cs-134* и *Cs-137* и еще 30% на *I-131*. Остальные РН дают оставшиеся 40% (причем доминирующий вклад, ~20% от полной дозы, приходится на *Ru-103*). Т.е. при возникновении запроектных (и особенно растянутых по времени) аварий для прогнозирования радиационных последствий

необходимо учитывать помимо летучих дозообразующих РН (изотопы йода, цезия, криптона и ксенона) также и элементы с пониженной степенью летучести (например, стронций).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе работы получены следующие результаты:

1. Разработана математическая модель выхода радионуклидов из топлива, которую можно применять как для оценки их накопления под оболочкой ТВЭЛОВ при предшествовавшей аварии нормальной работе, так и при нагреве топлива в ходе аварии. В существующую в НИЦ «Курчатовский институт» программу *CHAIN* был интегрирован блок расчета выходов радионуклидов, далее был разработан блок расчета радионуклидов пониженной степени летучести, который вынесен в отдельную программу *CHAIN-2*. Программы позволяют получить исходные данные по выбросам радионуклидов при авариях на реакторе и при обращении с отработавшим топливом, необходимые для анализа радиационных последствий.

2. Анализ безопасности АЭС в России необходимо проводить с использованием аттестованных программных средств. С этой целью была проведена верификация и валидация программы для оценки выхода радионуклидов, основанной на созданной математической модели. Для группы летучих радионуклидов отклонения расчетных значений от экспериментальных не превышает ~100%, в основном для тестов отклонение составляет примерно ~10%. Для групп радионуклидов пониженной степени летучести отклонения расчетных значений оказались выше.

3. Для практического использования были проанализированы различные типы аварий, детально решены две задачи. Модель была использована для разработки метода оценки массы топлива, попавшего в графитовую кладку при возможной аварии. Если знать измеренную скорость поступления инертных газов из реакторного пространства, можно сравниться с этими данными, рассчитав накопление и выход радионуклидов в реакторное пространство, используя разработанную программу.

4. Вторая задача, для которой была применена разработанная модель: получение зависимостей скоростей выхода радионуклидов из топлива при повышении его температуры в ходе аварии с полным длительным обесточиванием. Модель была интегрирована в полномасштабный код *STEPAN-T* (разработка НИЦ «Курчатовский институт»). Были получены зависимости для радионуклидов, принадлежащих к различным категориям летучести: летучая группа при температурах $1700\div 1800^\circ\text{C}$ практически полностью выходит из топлива, в то время как выход элементов пониженной степени летучести примерно равен нулю до уровня температур $\sim 2100^\circ\text{C}$. В соответствии с данными расчётами можно получить источник выброса радионуклидов в окружающую среду для дальнейших расчетов радиационной безопасности. Также проанализировано, что при тяжелых авариях, растянутых во времени, вклад элементов пониженной степени летучести в радиационные последствия для населения может достигать $\sim 40\%$. Таким образом, при небольшом проценте выхода из топлива, но соразмерными коэффициентами дозового преобразования (которые влияют на анализ радиационных последствий), такие радионуклиды могут вносить свой вклад. Неучет радионуклидов пониженной степени летучести может привести к занижению оценок при реалистичном анализе радиационной безопасности.

Список работ, опубликованных по теме диссертации:

Публикации в сборниках тезисов и докладов:

1. Смирнова А.К. Расчет выхода радионуклидов из топлива РБМК. XV Международная конференция «Безопасность АЭС и подготовка кадров». Тезисы докладов, Обнинск, НИЯУ МИФИ, 2018.
2. Краюшкин А.В., Смирнова А.К. Связь пределов по активности йода в теплоносителе с пределами по количеству дефектных твэлов. Конференция молодых специалистов «Инновации в Атомной энергетике», АО «НИКИЭТ», Москва, 1-3 октября 2019г.
3. Краюшкин А.В., Смирнова А.К. Анализ расчетов выхода радионуклидов под оболочку твэлов при тяжелых авариях с разогревом топлива. XXV Международная научно-техническая конференция студентов и аспирантов

«Радиоэлектроника, электротехника и энергетика». Тезисы докладов НИУ МЭИ, Москва, 2019.

4. Смирнова А.К., Краюшкин А.В. Модернизация программы CHAIN для расчета выхода радионуклидов из топлива. Международная конференция молодых специалистов, ученых и аспирантов по физике ядерных реакторов Волга-2020, 7-11 сентября, 2020.
5. Смирнова А.К., Краюшкин А.В. Программа для расчета выходов радионуклидов из топлива при авариях CHAIN-2. Тезисы докладов VIII Всероссийского с международным участием молодежного научного форума «Open Science 2021», Гатчина, 17-19 ноября 2021.
6. А.В. Краюшкин, А.К. Смирнова, И.А. Тупотилов. Анализ возможности возникновения повторной критичности в ходе тяжелой аварии на реакторах РБМК. Тезисы докладов VIII Всероссийского с международным участием молодежного научного форума «Open Science 2021», Гатчина, 17-19 ноября 2021 года.

Публикации в научных журналах:

7. Бабайцев В.Н., Гераскин И.Н., Краюшкин А.В., Смирнова А.К. Применение диффузионной модели для расчета выхода радионуклидов из топлива. Журнал ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 2019, вып. 1. С. 74-82.
8. Krayushkin A.V., Smirnova A. K. Interrelation of the iodine-activity limit in RBMK coolant and the number of defective fuel pins, Atomic Energy, Vol. 128, No. 3, July, 2020.
9. Smirnova A.K., Krayushkin A. V. Modernization of the CHAIN code for fission gas release calculation, Journal of Physics: Conference Series 1689, 2020.
10. Бабайцев В.Н., Краюшкин А.В., Смирнова А.К., Тупотилов И.А. Запроектная авария с полным обесточиванием на реакторах типа РБМК. Журнал ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов (в редакции).
11. Давыдова Г.Б., Краюшкин А.В., Смирнова А.К. Оценка массы топлива в кладке РБМК в результате возможной аварии. Журнал ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 2023, вып. 5 (в редакции).

По результатам работы получено 3 свидетельства о РИД:

12. Давыдова Г.Б., Захарова Л.Н., Краюшкин А.В., Смирнова А.К. Программа расчета изотопного состава и радиационных характеристик «CHAIN». Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2019614450 от 04 апреля 2019 г.
13. Давыдова Г.Б., Краюшкин А.В., Смирнова А.К. Программа расчета изотопного состава и выходов радионуклидов из топлива «CHAIN-2». Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2021663748, дата регистрации 23.08.2021 г.
14. Краюшкин А.В., Смирнова А.К., Тупотилов И.А., Захарова Л.Н., Гераскин И.Н. Модин А.А. Программа для моделирования тяжелой аварии на РБМК «СТЕРАН-Т», свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2021663745, дата регистрации 13.08.2021 г.